KEK 放射光
Conceptual Design Report (CDR)
ver. 1.1

2017 年 5 月 22 日

この CDR は，現時点における KEK 放射光の概念設計をまとめたものです。
設計の内容は今後，日本の放射光科学のグランドデザインに関する議論や，
技術的な検討の進展などを踏まえて，適宜更新する予定です。

緒言

高エネルギー加速器研究機構（KEK）・放射光科学研究施設（フォトンファクトリー：PF）は、1982年の運転開始以来、34年以上にわたって放射光共同利用実験を行ってきました。PFは、日本における中心的な放射光施設の1つとして、長らく放射光科学研究の発展を支え続けてきました。この間、PFリングでは1988年と1997年の2度の大規模な改造と2005年からの挿入光源のアップグレードが、またPF-ARリングでも2002年までに高度化が実施され、放射光施設としての一定の先端性は保たれてきました。しかしながら、現状では世界最先端の高輝度光源に比べると、光源性能の面からは国際的な競争力を失いつつあると言わざるを得ません。このような状況を受け、2014年にはKEK物質構造科学研究所（物構研）の運営会議の下に、PF将来計画検討委員会が設置されました。同委員会は2016年に提出した最終報告書において、これまで放射光将来計画として進めてきたEnergy Recovery Linac（ERL）計画を見直し、短・中期計画と長期計画の中で、それぞれ、蓄積リング型とライナック型の2種類の光源の実現を目指すべきであると結論しています。一方、PFのユーザーコミュニティであるPF User Association（PF-UA）からは、PF-UA白書の中で、世界最先端の蓄積リング型高輝度放射光源の早急な実現が提言されています。本書は、このような経緯により、PF-UAからの全面的な協力の下、ボトムアップの提案を基に作られた最先端放射光施設（KEK放射光）の概念設計書（Conceptual Design Report: CDR）です。PFにおける放射光利用の経験と、KEKのもつ高い加速器技術をはじめとするリソースを最大限に活かした設計になっています。

KEK放射光は、光源性能およびビームライン性能はもちろん、ビームライン群の多様性・立地条件・運営体制・利用形態・経済性・安定性・使い易さなどを含めたトータルパフォーマンスとして、世界最高の放射光施設を目指しています。KEK放射光は、中心的にカバーする100 eV～15 keV のエネルギー領域において、長期間にわたって蓄積リング型放射光源として世界最高のパフォーマンスを維持し、最先端の研究成果を創出し続けることによって世界の放射光科学の発展を先導します。このエネルギー領域をKEK放射光がカバーすることにより、日本の放射光施設群は、真空紫外～硬X線領域の広いエネルギー領域において、世界最高レベルの輝度・コヒーレンスを持つ光を供給することができるようになります。

KEK放射光において新たに展開されるサイエンスとしては、不均質な系（特に不均質性を特徴づける表面・界面）において発現する現象・機能の機構解明が極めて重要です。KEK放射光が提供する高輝度・高コヒーレンスを利用して、ナノスケールの空間分解能、ミリeV オーダーのエネルギー分解能まで測定精度を高めることにより、この機構解明に挑戦します。

光源加速器としては、最新のHMBA（Hybrid Multi Bend Achromat）ラティスを採用し、各セルに長直線部と短直線部を持つ独自の設計となっています。電子エネルギー3 GeV,

周長570 m（20セル）で、水平エミッタンス0.3 nmrad@500mA，輝度10^{21}-10^{22} photons/sec/mrad^2/mm^2/0.1% b.w.@1-10 keVを実現します。また、短直線部においても、輝度は10^{20} 以上@10 keV に到達します。ビームライン数としては最大58 本（長直線部：18本，短直線部：20本，偏向電磁石部：20本）を設置可能であり、最先端のビームを用いた多種多様な研究を展開することができます。

一方、KEK放射光では、先端研究と人材育成のための協働の場として、大学・研究所・企業等の研究者と施設のスタッフが連携し、学部学生・大学院生・若手研究者とともに最先端の研究および実験手法・実験装置の開発を行います。実際に現場で試行錯誤しながら研究・開発を行うことを通して、日本の未来を支える人材を、学術界から産業界にわたって幅広く育成することを目指しています。

KEK放射光では、学術界から産業界にわたる全ての研究者に対して開かれた共同利用研究を推進する必要があります。また、最先端の光源性能と独創的な発想に基づく新たな測定手法の開発を推進できる環境を整えるとともに、そうした開発を経て確立された測定手法については自動測定を積極的に導入して、高スループット・即応体制を実現します。そのために、フロンティア利用・オンデマンド利用・トレーニング利用の3階層を基本とする柔軟な利用形態を構築して共同利用を行うことを計画しています。これらの利用形態に加えて、光学系・実験手法・実験装置の開発を行うためのビームラインやビームタイムを確保することにより、常に最先端の測定手法を開拓し、開発した測定手法を速やかに一般的な利用実験へ移行することが重要であると考えています。

本CDRは、昨年10月に公開しましたCDR ver.1を加筆・修正したもので、現時点におけるKEK放射光の概念設計をまとめたものです。今後、日本放射光学会からの専門的なご意見、放射光科学研究施設諮問委員会（PF-SAC）の下に開催されたMachine Advisory Committeeの提言、その他より広範囲からのご意見を頂くことにより、更なる検討と改訂を進めていきたいと考えています。したがって、具体的な設計につきましては、日本全体の放射光科学のグランドデザインに関する議論や技術的な検討の進展などを踏まえて、適宜、更新していく予定です。このような着実な努力を積み重ねることにより、KEK放射光の確実な実現を目指して前進していく所存です。

本 CDR の作成に際しまして、PF-UA の KEK 放射光検討委員会を始めとしてコミュニティからの多大なるご協力を頂きました。ご尽力を頂いた全ての皆様に、心より感謝を申し上げます。

高エネルギー加速器研究機構
放射光科学研究施設長　村上洋一
2017 年 5 月

目次

１．	次世代放射光施設の必要性	1
２．	KEK 放射光のコンセプトと概要	9
３．	施設運営	21
４．	人材育成	29
５．	サイエンスケース	37
６．	産業利用	337
７．	光源加速器	367
８．	ビームライン技術	571
９．	測定技術	687
１０．	建設の予算と期間	711

詳細目次

１．　次世代放射光施設の必要性　1
　１．　はじめに　3
　２．　PF の現状　3
　３．　コミュニティの期待　6
　４．　おわりに　7

２．　KEK 放射光のコンセプトと概要　9
　１．　KEK 放射光のコンセプト　11
　２．　計画の概要　12
　　2-1.　サイエンス　12
　　2-2.　人材育成　13
　　2-3.　施設運営　14
　　2-4.　光源加速器　15
　　2-5.　ビームラインと測定技術　16
　　2-6.　マルチビーム利用　18
　　2-7.　建設地　18
　　2-8.　コストと建設に要する期間　19

３．　施設運営　21
　１．　はじめに　23
　２．　利用形態と運営体制　23
　　2-1.　利用形態　23
　　2-2.　運営体制　24
　３．　リサーチコンプレックス　26

４．　人材育成　29
　１．　はじめに　31
　２．　人材育成のポイント　31
　　2-1.　放射光関連の新技術の開発や装置の高度化を担う人材の育成　31
　　2-2.　サイエンスの推進やイノベーションの創出を担う人材の育成　32
　　2-3.　サイエンスコミュニティのリーダーとなる人材の育成　32
　３．　人材育成に必要な環境と制度　32
　　3-1.　十分なビームタイムの確保　32
　　3-2.　教育スタッフの充実　32
　　3-3.　国内外の放射光施設との連携　33
　　3-4.　異分野交流の促進　34
　　3-5.　地域の特性を活かした取り組み　34
　４．　教育対象の拡大　35

５．　サイエンスケース　37
　１．　はじめに　39
　２．　KEK 放射光が拓くサイエンス　40
　３．　化学・材料科学　53
　　3-1.　空間 & 時間のマルチスケール観察による機能性材料研究の新展開　54
　　3-2.　高空間分解能による磁性材料分野の研究の新展開　57
　　3-3.　高い時空間分解能の実現による光触媒・人工光合成研究の新展開　61
　　3-4.　不均一電極反応の可視化による二次電池研究の新展開　64
　　3-5.　時間分解 XAFS 法による有機太陽電池・光触媒研究の新展開　66
　　3-6.　コヒーレントＸ線イメージングによるナノ・メゾ機能性材料研究の新展開　70

3-7.　ナノ集光ビームによる誘電体材料研究の新展開　73
3-8.　非線形非弾性Ｘ線散乱による物性物理研究の新展開　76
3-9.　蛍光Ｘ線ホログラフィー法による構造・機能材料研究の新展開　79
3-10.　社会インフラ・構造材料のマルチスケール観察による材料特性制御　81
3-11.　DXAFS 法による改質触媒、光触媒研究の新展開　85
3-12.　次世代 XAFS 法によるサステナブル触媒研究の新展開　87
3-13.　硬Ｘ線発光分光・非弾性散乱によって期待される物質・材料科学の展開　90
3-14.　燃料電池研究の新展開　94
４．　生命科学　98
4-1.　細胞の運命決定を担う超分子複合体の立体構造解析　100
4-2.　膜タンパク質巨大複合体の立体構造解析　103
4-3.　医学創薬研究のための生体高分子の構造学的基盤研究　106
4-4.　原子レベル動的立体構造解析を基盤とした酵素反応機構の解明　109
4-5.　個から集団の理解へ：動的構造解析による細胞内分子集団ネットワークの網羅的解析　112
4-6.　放射線ストレスに対する量子効果に基づくゲノム安定化機構の解明　115
4-7.　新しい放射線治療を目指した細胞応答メカニズムの研究　119
4-8.　Ｘ線イメージング—医学応用を中心に　121
4-9.　射光Ｘ線顕微鏡を用いた脳神経回路配線図の解読　128
4-10.　骨科学～形態形成と修復　130
4-11.　軟Ｘ線発光分光：電子論に立脚した生命科学の構築　133
4-12.　筋収縮の理解に向けた筋内の微細構造変化の観測　136
4-13.　放射光Ｘ線の医学応用：微量元素異常疾患の高精度診断　139
５．　ソフトマター科学　144
5-1.　石油資源からバイオベースマテリアルへの転換を目指して：
異常Ｘ線小角散乱によって解明する未踏破ソフトマター構造解析　146
5-2.　ソフトマターの時空間階層ゆらぎの解析　148
5-3.　複雑系ソフトマター構造の時空間ゆらぎを放射光で見る ～見かけ倒しか本物か、見極める！～　150
5-4.　アクティブマターの運動と構造　153
5-5.　分光的小角散乱及び小角高角散乱によるナノスケールでの化学状態・局所構造分布の解明　156
5-6.　GI-SAXS 法を活用した界面の構造ダイナミクス解析に基づく界面反応過程の解明　159
5-7.　材料の破壊を予測し高性能化・信頼性獲得に貢献する！
～Ｘ線ナノビーム・回折トモグラフィーによる物質の破壊現象の解明　163
5-8.　生体分子ネットワークの変化から生命の仕組みを探る
～光ピンセットを利用したＸ線散乱で探る、分解酵素による膜の破壊過程　165
5-9.　美肌のサイエンス～放射光利用研究で化粧品も貼り薬も画期的な製剤開発が可能に！　167
６．　強相関電子系科学　171
6-1.　準粒子の波動関数と固有エネルギーの解明　173
6-2.　不均質系の機能発現機構　176
6-3.　本質的な不均一性を示す強相関電子系の電子状態研究の新展開　179
6-4.　コヒーレント共鳴軟Ｘ線回折による磁気テクスチャダイナミクスの観測　182
6-5.　マルチフェロイックスにおける動的交差相関物性の微視的解明　185
6-6.　強相関エレクトロニクスの開発に向けた電子・構造物性を同時に解明する複合放射光実験　187
6-7.　硬Ｘ線光電子顕微鏡による強相関デバイス研究　190
6-8.　強相関酸化物デバイスの表面・界面物性：高輝度放射光による多自由度一括解析にむけて　192
6-9.　光渦を用いた新しい観測手法による強相関電子物性研究の新展開　194
７．　表面・界面科学　197
7-1.　表面・界面における原子移動の時空間構造研究　199
7-2.　固液界面におけるエネルギー変換反応のオペランドＸ線解析　202
7-3.　時間分解Ｘ線反射率・回折法による表面・界面・薄膜不可逆過程の追跡　205
7-4.　走査型大気圧光電子分光による表面反応のオペランド観測　208
7-5.　太陽エネルギー変換材料表面における時空間キャリアダイナミクス　211

7-6. 局在電子状態の原子分解能イメージングと特異励起状態の選択的創成 214
7-7. 単原子シートの開拓とデバイス展開 217
7-8. スピン・バレートロニクスデバイスの実現に向けた新奇スピン偏極電子バンド構造解析 220
7-9. 3 次元空間を伝わるスピンのダイナミクスの観察と制御 223
7-10. 時間分解Ｘ線磁気円二色性測定によるレーザー励起磁化反転機構の解明 226
7-11. 表面・界面における格子歪が及ぼす電子・磁気状態の精密測定と操作 229
7-12. 表面の局所原子・電子構造の時空間分解測定 232
7-13. 時間分解コヒーレント散乱ビームラインの建設とダイナミクス研究 236
８． 原子・分子科学 240
8-1. サイズ選別した孤立クラスターに対する時分割Ｘ線吸収分光測定 242
8-2. 強いレーザー場中の原子・分子・クラスターの電子的構造とダイナミクスの解明 244
8-3. 内殻二重空孔状態の精密分光による新しい化学分析法の創出 246
8-4. Cold Electron Collision 微分断面積測定実験 248
8-5. 回折限界光源で探る光渦と原子分子の相互作用 250
8-6. 2 光子角度・偏光相関測定による解離原子ペアのもつれ診断 252
９．極限物性科学 255
9-1. 多重極限（高圧力・低温 / 高温・強磁場）環境下でのサブ nm 及び数十 ns 分解能を有する核共鳴散乱法を用いた電子・フォノン物性研究 256
9-2. 衝撃圧縮下における不均一状態の観察 259
9-3. テラパスカル下での構造解析を目指したナノビーム利用と超高密度水素および水素化合物の超伝導状態の解明 262
9-4. 高圧下での多次元分解非弾性分光法による軽元素物質科学の新展開 265
9-5. 超高圧試料中の重要元素とその化学状態の高分解能 3D イメージング 268
9-6. 高温高圧下におけるメルトの相転移と粘性の変化 270
9-7. Ｘ線光子相関分光（XPCS）法で見る高圧下の相転移近傍における異常拡散 272
9-8. 高精細 XAFS イメージングによるフルイドーケイ酸塩間の元素分配の高圧下その場観察 274
9-9. 高圧変形その場観察による固体物質の応力場・配向性測定とレオロジーの理解 277
9-10. 超高圧下における結晶構造と電子密度分布解析：単結晶Ｘ線法によるアプロー 280
9-11. 高輝度ナノ集光ビームによる高圧下円二色性測定 283
10. 地球惑星・環境科学 287
10-1. Ｘ線顕微測定による太陽系の物質進化過程の解明 288
10-2. 4 次元Ｘ線イメージングによる火山噴火素過程の解明 291
10-3. 鉱物表面／流体界面の構造・物性から読み解く地球表層のダイナミクス 293
10-4. 地球内部・表層環境進化史の精密理解のための多元素状態分析 296
10-5. 資源探査・開発に向けた極微量元素の化学状態観察と循環過程の解明 298
10-6. 気候変動の機構解明と将来予測への貢献 301
10-7. 高空間分解Ｘ線顕微鏡による環境微生物学の新展開 303
10-8. 植物を利用した環境浄化や資源回収 305
10-9. 放射光 XRF-XAFS を用いた生体組織中微量金属元素の分布と化学状態評価および微量金属の生体影響の解明 308
10-10. 福島環境回復を目指した放射光研究 312
10-11. 次期光源における食品科学 ～ナノビームを用いた極低濃度元素の化学状態、局所構造分析～ 314
11. Ｘ線光学 318
11-1. 先端的Ｘ線波面計測 319
11-2. 先端的Ｘ線結晶光学素子 322
11-3. リング型Ｘ線干渉計とＸ線の蓄積 324
11-4. マルチコントラスト・マルチスケールの関心領域Ｘ線イメージング 327
11-5. Ｘ線反射率法を用いた先端的光学素子・測定法の開発 330
11-6. 半導体素子等のナノスケールひずみ・欠陥解析 332
11-7. ピンポイントＸ線トポグラフィ 334

６．　産業利用 337
１．はじめに 339
２．産業界における創薬と新しい放射光施設の必要性 340
３．Ｘ線位相イメージングによる高機能性材料の非破壊 3 次元観察 342
４．蓄電池動作中の界面・電解質挙動のオペランド高精細観察 344
５．ガスハイドレートおよび氷の微細構造の可視化 348
６．産業利用に着目したＸ線トポグラフィへの期待 350
７．Ⅲ - Ⅴ族窒化物光半導体デバイスにおける 10 nm 領域の光物性解明に向けた高空間分解・高時間分解Ｘ線複合評価 354
８．電極中のナノスケール多次元不均一状態観察の新展開 357
９．マイクロおよびナノビーム測定による外部因子印加時の製品の状態変化解析 359
10. 金属材料のミクロ組織平均物性の予測による材料設計 363
11. 産業利用の観点から見た磁性材料の放射光利用における期待と課題 364

７．　光源加速器 367
１．KEK 放射光計画の光源加速器の概要 369
２．蓄積リングのラティスとオプティクス，ビームダイナミクス 372
2-1.　リングのラティスと基本パラメータ 372
2-2.　リングのオプティクス 380
2-3.　ダイナミックアパーチャ 382
2-4.　RF 電圧と Bucket Height 386
2-5.　バンチ内散乱の効果 387
2-6.　電磁石の強さと設計 390
2-6-1.　進行方向に勾配のある偏向電磁石 390
2-6-2.　機能結合型偏向電磁石 394
2-6-3.　4 極電磁石 398
2-6-4.　6 極電磁石 400
2-7.　チューンシフトと色収差 402
2-8.　BPM とステアリングの配置 404
2-9.　誤差の影響 405
2-10.　入射スキーム 417
2-11.　抵抗性インピーダンスの影響 418
2-11-1. ウェーク場とインピーダンス 418
2-11-2. 抵抗性インピーダンスによる発熱 418
2-11-3. 抵抗性インピーダンスによるバンチ結合型ビーム不安定性 421
2-11-4. 真空封止アンジュレータ銅シートの厚みについて 426
2-11-5. NEG コーティングの影響 427
３．高周波加速システム 432
3-1.　概要 432
3-2.　高周波システムに必要な機能 433
3-3.　RF 周波数と常伝導・超伝導空洞の選択 435
3-4.　高周波システムの概念設計 437
3-5.　加速空洞 441
3-6.　高次モードによるバンチ結合型不安定性 443
3-7.　ローレベル RF 系 449
3-8.　大電力高周波源 450
3-9.　高調波空洞 453
3-10.　まとめ 457
４．真空システム 460
4-1.　概要 460
4-2.　ビームダクトの設計指針 460

4-2-1. 超高真空状態の保持 460
4-2-2. 放射光パワーの吸収 462
4-2-3. ビームの誘起する電磁場の伝送 465
4-2-4. 電磁石磁場の伝達 465
4-2-5. 超高真空を長期間保持する機械的強度 465
4-2-6. 放射線の遮蔽 466
4-2-7. ビームの高い位置精度と安定度の実現 467
4-2-8. 現場ベーキングへの対応 468
4-2-9. ビームダクト設計のまとめ 468
4-3. ビーム寿命と要求圧力 472
4-3-1. 圧力とビーム寿命の関係 472
4-3-2. 圧力分布と涸れの予測 474
4-4. 低インピーダンスコンポーネント 479
4-4-1. HOM 励起によるパワーロス 479
4-4-2. 低インピーダンス化対策 480
4-5. イオントラッピングとダストトラッピング 483
4-5-1. イオントラッピング 483
4-5-2. ダストトラッピング 485
4-5-2-1. ビーム寿命急落現象 485
4-5-2-2. ダストの発生源 485
4-5-2-3. 力学的に安定なトラップ条件 486
4-5-2-4. 熱的に安定なトラップ条件 486
５．制御システム 489
5-1. 概要 489
5-2. ハードウェア構成 491
5-3. Timing 493
5-4. High Level Application / GUI 493
5-5. Archiver と運転ログ 495
5-6. 安全系 496
5-7. 情報共有・プロジェクト管理 497
６．診断システム 499
6-1. はじめに 499
6-2. ビーム位置モニター（BPM） 499
6-3. BPM 信号処理回路 502
6-4. 軌道フィードバック 505
6-5. 個別バンチフィードバック 506
6-6. 放射光モニター 510
6-7. その他のモニター 512
７．挿入光源 514
7-1. はじめに 514
7-2. Ｘ線アンジュレータ（UL20N30，UL20N250） 521
7-3. 軟Ｘ線可変偏光型アンジュレータ（UL48N104） 523
7-4. VUV アンジュレータ（UL160N31） 525
7-5. 偏向部およびウィグラー 527
7-6. 本計画の光源性能 529
7-6-1. PF および PF-AR，SPring-8 との比較 529
7-6-2. 最新の 3GeV リング NSLS-II および MAX-IV との比較 531
7-7. 光源性能のさらなる可能性 533
7-7-1. 高輝度短周期アンジュレータの可能性（UL12N416） 533
7-7-2. CPMU および SCU の可能性 535
7-7-3. 直線部の長さに関して 537

８．放射光ビームライン基幹チャンネル（フロントエンド） 539
8-1.　概要 539
8-2.　熱負荷対策 540
8-3.　放射線防護 542
8-4.　真空防護 542
8-4-1. 蓄積リング真空を保護する役割 542
8-4-2. ベリリウム窓 543
8-5.　設置精度 543
8-6.　まとめ 544
９．建物・設備 545
9-1.　建物の配置・構成 545
9-2.　電気・機械設備 549
9-2-1. 電気設備 549
9-2-1-1. 特別高圧変電設備 550
9-2-1-2. 高圧変電設備 552
9-2-1-3. 供給電力 552
9-2-1-4. その他の電気設備 552
9-2-2. 機械設備 552
9-2-2-1. 熱源設備 552
9-2-2-2. 空調換気設備 552
9-2-2-3. 冷却水設備 553
9-2-2-4. 給排水設備 553
9-2-2-5. 消火設備 553
9-3.　建物床の振動測定 555
9-4.　光源棟の基礎構造と床構造の検討 558
9-4-1. 基礎構造の検討 558
9-4-2. 床構造の検討 561
9-4-3. 床スラブ下のボイドの有効性検討 562
9-4-4. 地盤調査計画 563
9-4-5. 床構造と上部建屋基礎部の分離・一体化に関する検討 563

８．　ビームライン技術 571
１．はじめに 573
２．ビームライン光学系デザイン 576
2-1.　硬Ｘ線ビームラインの光学系デザイン 577
2-2.　空紫外・軟Ｘ線ビームラインの光学系デザイン 582
2-3.　マイクロ・ナノ集光ビームを達成するための光学系と光学素子 591
2-4.　軟Ｘ線・硬Ｘ線ハイブリッドビームラインの検討 607
2-5.　スポットサイズ可変ビームラインの検討 611
2-6.　ミラーのスロープエラーおよび機械的振動の影響 615
2-7.　床振動の影響の検討 622
３．光学素子開発 625
3-1.　光学素子に対する熱負荷評価及び冷却方法の検討 625
3-2.　光学素子の振動を抑制する設計の検討 641
3-3.　光学素子表面精度の評価システム 645
４．ビームライン設備 648
4-1.　光学・実験ハッチおよび恒温ブース 648
4-2.　液体窒素、冷却水、各種ガスの利用 650
4-3.　電力供給 652
５．ビーム制御技術 653
5-1.　ビーム位置安定性制御 653

5-2.　環境測定データとの連携システム　657
5-3.　ビーム特性制御　658
5-4.　統合ビームライン制御　659
６．真空系開発　661
6-1.　高排気速度長寿命低コスト非蒸発ゲッター（NEG）ポンプの開発　661
6-2.　高排気速度長寿命低コスト非蒸発ゲッター（NEG）コーティングの開発　664
6-3.　真空紫外軟Ｘ線ビームライン用標準真空システム　664
6-4.　硬Ｘ線ビームライン用標準真空システム　667
6-5.　ビームライン最上流部の真空コンポーネント　669
6-6.　真空ポンプの防振、排熱対策、放射線対策　670
6-7.　光学素子の炭素汚染除去法　672
７．インフラ施設　675
7-1.　実験ホール床構造　675
7-2.　熱源設備　675
7-3.　冷却水（循環水）供給　676
7-4.　実験ホール空調　677
7-5.　寒剤・ガス供給ライン　677
7-6.　ガス排気ダクト　677
7-7.　電気設備　677
7-8.　ネットワーク設備　678
7-9.　側室環境、中尺実験ホール　678
８．安全設備　679
8-1.　遮蔽　679
8-2.　インターロック系　680
8-3.　ビームラインインターロックシステム設置の効率化　685

９．　測定技術　687
１．はじめに　689
1-1.　何を開発するか　689
1-2.　どのように開発を進めるか　691
２．SOI 技術を用いたピクセル検出器開発　692
３．原子層レベルの深さ分解能を実現する角度分解型軟Ｘ線・電子検出器の高速高感度化　696
４．SiTCP によるデータ収集システムの高速化と効率化　699
５．超高速時間分解 XAFS のための位置敏感検出器の開発　705

１０．建設の予算と期間　711
１．建設に要する費用　713
1-1.　蓄積リング　713
1-2.　入射器（入射系）　713
1-3.　ビームライン　714
1-4.　建物，設備，建設用地　714
1-5.　加速器 R&D 経費　714
２．建設に要する期間　715

（附録）KEK 放射光検討委員会名簿

１．次世代放射光施設の必要性

１．はじめに

物質・生命科学における最も重要な課題の一つは，それらの機能の発現機構を解明することであり，その根源は，個々の化学結合の結果としての原子配列からさらに大きなスケールへと階層的に広がる「構造」と，様々な物理的，化学的性質をつかさどる「電子状態」にある。したがって，構造と電子状態を観察するための強力なプローブである放射光は，物質・生命科学の推進において欠くことのできない役割を果たしている。さらに，構造と電子状態の観察に基づいて機能の発現機構を理解することによって，より高い機能性を有する新たな物質の創製が可能になる。最近の研究から，物質や生命体においては，多くの場合，構造と電子状態がナノスケールで不均質な状態をとり，ミリ eV (meV)オーダーのエネルギーによってその機能が制御されることが明らかになりつつある。このため，構造と電子状態を観察するのに適した 100 eV から 15 keV 程度のエネルギー領域を中心的にカバーし，様々な試料に対して 10 nm 以下の空間分解能を実現するとともに，特に電子状態に敏感な軟 X 線領域において 10 meV 以下のエネルギー分解能で分光学的な測定が行える，最先端の放射光施設が必要不可欠である。

このような放射光施設の実現は，物質・生命の機能の根源を解明したいという，人類の知的好奇心に基づく学術研究における壮大な夢の実現に向けた大きな一歩となる。また，学術界や産業界における様々な研究者が放射光施設に集い，研究・開発を通じて交流することによって，学術研究のみならず，それに源を発する形でのイノベーションの創出を可能にし，産業の発展はもちろん，環境やエネルギーといった地球規模の課題の解決へとつながっていく。このように，次世代放射光施設は，日本の誇る自然科学や先進科学技術をさらに発展させ，人類の幸福を実現するために不可欠な基盤施設であり，その実現が強く求められている。

２．PF の現状

フォトンファクトリー(PF)は，1982 年に運転を開始し，翌 1983 年には共同利用実験に供された。これによって日本における X 線領域を含む放射光利用が本格的に始まり，放射光科学に精通した先駆的な研究者によって，先端的な放射光利用実験が行われた。その結果，放射光の特長を活かした独創的な研究成果が次々と発表され，放射光が自然科学における様々な分野に応用できる極めて有用なツールであることが認識されるようになった。中でも，放射光を用いた X 線回折法によってリボソームの構造からタンパク質合成の仕組みを解明し，2009 年にノーベル化学賞を受賞した Ada Yonath 氏をはじめとして，PF における放射光利用研究が，直接・間接的に複数のノーベル賞受賞に貢献していることは特筆に値する。2016 年のノーベル医学生理学賞を受賞したオートファジーに関しても，受賞者の大隅氏との共同研究として，PF における構造解析によってオートファジーのしくみに分

子構造から迫る研究がいくつもなされている。また，PF においては学術研究と同時に，産業界を主たる対象として施設利用(有償利用)制度が設けられるとともに，運転開始から間もない 1980 年代の段階で，企業の専用ビームラインが建設されている。こうして放射光に強い関心を持つ産業界の研究者による放射光利用研究が進められるとともに，放射光の産業利用を支える人材を育成し，国内の他施設における産業利用の拡大に大きな役割を果たした。

このように産学ともに放射光に強い関心を持つ研究者によって始められた放射光利用研究は，今日では物理学や化学，生物学，地球惑星科学などの基礎科学分野から，材料科学やエネルギー科学，環境科学，創薬科学などの応用科学分野，さらには産業利用の分野へと大幅に拡大し，学術界から産業界にわたる多くの研究者にとって，放射光は日常的かつ必要不可欠なツールとなっている。ここ 10 年以上にわたって，PF の利用者は年間 3,000 人以上(そのうち国外および企業の研究者はそれぞれ 1 割程度)を維持しており，登録論文数は年間 600 報程度である。これまでの登録論文数の累計は 16,000 報以上，博士・修士論文の登録数の累計は 2,600 報程度におよぶ。2015 年現在，Photon Factory User Association (PF-UA；2012 年 4 月に，それまでの PF 懇談会を改組して設立された，PF の全ユーザーを代表する正式な組織）の会員数は約 3,400 人に達している。最近は，元素戦略プロジェクト，戦略的イノベーション創造プログラム(SIP)，創薬等支援技術基盤プラットフォーム，先端研究基盤共用・プラットフォーム形成事業など，国の研究開発事業への取り組みも数多く行われており，学術および科学技術の振興に貢献している。また，PF は新しいアイディアに基づく試行的，萌芽的な実験も推奨しており，そのための新たな実験装置の持ち込みを積極的に受け入れている。これは，オリジナリティのある研究を展開する上で極めて重要な点であり，これまでにいくつもの新たな研究手法が PF から生まれてきている。また，PF で行った試行的実験が，他施設における新しい研究手法・研究分野の開花へとつながった例も少なくない。例えば，真空封止アンジュレータや，波長分散型 X 線吸収分光法の開発，共鳴 X 線散乱法(共鳴磁気散乱を含む)を用いた構造物性研究などが挙げられる。

PF では運転開始から現在までの間に，より高度な放射光利用研究を実現するために，1988 年と 1997 年の 2 度にわたってリングの大規模な改造が行われ，高輝度化が進められてきた。更に，2005 年からの PF リングの直線部増強計画においては，既存の直線部の長さを延長するとともに，新たに挿入光源が設置可能な短直線部を設ける改造が行われ，2014 年までにすべての直線部に挿入光源が設置された。また，PF-AR では 2002 年に高度化改造計画が完了し，常時単バンチ運転を行う世界的にもユニークな蓄積リングとして，時間分解実験などの特徴的な利用研究が行われている。しかしながら，これらのアップグレードを経ても，PF リングと PF-AR リングの水平エミッタンスはそれぞれ，35 nmrad と 290 nmrad であり，世界最先端の高輝度光源に比べて 2 桁から 3 桁劣っている。残念ながら，光源性能の面からは，PF は国際的な競争力を失いつつあると言わざるを得ない。最近，

PF リングの大規模な改造が検討されたが，現在の建屋(周長 187 m)を用いる限り，水平エミッタンスを 8 nmrad 程度までしか下げることができないことが判明した。また，PF リング，PF-AR リングは，両リングの運転や実験を支えるインフラとともに老朽化が深刻となっており，これらを維持するだけでも多大な予算が必要な状況になっている。さらに，この数年における電気料金の高騰と予算の減少による運転時間不足(ユーザー利用時間として年間 3,000 時間程度を確保することさえも困難)や，慢性的なマンパワー不足などの問題も深刻である。

この間に PF では,2005 年に次期光源検討委員会を設置し,技術的な課題はあるものの,エミッタンス 10 pmrad，パルス幅 100 fs といった先端的な放射光を多数のビームラインで利用できると期待される 5 GeV の ERL を将来光源として選択した。翌 2006 年には ERL 計画推進室が発足し,2007 年に実証機であるコンパクト ERL(cERL)の CDR が作成された。cERL は，2008 年よりインフラ整備が始まり，2010 年には技術評価を受けて建設が始まった。予算やマンパワーの不足などにより，当初の計画よりも大幅に遅れているが，2015 年度までに低電荷での性能チェックが概ね完了し，ほぼ目標通りの性能が達成されている。一方で，100 mA クラスの大電流を生成する電子源，電子を高勾配で加速するためのフィールドエミッション対策が施された超伝導空洞など，今後に向けて解決すべき課題が残されていることも明らかになってきた。なお，実機としての ERL については，2011 年の第 5 回 ERL 推進会議において、軟 X 線領域の強化や建設経費の軽減などを理由にエネルギーが 5 GeV から 3 GeV に変更され，2012 年に 3 GeV ERL の CDR が作成されている。

このような状況を受け，2014 年に物構研運営会議の下に PF 将来計画検討委員会が設置された。ERL 計画については，大電流化などの残された開発要素があり，さらに，技術面が解決されても，現状ではコスト面の問題が深刻であること，および蓄積リング型の性能が ERL 計画策定時に比べ飛躍的に向上していることが確認された。こうした状況の分析を踏まえ，PF 将来計画検討委員会は，2016 年 3 月の最終報告書において，KEK は ERL 計画を見直し,その理念である放射光利用の多様性と先端性を,短・中期計画と長期計画の中で,蓄積リング型（多様性と ERL 計画に迫る輝度が可能にする先端性）とライナック型（ERL 計画を上回る究極の先端性）の二種類の光源により実現していくべきであるとの結論に達した[1]。これを受けて KEK では，KEK ロードマップのうち放射光科学に関する部分の改訂を行った[2]。このロードマップには，ERL 計画を中止し，3 GeV クラスの蓄積リング型放射光源計画を進めることが明記されている。また，ロードマップの改訂を受けて，2016 年 7 月から 9 月にかけて，KEK 外の委員 6 名からなる ERL 総括委員会が開催され，9 月 7 日に報告書が提出された[3]。この報告書では主に，当初 ERL を PF の将来計画に決めた経緯，実証機としての cERL の位置づけ，および ERL を PF の将来計画にはしないという結論について，それぞれの段階における判断が妥当だったか，また，どのような問題があったのかが，詳細に述べられている。

３．コミュニティの期待

日本放射光学会は，2013 年度に日本学術会議が公募を行ったマスタープラン 2014 に対し，「新しい時代の科学技術立国を支える放射光科学の高輝度光源計画」を提案し，この提案は同会議における重点大型計画の一つに選定された[4]。その概要は，「物質・生命科学の更なる発展を目指し，低コスト建設，省エネルギー運転を設計基本思想に取り入れた低エミッタンス運転と挿入光源を基本とした 3 GeV クラス高輝度放射光施設の早急な建設・運転開始を提案する」というものである。これを受けて 2014 年 10 月には日本学術会議の公開シンポジウム「中型高輝度放射光源に期待するこれからの科学技術」が開催され，ソフト・ナノ界面科学，電子・磁気デバイス科学，生命科学など，科学・技術の広範な分野の研究基盤としての 3 GeV クラス放射光源の必要性が認識された[5]。

さらに，文部科学省の科学技術・学術政策局は，2014 年 6 月に次世代放射光施設検討ワーキンググループを設置した。翌年 4 月にまとめられた報告書では，各放射光施設の特色を活かした機能分散型の施設間アライアンスを形成し，幅広い光源性能・利用者層・利用形態をカバーすることで，運営面の課題も含めて柔軟かつ機動的に対応していくことが重要あること，また，次世代の放射光利用環境の整備に必要となる光源性能としては，既存の先端大型放射光施設のアップグレード版における最先端の硬Ｘ線光源や，軟Ｘ線領域に強みを持つ中型高輝度光源が有力な候補となることなどが述べられている[6]。

さらに,PF-UA は 2014 年度に,PF-UA 白書「PF および日本の放射光科学の将来への提言」を公表している[7]。この白書における主な提言は以下の通りである。

- 放射光利用の量的・質的イノベーションを先導し，世界の放射光科学をリードするためには，十分な輝度を持ちナノメートル領域まで光を絞り込める蓄積リング型の新しい高輝度放射光源とそれを効率的に運営する次世代放射光施設を早急に建設する必要がある。
- 次世代放射光施設では，従来の大学共同利用と共用促進法による利用の各々の長所と短所を考慮しながら，新しい共同利用体制を構築することが必要である。
- 日本の放射光科学が今後も世界を先導していくためには，全国の放射光施設を有機的なネットワーク（放射光協働ネットワーク）で結び，PF と SPring-8 がそのネットワークのハブとしての役割を果たす体制を早急に構築する必要がある。また，ネットワーク全体を俯瞰して舵取りを行うための組織（サイエンスボード）の設置が必要である。

なお，日本学術会議は 2015 年度に再び，マスタープラン 2017 の公募を行い，これに対して日本放射光学会は継続して「新しい時代の科学技術立国を支える放射光科学の高輝度光源計画」を提案した。この提案の骨子はマスタープラン 2014 への提案と同じく，3 GeV クラス高輝度放射光施設の早急な建設・運転開始を求めるものである。

このような，マスタープランへの提案や PF-UA からの提言によって示されたコミュニティからの期待に応えるためには，世界最先端の低エミッタンス・高輝度といった光源性能を有する次世代放射光施設の実現はもちろん，その性能を活かすためのビームライン技術および測定技術，そして最先端の研究や手法開発を推進するとともに，継続的な技術開発を行うことができる運営体制が必須である。さらに共同利用の観点からは，様々なサイエンスを展開する多くの研究者からなるコミュニティの要望に基づいて，ボトムアップ型の研究・開発が推進できるという大学共同利用の長所と，学術界から産業界にまたがる広範な利用研究を統一的に推進できるという共用促進法の利点を活かした運営を目指すべきである。また，日本国内の放射光施設の協働ネットワークを機能させるために，放射光施設間の人的交流や技術交流を促進し，サイエンスおよび放射光技術における開かれたネットワークを形成する必要がある。

４．おわりに

KEK は，物質・生命科学を中心とする学術研究の発展とイノベーション創出における次世代放射光施設の重要性，現在の PF および日本の放射光施設の現状，そしてコミュニティからの強い期待に鑑み，30 年以上にわたる PF における放射光利用の経験と，KEK のもつ高い加速器技術をはじめとするリソースを最大限に活かして，特に軟Ｘ線領域に強みをもつ，最先端の次世代放射光施設(KEK 放射光)の創設を目指している。本 CDR はその概念設計をまとめたものである。

現在，世界では水平エミッタンス 1 nmrad を切る 3 GeV クラスの高輝度光源が次々と建設・計画され，NSLS-II，MAX-IV はすでに運転を開始している。さらに，自然エミッタンスで 0.1 nmrad を切るような光源が，アジアを含めた多くの国々で提案されつつある。このような状況において，我が国が国際競争力を維持し，放射光科学およびそれを利用した物質・生命科学においてリーダーシップを発揮するために，KEK 放射光の実現が必要不可欠である。

参考資料

[1]http://www2.kek.jp/imss/notice/2016/08/191200.html
[2]http://www.kek.jp/ja/About/OrganizationOverview/Assessment/Roadmap/roadmap2013-J_1.pdf
[3]https://www.kek.jp/ja/About/OrganizationOverview/Assessment/ResearchAccount/2016/10/12/ERL2016.pdf
[4]http://www.scj.go.jp/ja/info/kohyo/pdf/kohyo-22-t188-1.pdf
[5]https://www.jstage.jst.go.jp/browse/tits/20/5/_contents/-char/ja/
[6]http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/chousa/gijyutu/022/houkoku/1357455.htm
[7]http://pfwww2.kek.jp/pfua/katsudo/20150205.htm

２．KEK 放射光のコンセプトと概要

１．KEK 放射光のコンセプト

これまで PF は 30 年以上にわたって，大学共同利用を主たるミッションとし，放射光利用研究のための最先端の基盤技術を開発するとともに，国内外の大学，研究機関，および企業の数多くの研究者に対して放射光利用研究の場を提供してきた。このような技術開発と利用研究によって，学術界および産業界において独創的かつ先端的な研究成果を創出するとともに，先端的な研究を行うことのできる優れた人材の育成にも貢献してきた。その中で，放射光科学の発展にともない，放射光利用のあり方は大きく変化してきた。従来の大学共同利用の利点を活かしつつ，大型先端施設の役割を最大限に発揮するためには，放射光施設が最先端の放射光科学という学術の発展に留まらず，将来を担う人材の育成，科学技術，イノベーションを支える共通基盤としての役割を果たすことが求められている。以上を踏まえ，放射光科学における KEK のミッションを以下のように整理することができる。

(1) **学術研究**：放射光科学を牽引する国際的中核拠点として，国内外の優れた研究者を結集して先端的な放射光利用研究を推進し，独創的かつ先端的な研究成果を創出する。

(2) **人材育成**：先端的な放射光利用研究および放射光利用教育プログラムを通して，高度な研究活動を行うことのできる人材を学術界から産業界にわたる広い範囲において育成する。また，放射光を用いた実験技術を開発・整備し，放射光利用研究を支援することのできる人材や，放射光をツールとして使いこなして研究を行うことのできる人材を輩出する。

(3) **社会貢献**：リサーチコンプレックスを核として，学術界から産業界にわたる多様な研究者が集い，互いに交流することによって，学術研究の展開に源を発する形でイノベーションを創出することのできる場を提供する。さらに，放射光を利用した研究の成果を様々な形で社会に公開し還元することで，持続可能な社会の構築に貢献する。

すなわち，KEK は最先端の学術研究と人材育成を重視し，放射光を利用した物質・生命科学のフロンティアを開拓するとともに，学術界から産業界にわたる全ての研究者の様々なニーズに応える使いやすい先端的ビームを供給し，多種多様な放射光利用研究を推進することを通じて社会に貢献しなければならない。KEK 放射光のコンセプトは以下の通りである。

- **世界最高レベルの高輝度放射光を用いてトップサイエンスを創出するとともに，最先端の研究・開発を通して，日本の未来を支える人材を学術界から産業界にわたって幅広く育成する。**
- **我が国に不可欠な先端基盤研究施設として，トップサイエンスに端を発する幅広い研究を展開し，多種多様な学術研究および産業応用研究を支える。**

これを実現するためにKEK放射光は，光源性能およびビームライン性能（拡張性や発展性を含む）はもちろん，ビームライン群の多様性，立地条件，運営体制，利用形態，経済性，安定性，使い易さなどを含めたトータルパフォーマンス（総合性能）として，世界最高の放射光施設を目指している。KEK放射光は，中心的にカバーする100 eV～15 keVのエネルギー領域（特に，回折限界光源の条件を満たす真空紫外～軟Ｘ線の領域）において，20-30年以上の長期間にわたって，蓄積リング型放射光源として世界最高のパフォーマンスを維持し，最先端の研究成果を創出し続けることによって世界の放射光科学の発展を先導する。このエネルギー領域をKEK放射光がカバーすることにより，日本の放射光施設群は，真空紫外～硬Ｘ線領域の広いエネルギー領域において，世界最高レベルの輝度・コヒーレンスを持つ光を供給することができるようになる。以下に本計画の概要をまとめる。

２．計画の概要

2-1. サイエンス

KEK放射光において新たに展開されるサイエンスとして最も重要なものの一つが，機能の起源の解明，すなわち，主に不均質な系（特に不均質性を特徴づける界面）において発現する現象や機能に関する，構造と電子状態の研究である。放射光科学においては，これまでの30年にわたって，均質な系（特に周期的な繰り返し構造を持つ結晶）を主な研究対象として，Ｘ線回折法による構造決定や分光法による電子状態決定を中心にサイエンスが展開されてきた。この間，放射光源の高輝度化によって，研究対象となる試料の大きさは数ミリメートルから数ミクロンへと拡張されてきたが，KEK放射光は，飛躍的な性能の向上によって，様々な分野における多様な研究対象に対して，ナノスケールで不均質な構造と電子状態の本格的な観察を，初めて可能にするものである。特に，電子状態を観察するのに適した真空紫外から軟Ｘ線の領域をカバーすることによって，物質・生命の示す現象や機能の発現をつかさどる電子状態に関して，ナノスケールの空間分解能に加えて，ミリeVオーダーのエネルギー領域での測定をも可能にする点が大きな特長である。また，KEK放射光では十分なコヒーレンス成分を持つ軟Ｘ線・Ｘ線を供給することができるので，コヒーレンスを利用した先端的なイメージング手法（コヒーレント回折イメージングやタイコグラフィなど）を用いることにより，ビームサイズの微小化に頼ることなく，ナノスケールで不均質な構造を観測することができる。物質・生命科学における研究対象としての不均質系は，これまで主に研究されてきた均質系と比べて圧倒的に種類が多いのは言うまでもないが，それらの示す現象や機能の多彩さと発現機構の複雑さを考えると，その理解のためにはこれまでとは質的に異なる研究手法を開拓していくことが必要不可欠である。また，結晶のように元来は均質な物質であっても，電子状態がナノスケールで不均質になっていたり，さらにはその状態が時間とともに変化したりする場合があり，こうした不均

質性は機能の発現に本質的な役割を果たしていると考えられる。したがって，伝統的な均質系の研究においても，KEK 放射光における画期的な空間・エネルギー分解能の向上により，新たな展開が期待できる。

例えば，エネルギーや環境問題に取り組むために不可欠な電池材料においては，実際に機能が発現している状態でその機能を担う本質的な“階層構造（三次元ヘテロ構造）”をつきとめることが不可欠である。不均一に進行する反応条件の中で，機能を担う本質的な“階層構造”を見つけるためには，実際の動作環境（電気化学ポテンシャル）において，拡散現象が支配する数 nm 以下の空間分解能での三次元観察によって，電池材料の化学状態および電子状態をイメージングすることが必要となる。そのための計測手法として最有力と考えられるタイコグラフィにおいては，最終的にはコヒーレントフラックスが測定時間を決める。KEK 放射光によって 10 keV において 10^{12} photons/s 程度のコヒーレントフラックスが得られれば，科学的に意味のある一連の測定を現実的な時間で行うことが可能になる。

また，様々な化学反応を効率的に進行させるために必須な触媒材料においては，反応の進行とともに触媒表面に存在する反応物質の種類と量が，その空間的な分布も含めて時々刻々と変化していく。それぞれの化学種はしばしば，数 10 nm のスケールで不均質なドメインを形成し，ドメインの界面において中間体を生成しながら反応が進行することが多い。また，あるサイトで活性化された反応種が，表面を移動して別のサイトで反応するといった物質コミュニケーションも，反応を進行させるのに本質的な役割を果たしていると考えられる。したがって，反応の本質を理解するためには，時間だけではなく空間も同時に分解して反応を追跡する必要がある。しかも，こうした化学反応は頻繁な繰り返しが困難なため，いわゆるポンプ・アンド・プローブ法による時間分解測定法が適用できないことが多い。このような，繰り返しによらずに時空間を同時に分解した測定を行うには，ビームや試料を走査せずに 2 次元イメージが得られるコヒーレント回折イメージングが最も適しているが，この場合も最終的にはコヒーレントフラックスが空間分解能と測定時間を決める。特に重要なのは，空間分解能を確保するために測定時間を長くすると，その間に反応が進行して化学種の空間分布が変化してしまうために，空間分解能が意味を失ってしまうという点である。KEK 放射光では 1 keV において 10^{11} photons/s 以上のコヒーレントフラックスが得られるため，実際の反応の時間スケールで時空間分解測定を行うことができると期待される。

このように，KEK 放射光が切り開く不均質な構造と電子状態の研究は，これからの 30 年，あるいはそれ以上の期間，物質・生命科学の最先端を走り続けることができると期待される。KEK 放射光は，放射光科学の多様性を拡充し，物質・生命における機能起源の解明という普遍的な価値を創造するために必要不可欠な光である。

2-2. 人材育成

KEK 放射光では，先端研究と人材育成のための協働の場として，大学・研究所・企業等

の研究者と施設のスタッフが連携し，学部学生・大学院生・若手研究者とともに最先端の研究および実験手法・装置の開発を行う。科学技術立国を国策として掲げる日本の発展，ひいては地球規模の人類の持続可能な発展に資するために，KEK 放射光における研究・開発を通して，以下に示すような人材を，学術界から産業界にわたって幅広く育成する。

・放射光関連の新技術の開発や装置の高度化を担う人材
・サイエンスの推進やイノベーションの創出を担う人材
・サイエンスコミュニティのリーダーとなる人材

また，中学・高校の生徒や教員，放射光未経験の産業界の研究者などに対して，広く教育を行うことで，放射光科学および物質・生命科学の底上げを図る。

このような人材の育成に必要な環境・制度として，さまざまな利用形態における十分なビームタイムの確保，および放射光の専門家，大学・研究所・企業の研究者といった教育スタッフの充実が必須である。さらに，様々な分野の研究者が集まる放射光施設の特性を活かした異分野交流の促進や，地域の特性を活かした取り組みも行う。なお，これらの施策のうち，現行施設（PF）で実施可能なことは前倒しで進めるが，省エネルギー設計による長時間運転の実現や，最先端の光源性能を活かした研究・開発における人材育成など，KEK 放射光の実現なしには進められないことも多い。

2-3. 施設運営

KEK 放射光では，先に整理した放射光科学における KEK のミッションを遂行し，国際的中核拠点として世界をリードするに相応しい放射光利用を展開するために，新しい利用形態と運営体制を実現して，充実した研究環境を提供するとともに人材育成に貢献する。さらに，KEK 放射光の機能を最大限に発揮させて日本の将来を支えるため，近隣の教育・研究機関や企業の研究所とともに「リサーチコンプレックス」を形成し，その中核施設としての役割を果たす。

利用形態については，学術界から産業界にわたる全ての研究者に対して開かれた共同利用研究を推進するとともに，最先端の光源性能と独創的な発想に基づく新たな実験技術，測定手法の開発を推進できる環境を整える必要がある。さらに，開発を経て確立された測定手法については自動測定を積極的に導入して，高スループット，即応体制を実現する。そのために，新しい測定手法の開発や新分野の開拓などを中心とした「フロンティア利用」，それぞれの時点で確立された測定手法に対してビームタイムを随時配分する「オンデマンド利用」(メールインサービスを含む)，そして放射光科学の普及と人材育成を目指した「トレーニング利用」，の 3 階層を基本とする柔軟な利用形態を構築して共同利用を行う。

KEK 放射光は，最大で 58 本のビームラインを有する最先端の大型放射光施設であり，学術研究と人材育成を主なミッションとしつつ，先端基盤研究施設として幅広い学術研究および産業応用研究を支えるものである。また，省エネ設計により，低コストで年間 6000 時間の運転を目指している。これらを実現するためには，現有の組織や人員にとらわれな

い運営体制の構築が必須である。KEK 放射光においては，KEK が直接運営するビームラインは 25 本程度とし，ビームライン当たり最低 2 名の専属スタッフを確保する。この他に自動化によるルーチン測定を基本とするビームラインを 5-10 本程度設置するとともに，大学，研究機関，企業，地方自治体，国プロなどと KEK との連携によるビームラインを設置することを計画している。さらに，統一的な考え方に基づいて施設全体の運営を行うために，主に利用研究の推進を担当し，物質・生命科学を先導する「学術研究系」，主にビームラインの建設と高度化を担当し，高い専門性を活かして統一的な考え方のもとで施設全体の技術開発を支える「基盤技術系」，ユーザー運営ビームラインや大学・研究機関・企業などのサテライト研究室を主宰する「客員研究系」，そして主に光源の維持管理と高度化を担当する「光源加速器系」，の 4 系を中心とする運営体制とする。

2-4. 光源加速器

KEK 放射光の光源加速器は，最新の HMBA（Hybrid Multi Bend Achromat）ラティスを採用し，各セルに長直線部と短直線部を持つ独自の設計である。電子エネルギー3 GeV，周長 570 m（20 セル）で，水平エミッタンス 0.3 nmrad@500mA，輝度 10^{21}-10^{22} photons/sec/mrad^2/mm^2/0.1%b.w. @1-10 keV を実現する。また，短直線部においても，輝度は 10^{20} 以上@10 keV に到達する。ビームライン数としては最大 58 本（長直線部 : 18 本，短直線部 : 20 本，偏向電磁石部 : 20 本）を設置可能であり，最先端のビームを用いた多種多様な研究を展開することができる。将来的には，高調波加速空洞を用いて電子ビームのバンチ長を 3-5 倍に伸ばし，バンチ内散乱を抑制することによって，水平エミッタンス 0.15 nmrad 以下を目指す。入射に関しては，KEK の既存の線形加速器（LINAC）を利用して 3 GeV の電子を直接入射する方式と，小型の線形加速器とブースターシンクロトロンを新規に製作して利用する方式の 2 種類を検討している。

これらの性能を実現するために必要とされる加速器技術のうち主要な部分については，世界における先端的な放射光施設の建設を通して確立されているが，それらに新設計の Longitudinal Gradient Bend，ユニットセル中央に設けた短直線部に短周期真空封止アンジュレータを設置するなど KEK 独自のアイディアを加えることによって，さらに高い性能を追求している。なお，建設予算を節減するために周長を 440 m（16 セル）程度にしたとしても，水平エミッタンス 0.4 nmrad，ビームライン数 46 本（長直線部 : 14 本，短直線部 : 16 本，偏向電磁石部 : 16 本）が可能であり，長直線部における輝度は 10^{21} 以上に到達する。

KEK 放射光の自然水平エミッタンス 0.13 nmrad は，現在世界で稼働しているリングと比較して最小の値となっている。世界初の Multi-Bend Achromat(MBA)リングとして 2014 年から立ち上げ調整が行われているスウェーデン MAX-IV (3 GeV, 520 m)の 0.31 nmrad よりもさらに小さい。1990 年代から 2000 年代にかけて数多く作られ稼働している第三世代リングのエミッタンスは 3-6 nmrad に集中している。2014 年，2015 年に相次いで完成した台湾の TPS(3 GeV,518 m)，米国の NSLS-II (3 GeV, 792 m)は多くの第三世代リングと

同じ Double Bend Achromat (DBA) ラテティスを採用し，自然エミッタンスは双方とも約 2 nmrad である。NSLS-II は複数のダンピングウィグラーを導入して，最終的にエミッタンスを 0.55 nmrad まで下げる計画である。HMBA ラティスを考案した ESRF-II（6 GeV,844 m）は KEK 放射光とほぼ同じ 0.14 nmrad のエミッタンスを掲げ，2018 年から現行リングの改造に入り 2020 年にユーザー運転を再開する計画である。現行第三世代リングの改造案としては, 英国の Diamond-II(3 GeV, 562 m, 0.12 nmrad), スイスの SLS-2(2.4 GeV, 287 m, 0.1-0.15 nmrad)などが提案されている。大型の放射光施設としては，0.1 nmrad を下回る極低エミッタンスリングも，米国の APS-Upgrade(6 GeV,1100 m, 65 pmrad)，中国の北京放射光(6 GeV, 1300 m, 60 pmrad)などで提案されている。しかしこれらの極低エミッタンスリングを実現するには開発段階にある新しい入射方式の採用が不可欠である。KEK 放射光は確立された方式での入射が可能であり，かつ世界最高レベルのエミッタンスと VUV から 10 keV 領域にわたって世界最高レベルの高輝度放射光を発生できる光源である。

2-5. ビームラインと測定技術

KEK 放射光で得られる高輝度ビームの安定・安全かつ広範な利用を実現するためには，高度なビームライン技術が必須である。特に重要なキーワードは, ナノ集光ビーム（~10 nm），高エネルギー分解能ビーム（ΔE ~10 meV@1 keV），そして高輝度光源の最大の特長であるフルコヒーレントビームである。これらの利用において課題となるのが外部要因による変動であり，特に振動対策と熱負荷対策が重要である。振動対策については，構造計算に基づく基礎構造や床構造の設計，振動を伝播しにくい光学素子架台や小型ホルダー・チェンバーの製作，振動源となる真空ポンプや空調設備，制御機器等の切り離しを行う。熱負荷に関しては，FEA 解析による熱変形の見積もりから，VUV-SX ビームラインでは第一ミラーの熱変形が，硬 X 線ビームラインでは分光器第一結晶の熱負荷が深刻であることがわかっており，それぞれ液体窒素冷却あるいは直接冷却のミラーシステムの導入，フィルターの活用を検討している。ただし，変形を完全に抑えることはできないので，ビームの波面計測や光学素子表面の変形の光学的な計測に基づく，補正ミラー光学系によるフィードバックを検討する。

さらに，外的・技術的要因によるビーム性能の劣化を最小限に抑えるために，仮想光源とコンパクトな最終集光系をベースとした光学系デザインを採用する。仮想光源スリットや発散角制限スリットでビームを適切に制御することで，上流部の変動の影響を下流の最終集光系に伝播しないようにするとともに，縮小光学系を組むことで試料位置でのビーム位置の変位を最小限にできる。また，最終光学系をコンパクトにして試料と同じステージに搭載することで，光学系と試料位置の相対位置変動を抑えることができるとともに，光学素子の小型化によって高い表面精度が達成できる。また，KEK 放射光から得られる光のコヒーレント成分は 1 keV において 10%，10 keV において 1%程度であり，フルコヒーレント光を利用するためには何らかの形で光を切り出す必要があるが，発散角制限スリット

や仮想光源を用いることで，効率的かつ安定にフルコヒーレント光が得られる。

ビームライン光学系については，2 keV 以下の真空紫外～軟X線領域においては，2005年頃に PF で開発され，この 10 年の間に国内外の放射光施設の軟X線ビームラインで相次いで採用されてきた，可変偏角型の不等刻線間隔平面回折格子分光器を基本とする。標準的なエネルギー分解能は 1 keV において 50 meV, 高分解能に重点をおいたビームラインでは 1 keV において 10 meV, それより低いエネルギーにおいてはさらに高い分解能を達成できる。集光に関しては，長直線部において K-B 集光光学系を用いることで，ビームサイズ 50 nm におけるフラックスが 10^{11} photons/s 以上と見積もられる（エネルギー分解能 50 meV の場合)。一方でコヒーレンスを重視した光学系を用いることで，コヒーレントフラックスは 10^{11} photons/s 以上が期待できる（同上)。より微小なビームサイズの実現については，ゾーンプレートを使用することによって少なくとも 25 nm 程度は容易に達成できる。実際，現在の PF においてさえも，フラックスは低いものの，25 nm 程度の集光が実現されている。さらに，集光ミラーやゾーンプレートの製作技術の向上によって，10 nm 程度のビームサイズが達成できると期待される。特に，ゾーンプレートに関してはすでに，軟X線領域において 12 nm 程度の集光が可能なゾーンプレートの製作が報告されている。

2 keV 以上の硬X線領域においては, 冷却効率を考慮したインクラインド結晶分光器を採用する。標準的なエネルギー分解能は 10 keV において 1.3 eV，高分解能分光器を用いることで 50 meV が期待される。長直線部において K-B 集光光学系を用いることで，ビームサイズ 50 nm におけるフラックスは 10^{12} photons/s 以上と見積もられる（エネルギー分解能 1.3 eV の場合)。一方，コヒーレンスを重視した光学系では，10^{12} photons/s 程度のコヒーレントフラックスが期待できる（同上)。ビームサイズについては，極めて精密に加工した多層膜ミラーを用いることによって 10 nm 以下が見込まれる。一方，ゾーンプレートを使用することによっても 25 nm 以下，将来的にはゾーンプレートの製作技術の向上によって 10 nm 程度が期待される。その他にも屈折レンズの利用など，エネルギーや用途に応じて様々な集光技術の利用が考えられる。

なお既に述べた通り，10 nm 以下の空間分解能を実現するには，ビームサイズを小さくする方法の他に，コヒーレンスを活かしたイメージング手法の利用が重要である。この場合，高い空間分解能を実現するには高いコヒーレントフラックスが必須になる。上述のように KEK 放射光におけるコヒーレントフラックスは 10^{11} -10^{12} photons/s が見込まれており，10 nm 以下の空間分解能を達成できると期待される。

測定技術に関しては，様々な先端的な実験手法に合わせてそれぞれ最適化を行う。特に検出器に関しては，高速・高感度・高精細・大面積といった性能を一度に実現することは，短期的には難しいため，まずはサイエンスを実現するためのそれぞれの実験手法に特化した開発を行う。また，比較的確立された実験手法に関しては，試料の導入から，位置合わせ，測定条件の最適化などの一連の作業を自動化し，高スループット化を実現する。

2-6. マルチビーム利用

KEK 放射光計画が実現し，世界最高レベルの放射光施設が実現することによって，既に世界最高レベルにある J-PARC での中性子・ミュオン（東海キャンパス）や，整備が進みつつある低速陽電子(つくばキャンパス)との相補的・協奏的利用が，より有効になる。KEK 物構研は，量子ビーム科学の世界的研究拠点として，世界最高レベルの複数の量子ビームを利用することより，物質の構造と電子状態に関する先端的研究を先導し，物質・生命の機能発現機構を解明するとともに，機能性材料の性能向上を図る。また，これらの量子ビーム制御技術を進展させ，各施設の安定的な利用体制を確立し，これを広く国内外の研究者に開放することによって，物質・生命科学の多様な研究と幅広い教育の場を提供する。

マルチビーム利用においては，それぞれの量子ビームをより先鋭化させ，その適用限界を拡げることによって，各量子ビームが“カバーする領域”が重なり合うような方向で，新しいサイエンスの創成を目指すことが重要である。一方で，日常的な分析ツールとしての利用についても，KEK 物構研がもつ 4 つの量子ビームと，それ以外の手法（電子顕微鏡や NMR など）との積極的な連携により，量子ビーム利用法の質的転換とその適用範囲の拡大を図ることが必要である。これらのバランスをうまく取りながら，マルチビーム利用の有効活用を図り，先導的研究・先端的共同利用研究の拠点形成および人材育成を行っていく。

2-7. 建設地

建設サイトは，性能，コスト，運営，利用など様々な観点を考慮して選定されるべきである。以下に，そのために考慮すべき要件を示す。

・周長が数 100 m 規模の蓄積リングを有する放射光施設および必要な周辺設備等を建設できる土地
・高輝度・高コヒーレンスを実現するための安定性（地盤，建屋，周辺の振動源など）
・建設および研究を支える施設（放射線管理，電気設備，空調・冷却設備，計算機，寒剤供給，機械工作，会議室，講演会場など）
・共同利用を支援する施設（宿泊，食事，ユーザー受入れなど）
・全国の大学・国研・企業，および海外からのアクセス
・教育研究機関や企業との連携

これらの要件に対し，現状での対応の可否，および対応のために必要なコストと時間を検討した上で，長期間にわたって高い性能およびアクティビティを維持でき，しかも，できるだけ短期間かつ低コストで建設および利用実験の開始が可能なサイトを選定する必要がある。本デザインレポートでは，下記の理由により，KEK つくばキャンパスを想定して設計・検討を行う。

KEK の敷地内には，周長 570 m 程度の蓄積リングを新たに建設できる土地があり，宿泊施設・食堂・図書館・会議室・ホールなどの施設もそのまま利用できる。また，KEK 内の

共通基盤施設（放射線科学・計算科学・超伝導低温工学・機械工学の各センター）の研究資源，および事務体制（ユーザーズオフィス，放射線管理室，管理局：研究協力部・施設部・総務部など，広報，情報資料，知財，産学連携など）が活用できる。立地条件に関しては，つくばキャンパスは教育・研究機関の集中する東京・関東圏からのアクセスが比較的良い上に，圏央道の開通および高速バスの運行によって成田国際空港までの所要時間は 1 時間となっており，海外や国内遠隔地からのアクセスも容易である（近年，成田空港発着の国内便が増加している）。また，つくば地区には多くの教育研究機関や企業の研究所が存在し，それらの機関との連携も容易である。KEK はすでに，TIA として，産総研，物材機構，筑波大学，および東京大学との連携を行っている。さらに，KEK 物構研が有する量子ビーム施設のうち，低速陽電子施設はつくばキャンパスに，中性子とミュオン施設は東海キャンパス（J-PARC）に存在し，KEK 放射光がつくばに建設されれば，上述のように複数のプローブを連携して相補的に利用することによる相乗効果が期待できる。

一方，つくばキャンパスは関東ローム層の上にあるために，地盤が強固な地域に比べると 0.1-10 Hz 帯域の振動が大きい。ただしこのような振動は，かなりの部分がコヒーレントな成分（建物全体が同じように振動するもの）であり，それだけであれば性能には影響しない。残されたインコヒーレント成分に対しては，建物や架台によって不用意に振動を増幅することがないように注意深く設計を行うとともに，光源加速器については電子ビーム位置モニタを用いたフィードバックを行う。さらにビームラインについても，仮想光源の利用によって，試料位置におけるビーム位置やビームサイズに対する振動の影響を取り除くとともに，試料に到達するビーム強度を確保するために，光モニタを用いた光源加速器およびミラーに対するフィードバックを行う。

2-8. コストと建設に要する期間

建屋, 光源加速器, 入射路（既存の線形加速器を利用する場合）, および当初設置する 10-15 本のビームライン（挿入光源やコンポーネントの一部は現在の PF から移設する）を含めた建設費は，概算で 350 億円と見積もっている。運転のための消費電力は，既存の入射器を Super KEKB と共有する場合の負担分を含めて 6 MW 程度である。現在の PF と PF-AR の消費電力の合計は 11 MW 程度であるため，KEK 放射光を年間 6,000 時間の運転をした場合でも，現在の PF と PF-AR の運転経費(運転時間は 4,000 時間以下)と比較して，年間 3 億円程度の電力料金を抑制できる。抑制した光熱水量は，世界標準に比べて極端に貧弱な利用支援体制の強化に充当できる可能性がある。KEK 放射光全体としての運転経費は，KEK スタッフの人件費を除いて年間 25 億円と見積もっており，そのうち 5 億円程度を利用料収入で賄うことを目標とする。すなわち，低消費電力化による運転コストの削減効果と適切な収入により，現在の 1.5 倍におよぶ年間 6,000 時間の運転を，現在よりも少ない予算で実現することが可能である。

光源棟の建屋(電気設備，機械設備を含む)の建設には，実施設計に 1 年，建設に 2 年半～

3 年程度，合わせて 3 年半～4 年の期間を要すると見込まれる。光源加速器と入射路は，設計，製作に 3 年あまり，設置に約 1 年，その後の加速器のコミッショニングに半年程度と見込まれ，全体としては製作開始から 5 年目に放射光ビーム利用が開始できると見込まれる。初期設置のビームラインについても，3 年あまりで設計，製作を行い，加速器にあまり遅れることなく設置を進め，5 年後のビーム利用開始に合わせて稼働できる見込みである。

３．施設運営

１．　はじめに

日本初のX線領域を含む本格的な放射光実験の共同利用施設として，PFは1982年に運転を開始した。放射光利用研究のための最先端の基盤技術を開発するとともに，当初より産業界にも門戸を開き，国内外の数多くの研究者に対して放射光利用研究の場を提供してきた。PFは，このような技術開発と利用研究によって，学術界および産業界において独創的かつ先端的な研究成果を創出するとともに，先端的な研究を行うことのできる優れた人材の育成にも貢献してきた。しかしながら，時代とともに，実験装置の高度化，物質・生命科学の各分野の細分化，大学の法人化を契機とした大学の孤立と大学間の競争激化などが進み，多くの分野で，施設スタッフとユーザーの間に，実験装置・手法を「開発・整備する人」と「利用する人」という役割分担が明確化してきている。こうした役割分担は，放射光科学の成熟にともなう必然的な流れであり，放射光をツールとして利用して定常的に研究成果を挙げるには効率的であるが，放射光を用いた新たな測定手法による，独創的かつ先端的な研究成果の創出という観点からは問題も多い。

KEK放射光では，前章で整理した放射光科学におけるKEKのミッションを遂行し，国際的中核拠点として世界をリードするに相応しい放射光利用を展開するために，新しい利用形態と運営体制を実現して，充実した研究環境を提供するとともに人材育成に貢献する。更に，KEK放射光の機能を最大限に発揮させて日本の将来を支えるため，近隣の教育・研究機関や企業の研究所とともに「リサーチコンプレックス」を形成し，その中核施設としての役割を果たす。

２．利用形態と運営体制

2-1. 利用形態

KEK放射光では，学術界から産業界にわたる全ての研究者に対して開かれた21世紀に相応しい共同利用研究を推進する必要がある。また，最先端の光源性能と独創的な発想に基づく新たな実験技術，測定手法の開発を推進できる環境を整えるとともに，そうした開発を経て確立された測定手法については自動測定を積極的に導入して，高スループット，即応体制を実現する。さらに，有償で測定を代行するメールインサービスを導入し，その収入で運転時間やマンパワーの一部を確保するなどの工夫も検討する。そのために，以下の3階層を基本とする柔軟な利用形態を構築して共同利用を行う。

フロンティア利用：

従来の学術研究利用をベースとし，学術研究（大学・大学院教育等による人材育成を含む）における，新しい測定手法の開発や新分野の開拓などを中心とした利用形態。必要に応じて，大学・研究機関等との密接な共同研究を行う。ビームタイム配分はピアレビ

ューによる評価に基づいて行い，特に挑戦的な研究や放射光科学の発展に資する研究を奨励する。開発的な研究を効率よく行うために，比較的長めの課題有効期間（2-3 年程度）とする。成果は公開，利用は無料とする。このような利用形態を実現するためには，ビーム性能として先端的であることはもちろん，新しい測定手法に柔軟に対応するために，光源およびビームラインにおいて，実験に応じた新たな技術を積極的に取り入れていく必要がある。

オンデマンド利用：

学術研究の中でも物質開発に重点をおいた研究や，産業応用等における物質の評価測定のための利用を想定した利用形態。それぞれの時点で確立されている高度な実験手法を用いて，自動測定などを活用した高スループット測定を行う。ビームタイム申請を随時受け付け，審査は安全面のみとすることによってビームタイム配分を迅速に行う。光熱水料や消耗品など，実験に必要な経費を賄える程度の利用料を設定する。成果公開と成果非公開を選択可とし，非公開の場合には利用料を加算する。さらに，利用者が来所せずに試料のみを送付する，メールインサービスを実施する。測定に必要な人件費等の費用を利用料に加算する。このような利用形態においては，測定の継続性と結果の一貫性を確保するために，安定したビーム仕様が必須である。そのために急激な変更や試行的な改造は避け，他のビームラインで十分に確立された技術を導入することによって，比較的緩やかな高度化を行う。

トレーニング利用：

放射光科学の普及と人材育成を目指した利用形態。トライアル利用も含まれる。KEK をはじめとする放射光施設のスタッフや，放射光を利用した研究・開発を行っているユーザーが講師を務める。大学生・大学院生の受講者については，所属機関の判断で単位を認定することを可能とする。大学以外の研究機関や企業からの参加も積極的に受け入れる。放射光新興国への技術指導も実施する。

更に，これらの利用形態に加えて，光学系，実験手法，実験装置の開発を行うためのビームラインやビームタイムを確保することで，常に最先端の測定手法を開拓し，開発した測定手法は速やかに一般的な利用実験へ移行する。

2-2. 運営体制

KEK 放射光は，最大で 58 本のビームラインを有する最先端の大型放射光施設であり，それらを最大限に活用して，学術研究と人材育成を主なミッションとしつつ，先端基盤研究施設として幅広い学術研究および産業応用研究を支えるものである。省エネ設計により，低コストで年間 6000 時間の運転を目指す。また，長期停止期間も最小限に留める。豊富なビームライン群と十分なビームタイムは，サイエンスとイノベーションにおけるセレンディピティの観点からも重要である。

これを実現するためには，現有の組織や人員にとらわれない運営体制の構築が必須である。当然, KEK 内での組織改編や人員の再配置が必要となるが, それと同様に重要なのが, 大学，研究機関，企業などとの密接な連携である。最先端のビームラインを活用するためには，最低 2 名の専属スタッフ（ビームライン担当者）が必須であり，仮に PF の現有の人員（ビームラインや利用研究を担当する放射光科学研究系，放射光源を担当する加速器第 7 系における常勤職員数として，それぞれ 85 名，35 名程度）を想定した場合，KEK が直接運営するビームラインは 25 本程度とするのが妥当である。この他に，自動化によるルーチン測定を基本とするビームラインを 5-10 本程度設置することを計画しているが，これらに加えて，大学，研究機関，企業，地方自治体，国プロなどと KEK との連携によるビームラインを設置する。この連携ビームラインの設置は、希望する機関（や団体）からの提案を受け，審査を経て決定する。複数機関の連合体による設置等も可とする。当該機関はその責任のもと，一定期間，連携ビームラインの運営と利用を行う。KEK は必要に応じて支援する。

また，従来のように，一人または少数のビームライン担当者が，それぞれのビームラインの光学系，実験装置からサイエンスまでを一手に引き受けるという運営形態を改善し，統一的な考え方に基づいて施設全体の運営を行う必要がある。KEK 放射光では，以下のような新しい運営体制を構築する。これは，KEK 放射光において最大の成果を創出するとともに，運転や開発に必要な資金の調達能力を強化するために必須である。各研究系においては，職務内容に応じた評価基準を導入する。KEK 放射光は魅力的な職場であり，若手スタッフがキャリアパスを描けるようでなければならない。

学術研究系：

主に利用研究の推進を担当し，物質・生命科学を先導する。リサーチコンプレックス構成機関を中心とするクロスアポイントメント等により大学・研究所・企業と連携して先端的な研究を推進する。また，大学院生や学部学生，および企業の研究者を受託学生や研修生として受け入れ，協力して研究に取り組むことを通して，新たな手法開発や先端的な研究を行うことができる人材を育成する。

基盤技術系：

主にビームラインの建設と高度化を担当し，高い専門性を活かして統一的な考え方のもとで施設全体の技術開発を支える。常に最新のビームライン・測定技術を取り入れるために，他施設との交換プログラム等による連携を行う。なお，基盤技術系のスタッフは技術開発に重点をおき，ルーチン的な維持管理やユーザー支援については，できる限り業務委託等を活用する。

客員研究系：

ユーザー運営ビームラインや大学･研究機関･企業などのサテライト研究室を主宰する。KEK 以外の機関に本務を持つが，KEK スタッフに準じた責任と権利を持ってビームラ

イン，研究室の運営にあたる。連携ビームラインを運営する機関からの教員，研究者等をはじめ，ヘビーユーザー等の参画を想定する。

光源加速器系：

主に光源の維持管理と高度化を担当する。KEK の加速器研究施設に籍を置き，プロジェクトとしての KEK 放射光との併任とする。常に最新の加速器技術を取り入れるために，KEK 内外の施設との交換プログラム等による連携を行う。

これらに加えて，新しい共同利用体制を支えるための担当課を管理局（機構本部）に設置する。共同利用に係る業務の中でも，特に放射光利用のニーズを的確に把握し，成果の最大化を図るための企画部門の役割が重要である。単に既存の利用者を受け入れるだけでなく，フロンティア利用，オンデマンド利用，トレーニング利用など多様な施設利用形態をより有効に活用するために，新しい利用者を積極的に取り込む戦略的な共同利用を展開する。また，KEK 放射光の運営組織を KEK 内の 3 大プロジェクト（放射光，J-PARC，Super KEKB）の一つを担う組織として，KEK の組織体系の中で正式に位置づけることによって，ミッションの円滑な遂行を可能にする。更に，施設の運営に必要な人員を確保するために，KEK 内部の人員再配置はもちろんのこと，多様な組織階層において，リサーチコンプレックスを構成する機関間のクロスアポイントメントや組織間連携を積極的に推進する。

３．リサーチコンプレックス

従来の大学共同利用の利点を活かしつつ，大型先端施設の役割を最大限に発揮するためには，放射光施設が最先端の放射光科学という学術の発展に留まらず，将来を担う人材の育成，科学技術，イノベーションを支える共通基盤としての役割を果たすことが求められている。このような役割を果たすためには，放射光施設が他機関と独立に存在するのではなく，共通研究基盤としての放射光施設を取り囲むように近隣の大学や研究所，産業界が集積した「リサーチコンプレックス」を形成することが効果的である。リサーチコンプレックスでは，大学・研究所・企業における基礎から応用分野の幅広い研究活動に基づき，研究現場で必要となる評価・計測へのニーズをタイムリーに取り込むことのできる有機的な研究連携体制を構築する。この取組みにより，放射光施設を核とする基盤的な研究推進体制を構築する。このようなリサーチコンプレックスにより培われた高度な研究環境は，リサーチコンプレックス内に限定されるものでは全くなく，むしろより広範な研究コミュニティーの研究活動のためのリソースとして幅広い放射光ユーザー層に積極的に還元される。KEK 放射光は，地理的および心理的近接性を最大限に活かしつつ，産学官の境界を感じさせないほどの集積と一体性を実現し，世界的にも魅力的な研究環境を提供する場となることを志向する。

KEK は，現在，産総研，物材機構，筑波大，東大の 4 機関，および，一般社団法人日本経済団体連合会（経団連）とともに，オープンイノベーション拠点 TIA を運営している。KEK 放射光は，TIA および近隣の研究機関が形成するリサーチコンプレックスの中核拠点ともなるべき施設であり， KEK が展開するその他の量子ビーム（中性子、ミュオン、低速陽電子）の施設や連携機関の展開するレーザー, 電子顕微鏡, NMR などの施設とともに，サイエンスとイノベーションを牽引し，将来を支える人材を育成する。なお，KEK 放射光では，KEK が単独で運営にあたることを前提とせず，例えば，連携機関や企業コンソーシアムも出資・参画する形で KEK を幹事機関とする運営コアを形成し，それが運営にあたるような仕組み作りも検討する。

４．人材育成

１．はじめに

放射光科学における KEK のミッションは，学術研究，人材育成，社会貢献にある。本章では，その中から人材育成を取り上げる。21 世紀に相応しい大学共同利用施設として，KEK 放射光が育成すべき人材像を示し，育成のための具体的な方策について述べる。現行施設（PF）で実施可能なことは前倒しで進めるが，KEK 放射光の実現なしには進められないことも多い。

KEK 放射光では，光源やビームライン，実験装置の高度化や研究手法の開発を行い，物質の構造や電子状態の解析により先端的な学術研究を推進してイノベーションの創出に貢献するとともに，放射光科学コミュニティにおける先導的な役割を果たす。KEK 放射光は，科学技術立国を国策として掲げる日本の発展，ひいては地球規模の人類の持続可能な発展に資するため，そこでの教育・研究活動を通じて，以下の人材を育成する。

・放射光関連の新技術の開発や装置の高度化を担う人材
・サイエンスの推進やイノベーションの創出を担う人材
・サイエンスコミュニティのリーダーとなる人材

また，中学・高校の生徒や教員，放射光未経験の産業界の研究者，その他に対して，広く教育を行うことで，放射光科学，物質・生命科学の底上げを図る。

２．人材育成のポイント

2-1. 放射光関連の新技術の開発や装置の高度化を担う人材の育成

放射光の専門家の育成には，光源やビームライン，実験装置の高度化や研究手法の開発を施設スタッフと共同して行い，それにより新しい研究分野の開拓とトップサイエンスの創出を実体験することが重要である。

放射光施設における研究は，光源やビームライン，実験装置の長所・短所を正確に把握することから始まる。学生は，施設スタッフの指導を受けながら実験装置の仕組みを理解・体得して行く一連の過程で，自らの研究テーマに適合するように実験装置をカスタマイズして独創的な研究成果の創出を目指す。施設スタッフは，学生と積極的に議論して実験装置の高度化の提案や研究指導を行う。学生自身が実験装置の高度化あるいはその一端を担うことによって，更なる高度化の必要性が発見されて，実験装置の高度化が加速する。既存の研究手法に満足することなく，自ら積極的に開発・改良していく姿勢が必要である。学生時代を，光源やビームライン，実験装置の高度化や研究手法の開発という研究現場で過ごすことによって，将来の放射光施設の開発・整備を支える人材が育成される。自らが開発した手法により，新しい研究分野を開拓してトップサイエンスを創出するという成功体験は，放射光を利用して先端的な研究分野を切り拓くことができる人材の育成に極めて重要である。加えて，専門分野を越えて世界の放射光科学の最先端の研究に触れることも，放射光施設の開

発・整備を支える人材の育成には必要であり，研究のモチベーションを高める効果をもたらす。

2-2. サイエンスの推進やイノベーションの創出を担う人材の育成

サイエンスの推進やイノベーションの創出を担う人材は，放射光を利用して様々な物質の構造や電子状態を解析することに重点をおいた教育・研究環境で育成される。常に仮説を立てて実験を行い，結果（仮説）を評価して，次の実験にフィードバックする。このプロセスの繰り返し（PDCA サイクル）の中に放射光実験を組み込み，必須の基盤的ツールとして実験装置を使いこなせることは，研究の質を高め，研究の幅を広げる。物質科学や生命科学の専門家となるためには，実験や解析の手法を適切に選択できる能力も重要である。所属する研究室の測定装置だけでなく，放射光施設の様々な種類の装置を存分に利用することは，サイエンスの推進やイノベーションの創出を担う人材に成長する上で有効である。

2-3. サイエンスコミュニティのリーダーとなる人材の育成

リーダーとなる人材には，自身の研究で独創的な成果を挙げるだけでなく，自身の専門分野とその周辺の関連分野を的確に俯瞰し，進むべき方向を先導することが求められる。そのためには，上記 2-1 や 2-2 の人材に求められる能力に加えて，思慮深く的確に将来を予測できる能力と幅広い教養を身に付ける必要がある。

具体的には，自身の研究を進める中で，多くの研究者と積極的に交流し，自身と異なる価値観に触れることが大切である。また，研究分野を先導する研究者の研究スタイルや，大きな組織を統率する研究者の動静をよく観察し，それらを身近なものとして受入れ，自身の中で醸成し，行動に反映させることが重要である。放射光施設は，様々な研究者との交流の場としても機能するので，放射光コミュニティはもとより，広くサイエンスコミュニティの世界的なリーダーとなる人材の育成に貢献する。

３．人材育成に必要な環境と制度

自発的な好奇心と周囲からの期待を動機として人は育つと言われる。無限の可能性をもつ若者が飛躍できる環境や制度を提供することは，教育に携わる者の義務であり責任でもある。ここでは，人材育成に必要な環境や制度についてまとめる。KEK 放射光の先端性が若者のモチベーションを大いに高めることは論をまたない。

3-1. 十分なビームタイムの確保

前節で述べたような人材の育成は，光源やビームライン，実験装置に触れる機会が十分に確保できることを前提とする。集中して研究に没頭できる環境こそが，将来を担う人材の育成の源泉であり，十分にビームタイムを確保する必要がある。試行錯誤や失敗から学ぶこと

は多い。十分な事前準備と十分なビームタイムがそれを可能にする。PF では，予算難から十分な運転時間を確保できていないが，KEK 放射光の省エネ設計はビームタイムの確保に大きく貢献する。

現在，PF では，博士課程の学生が長期的なビジョンを持って主体的に研究を進めるための T 型課題（有効期間：最長 3 年）の制度を設けており，必要な修正を加えた上で KEK 放射光に引き継ぐ。こうした開発や高度化を伴う課題はフロンティア利用の中で実施される（施設運営の章を参照）。前述の PDCA サイクルを機能さるためには，必要とする放射光実験のビームタイムが，1 回あたりの配分は短くて良いものの，タイミングよく確保される必要があり，こうした課題はオンデマンド利用の中で実施される。また，典型的な数種類の放射光実験の手法を習得する機会を持つことも有用であり，そうした実習は，トレーニング利用の中で実施される。KEK 放射光に設置可能なビームラインは最大で 58 本と多く，教育用ビームラインは十分に検討に値する。

3-2. 教育スタッフの充実

十分なビームタイムの確保と同様，教育スタッフの充実も人材育成において極めて重要である。

- 放射光の専門家による指導：　放射光の専門家（施設スタッフ）による直接的な指導は重要である。装置の長所と短所の理解が進み，長所を活かした測定を行い，また，短所を改善して高度化する布石となる。
- 大学・研究所の研究者による指導：　放射光の専門家と大学・研究所の物質・生命科学の専門家（研究対象の試料の専門家）が協力して指導にあたることは，サイエンスの推進やイノベーションの創出を担う人材の育成には欠かせない。
- 企業の研究者による指導：　教育・研究機関だけでなく，産業界の研究者も加わることで，育成される人材が多様化され，企業の即戦力となる人材だけでなく，真に突出した人材の輩出に繋がる。

放射光科学における KEK のミッションは，学術研究，人材育成，社会貢献にあるが，これらを個別に先鋭化させるとともに，有機的に融合させて相乗効果をもたらす体制を構築する必要がある。この考え方は「産業は学問の道場である」という本多光太郎博士の言葉に込められた学問（学術研究・人材育成）と産業（社会貢献）の関係に基づく。学術研究，人材育成，社会貢献を三位一体で考え，新しく締結する連携協定のもと，客員教員やクロスアポイントメントの制度を柔軟に活用して，教育スタッフの充実を図る。特に，企業については，施設と企業の両方を冠した「ジョイント研究室」だけでなく，それを更に発展させて企業が施設内に自社の研究室を設ける「サテライト研究室」の可能性を探る。KEK 放射光の先端性は，教育スタッフの充実のための求心力となる。

3-3. 国内外の放射光施設との連携

国内外の放射光施設と連携し，学生の交換プログラムを実施することを検討する。施設ごとの光源やビームラインの特徴を理解することで，研究目的にあった放射光施設やビームラインを選定する眼を養うことも可能になる。また，普段，自らの利用する装置の長所と短所の理解にも繋がる。加えて，海外の放射光施設での実験を経験することは，それ自体が大きな刺激であり，それぞれの国・地域の教育や研究の環境，文化を肌で知る絶好の機会になる。特に，リーダーとなる人材とって，若い時期にそうした経験をすることは重要である。交換プログラムは，同水準の施設間で行われるのが一般的であり，KEK 放射光の先端性は，連携先の候補を拡大する。

放射光科学の発展途上国への支援にも取り組む必要がある。最近では，我が国が SESAME プロジェクトで果たした役割は大きく，高く評価されている。現在，アフリカ地域やメキシコなどで放射光科学振興の機運が高まっている。特に，南アフリカ共和国は，ESRF の scientific associate となり，アフリカ地域で最も放射光科学に力を入れている国である。このような国・地域での放射光科学振興（教育）や新放射光施設の計画に積極的に関与し，国際的に貢献することも求められている。日本の学生が教員の講義や実習のための渡航に同行すれば，国際社会の中で高等教育を提供する立場が体験でき，普段は教育を受ける側の学生が，日本の教育を俯瞰することのできる絶好の機会ともなる。

3-4. 異分野交流の促進

研究者の育成には，学会などの公式な場における研究の発表や議論も重要であるが，周囲との日々の会話や交流も同様に重要である。放射光施には，様々な分野（の様々な立場）の人が集まるため，放射光施設は異分野交流の場として相応しい。実際，昔を振り返って，PF での「偶然の出会いが研究の幅を広げた」と語る年長者は多い。しかし，今では，残念ながら多くの人にとって，「実験課題を実施するだけ」の場になってしまっている。

放射光コミュニティが成熟を続けて巨大化した現在の状況においては，計画の段階から，異分野交流の促進を目的としたスペースを準備することも大切である。施設運営の章で述べた豊富なビームライン群と十分なビームタイムと同様に，異分野交流もサイエンスとイノベーションにおけるセレンディピティの観点から極めて有効である。KEK 放射光では，例えば，景観にも優れた快適なスペースを全周の 90°ごとに 4 箇所（あるいは玄関を除く 3 箇所）に確保して，カフェ機能などを持たせることなどを検討する。目的に照らして，適切なサイズのスペースとすることも重要である。このような交流を通して，ネットワークが広がる施設，予期しない出会いが独創的な研究成果を産む施設と成り得る。KEK 放射光には，このような交流の場を設ける必要がある。

3-5. 地域の特性を活かした取り組み

KEK 放射光の建設候補地つくばには，多数の教育・研究機関や企業の研究所が集積して

おり，当該地域はライフイノベーションとグリーンイノベーションの推進を掲げた「つくば国際戦略総合特区」（内閣総理大臣認定）に指定されている。特区では，国や地方自治体から規制の緩和を受けることが可能である。例えば，前述の「サテライト研究室」を主宰する企業研究者による正式な教育活動（教員としての活動）を可能にするような規制緩和が認められれば，その意義は大きい。

KEK は，産総研，物材機構，筑波大，東大の 4 機関，および，一般社団法人日本経済団体連合会（経団連）とともに，オープンイノベーション拠点 TIA を運営している。KEK 放射光は，TIA の形成するリサーチコンプレックスの中核拠点ともなるべき施設であり，人材育成の面でも，筑波大や東大との連携を強化することに資する。更に，KEK（と原子力機構）が設置・運営する J-PARC の MLF 施設で教育・研究活動を展開している茨城大との連携の強化にも資するであろう。こうした連携は，KEK の展開する 4 種類（放射光，中性子，ミュオン，低速陽電子）にレーザーなども加えた量子ビーム科学の総合教育を可能にする。

関東圏は，日本最大の学生人口を誇る。教育・研究において，物理的な距離も重要であるので，関東圏唯一の放射光施設としての責任は重大である。関東圏の大学との連携を深め，例えば，KEK 放射光が実現して整備が進み，学生を受け入れる能力が向上した後には，学部 4 年生を外研生として受け入れることなども想定する。（もちろん，非関東圏からの受け入れを否定するものではない。）

４．教育対象の拡大

放射光科学や物質・生命科学の底上げのためには，従来よりも対象を広げ，効率的に教育を行うことが必要になる。また，効率的な教育は利用者拡大への対応としても必要である。これを推進するための一つの可能性は，リモート講義であろう。現在でも，一部の分野では，放射光実験をインターネットで「実況中継」するなどの試みも行われている。また，つくば市は，ICT 教育（情報通信技術を利用した教育）に関する先進自治体であるので，市と連携して初等・中等教育での試みを行い，全国展開に繋げていきたい。

放射光施設における教育の効率化（あるいは利用者の拡大）を困難にしている要因の一つは，放射線管理区域への入域に複雑な手続きが必要なことであろう。また，そもそも未成年者は放射線業務従事者になれない。一方，放射線レベルが絶対に上がらないように設計・運用することが可能であれば，実験ホールを非管理区域化することは可能である。KEK 放射光では，計画の段階から，建設予算に与える影響を考慮しつつ，実験ホールもしくは実験ホールの一部を非管理区域化することを検討する。

５．サイエンスケース

１．はじめに

本 CDR で紹介している KEK 放射光計画は，日本国内で長年待ち望まれていた「夢の超低エミッタンス光源」に相当する光源性能である。軟Ｘ線領域で得られる輝度は，国内の既存の放射光施設と比較して 3 桁以上の向上が図られるとともに，「ほぼフルコヒーレントな光」が利用可能な放射光施設となる。その結果，輝度向上によるナノ集光ビームの利用や，コヒーレントＸ線を利用したコヒーレントＸ線回折イメージングによって，「空間分解能 10 nm」が達成される。さらに，「エネルギー分解能 10 meV」での電子状態の観測も可能となる。一般に測定プローブ強度の 1 桁の向上は，研究の質的な転換をもたらすものだが，輝度の 3 桁もの向上は革命であり，既存のサイエンスの飛躍的な発展とともに，全く新しい未知のサイエンスが展開されることが期待される。

KEK 放射光での新たなサイエンスの 1 つとして，不均質な系において発現する現象や機能に関する構造や電子状態の研究が挙げられる。これまでの 30 余年は，均質な系（特に周期的な繰り返し構造を持つ結晶）を主な研究対象として，Ｘ線回折法により構造を決定することを中心にサイエンスが展開されてきた。この間，高輝度化は，研究対象となる試料の大きさを数ミリから数ミクロンまで拡張してきたが，KEK 放射光は，これを質的に転換し，初めて，ナノスケールでの不均質な構造の観察を本格化することを可能にするものである。さらに，エネルギー分解能 10 meV で機能の発現をつかさどる電子状態を調べられるだけでなく，空間分解能 10 nm を組み合わせることで，不均質状態から生まれる機能の解明が期待される。この不均質系は，均質系に比べて圧倒的に種類が多いだけでなく，現象や機能の多彩さと発現機構の複雑さにおいて，はるかに深遠な研究対象である。したがって，これからの 30 年，あるいはそれ以上の期間，KEK 放射光が切り開く不均質系の構造と電子状態の研究こそが，物質・生命科学の本流になるものと期待される。

ここでは，化学・材料科学，生命科学，ソフトマター科学，強相関電子系科学，表面・界面科学，原子・分子科学，極限物性科学，地球惑星・環境科学，X 線光学の章立てとして，KEK 放射光で期待される各々の分野でのサイエンスケースを紹介するとともに，それらサイエンスの新展開とそれを可能にする研究者の自由な発想による真理の探求について「KEK 放射光が拓くサイエンス」として俯瞰する。

２．KEK 放射光が拓くサイエンス

Michael Faraday in his laboratory, Harriet Jane Moore 1850s.

電磁気学の父と呼ばれるマイケル・ファラデー。彼の好奇心から生まれた電磁気学は、現代のエレクトロニクス・テクノロジー全ての基礎となり、私たちの生活を大きく変えた。人類の知的好奇心に基づく学術研究は、イノベーションの創出を可能にし、産業の発展はもちろん、環境やエネルギー問題などの地球規模の課題解決へとつながる。ファラデーがそうであったように、研究者の自由な発想による「真理の探究」は、KEK の目指すサイエンスの根底にあり、それは KEK の次世代光源計画である「KEK 放射光」にも受け継がれていくものである。

1982 年 3 月 12 日未明、KEK フォトンファクトリー（PF）で電子ビームが初めてリングに蓄積され、放射光の発生が確認された。我が国最初の、X 線領域の光を発生する放射光専用リングである PF での研究は、それまでの常識を覆すよう

1982 年 3 月 18 日に取得された、PF 最初のラウエ写真。「<1sec」という書き込みから、１秒以下の短い露光時間でこの写真が撮影できた驚きが想像できる。

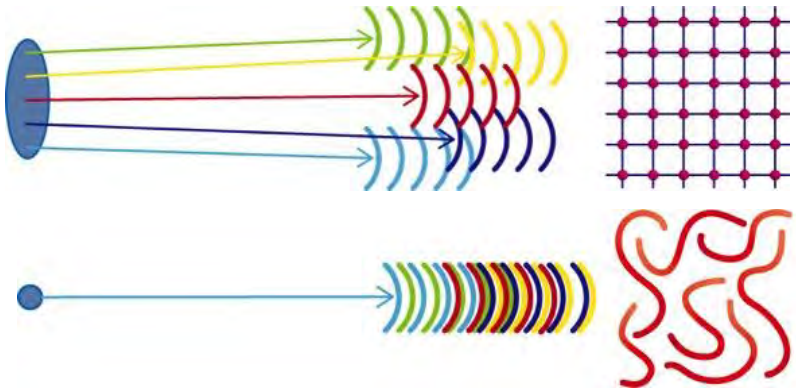
なものであったことは想像に難くない。広いエネルギー領域にわたる連続光はさまざまな分光実験を可能にし、従来の光源とは桁違いの輝度と強度はX線回折実験の応用範囲を飛躍的に広げた。こうして、これまでに見えなかった物質の構造と機能が次々と明らかにされていった。

1987 年、イスラエルの化学者アダ・ヨナットは、PF でタンパク質の結晶構造解析用の大型ワイセンベルグカメラが公開されたことを知り、この装置最初のユーザーとして、大きな荷物とともにやってきた。当時の担当者である坂部知平（現 KEK 名誉教授）は、「初回からまさか海外の研究者が申請してくるとは思わず、驚くとともに嬉しかった」と回想している。ヨナットは、生命の最も基本的な性質の一つである遺伝情報の翻訳、つまり、DNA に書かれた情報からタンパク質を合成する装置「リボソーム」の構造を解明しようと考えていたのである。リボソームは RNA とタンパク質が複雑に絡み合った巨大分子であり、誰もがリボソームの構造を解くなどということは不可能と考えていた。しかし彼女は、PF での 10 年近い挑戦をもとに、ついにリボソームの構造解析に成功し、2009 年にノーベル化学賞を受賞した。10 年もの間同じテーマで実験を申請する彼女に対して、結果が出ていないことから採択すべきでないという意見もあったとのことだが、KEKはこの非常に困難な基礎研究に対する価値を重んじた。今ではタンパク質結晶構造解析は生命科学になくてはならない研究手法の一つとなり、高校の教科書にすら、放射光で解明された多くのタンパク質の立体構造が掲載されている。

2010 年 3 月、アダ・ヨナット （中央）を囲む、坂部知平、坂部貴和子、中川敦史、渡邉信久（右から）。つくば国際会議場にて。

KEK 放射光が観る「ナノスケールの不均質状態」

さまざまな機能性物質や、複雑な生命現象が発現するメカニズムは、個々の化学結合の結果としての原子配列からさらに大きなスケールへと階層的に広がる「構造」と、様々な物理的・化学的性質をつかさどる「電子状態」に端を発している。多くの物質や生命体では、構造と電子状態がナノスケールで不均質であり、その機能が meV のスケールのエネルギーによって制御されることが明らかになりつつある。



（上）これまでの放射光実験。波面がバラバラな光（インコヒーレント光）で、規則正しく配列した試料（＝結晶）を観ていた。（下）KEK 放射光では、コヒーレントな光（波面の揃った光）が得られるため、不均質な試料を観測できる。

我々が計画している KEK 放射光は、軟Ｘ線領域において、国内の既存の放射光施設と比較して**３桁以上の輝度の向上**が図られるとともに、**完全に「コヒーレントな」光（波面の揃った光）**が利用できる放射光施設である。ナノビームや、コヒーレントＸ線回折イメージングによって、空間分解能 10nm 以下が達成される。また、物質の機能解析に欠かせない分光実験（スペクトロスコピー）における重要なスペックであるエネルギー分解能は 10meV 以下を目指しており、個々の原子のわずかな状態（化学結合、電子状態など）の違いを見分けることが可能である。いわば、物質や生命の電子状態をナノスケールで３次元イメージングができる、究極の顕微鏡と言える。

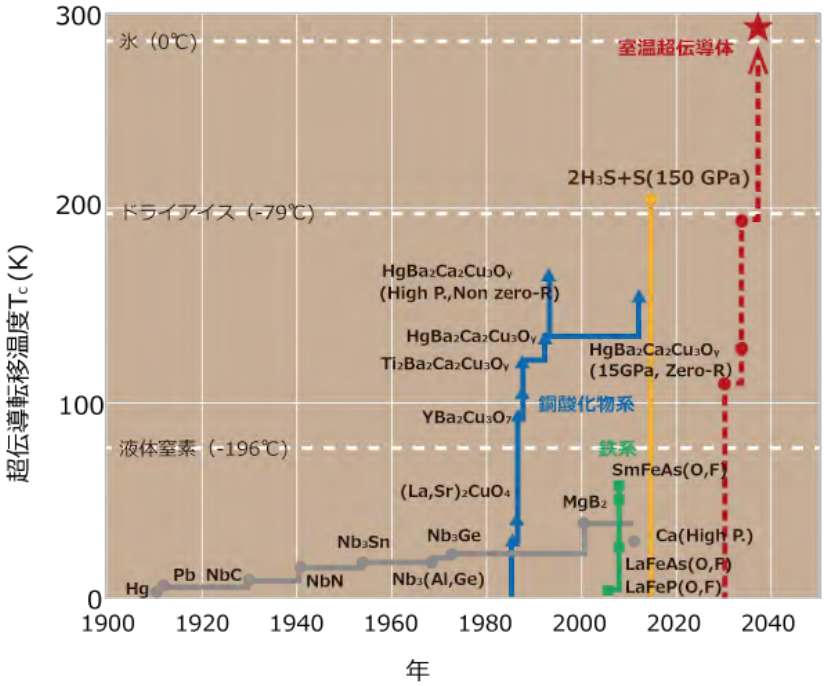
また、数百 eV より高エネルギーの軟Ｘ線～Ｘ線は透過力が強いため、試料自体やその周りの環境に比較的制約がない。このことを利用し、デバイスや触媒が実際に作動している状態での**「オペランド測定」**、作動中の物質の変化を実時間で測定する**「時間分解測定」**、さらに磁場や高温・極低温、高圧力などの**「極限条件下での測定」**など、より現実の姿に近い形で物質や生命の構造と機能を捉える手法の応用範囲が広がることが期待される。

フォトンファクトリーが運転を開始してから 35 年。年間 100～200 件程度の実験課題から始まった共同利用は、今では産業利用を含め約 1000 件の実験課題が実施されるようになり、その研究分野も大きな広がりを見せている。それに伴い、次世代の放射光施設への期待も高まっており、この CDR にも全国の物質・生命科学研究者から、100 件を超える研究提案（産業利用を含む）がなされている。その全てを概説することは難しいが、ここでは、提案の中から KEK 放射光で展開が期待されるサイエンスの一例を分野別にいくつか挙げる。

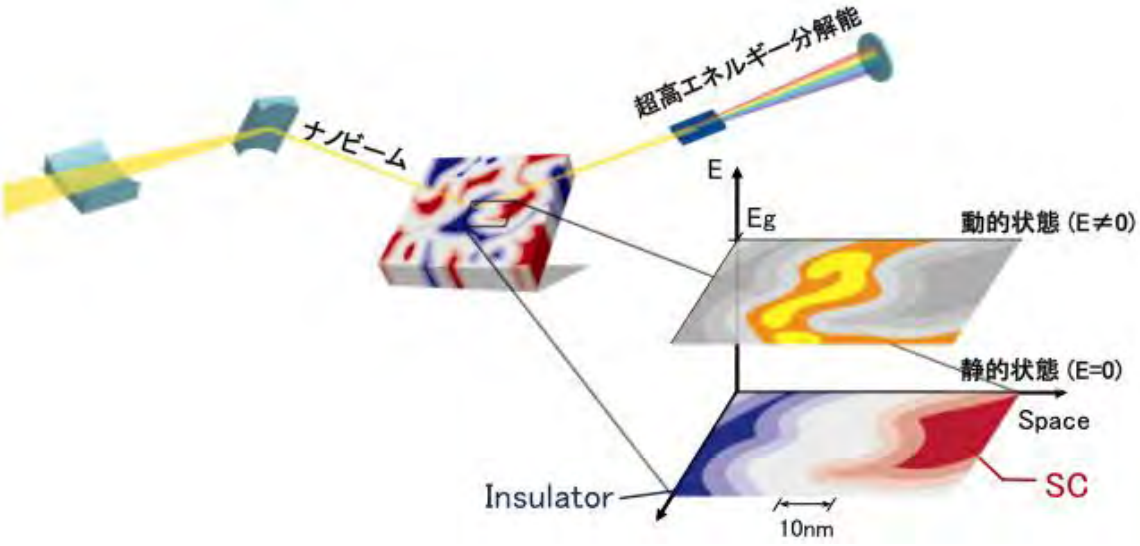
物質科学

物質科学は、物質の構造や機能を理解しようとする学問である。人類は古くから、物質の特異な性質をうまく利用して、生活を豊かにしてきた。最近では、物質のあらわす性質を科学の言葉で解明し、より優れた物質（材料）を創成する指針にするという、我が国の得意分野である「ものづくり」に物質科学の知見を活かす手法が広く用いられるようになっている。

その良い例が高温超伝導体である。1986 年、ベドノルツとミュラーが、銅酸化物 $(La,Ba)_2CuO_4$ が 35K で超伝導を示すことを報告してから、世界中で高温超伝導物質の探索が行われ、わずか 1 年の間に転移温度 Tc が 100K 近くまで上昇した。PF でもこれを契機に共同利用実験課題のカテゴリーにU型（緊急重要課題）を新設し、1987 年度には 6 件のU型課題が採択され、銅酸化物高温超伝導体の電子状態や結晶構造から高温超伝導の発現機構を解明しようとする研究が行われた。2008 年には東工大の細野秀雄らにより、銅酸化物系とは全く異なる、鉄を含んだ化合物が超伝導を示すことが発見され、やはり短期間で Tc が 50K ほど上昇している。最近では、2015 年に硫化水素が 150GPa の高圧下で、203K（-70℃）というこれまでに最も高い温度で超伝導を示すことが発見され、SPring-8 において高圧下の硫化水素（H_2S）が H_3S に構造変化を起こしていることが 2016 年に明らかになった。



超伝導転移温度 Tc の推移および今後 2～30 年間の期待（赤破線）



KEK 放射光のナノビームと高エネルギー分解能を活用し、高温超伝導体の電子状態と超伝導ギャップをナノスケールで観測することにより、相分離によって生じる特異な電子状態の起源を解明することが期待される。

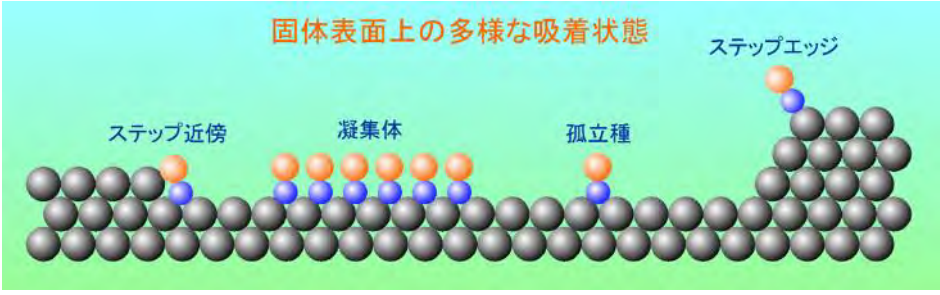
高温超伝導の実現とその発現機構の解明には世界中の研究者が取り組んでいるが、未だに室温の Tc を持つ超伝導体の発見には至っていない。超伝導体は、絶縁体である母物質に電気伝導を担うキャリアを注入することで生じるが、このキャリア濃度の空間不均一構造（相分離状態）が自発的に出現することが、高温超伝導状態の発現と関連していると考えられるようになり、ミクロな不均一構造が注目を浴びている。さらに、走査型トンネル顕微鏡（STM）イメージングの実験からは、超伝導ギャップの大きさが空間的に大きく変化することがわかり、その最大値は室温の Tc を持つ超伝導体に相当することが報告されており、上述の自発的なキャリア濃度の不均一状態との関係が注目されている。この相分離特異的な電子状態の起源が解明できれば、室温超伝導体の実現も夢ではなくなる可能性がある。

この特異な電子状態を解明するためには、超伝導状態と非超伝導状態の相分離を、超伝導ギャップと電子秩序の同時イメージングにより直接捉えることが必要であり、ナノスケールの空間分解能を持つ共鳴軟X線非弾性散乱イメージングの実現に期待が集まっている。そこで得られた知見をもとにミクロからナノスケールでの相分離状態の制御が可能となることで、長年の夢である室温超伝導体の開発、さらにその実用化が期待できる。

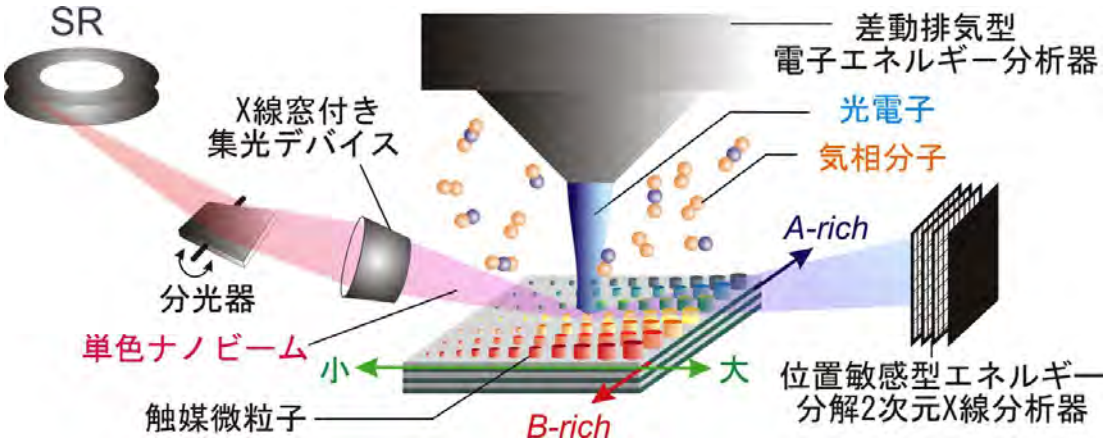
高温超伝導は、物理学の未解決問題の一つであるばかりでなく、室温超伝導が実現できれば、損失ゼロの送電など社会に与えるベネフィットが非常に大きい。また、加速器科学の拠点である KEK にとって高温超伝導体の実用化は、加速器そのものの設計にブレイクスルーをもたらす。高温超伝導体で作られた超伝導加速空洞が実現すれば、次の世代の光源

加速器として期待されている CW(連続)XFEL などの運転に必要な電力が大幅に削減でき、コスト的にもエネルギー的にも有利な加速器の誕生は、学術研究のみならず医療や産業等への展開も期待できる。

軟X線～X線は透過力が高いので、試料を大気圧に近い条件下で測定が可能である。また、TEM や SEM など、電子線を用いる分析法のように試料を薄片化する必要もない。これは、触媒や電池など化学反応を担う材料の研究開発においては、実際の作動条件で構造や電子状態の解析が可能（オペランド測定）という、非常に有利な特徴である。自動車に使われる排ガス浄化触媒（三元触媒）に代表される多くの実用触媒は、固体表面で反応が起こる不均一系触媒である。化学反応を起こしている触媒表面は不均一かつダイナミックで、サイトごとの化学種の種類、量、構造が時々刻々と変化する。このような複雑な系を科学の対象として分析することは、かつては非常に困難であったが、ゲルハルト・エルトゥルは、光電子分光や STM、PEEM などの表面分析法を駆使して、多数の重要な固体触媒反応機構を分子レベルで解明し、2007 年にノーベル化学賞を受賞した。エルトゥルは常に、固体表面で化学反応が起こるその場を観測することを追求し、その後の触媒化学研究に大きな影響を与え、その場観察の手法開発が飛躍的に進展した。放射光は、前述したようにオペランド測定に向いていることはもちろん、エネルギー分解能が高いことを利用して、特定の活性種に着目してその化学状態の微小な変化を追跡することが可能であり、多くの分子・原子が混在する触媒を解析するための優れたツールである。KEK 放射光によりナノビームが実現されれば、あるサイトで活性化された反応種が表面を移動して別の活性サイトで反応するといった、物質コミュニケーションに関する直接的な情報も得ることができる。さらに、ポンプープローブ法を組み合わせた時間分解測定により、触媒反応をリアルタイム追跡することが可能になる。KEK 放射光によって初めて可能になるこれらの新しい手法は、触媒開発や、新たな化学反応系の設計の指針となる。



固体表面（触媒の表面）に反応種が吸着している様子。触媒表面の形状が複雑であるのに加え、反応に関与する化学種の吸着状態も複雑であり、ナノスケールでサイトを分離して解析する必要がある。



走査型大気圧光電子分光による組成勾配および粒径勾配をつけた触媒微粒子のオペランド計測。反応中の微粒子表面の化学状態と組成・粒径との相関を知ることができ、新規触媒開発に有効である。ナノビームを用いて反応種の空間分布を観測すれば、触媒微粒子間の物質コミュニケーションに関する情報を得られるかもしれない。（慶應大学・近藤寛氏提供）

機能性材料だけでなく、力学的強度が要求される構造材料の特性制御にも、放射光によるアプローチが有効である。社会インフラを支える構造材料は、機能性材料に比べて使用量が格段に多く、資源やエネルギーが大量に使用されているため、性能や耐久性の向上は構造物の信頼性を増すことに加え、経済やエネルギー問題にも直結する。構造材料は、鉄鋼やセメント、セラミックス、ポリマーと多岐に亘っているが、最近では CFRP（炭素繊維強化プラスチック）のような軽くて力学特性に優れた材料が注目されており、軽元素の分析が可能な軟X線領域の放射光のニーズがますます高まっている。

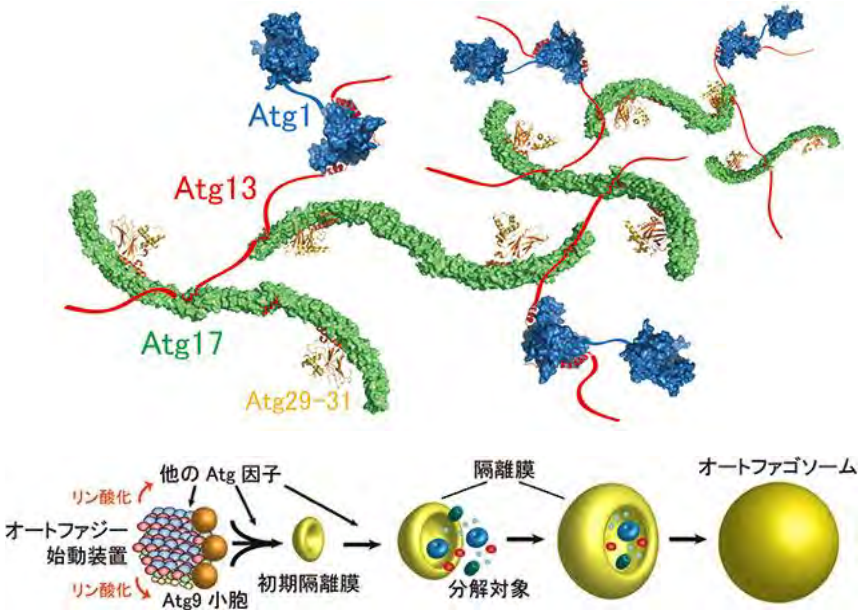
構造材料の主な計測アプローチは、実際に亀裂が発生し、ある程度進行して数 μm 以上になった試料の組織形態を中心とした観察であったが、KEK 放射光により、亀裂発生の前駆段階での、nm スケールで亀裂の起点を観測できるパラダイムシフトが期待できる。局所で発生した原子レベルでの変形が破壊や相転移といったマクロの協調現象につながるメカニズムを明らかにすることにより、物質科学の視点から構造材料の性能向上を目指すことが可能となり、社会的インパクトも大きい。

生命科学

生命の最小単位である細胞は、直径数 10μm の中に生命を担う分子が高度に組織化された構造を作って働く、究極の不均一構造を持つ機能性ユニットである。これまで、放射光は、生命を担う分子であるタンパク質の立体構造と、構造に基づいた機能を多数解明してきた。現在では標準的な水溶性タンパク質については、自動測定で立体構造を決定できるほど解析技術が進展している。しかし、細胞内でタンパク質が働いている際には、何種類

かの異なる機能を持ったタンパク質が離合集散を繰り返し、互いの機能を制御する超分子複合体を形成していることが多く、現在の知見の多くは、部品としての個々のタンパク質の構造と機能がわかっている、という状態に過ぎない。今後タンパク質の機能と細胞の生物学的機能を結びつけていくには、超分子複合体の構造と機能を知る必要があるが、結晶化に必要な量のタンパク質を確保するのが難しいのに加え、サブユニットが外れやすかったり、形状に柔軟な部分があることで結晶化しにくく、超分子複合体そのものの構造解析はほとんど実現していない。また、細胞同士のネットワーク形成や細胞外との物質のやり取りに最も重要な役割を果たす膜タンパク質については、その脂溶性（水に溶けにくい）という性質から結晶の形成が難しく、その生物学的重要性にもかかわらず、構造解析が大変遅れている分野である。

2016 年のノーベル生理学・医学賞で注目を集めたオートファジーも、多くのタンパク質がそれぞれ機能を制御しながら働く生命現象である。そのうち、オートファジーが分解対象物を膜構造で包み込む、最もダイナミックな過程の初期段階を担うオートファジー始動装置に関しては、SPring-8 を用いた結晶構造解析と他の生化学的手法を組み合わせて、2016 年に図のような形成機構が提唱された。オートファジー始動装置は 5 者複合体がさらに多数集合した、複合体というより集合体（assembly）であり、現在の技術ではこのような巨

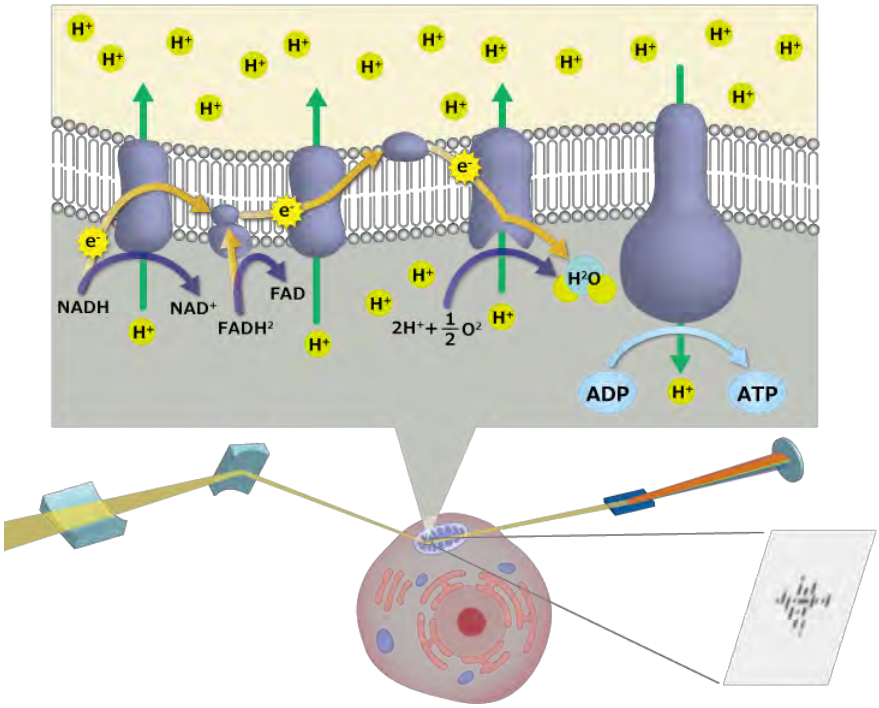


オートファジー始動装置はひも状構造を用いて、5 種類のタンパク質から成る 5 者複合体がさらに多数集合した形の、巨大なオートファジー始動装置を作る。オートファジー始動装置は、小胞を伴った Atg9 と結合し、集まった小胞からオートファゴソームが形成される。（微生物化学研究所・野田展生氏提供）

大な集合体の構造を直接解くことはできない。始動装置の形成から、オートファジーが進行する過程には、小胞を伴った Atg9 との複合体形成、隔離膜の形成と生長など、さらにダイナミックな現象が続いていくが、これらの過程の分子的メカニズムはまだ解明されていない。

このような現在のX線結晶構造解析法の技術では解明が難しい対象に関しては、ビームの高輝度化や装置の精度向上により、微小結晶からでも回折データの収集が可能になることで、解決が期待される。KEK 放射光では、μm 以下のビームサイズが実現できるので、これまでは解析できなかった数 μm 程度の微小結晶からも回折データが得られるようになる。高速・高感度・低バックグラウンドの検出器開発や、結晶化スクリーニングなどの付帯装置と組み合わせることで、X線結晶構造解析の適応対象が飛躍的に広がることが期待される。

生命現象の多くは電子の授受を伴っている。例えば、生物がエネルギーを作る過程である呼吸では、電子伝達系と呼ばれる一連の酸化還元反応が関与している。しかし、タンパク質の結晶構造解析に比べ、生命の機能を電子状態から解明する研究は、ほとんど進んで



ミトコンドリア内膜に存在する電子伝達系では、電子を移動させる一連の反応に伴って、膜の内外に水素イオンの濃度勾配ができる。この濃度勾配を駆動力として ATP が合成される。細胞中の電子状態は、非破壊的に直接測定することはもちろん、電子の授受に関わるタンパク質を抽出してもその濃度には限りがあり、現在の放射光施設では困難である。

いない。それには、さまざまな理由があるが、一つには生体試料の多くが極微量しか得られず、現在の軟X線測定技術では計測不可能なことである。一方、低濃度の試料を測定しようとしてビームの輝度を上げると、今度は試料の損傷が問題になる。このジレンマを解消するためには、高輝度光を用いて、なおかつ試料の損傷を最小限にするような新しい計測法の開発が必要であり、本 CDR でも、一方向にエネルギー分散させた集光ビームを作り短時間でスペクトルを取得する方法や、XFEL でも使われているマイクロジェット技術の利用などが提案されている。このように、生命の電子状態を測定する試みは非常にチャレンジングであり、KEK 放射光の実現によって展開する全く新しいサイエンスに発展する可能性がある。

これまで放射光の優れた物理的特性を活かして、様々なX線イメージング法が開発され、医学試料や生体試料の観察がなされてきた。特に、X線の波としての性質を利用した位相コントラストイメージング法は、吸収コントラスト法に比べて桁違いに感度が高く、特に軽元素からなる生体の観察に適している。PF では、超伝導ウィグラーから発生する縦偏光・縦長のビームを用いて、重力の影響を極力除くことにより、世界最大の分離型干渉計を開発し、比較的大きな医学試料・生体試料の位相コントラスト CT 像の取得を可能とした。この性質を利用して、京都大学の先天異常標本解析センターに所蔵する数万体のヒト胚子標本（京都コレクション）の撮像が進められている。このコレクションは母体保護法の元、人工妊娠中絶によって得られた胚子、胎児の標本であり、日本人の人口集団に近いものと考えられ、ヒトの発生段階を形態学的に観測できる非常に貴重なコレクションである。放射光によるイメージングによって、これまでに見つからなかった異常を持つ胚も見つかっており、ヒト発生や先天異常に関する知見に貢献できることが期待されている。

位相X線 CT イメージングにより発見された、肝臓形成異常を持つ胚子の内臓。（The Anatomical Record，2016 年 1 月号表紙）

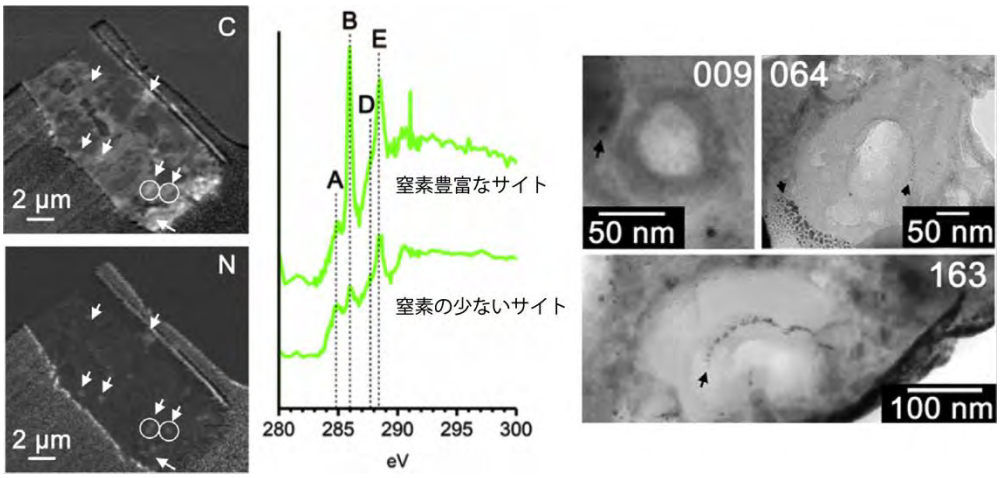
KEK 放射光では、リングのエミッタンスを変えずに、大型干渉計に必須な縦偏光のビームを実現する挿入光源の検討もされており、実現すれば PF と比較して 3 桁以上の高輝度となることから、空間分解能の大幅な向上が期待できる。胚子の観察においてはより微小な形態異常を発見できる可能性がある。さらに、分解能 1μm 以下が実現できれ

ば、毛細血管の描出が可能になる。血管は動物において全身に酸素や栄養分を送る重要な役割を果たしていて、毛細血管が描出できるようになれば、幅広い医学分野に貢献できる。例えば，再生医学においては、血管の新生・再生による血管ネットワークの評価として毛細血管まで描出できる撮像法が有効である。また、がん細胞の増殖や悪性化に血管新生が伴っていることは古くから知られており、最近では血管新生を制御することによりがんの治療成績を上げようとする新しい治療法の開発も広く行われている。これらのがん細胞の新生血管を可視化できれば、がんの生物学的研究はもちろん、早期診断、治療法の開発、治療法の評価にも期待が持たれる。

宇宙・地球・惑星科学

KEK の研究対象である「宇宙・物質・生命」のうち、「宇宙」は他の２つに比べ、どちらかというと素粒子原子核研究所の守備範囲であると思われてきた。しかし近年、NASA のスターダストや JAXA のはやぶさ等、地球外天体からのサンプルリターンが成功したことや、隕石や宇宙塵の分析が進んだことなど、惑星科学研究に物質科学的な手法が使われるようになっている。貴重で量が少ない地球外試料の分析には、非破壊で微量分析が可能であるという特徴は必須であり、分析手法のさらなる精鋭化がこの分野に与えるインパクトは大きい。

特に、宇宙の元素存在度が高い H, C, O, N, S, P などの軽元素から成る有機化合物は、複雑な組成を持つため、これまであまり研究が進んでいなかった。しかし最近では、TEM,



微小隕石の STXM による分析（左）と、サイト毎の XANES スペクトル（中）。現在の放射光では、サブミクロン程度の有機グロビュールは測定可能であるが、TEM で観測できている数 nm の構造については計測できない。（T. Noguchi *et al., Geochim. Cosmochim. Acta,* 208 (2017) 、広島大学・薮田ひかる氏提供）

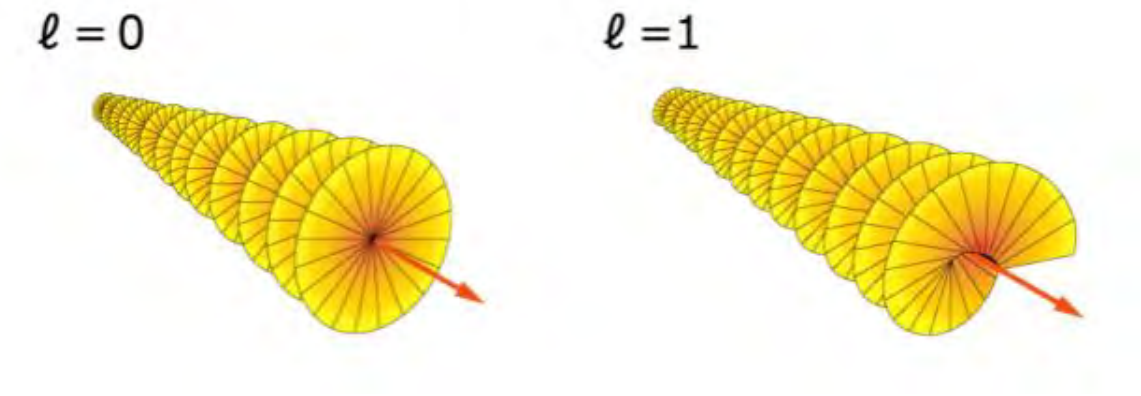
nanoSIM, STXM などの複合測定により、炭素質コンドライト隕石や有機ナノグロビュールは、宇宙空間の超低温環境における光化学反応で生成した初期の有機物であると考えられるようになってきた。有機ナノグロビュールは、形状・組成ともに多様で、数 nm の薄い皮膜層を幾つか含むものや、鉱物微粒子を内包するものが TEM で観測されている。しかし、TEM で分析を行うには試料を薄片化しないとならないので、完全に非破壊測定ではなく、薄片化によるアーティファクトの恐れもある。KEK 放射光では、これらの内部構造の化学状態分析が、非破壊で可能になり、惑星物質の形成過程が明らかにされることが期待される。

微量元素の化学状態解析は、私たち人類が地球上において今後も文明的な生活を送るためにも必要な科学技術である。レアメタルは様々な機能性材料に使われており、持続可能な社会の実現に役立っているが、地球上に少量しかなく、かつ偏在しているため、その探索やリサイクル手法の開発が、今後も重要な課題である。放射光による分析は、多くの元素が混合した系において着目した元素の化学種解析が可能という特徴があり、地球科学物質の分析に向いている。

レアメタルの中でも特に希少資源である白金は、濃集した鉱石でさえその濃度は 1ppm 前後であるが、海底のマンガンクラスト中には、地殻の 100 倍以上の濃度で白金が濃集しているものがあり、資源として注目されている。この濃集メカニズムには、酸化説と還元説の両方があり、その実態は明らかになっていない。これらのマンガンクラストは nm オーダーの微小な鉄酸化物やマンガン酸化物の凝集物であり、大量のマンガン、鉄の中で微量の白金の価数等を決定するには、KEK 放射光によって実現できるナノビームを用いた蛍光 XAFS 測定が有効である。濃集メカニズムが明らかになれば、白金が濃集している場所の効率良い探索が可能になると期待される。

新しい光を利用した未踏の科学

KEK 放射光は、これまでの放射光実験で利用されていたインコヒーレントな光ではなく、波面のそろった「コヒーレントな光」を生成できる放射光施設である。さらに、光の波面を制御することで、今までとは質的に異なる新しい光の生成が期待されている。その一つに「光渦」がある。



放射光の低エミッタンス化により、広く利用される光の波面（等位相面）が揃った「コヒーレントな光」（左図）と、光軸周りに波面の位相が 1 周で 2π 回転し軌道角運動量（ℓ=1）を持つ光である「光渦」（右図）。

上の図は光の等位相面を描画したもので、左は、波面がそろったコヒーレント光を示している。一方、右は、光軸周りに波面の位相が 1 周で 2π 回転し、軌道角運動量(ℓ=1)を持つ光で、「光渦」と呼ばれている。

可視から近赤外の波長域における光渦の生成は、いくつかの手法がすでに確立されており、レーザー光による光ピンセット等に応用されている。一方、真空紫外線からＸ線領域では、波面を制御することは難しく、光渦に関する研究はほとんど行われてこなかった。しかし最近、放射光において、挿入光源を利用して光渦ビームを生成することが可能であることが、理論と実験から明らかにされ、未踏領域である短波長域の光渦の利用が現実味を帯びてきた。しかし、このエネルギー領域の光渦と物質の相互作用については、簡単な原子分子を対象とした実験や理論研究があるだけで、研究は進んでいない。

挿入光源を利用した光渦生成のためには、電子ビームサイズを回折限界と呼ばれる値まで小さくすることが必須となっている。したがって、軟Ｘ線領域でほぼ回折限界となる KEK 放射光では、軟 X 線領域での光渦ビームの挿入光源による生成が初めて可能となる。さらに、高次の軌道角運動量(ℓ=2,3,4…）の生成も可能となることが期待される。

生成された光渦ビームを利用することで、既存の実験では観測できない物理量の観測が可能となることが期待されており、これまでの既存の放射光施設とは質的に異なる新しい光の生成による新しいサイエンスの創成の可能性が見えてくる。

3．化学・材料科学

本章では、KEK 放射光で可能となる高輝度/高コヒーレントの放射光ビームとエンドステーション設備、更に関連する附帯装置等を総合的に活用することにより、化学および材料科学分野に期待できるサイエンスおよびイノベーションについての展開について述べたい。

材料研究において、物質中の原子の配列、結合、化学状態等を詳細に理解・把握した上でこれを制御することにより、材料の電子状態を自在に操り、様々な物性を有する材料・物質を生み出す研究開発の厳しい世界的競争が続いている。発見された材料・物質が実用化されるためには、その製造コストに加えてエネルギーと資源の LCA（Life Cycle Assessment）の両面を考慮する必要がある。材料・物質を安定的に製造・供給していくためには、その物質が所望の特性を発現する因子(例えば、特定の構造やキーとなる反応)を特定し、それを供与環境下で安定的に動作する材料組織、すなわち「サブ nm～μm に至る広いレベル（マルチスケール）での階層構造」の中に設計して作り込むことが必要になる。

材料・物質の特性を高度化するためには、材料・物質が所望の性能・特性を発現している環境（in situ, operando）でマルチスケールでの階層構造が有効に機能していること、さらにはそれが所定の寿命の期間内は維持されていること、をマルチスケールでの観察によって確認することが必要となる。そのためには時間の次元で見ても、機能発現に寄与する素反応過程（fs～ps）、ナノレベルの原子の移動や転位の運動（ns）、マクロレベルの化学種の拡散（ms）、材料の劣化や寿命（s～y）、といったマルチスケールでの観察が求められる。こうした、空間的・時間的両面でのマルチスケールでの階層構造を観察し作り込んでいく、これがまさに日本が得意とする「ものづくり」であり、これが実現して初めてイノベーションにつながると考える。

従来、こうした材料のマルチスケールの階層構造を作り込む engineering は、研究者の発想と試行錯誤（さらには serendipity）で行われることが多かった。しかし近年欧米を中心に、材料を作り込む時間を大幅に加速しイノベーションを早期実現するために、解析的なアプローチだけでなく、計算科学やデータベース等の Big Data を活用したアプローチ（例えば、materials genome initiative (2011～、USA)）が加速している。

このような内外の状況を考えると、化学・材料科学分野の日本の国際競争力を維持・発展させ将来にわたりイノベーションの創出を継続していくためには、(a)空間的・時間的両面で材料のマルチスケールでの階層構造を明らかにし、(b)そうした膨大な構造情報を有機的に結びつけ早期のイノベーションにつなげる研究拠点の構築が不可欠である。そうした拠点構築には KEK 放射光の早期実現が必要であることを、各分野で期待されるサイエンスとイノベーションの展開を以下に述べることで示したい。

3-1. 空間&時間のマルチスケール観察による機能性材料研究の新展開

(1) 背景

材料科学分野でこれから重要になるのが、「材料中の化学状態の三次元ヘテロ構造をオペランド(機能発現下)で実時間観察する観察技術の開発と、それに基づく材料設計」である。それにより、機能の発現に必要な“階層構造(三次元ヘテロ構造)”と機能発現につながるメカニズムの解明が期待できる。

例えば、排ガス浄化触媒を例にとると、実際の排ガス流れと同等にガス雰囲気が酸化雰囲気⇄還元雰囲気と変化している環境において、排ガス中の NO_x, CO, 炭化水素が N_2, CO_2, H_2O に変化（酸化還元）している状況（＝オペランド(機能発現下)）で、実際の時間スケール（msec～min）で、触媒のどの部位の化学状態や結晶構造が変化しているか（＝化学状態の三次元ヘテロ構造）を明らかにすることができると、貴金属クラスターそのものの構造だけでなく、貴金属クラスターと担体との相互作用が触媒活性に関与している—そんなメカニズムが明らかになる。

しかし、現状では、オペランド(機能発現下)での試料全体の平均的な観察や、反応前後の状態を現状測定が可能な限られた個々のスケール領域で行う観察（図１）に限定されているために、ヘテロ構造が平均化されて活性点とそれ以外の部位も同等に観測してしまっている。化学状態の三次元ヘテロ構造をオペランド(機能発現下)で実時間観察することができれば、機能発現に直結している特異的な構造に関する情報を得ることができる。それに基づいて最低限のみ要素を含んだ材料設計を行うことにより全く新たな材料（例えば、貴金属の使用量やナノ構造を単純化した触媒）の材料設計指針につながることが期待できる（図２）。

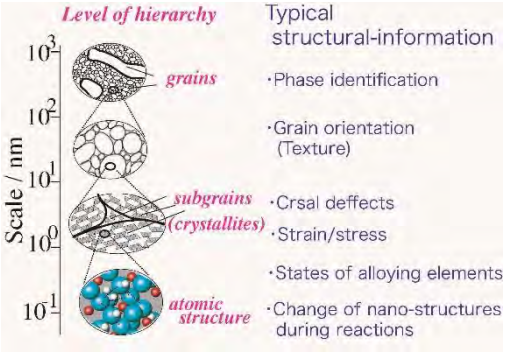


図１　現状での観察法は、限られたスケール領域に限定され、それぞれのスケール領域間には観測できない“計測の隙間(谷間)”の領域が存在している。

図２　化学状態の三次元ヘテロ構造をオペランド(機能発現下)で実時間観察 するインパクト　観察技術の開発活性に寄与する部位を特定し(左)、省元素/新形態の触媒を設計する(右)。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光では 10 秒～数分程度で 1 エネルギーでの化学状態を三次元 CT 観察する on-the-fly 測定が可能になり、数時間で三次元内の任意の位置でのエネルギースペクトルからなる化学状態の“階層構造(三次元ヘテロ構造)”を高空間分解能（～20nm）で可能になる（図３(c)、Advanced XAFS-CT）。さらに高コヒーレンスを活かした ptychography の手法を加えて導入することよりビームサイズよりも小さな空間分解能数 nm での測定が可能となり、限られたエネルギー点（～10 点）であれば化学状態の“階層構造(三次元ヘテロ構造)”の観察という新たな世界が拓ける(ptychographic XAFS-CT)。反応が停止できるもしくは遅い(10s～min)反応の場合には、三次元の化学状態（3D+E）を時分割で測定可能である（3D+E+t）。早い反応の場合には反応の前後で三次元の化学状態を観察し、その間の過程を（特定エネルギーでの）二次元観察（図 3(a)）することにより、ms～s の時間域の反応観察が可能であり、前述した触媒をはじめ拡散支配の多くの材料反応現象の観察が可能となる。さらに高輝度を活かして、化学状態だけでなく結晶の配向性を X 線回折（広角～小角）と合わせてイメージングすることが可能になる（3D+方位 $q_{x,y,z}$+t）。次光源では材料の機能を司る“化学状態”と“結晶の配列”に関する究極のイメージングを、実材料の評価ベースとして通常測定可能な環境を実現することができる。

“化学状態”や“結晶の配列”の異なるドメインが形成する“階層構造(三次元ヘテロ構造)”が明らかになると、電荷移動や原子拡散の素過程の観察結果と総合化することで新たなサイエンスの展開が可能となる。従来はそれぞれの階層構造にのみ有感な平均的な測定のため discrete な階層構造（図２）にとどまっていたが、各階層間をつなぐマルチスケールでの“階層構造(三次元ヘテロ構造)”の観察により、それぞれの階層をまたいだ相関により生じる現象を理解する理論体系の構築へと展開が期待できる。

三次元の化学状態や結晶の配列を時分割（3D+E+方位 $q_{x,y,z}$ +t）で測定した場合、データ量が非常に大きくなり（例えば 1 実験で数 TB）、かつ多次元データとなるため、測定データから“材料学的な意味”を見いだすのは人力では困難(不可能)である。さらにエネルギースペクトルや結晶方位を特定するのに必要なデータ数の制限や計算による復元のアルゴリズム等、計算手法そのものがチャレンジングな課題である。そこで、次世代光源施設では、多次元データを高速に転送・保存する情報インフラを整備するとともに、多次元データからのエネルギー空間および実空間でのデータ回復、そして多次元のビッグデータを数理統計的に解析するための専門の要員を揃え、手法やデータハンドリングの手法とユーザー向けのソフトの整備を行う。そして「計測手法のエネルギー、空間、時間、のそれぞれの分解能を高める」といった従来型のアプローチ法にとらわれることなく、例えば homology といった応用数学的な手法を積極的に取り入れ、多次元の実験データ(ビッグデータ)から帰納的に法則を見いだす新たな研究アプローチ体系を構築したい。それにより、新たなサイエンス領域の創出やイノベーションへの展開が期待できる。

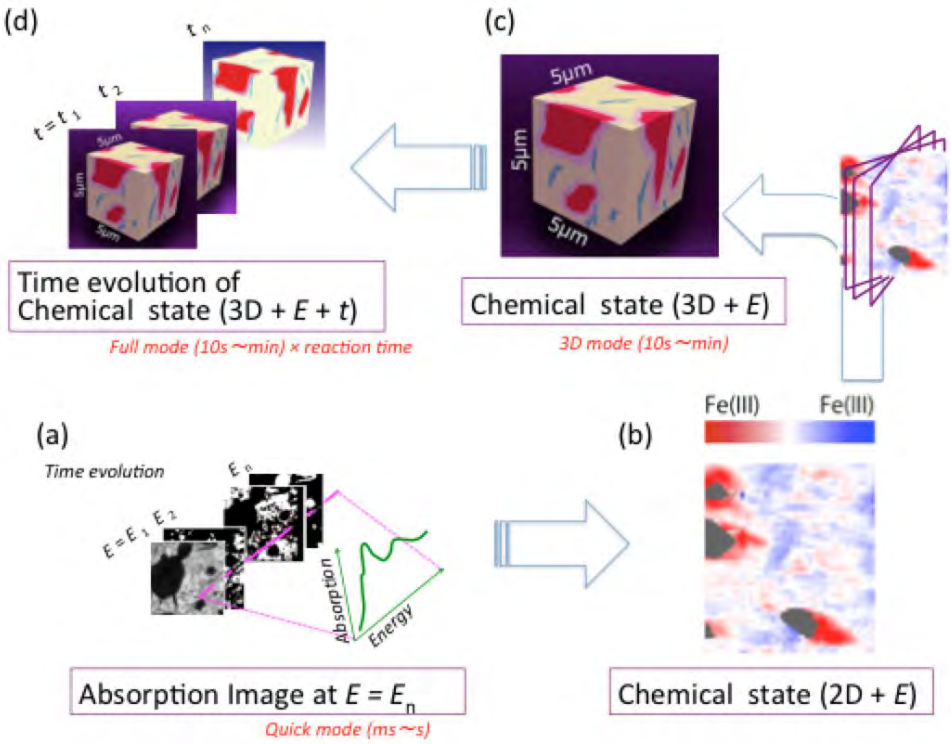


図３　化学状態の三次元ヘテロ構造をオペランド(機能発現下)で実時間観察 するイメージ

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

A. ビームライン

advanced XAFS-CT 実験ステーション、ptychographic XAFS-CT 実験ステーション、反応環境環境下測定実験ステーション、

B. データ処理系

高速光ファイバーによるデータの高速転送、GPU による多次元データ解析システム

C. 材料評価実験ラボ

各種試料加工＆前処理装置、各種基礎物性測定装置、FIB-SEM、TEM、蛍光 X 線顕微鏡、実験室系 X-CT 装置、実験室系 XRD 装置

3-2. 高空間分解能による磁性材料分野の研究の新展開

(1) 背景

地球温暖化を緩和し将来の低炭素社会を実現するためには化石燃料消費の低減が必須である。特に永久磁石材料や軟磁性材料などの磁性材料は、省エネルギーおよび創エネルギーの両方にとって重要な材料であり、持続可能社会の実現のために必須の部材となっている。例えば輸送部門においては、ハイブリッド自動車や電気自動車へ切り替えることにより、大幅なエネルギー効率の改善が見込まれる。これらの次世代自動車の駆動用モータはバッテリーや動力制御装置などとともに最も重要な要素であり、エネルギー効率の高い次世代自動車の実現には高性能の永久磁石材料が必須となっている。

ここでハイブリッド自動車モータの磁石温度（150~200°C 程度）での安定性を考えると、Nd-Fe-B の主要３元素だけから構成される焼結磁石では減磁の可能性がある。そこで、Dy や Tb 等の重希土類元素で Nd を部分置換することにより、耐熱性を確保している。しかしながら、Dy などは Fe と反強磁性的に磁気結合するため飽和磁化は減少し、最大エネルギー積(BH)max も低下する。また、Dy は高品位の鉱床が世界的に少なく、採掘量に大きな制約がある。今後の需要の増加を考えると希少資源である Dy 等の重希土類元素を低減し、かつ高温で高い保磁力を実現する高性能磁性材料の開発が急務である。また、資源問題の観点から考えると、高性能の永久磁石材料に用いられる希土類金属などの希少元素は、風力タービン、電気自動車、太陽電池、エネルギー効率の高い照明などのクリーンエネルギー技術に必須の元素であるが、米国エネルギー省の Critical Materials Strategy (2011) によると、特に５種類の希土類金属（ジスプロシウム、ネオジム、テルビウム、ユウロピウム、イットリウム）の供給リスクが将来のクリーンエネルギー技術に多大な影響を及ぼすとしている。

このような背景のもと、希少元素を代替する高性能磁性材料の開発が急務となっている。希少元素を代替する高性能磁性材料の開発を進めるためには、既存の磁性材料の抱える問題点の洗い出し、高い磁気異方性や保磁力の発現メカニズムの解明、新規磁性材料の高スループットでの評価・解析が重要となっている。そこで、最先端の電子顕微鏡や大強度中性子の利用と合わせて KEK 放射光による解析・評価が最も重要かつ不可欠な技術となっている。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

現状の放射光利用では、外部磁場を印加した環境下での静的な観察を中心として、粒界などに偏析する元素の種類・形態・構造を明らかにし、定性的にマクロの磁気特性と関連づける研究が中心であった。

KEK 放射光を利用することにより、現在の放射光では不可能な以下の測定が実現する。

1. X 線顕微鏡を用いたバルク磁性材料の磁気構造可視化

磁性材料の研究開発においては材料内部での磁気的構造（磁区構造）を知ることが重要である。磁気的構造の最小スケールは磁壁幅であり、数ナノメートルから数 10 ナノメートル程度である。磁気構造の定量評価を高い空間分解能で実現する上では走査型透過 X 線顕微鏡 (STXM)が最も有効な手法であるが、KEK 放射光を用いるとその測定スペックが大幅に向上し、磁性材料の磁壁を直接観察することが可能になるため、物性解明に十分なレベルに到達する。例えば現状の測定では、数 10 ナノメートル空間分解能、数μm 視野での測定を静的な外部磁場環境で測定しているが、KEK 放射光を用いることにより、そのコヒーレンスと大強度 X 線を有効活用することによりタイコグラフィ手法による高分解能化およびトモグラフィによる３次元化を両立することが可能になり、外部磁場をリアルタイムに掃引した環境で３次元での磁気構造を数ナノメートル空間分解能で可視化することが期待できる。

2. X 線磁気円二色性 (XMCD) による磁性材料の高効率評価

XMCD による磁気物性評価は磁性材料開発にとって極めて有用であり、スピン・軌道磁気モーメントを定量的に求めることが出来る唯一の手法である。次世代の材料開発においては組成やプロセス条件の異なる数 100 から数 1,000 個の試料についてスピン・軌道磁気モーメントを正確に評価し、材料のスクリーニングを行うことが重要となってくる。例えば、米国 materials genome initiative では 3D プリンタを用いて系統的に組成を変化させたバルク磁性材料合成の試みや、空間的に組成の異なる不均一な試料の作製および解析による材料スクリーニングの試みなど、マテリアルズインフォマティクスを指向した様々な試みが実施されており、このような材料群の高効率な測定が必須となる。このように空間的に組成が異なる試料の磁気特性を一括で測定することは、従来の磁気特性測定法では極めて困難であり、ナノビームの円偏光放射光による評価が重要となる。従来の XMCD 測定装置では､1 試料ずつ光のエネルギーおよび磁場を変えて XMCD 測定を行っていたのに対し、KEK 放射光では数ナノメートルの微小スポットで試料上をスキャンし、それぞれの場所での XMCD を短時間で測定可能になる。このため、測定条件の最適化を自動で行うシステムを開発することにより、上述したように空間的に組成を変えた試料群について、数 100 程度の組成の異なる試料の XMCD スペクトルを数時間で高精度に測定可能なビームラインが実現し、今後の磁性材料開発に重要なビームラインとなることが期待される。

3. X 線回折による磁性材料の構造解析

永久磁石などの磁性材料においては、結晶粒界などに存在する副相と呼ばれる主相と異なる介在物相や不純物相が組織形成や磁気特性発現に重要な役割を果たしており、これらの副相の構造や体積分率の定量評価、さらには結晶粒の配向度の評価が材料パラメータとして重要なものであり、これらの材料パラメータを高効率で測定可能な X 線回折ビームライ

ンが望ましい。しかしながら材料組織のサイズは数ナノメートルから数マイクロメートルであり、これらの組織の定量測定は従来の光源を使った測定では簡単ではない。KEK 放射光によって得られる微小スポットサイズの X 線ビームのスキャニングによる分光や回折等の測定や、高コヒーレンスを用いたタイコグラフィ等の手法を活用することにより、結晶粒界などに存在する副相などの結晶構造を局所領域で測定可能になる。これらの評価は電子顕微鏡やラボ X 線回折装置による予備実験と合わせて行うことでより高効率化することが期待されるため、放射光実験室とは別に材料評価実験ラボを整備し、TEM, SEM/EBSD などの最先端の材料評価を可能にし、相補的な測定をオンサイトで実施することが必須であると考えている。

4. 高温高圧 in situ 回折による製造プロセスの評価

磁性体の磁気的な構造としては、原子レベルでのスピン構造だけではなく、それらが交換相互作用や磁気双極子相互作用などの競合により数ナノメートルから数マイクロメートルのスケールの磁区が存在する。磁性材料では、原子レベルのスピン構造からメゾスケールの磁区構造にわたるマルチスケールでの磁気的相互作用により磁気特性がマクロに発現している。このため、材料組織を適切に構造形成することにより、最適化を行うことが重要であり、磁場中でのプレスや焼結、熱間加工などのプロセスにより最適な磁石組織の形成が行われている。しかしながら、組織形成プロセス中に起こっている現象のミクロなレベルでの理解が進んでいないため、膨大な手間をかけて材料開発を行っているのが現状である。従来方法の材料開発から脱却し、ミクロな現象の理解に基づき、材料組織を最適化し、その材料組織を形成するための製造プロセスへとフィードバックする逆問題解決型のアプローチが今後は重要となる。KEK 放射光を用いることでこれらの新しいアプローチが可能となり、高輝度高エネルギーX 線を用いることにより高圧（~ 1GPa）高温（~ 1,500˚C）環境下での in situ X 線回折を短時間で測定可能になる。

こうした手法が実現すると、高性能磁性材料に必要な磁気異方性の起源の探索や磁化反転過程（保磁力メカニズムの解明）などの基礎研究分野から、さらには産業界のニーズへと直接結びつく磁性材料製造プロセスにおける問題点の解明までを行うことが期待され、希少元素を代替する高性能磁性材料開発を飛躍的に進展し、さらには高効率での新規材料探索が可能になる。KEK 放射光を利用した研究では、永久磁石材料の問題点や未解明の現象を理解し高性能化の可能性を探ることと、新しい高性能磁性材料の高効率探索・評価とをパラレルで進める必要がある。

その他に KEK 放射光での新展開についてここで述べておきたいことはデータ解析の重要性である。現状の放射光利用研究では実験データ解析のスループットが律速になっていることも多い。このような状況では単に光源性能が向上しても、サイエンスのアウトプットが飛躍的に向上することは見込めない。そこで、実験データ解析を最先端の情報処理技

術と融合することにより、これまで観測できなかった物理量の可視化や、スパースモデリングなどを用いて少ない情報やノイズに埋もれた情報から有用な知見を取り出す技術の開発を強力に推進すべきであると考えている。さらにはロボットなどを用いた高効率測定により大量のデータ取得を行い、得られたデータからデータマイニングなどの方法で帰納的・発見的な材料科学研究へとつなげるべきであると考えている。さらには、測定やデータの評価・解析に職人芸を要する従来の放射光実験の世界から脱却し、機械学習などを用いて実験データ取得、データ解析などを自動化することにより、材料科学研究に真に役立つ KEK 放射光となることを期待している。

（3）必要とされるビームライン・実験設備

走査型透過 X 線顕微鏡（STXM)、磁気タイコグラフィ、３次元タイコグラフィ
X 線磁気円二色性（XMCD)、X 線回折、高温高圧 in situ 回折
材料評価実験ラボ
各種試料加工＆前処理装置、VSM、FIB-SEM、TEM、XRF、DSC-TG。
高速データ解析基盤
　計算サーバ、高速データベース、大容量ストレージ

3-3. 高い時空間分解能の実現による光触媒・人工光合成研究の新展開

(1) 背景

触媒は反応の活性化エネルギーを低下させ、新たな化学反応経路を創生する。言わば、莫大な活性化エネルギーが必要な反応も、触媒によって省エネルギーで実現することが可能となる。光によって触媒効果が得られる光触媒を用いて、光エネルギーを化学エネルギーへ変換する試みは、クリーンな新エネルギー開発の観点から近年活発に研究が行われている。

地球温暖化、エネルギーの枯渇は喫緊の課題であり、再生可能エネルギー技術の新規開発が急務となっている。植物の光合成を人工的に実現し、永続的に供給される太陽光エネルギーを化学エネルギーとして分子に蓄える技術「人工光合成」は、この課題に対する現実的な解決方法である（図１）。人工光合成を実用化するには、光エネルギーを用いて水から電子を引き抜き、その電子で二酸化炭素を還元し、一酸化炭素やメタノールといった化学原料や燃料を作る高機能な光触媒の開発が重要な課題である。実用化レベルまで光触媒の機能性を高めるには、光触媒反応を素過程に分解し、光励起状態における構造・電子状態を可視化して、効率向上の阻害要因となっているキャリア再結合のメカニズム、触媒反応活性点、表面・界面における反応機構などについて詳細に理解することが必要である。

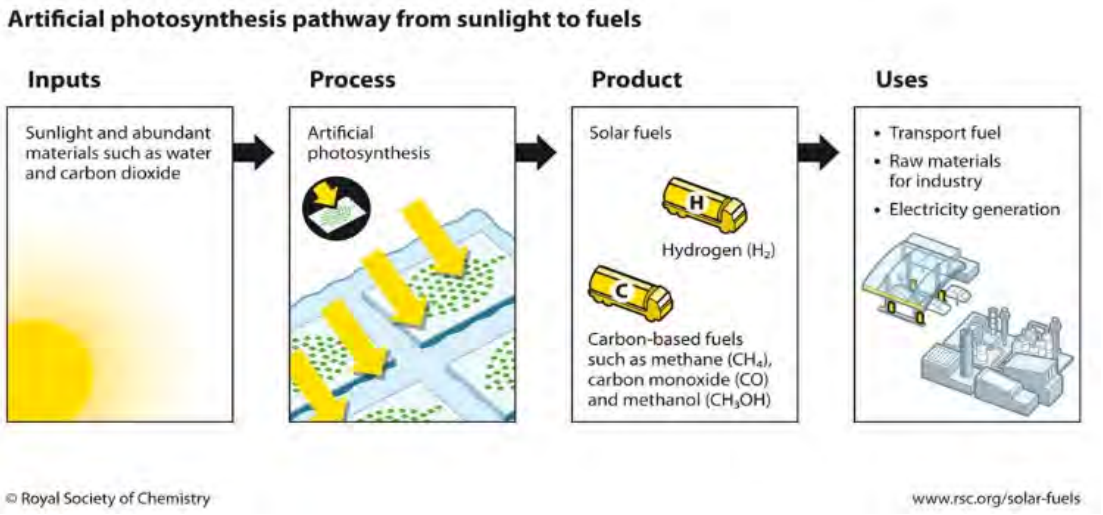


図１　人工光合成における光エネルギー変換（www.rsc.org/solar-fuels より引用）

光触媒反応は光エネルギーによって光触媒の中に生成する励起電子と正孔が活性種となり、触媒近傍にある反応物との酸化還元反応により生成物を作り出す反応である。金属錯体等の均一系光触媒においては、その多くは、光励起状態において配位子が外れた不飽和なサイトに反応物が結合し、励起電子が反応物に移動（還元）することで触媒反応が進行すると考えられている。しかしながら、このような基本的な配位子交換や、電荷移動であっても、ほとんどの反応における反応中間体の構造は基底状態の分子構造と生成物から推

論されているに過ぎず、高機能な錯体合成を論理的に進めていくためには、これらの反応における励起状態の可視化が不可欠であることは言うまでもない。

一方、酸化チタンに代表される不均一系光触媒においても、反応物の吸着・酸化/還元・解離の過程を経て触媒反応は進行していくが、それらは固体光触媒や、担持された助触媒金属における表面で起きているため、その反応を可視化するためには、プローブに表面敏感性が要求される。また、一般的にこれらの反応は、光励起によって半導体光触媒に生成された励起電子と正孔によって駆動されるため、その反応過程を総合的に理解するには、ショットキー障壁による電子正孔対の電荷分離や、格子欠損によるキャリアトラップ状態等、半導体の表面・バルクにおける過渡的な電子状態変化も同時に可視化することが重要になる。

原子レベルで反応の可視化を行うためには波長がÅスケールの X 線を用いた時間分解測定が必要なことは自明であり、さらに不均一系の表面で起こる反応物生成過程の情報を抽出するためには、軟～硬 X 線ナノビームを用いて、測定する領域と深さを変えながら元素・サイト・軌道選択制を駆使した先端的な測定を行うことが必要である。しかしながら、現状の放射光施設では、実験可能な X 線パルス強度で軟～硬 X 線ナノビームを用いた時間分解測定を行うことは難しく、得られた動的情報において素反応過程と不均一性を関連付けて議論するまでには至っていない。

(2)KEK 放射光における新展開と期待される成果

一般的に光触媒の励起状態寿命は短いため、その素反応過程を可視化するには pump-probe 測定が必要となる。励起効率が低い素反応過程を精度良く測定するには pump-probe 測定周波数を放射光周回周波数の~1 MHz として最大の光子束が得られる条件で実施するのが望ましい。測定周波数が高周波数になると励起レーザーのパルスエネルギー減少が懸念されるが、KEK 放射光では 10μm～10nm のビームを利用できることから、数μJ 程度の比較的低いパルスエネルギーでも光反応に十分な励起密度を確保することができる。この 1 MHz pump-probe 測定

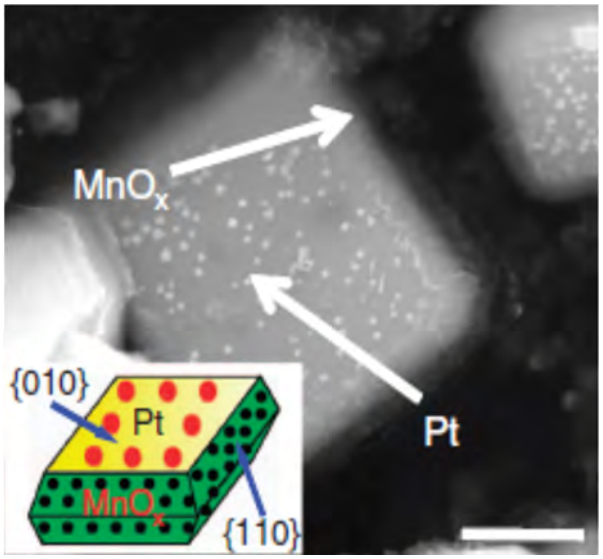


図２　電子顕微鏡で観測された光反応後の金属イオン析出。不均一系光触媒中で光生成された電子と正孔が異なる結晶面において酸化還元反応を起こすことが示唆されている。(R. Li, *et al.*, *Nat. Comm.* (2013)., DOI: 10.1038/ncomms2401)

を用いると、1mM 程度の低濃度サンプルにおいても広域波数空間の時間分解 EXAFS を測定することが可能となり、光エネルギー変換時の局所構造変化を追跡していくことで、広範な光触媒材料において電荷の移動経路を可視化することができる。

また、KEK 放射光ではナノビームが利用できるため、不均一系における微小領域の観測や、二次光学過程を用いた分光測定の高エネルギー分解能化（meV レベル）が可能となる。さらに、差動排気系を用いた大気下測定システムにおいても、ビームサイズがナノレベルになることで、真空-大気接合部開口径や大気光軸長は飛躍的にダウンサイジング化され、光子束のロスを最小限に抑えた条件での測定が実現される。これにより、軟 X 線領域であっても溶液サンプルの取り扱いが飛躍的に簡易化されるため、光触媒反応下における幅広い in-situ 測定への利用展開が期待される。現在、不均一系光触媒のナノスケールにおける構造研究では主に電子顕微鏡が利用され、反応前後の視覚的な評価から反応効率や生成物選択性の仕組みについて議論が行われているが(図 2)、KEK 放射光ではナノビームを利用して、溶液内における光反応中の光触媒材料の様子をナノスケールで化学状態分析することが可能となる。KEK 放射光によって測定が実現される、光反応下における半導体光触媒や担持助触媒金属の表面における吸着サイトや吸着分子種を判別したマッピングや、反応表面に内在する電子素励起の可視化等、光触媒材料開発に向けた幅広い応用実験は、人工光合成系の開発研究において実用的なエネルギー変換効率もたらすブレークスルーを与えるものとして期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

A. ビームライン

［リング性能］

大電荷孤立バンチを含む長期運転モード

低エミッタンス性能を確保した短パルス性能

［ビームライン性能］

孤立バンチ利用専用ビームライン２本（硬 X 線，軟 X 線）

X 線時間分解計測で必要なサンプル上でのパルスエネルギー：$>10^6$ photons/pulse

可変集光サイズ（５０マイクロメートル ～ １０ナノメートル）

B. 実験設備

サンプル励起用波長・周波数可変レーザー（UV～NIR，10Hz～1MHz）

硬 X 線、軟 X 線用高速検出器およびデーター処理システム

軟 X 線大気圧測定用差動排気測定系

3-4. 不均一電極反応の可視化による二次電池研究の新展開

（1）背景

二次電池をはじめとする蓄電デバイスに用いる材料の開発に、放射光は必須のツールである。例えば、X 線吸収分光法（XAFS）や X 線回折法は、蓄電デバイスの駆動下（operando）での測定が可能であるため、デバイスを解体する必要のある多くの分析手法に比べて明らかに有利である。放射光技術の高度化によって、蓄電デバイス内部で起こる反応について様々なことが明らかにされつつある。近年注目されている事象に、電極反応の「不均一性」がある。合剤電極中 mm～μm のスケールでの不均一な反応分布（図１）の存在がイメージング XAFS により明らかになり （T. Uenoyama et al., *J. Phys. Conf. Ser.,* **712,** 012143, 2016）、走査型透過 X 線顕微鏡（STXM）を用いて活物質粒子内部でのμm～nm スケールでの化学状態が局在化した様子が可視化されている（J. Lim et al., *Science,* **353,** 566, 2016）。すなわち、蓄電デバイスの中で、様々な空間スケールでの不均一性が存在していることが明らかになってきた。次世代デバイスに向けた新規材料の開発には、放射光を利用した分析により operando で不均一反応を把握し、機能との関係を明らかにした上でそれを制御する必要がある。可視化の手法として、STXM は分光法との組み合わせにより活物質粒子内の分布を集光ビームサイズの分解能（数 10 nm）で観測することが可能であり、今後はこの手法により粒界や固液界面に関してこれまで見えてこなかった反応が可視化され、電気化学分野を大きく進展させると予想される。

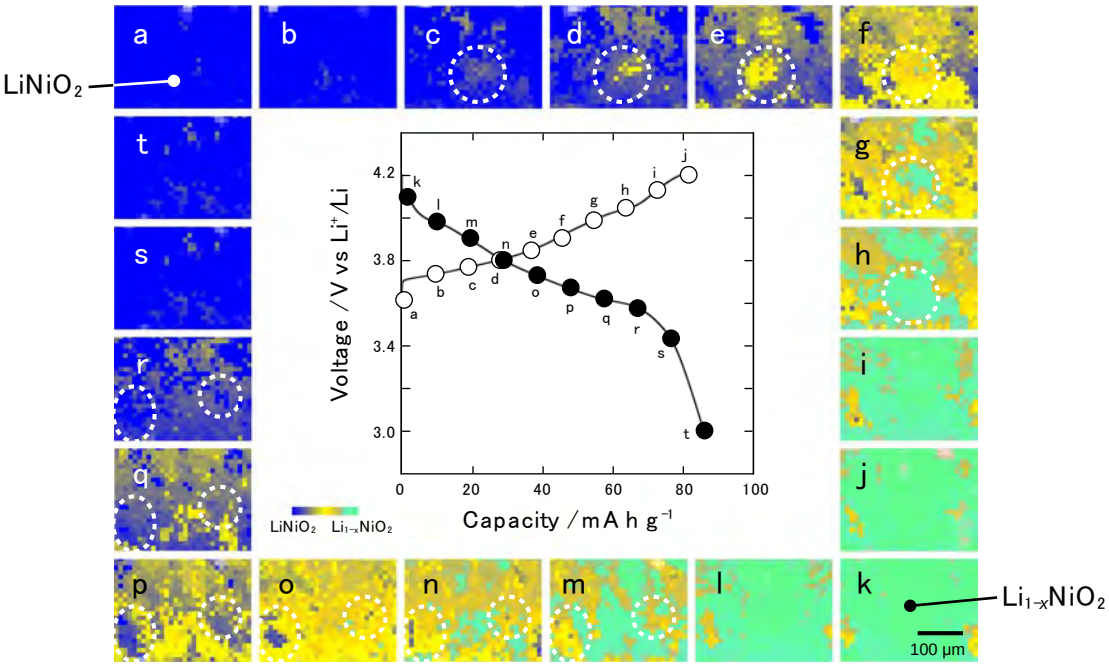


図１ リチウムイオン電池の充放電過程で観測された不均一な反応分布 （T. Uenoyama et al., *J. Phys. Conf. Ser.,* **712,** 012143, 2016）

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

不均一な電極反応の発生する空間スケールや時間スケールは、対象とする系によって異なることが予想される。リチウムイオン電池正極を例に挙げると、充放電過程において活物質粒子の導電性炭素材料および Li イオンを含む電解液との界面で Li イオンの脱離･挿入が起きる。一つの活物質粒子内での反応は、その粒子の状態と環境に影響を受けると考えられるが、「どのような」粒子がより効率よく反応に寄与するか、高速充放電に耐えることができるのかは、理解できていない。このような情報を得ることができれば、粒子の形状やサイズ、表面処理などの合成プロセスにフィードバック可能な貴重な指針になる。特に全固体電池や空気電池では、界面での反応が重要であることは認識されているにもかかわらず、反応部位だけに絞った解析は現状ではなされていない。高輝度・高コヒーレンスである KEK 放射光を利用すれば、空間的に不均一な反応を operando で追跡し、反応チャンネルのような特異点をピンポイントで詳細に解析することができると期待できる。具体的には、3d 遷移金属 K 吸収端のエネルギー領域で、30 nm の空間分解能でμm の粒子を秒オーダーで化学状態マッピングすることが可能になれば、電極反応の理解は飛躍的に進展する。充放電は通常秒よりも長い時間をかけて行われるが、個々の粒子について不均一反応を追跡するには秒単位の時間分解能が必要である。より高速な空間分解解析が可能になれば、粒子内の拡散についての新たなサイエンスへの展開も期待できる。高効率かつ安全・安定な蓄電システムの開発には、ナノレベルでの反応解析が必要であり、解析を通じて持続可能な社会を支える次世代デバイスが創出されることが期待される。

空間分解かつ operando での反応の追跡には、XAFS が多くの系に広く利用できるが、Li のような軽元素に対しては中性子や他の量子ビームも活用が期待できる。また、テラヘルツ波は透過力の高さから X 線イメージングとの相補的に利用できる。KEK 放射光と KEK 他施設を併用したマルチプローブ実験における利便性を向上させることで、マルチビーム空間分解手法が飛躍的に発展することが期待できる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

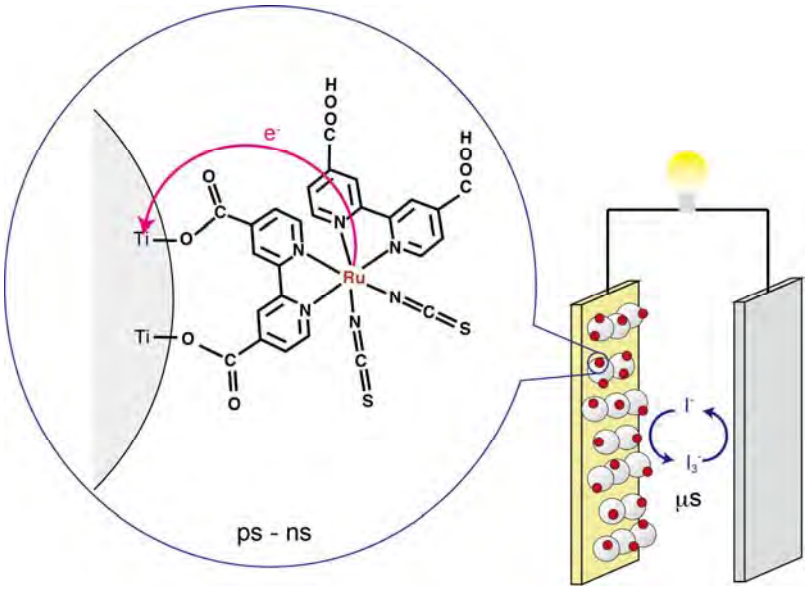
- マイクロ・ナノ集光 硬 X 線 XAFS 用ビームライン
- 全視野測定用ワイドビーム 硬 X 線 XAFS 用ビームライン
- 軟 X 線 XAFS 用ビームライン（マイクロ・ナノ集光）
- STXM 実験が可能な試料位置制御機構
- マルチプローブ実験に適した環境（同一試料・同一視野での測定が可能、など）

3-5. 時間分解 XAFS 法による有機太陽電池・光触媒研究の新展開

(1) 背景

化石燃料に依存したエネルギー生成・消費プロセスから脱却し、永続的に利用できるエネルギー資源の創成は、持続可能な社会を形成する上で不可避であり、現代科学技術の最重要課題の一つである。新エネルギー資源を得る技術の一つに、太陽光エネルギー変換がある。例えば、太陽光を電気エネルギーに変換する太陽電池や、水をエネルギー資源である水素に変換する光触媒などがある。既に、太陽電池など実用化されているものもあるが、エネルギー変換効率や耐久性などの問題から、未だに広く普及させることが出来ていない。太陽電池や光触媒の性能を実用に耐えうるものにするには、更なる研究開発が重要である。

太陽電池や光触媒の性能の大きな部分は、光を吸収し電子などのキャリアに変換する物質(半導体や光増感剤など)が決めている。そのため、これらの光励起状態を捉え、キャリアがどのように伝搬するかを明らかにすることは、太陽電池や光触媒の高効率化において重要な知見となる。これまで、半導体や光増感剤など有機金属錯体の光励起状態は、主にレーザーを用いた分光法によって調べられてきた。これらの分光法では、キャリアの寿命などをフェムト秒オーダーの時間分解能で捉えることが可能である。ところが、レーザーによる分光法では、光キャリアのレーザーへの応答を観測しているために、光キャリアの生成量などは推定できるものの、光吸収に伴うキャリアが物質内のどこにいるのか、またどのようなプロセスで消費されるかなど、周辺情報を含んだ知見を得ることが出来ない。一方で放射光から得られる X 線を用いると、レーザー分光では得られない物質内の原子・分子の情報とともに、光キャリアの寿命や消費過程等を議論することが可能となる。例えば、色素増感太陽電池では、N719 色素などの金属錯体上が光吸収を起こし光キャリアが発生する。発生した光キャリアは、担体である TiO_2 へと伝搬する。X 線を用いると、金属錯体上と担体上の光キャリアを区別して測定することが可能である。そのため、キャリア生成~キャリアの伝搬という一連の過程を追跡することが可能である。



色素増感太陽電池における各プロセスの模式図

太陽電池や光触媒の素過程を解明するには、fs オーダーの光吸収によるキャリア生成、ps~ns オーダーのキャリア伝搬、μs オーダーの再生プロセスと幅広い時間領域をカバーする必要がある。後述のように、fs オーダー及び ps~ns オーダーの実験については、可能となりつつある。一方で、μs オーダーについては現在のところ有効な解決策がない。新たな光源では、μs オーダーで進行する現象について適用可能な方法論の開発が望まれる。

（2）KEK 放射光における新展開と期待される成果

[時間分解 XAFS の現状]

放射光で得られる X 線は、およそ 100 ps 程のパルス X 線であり、パルスレーザーと組み合わせる事で、種々の時間分解実験が行われている。X 線とレーザーと組み合わせた時間分解 XAFS 法は、物質の光吸収に伴う電子状態の変化及び、励起状態の局所構造を決定することが可能である。太陽電池や光触媒は、不均一系の材料であり、周期構造を有さないことが多い。そのため、XAFS 法のような局所構造を決定出来る手法が有用である。過去の時間分解 XAFS 実験では、kHz オーダーの繰り返しのパルスレーザーを用い、放射光の X 線はレーザーに同期したものだけを選別していたため、通常の XAFS スペクトルに比べると S/N が低く、励起状態の XAFS スペクトル得るには、非常に長時間のビームタイムが必要であった。しかしながら 2010 年頃からは、大強度・高繰り返しで運用できるパルスレーザーとマイクロビームとを組み合わせた実験システムが構築され始め、現在ではステップスキャン XAFS と変わらない S/N でスペクトルを取得し、励起状態の構造解析を行う実験が可能となっている。既に KEK の PF-AR においても、高繰り返しレーザーシステムが構築され、過去のシステムではノイズに埋もれていた非常に小さな XAFS スペクトルの変化も検出できるようになっている。また LCLS や SACLA などの XFEL の登場により、fs の時間分解能での時間分解 XAFS スペクトルの取得が可能となり、光励起の直後の物質のダイナミクスが明らかにされるようになってきた。

このように、フェムト秒・ピコ秒・ナノ秒の時間領域での励起状態の電子状態や構造解析が行える様になってきた。一方で、マイクロ秒領域で進行する現象は、先述の高繰り返しレーザーを用いた時間分解 XAFS システムでは、観測しなければならない現象の時間スケールが長すぎ、測定することが出来ない。(kHz オーダーのレーザーを用いた実験では S/N を犠牲にせねばならず、膨大な実験時間を必要とする)。Quick XAFS 法などの高速に XAFS スペクトル自体を測定する手法でも、サブミリ秒(100 μs オーダー)が限界であり観測に用いることが出来ない。

[マイクロ秒領域の時間分解 XAFS]

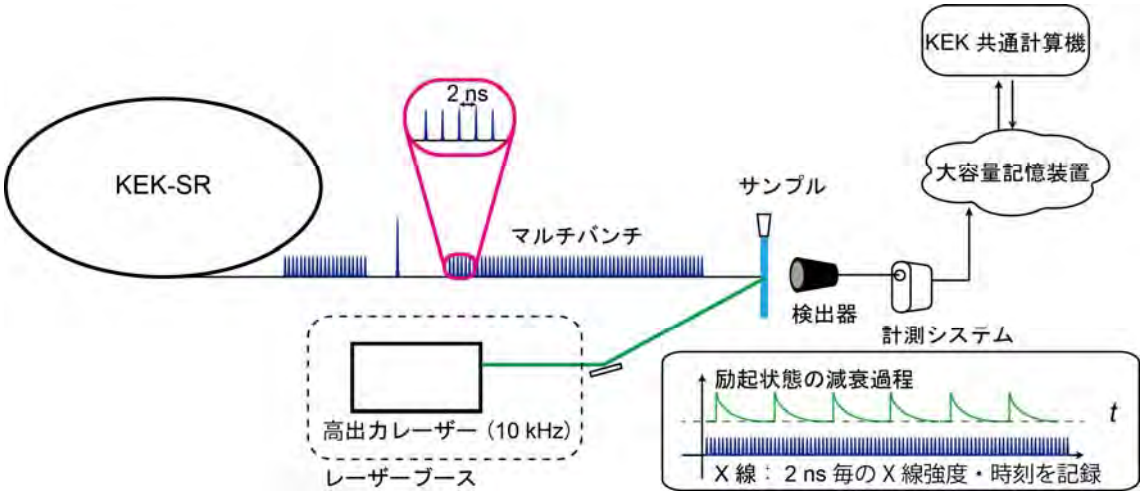
マイクロ秒の長い時間領域全体にわたって高い時間分解能（ns）で進行するキャリアの伝搬や化学反応を観測するためには、従来のレーザーと X 線パルスを同期させる手法とは異なる新たな発想での計測手法が必要であり、KEK 放射光ではそれが実現可能である。

具体的には、X 線が反応を計測した時刻とレーザーパルスの時間構造を高精度で記録し、

反応終了後の計測データを時系列整理することにより時間分解 XAFS スペクトルを取得することが考えられる。光励起によって生じたキャリアがマイクロ秒オーダーで消費される過程を観測するには、励起レーザーの間隔が十分長ければ(例えばレーザーを 10 kHz など)、次の励起レーザーが来るまでには試料の状態は基底状態に戻っている。放射光 X 線が 500 MHz のマルチバンチである場合には、2 ns おきに X 線が試料に照射されているので、X 線が検出器に入った瞬間の時刻と強度を計測することが出来れば、最速で 2 ns の時間分解能で XAFS スペクトルを取得することが可能となる。この実験方法には、まず X 線を高感度に検出し、かつ 2 ns で応答する高速な検出器と 2 ns おきにやってくる検出器からの信号を処理できる計測システムが必要である。検出器については、2 ns 間隔の X 線パルスを追随できるものはあるものの、現状の計測機器では 2 ns おきに X 線パルスを取り込むことが出来ない(現状では 1 秒あたり 10^6 イベント程度が限界)。

こうした手法の実現には高度な計測機器の整備が必要であるが KEK 放射光ではそれが実現可能である。KEK はこれまで素粒子物理学の実験のために、高度な計測機器の開発を行っており、その技術を活かしたベンチャー企業も創出されている。そのノウハウを活かすことで、これまでにない計測システムを構築することが可能である。また、計測されるデータはX線を検出する毎に記録されるため、1秒間で最大500×10^6のイベントが生成し、データが非常に膨大なものとなる。大規模データを集積し高速に処理するには、高性能な計算機が必要である。KEK には、既に共用計算機が完備されており、更に申請すればスーパーコンピュータも使う事が可能である。計測機器と処理システムを統合して、全く新しい高度な測定システムの創出が期待できる。

更にこの検出方法は、X 線フォトンを検出する実験に応用することが可能である。例えば、X 線回折のような手法も、X 線をパルスとして検出し、検出時間を決定することで上述と同様な実験を行うことができる。KEK 放射光の高いコヒーレンスを活かした回折実験などにも適用可能である。例えば、金属-絶縁体相転移を示す VO_2 では、均一な薄膜材料を作成し



KEK 放射光のマルチバンチを利用した時間分解 XAFS 計測システム

ても、転移点付近では相分離構造を持つことが知られている。相分離した金属相と絶縁体そうについて、相転移の過程のダイナミックな変化を捉えることが出来れば、なぜ相分離を起すかということについて、重要な知見が得られると考えられる。相分離のドメインサイズはおよそ 100 nm 程度である。新たな光源であれば、ドメインサイズよりも十分小さな X 線を使い、サイトを選別して構造情報を取り出すことが可能となる。特にコヒーレント回折などを用いれば、ドメインの詳細な構造まで明らかにできると考えられる。

こうした実験手法は、3GeV クラスの蓄積型放射光では達成できないさらに短時間（ピコ秒領域）の実験が実施可能な XFEL を用いる際にも必要不可欠なものとなっている。現在、ドイツ・スイス・韓国に XFEL の建設計画があり、既に着手されているところもある。これまで LCLS と SACLA でしか行えなかった XFEL の実験が、より身近となり競争が激しくなることが予想される。残念ながら、現在の計画されているマルチバンチのみの KEK 放射光では、1 電子バンチあたりの flux がとても低いため、従来のポンプ-プローブ XAFS 実験は不可能になってしまう。XFEL を含めた ps～ns の広時間領域での反応観察の研究環境を整えるためにも、KEK 放射光では様々なバンチモードでの実験を実現させることが不可欠である。具体的には、Swiss Light Source の様に、孤立バンチとマルチバンチを同居させたバンチ構造の実現を検討して頂き、従来の時間分解 XAFS 法のアクティビティを落とさずに、新たな時間分解 XAFS が創出できる放射光施設の環境整備を強く望む。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

⇒バンチモードとして、孤立バンチとマルチバンチが共存する Swiss Light Source 型のバンチモードでの常時運転

・ピコ秒時間分解 XAFS 実験ステーション

- エネルギー範囲: 4 keV ~ 30 keV
- 10 W@1 MHz 出力の高出力レーザー（基本波: 1030 nm もしくは 1064 nm、２倍波・３倍波）
- レーザーブース、レーザー光学系設備
- flux: 孤立バンチで、10^{11} - 10^{12} photons/s
- ビームサイズ: 10 μm 未満

・マイクロ秒時間分解 XAFS 実験ステーション

- エネルギー範囲: 4 keV ~ 30 keV
- 10 W@100 kHz 出力の高出力レーザー（基本波: 1030 nm もしくは 1064 nm、２倍波・３倍波）
- レーザーブース、レーザー光学系設備
- flux: マルチバンチで、10^{12} - 10^{13} photons/s
- ビームサイズ: 10 μm 未満
- KEK 共通計算機を使用した解析システム及び大容量記憶媒体設備

3-6. コヒーレント X 線イメージングによるナノ・メゾ機能性材料研究の新展開

(1) 背景

触媒や電池に代表されるナノ/メゾ機能性材料・デバイスは、現状では必ずしもその潜在能力をフルに発揮しているとは限らず、微細構造やマルチスケールでの heterogeneity 等の反応場を最適的化することによりさらに特異的な高機能を発現することが期待できる。これら機能性材料・デバイスの設計・開発には、機能発現・劣化機構を原子・分子レベルで解明することが必要である。放射光 X 線分析法は、X 線の高い透過能力を利用して機能性材料の反応過程を直接的にその場観察できることから、最も強力な分析手法の一つとしての地位を確立してきた。第 3 世代放射光施設では、従来の試料全体に対する平均的な分析から、時間的・空間的な分解能を有する様々な分析が可能となり、機能性材料の機能発現機構の解明に向けた研究が広く行われている。

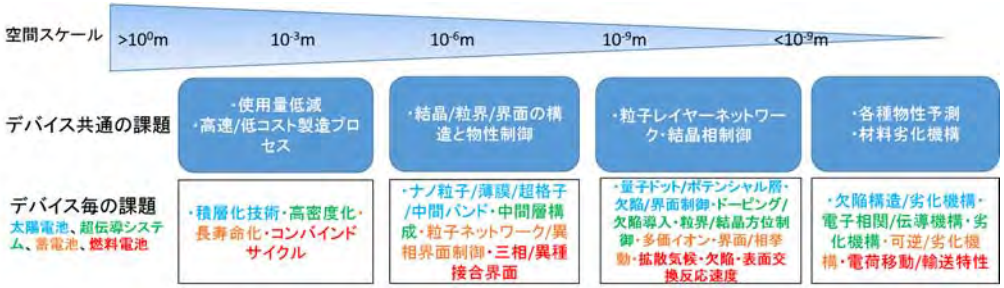


図 1　エネルギー技術と空間スケールごとに解決すべき課題(JST 低炭素社会戦略センター資料 http://www.jst.go.jp/lcs/)

例えば、エネルギーデバイスは、従来の電気化学的手法に頼った分析から、放射光を利用して、温度・反応ガス・電位・電流などを制御しながらデバイス動作下でその場分析を行うことにより、分子レベルでの直接的な観察が実現されるようになってきている。エネルギーデバイスは、様々なサイズの要素から構成される複合構造体であり、nm から mm オーダーの空間的な階層構造をもつ。図 1

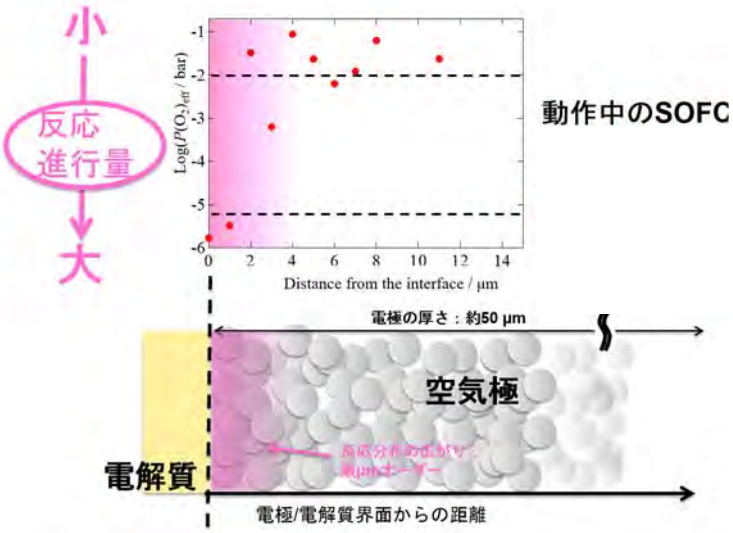


図 2 走査型 XAS 法により得た SOFC 空気極内の電気化学反応空間分布（K. Amezawa et al. *ECS Transactions,* **66**(2), 129 2015）

は、代表的なエネルギーデバイスの性能向上に向けた課題について、空間スケール毎に整理したものである（JST 低炭素社会戦略センター資料 http://www.jst.go.jp/lcs/）。これらの課題に対して、放射光を用いた顕微分光(K. Amezawa et al. *ECS Transactions,* **66**(2), 129 2015)や、高エネルギーX 線回折(K. Ohara et al. Sci. Rep. 6 21302 2016)、X 線構造解析(T. Miyadate et al. Nano Lett., **2015**, 15 (8), 563)などを利用して解決が試みられてきている。中でもX線吸収分光法（XAS 法）は結晶および非結晶試料双方に高感度に適用できるため、両者から構成されるエネルギーデバイスに対して有効であり、多くの成果を挙げている。図 2 は、固体酸化物形燃料電池（SOFC）に対し、KB ミラーによる集光 X 線ビーム（1 μm）を用いた走査型 XAS 法により明らかにされた空気極内の電気化学反応の空間分布を示す。この研究では、電極内の mm オーダーの反応領域で反応が進行する様子を空間分解能：μm、時間分解能：秒で観察することに成功しており、現在ではさらに 100nm オーダーの空間分解能での分析へと発展している。しかしながら、電池動作の鍵となる電極表面界面で起こる反応を直接的に観察するには、現状の計測法の空間分解能（数 10nm～100 nm）・ビーム強度では不十分であり、実施に至っていない。

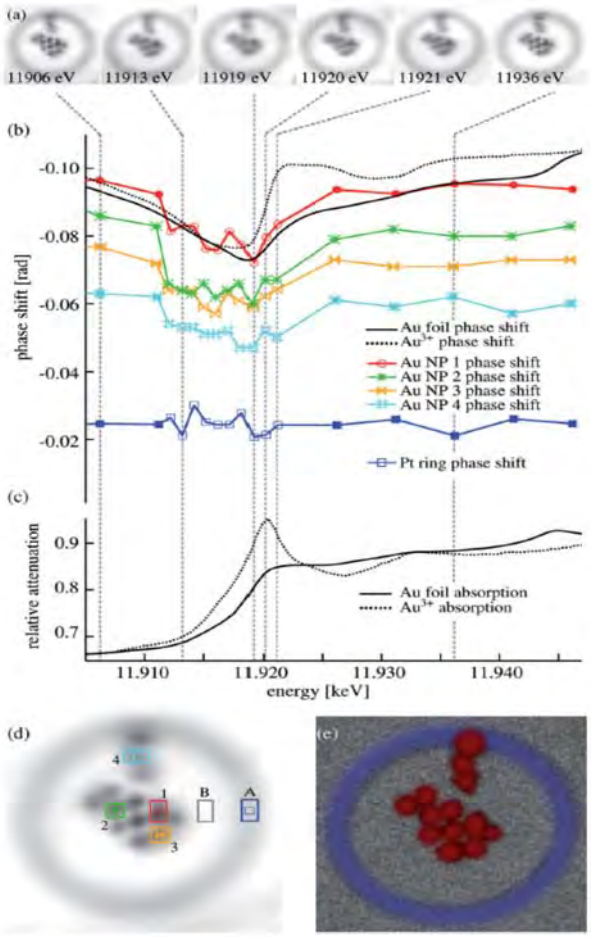


図 3. Ptychography+XAFS 法による Au-NPs の再構成像と得られた位相シフトスペクトル (R.Hoppe et. al., APL 102. 203104 2013)

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光がもたらす X 線分光法への新展開としては、光源の低エミッタンス性能がもたらす集光ビームのフラックス増大による走査型顕微分光イメージング法の高性能化がまず挙げられる。KEK 放射光では、100 nm 分解分光イメージングの時間分解計測や、現在困難な 10 nm 分解分光イメージングの実現が期待される。

また、KEK 放射光では、コヒーレント X 線フラックスの増大により、コヒーレント X 線回折イメージング（CDI）法を用いた分光イメージング法の利用が期待される。CDI 法は、原理的には波長限界の空間分解能(原子分解能)が達成できる手法であり、特に走査型の

CDI 法である ptychography 法は、広い測定視野が必要な観察対象に対して適用可能な手法として、最近、第３世代放射光施設で手法開発・利用研究が開始されつつある。図３に、PETRAIII での ptychography 分光イメージング法の事例(R.Hoppe et. al., APL **102**. 203104 2013)を示す。1 μm 程度の視野を 20×20 のステップで ptychography 計測（計測時間：600 s）し、空間分解能：19 nm で、Au-NPs の Au 価数判別を行っている。しかしながら、多くの第３世代放射光施設では、コヒーレンスフラックス比率は 0.1%程度で、計測に使用できる実効的フラックスは 10^9 phs/s 程度であるため、各エネルギー点での ptychography 計測を必要とする分光イメージング計測には多大なビームタイムが必要となっている。図３の例では、1 イメージを測定するのに、20 点×20 点×1.5 秒 = 10 分を要し、それを多くのエネルギー点（数 10 点）で測定するための時間が必要となる。そのための現状では、反応や経時変化を観察するのは事実上困難である。

KEK 放射光では、コヒーレントフラックスが現状の数 10 倍以上に向上することが期待されるため、ptychography 分光イメージング法（空間分解能：サブ 10 nm）を用いた実試料に対する利用研究展開（in-situ / operando 計測）の実現が期待される。さらに、試料の厚さ方向の heterogeneity を考慮した multi-slice の方法や、3D XAFS-CT、3D 蛍光測定等の測定を併用することにより、高分解能かつ３次元での観察法の実現も夢ではない。

CDI 法（ptychography 法）を用いた分光計測を一般化し、さらに３D に展開していくには、取得したデータの画像処理、計算アルゴリズム構築や並列処理、big data の取り扱いについても専門家との協力のもと、測定データをリアルタイムで解析するシステムの構築が必要不可欠となる。また、これらを利用者が施設外からアクセスし、データ処理できるようなシステム構築も必要になると考える。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- CDI/ptychography-XAFS 用実験ビームステーション(スペックルフリーな光学系、集光光学素子、大面積高ダイナミックレンジ２次元検出器等)
- 大容量画像データ解析設備(大面積２次元検出器の画像の保存・複数並列処理に耐え得るサーバー、高速データ処理システム及び自動画像解析プログラム)

3-7. ナノ集光ビームによる誘電体材料研究の新展開

(1) 背景

【概要】

ナノ集光ビーム（10 nmϕ）を用いて、電子デバイスに用いられている誘電体材料の電子状態を作動条件下で調べる（オペランド測定）。電場や応力などの外場に対する単一誘電分域（ドメイン）内の応答や、デバイスの繰り返し使用による絶縁劣化の起源を、X 線吸収分光法(XAS)や X 線発光分光法(XES)、さらに両者を組み合わせた高エネルギー分解蛍光検出法(HERFD)を用いた電子状態測定（スペクトル測定）により解明する。

【本研究提案のねらい】

電子デバイスの小型化・省電力化は、今日なお追及され続けている開発目標である。蓄電デバイスであるコンデンサーでは、誘電体材料にドメイン構造（10～100 nm）や各種欠陥構造（酸素欠損やアンチサイト）が存在し、それらが性能向上の妨げになっている。この解決には、放射光Ｘ線を用いた元素選択的な分光測定による**「単一ドメインの電子状態観測」**が適している。

しかし、既存の国内の放射光施設ではビーム集光が十分ではない（PF: 1μm, SPring-8: sub-μm）。そのため、nm スケールのドメイン構造をもつ誘電体の電子状態測定に関しては、空間的にアンサンブル平均された結果に留まっている。つまり、単一ドメインの潜在的な誘電特性の評価はほとんど手付かずのままであるといえる。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

【空間分解能に対する期待】

誘電体のドメインサイズは 10～100 nm 程度である。KEK 放射光で実現できるビームサイズ（10 nmϕ）と高コヒーレンスを用いた ptychography 等を併用することで分解能数 nm での観察が可能であり、単一ドメインを選択的に調べることが可能である。

【エネルギー分解能・輝度に対する期待】

誘電体の電子状態研究では、入射光の空間分解能の高さだけでなく、エネルギー分解能と輝度も重要な要素である。エネルギー分解能と輝度は逆相関の関係にあるため、例えば誘電特性と密接に関係する微小なスペクトル構造の空間分布を精度良く測定することは、既存の放射光施設では現実的ではない。KEK 放射光ではこの状況が改善され、特に二次光学過程ゆえ強度の弱い発光分光では、刷新的な結果が期待できる。例えば、誘電体物質の主要元素である Ti K 吸収端[5 keV]におけるエネルギー分解能 0.1 eV を十分な強度で測定できる。

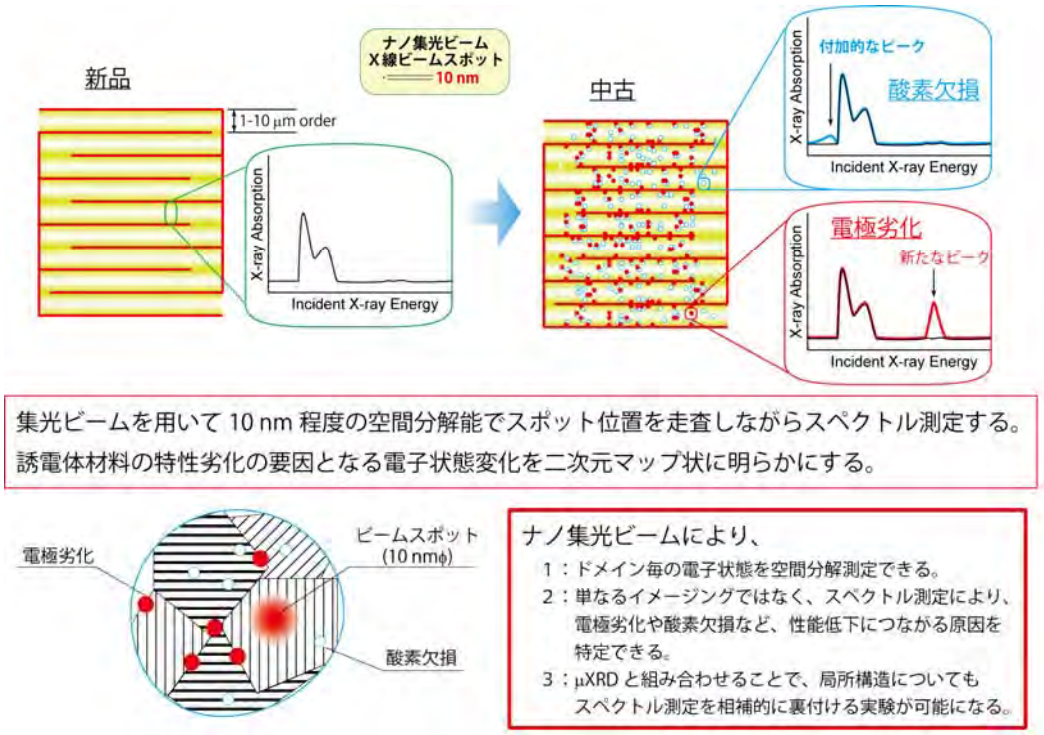
【単一ドメインの物質機能と電子状態の相関】

近年、高エネルギー分解蛍光検出法（HERFD）を用いた共鳴吸収端近傍の状態選別 XAS 測定の結果をもとにして、酸化物セラミックス（チタニア）の触媒活性と局在的な電子状態の相関が報告されている。同じ酸化物セラミックスである誘電体材料においても、オペランド条件下で HERFD-XAS 測定を行うことで、誘電特性（物質機能）と電子状態の相関をドメイン単位で議論することができるようになると期待している。

ドメイン構造としては磁性体の持つ磁気ドメインもあるが、こちらは 1/10 程度のさらに小さいドメインである。走査型透過 X 線顕微鏡（STXM）で、磁気ドメインの元素選択的観察は実現しているが、透過測定のため薄膜試料が必要となる点が難点である。KEK 放射光を活用して誘電体ドメインの電子状態を調べることは、空間スケールと試料環境の自由度から、最もマッチングの良い取り組みである。

【ナノ集光ビームを用いた単一ドメインX線分光研究】

そうしたサイエンスの例として、積層セラミックコンデンサーでの研究展開を提案し、期待できる成果について述べたい（概略図参照）。積層セラミックコンデンサーは、極板間隔が 1 μm 程度の極小サイズの作製が可能になっている。しかし、微細化することで、それ



図：積層セラミックコンデンサーの使用前後での劣化の原因を、ナノ集光ビームを使ったX線吸収分光（XAS）測定で明らかにする。酸素欠損や電極劣化などを、断面スキャンしながら明らかにする。

まで解決を避けてきた酸素欠損や電極劣化などの問題が顕在化するようになってきた。図に示した二種類のコンデンサー劣化のメカニズム（酸素欠損と電極劣化）も、数 10 μm 程度のマクロスケールでの経験に基づいたものであり、ドメインサイズと同程度の極小サイズのデバイスでも同様に議論できるのかはわかっていない。単一ドメインでは、明瞭な誘電特性が巨大な誘電特性として発現することが期待されるため（一種のサイズ効果)、劣化のメカニズム解明は省電力化にも繋がる重要な課題といえる。

【実験手法の組み合わせによる研究の発展】

ナノ集光ビームのメリットはスペクトル測定のみにとどまらない。例えば、X線回折測定を行えば、ドメイン毎の構造パラメーターを調べることができる。すでに sub-μm ビームを用いたμXAS やμXRD、およびその同時測定は第３世代放射光施設で行われているが、ナノ集光ビームでは未だ実現していない。誘電体や圧電体に外部電場あるいはヘテロ界面による変調を加えながら、ドメインサイズ以下の空間分解能で試料表面をスキャンしながらスペクトル（XAS あるいは XES）および X 線回折（XRD）測定を行うことで、１）誘電体母物質の結晶構造、２）酸素欠損の有無や分布、３）電極やヘテロ界面の劣化などについて、リアルタイムに解明することが可能になる。

こうした使用中に進行する電子構造や結晶構造の数 nm レベルでの不均一（heterogeneity）をオペランド測定により明らかにすることで、材料の劣化メカニズムを明らかにすることができる。本提案で計画している研究は、「原子スケールの局在的な情報に敏感な X 線分光（XAS, XES など)」と「ランダウ理論などで説明される巨視的な物理量（誘電率、ドメイン構造)」の間を取り持つ中間スケール（mesoscopic scale）の挙動を直接調べる新たな研究手法として展開していくことが期待される。さらに、測定手法が確立していくことで、同じドメイン構造を持つ磁性体分野のサイエンスへの展開も図れる。

KEK 放射光の特色の一つである高輝度ナノ集光ビームを使い、単一ドメイン内の電子状態が示す新規物性が明らかになれば、ナノデバイスの開発に大きなブレークスルーをもたらすことが期待できる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- 10 nmϕ集光ビームを常用できる XAFS 用ステーション
- 4～20 keV 以上（低エネルギー側が重要）
- ビーム軸（*z* 軸）に対して垂直な *xy* 面内で微小駆動できるサンプル駆動ステージ（位置分解能 1 nm、駆動範囲 5 mm 四方以上)。
- 温度範囲は、低温（ＰＦ現有の標準クライオ程度）も重要であるが、産業応用の観点からは、3-400℃の高温側の整備が望まれる。

3-8. 非線形非弾性 X 線散乱による物性物理研究の新展開

(1) 背景

非弾性 X 線散乱は、高輝度光源を最も必要とする実験の一つであり、世界各地で建設されている高輝度光源では中心的な実験手法になっている。光源が高輝度化するとともに装置の大型化も進み、分解能が飛躍的に向上している。従来の電荷移動励起や結晶場励起に加えて、マグノンやオービトン、フォノンなども研究対象になりつつある。日本国内では、SPring-8 に高分解能の実験装置が稼働しているが、分解能としては既に後れを取っているのが現状であり、その差は開きつつあると言っていい。現状で、非弾性 X 線散乱が目指すべき道の一つは高分解能化であり、もう一つが非線形効果であると考えている。

光散乱は、励起・輻射で双極子遷移（$\Delta\ell=\pm1$）がコヒーレントに連続する過程であるので、基本的に偶パリティの素励起（単極子・四重極子）が活性である。奇パリティである双極子励起は本来不活性であるが、共鳴状態では強度増大により観測可能になる場合もある。それは、いわゆる共鳴非弾性 X 線散乱（RIXS）であり、別の言い方をすれば共鳴 X 線ラマン散乱である。

非線形効果は、レーザーを用いた可視ラマン散乱では既に利用されている。高強度のレーザーによって 2 光子吸収を誘起し、その励起状態からの輻射を観測することで非線形散乱であるハイパーラマン散乱が観測される。この散乱は双極子遷移を励起で 2 過程、輻射で 1 過程の計 3 過程含むため、奇パリティの素励起が活性となる。非共鳴状態で双極子励起が活性になるだけでなく、通常の光散乱や光吸収法で観測できない 8 重極子励起も活性になる。具体的には、SiO_2 中の SiO_4 クラスタやペロブスカイト中の MO_6 クラスタの揺らぎなどが観測されている。

非弾性 X 線散乱は、そもそもの強度が弱いため非共鳴での測定が難しく、主に共鳴状態での散乱（RIXS）が行われてきた経緯がある。そのため、素励起の選択則等はあまり考慮されていなかった。しかし、近年、非共鳴散乱も十分観測されるようになってきており、選択則を考慮した研究が重要になると考えられる。上記の 2 光子吸収による散乱の場合、非共鳴では強度的に難しいと思われるが、共鳴過程であれば測定可能になると期待される。最先端の放射光であってもかなりチャレンジングな実験ではあるが、実現できれば放射光における非線形光学実験の端緒になる可能性を秘めている。

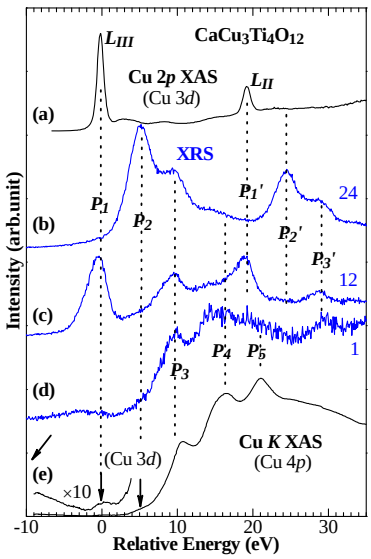


図 XRS スペクトルと XAS スペクトルの比較（submitted to J. Elec. Spec. Relat. Phenom.; PF Activity Report 2013 #31-B, 323, 2014）

図は、巨大誘電率を示す $CaCu_3Ti_4O_{12}$ の Cu *K* 共鳴 X 線ラマン散乱（XRS）スペクトル（(b), (c), (d)）を吸収スペクトル（XAS）（(a), (b)）と比較したものである（submitted

to J. Elec. Spec. Relat. Phenom.; PF Activity Report 2013 #31-B, 323, 2014）。ここでは Cu 2*p*3*d* 及び 2*p*4*p* の内殻素励起（下線は正孔の意）による散乱を測定している。(d)は *K* 吸収端以下で励起された非共鳴スペクトルであり、(e)の Cu *K* 吸収スペクトルとよく似た非占有 4*p* 状態を反映している。(b)と(c)は吸収端で励起したスペクトルであり、それぞれ異なるピーク（P_1, P_2）が共鳴増大している。それぞれが異なる 3*d* 状態を反映していると考えられる。ここで重要なのは、*K* 吸収スペクトル(e)で弱く観測されているピーク（~0 eV）が、ラマン散乱スペクトルで大きく増大している点である。吸収スペクトルでは本来禁制で観測が難しい 3*d* 状態を、ラマン散乱では強調して観測することができることを示している。同様の測定は Ti *K* 端でも観測されており、Cu-O 及び Ti-O 間の共有結合性を示唆している。更に、この物質は低温で構造相転移を伴わずに誘電率が約 1/100 に減少する異常を示す（A.P. Ramirez, et al., Solid State Commun.,**115**, 217, 2000）が、XRS における各 3*d* 状態が温度変化しており、電子構造と誘電率異常の関連性が示唆される。このように XRS は、埋もれた電子状態や測定が難しい絶縁体の電子状態を抽出可能であるが、同様の測定を放射光による 2 光子吸収で行えば直接 3*d* 状態に励起することが可能であり、他の状態に埋もれて観測が難しい 3*d* 状態を選択的かつ明瞭に抽出することが可能であると考えられる。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

放射光を用いて 2 光子吸収の測定を行うためには、高い光子密度と時間コヒーレンスが重要である。励起寿命の時間内で一つの原子に 2 光子が吸収されなければならない。励起ビームは、高フラックスで高輝度であることが必要である。一般に先端的放射光は空間コヒーレンスが向上するが、短パルス化することで時間コヒーレンスの向上も期待される。もう一つ重要なことは、散乱光は励起光のエネルギーのおよそ 2 倍のエネルギーを持つことである（$\hbar\omega_{rad} = 2\hbar\omega_{ex} - \Delta$）。つまり、共鳴させるためには、吸収端の半分のエネルギーで励起する必要がある（下記表参照）。また、中間状態が *d* 殻や *f* 殻であると共鳴効果が大きいと考えられるので、遷移金属や希土類金属の *s*→*d* や *p*→*f* の励起が研究対象になる。ここで、最も重要な 3*d* 遷移金属の *K* 吸収端や希土類金属の *L* 吸収端は、励起エネルギーが 2~5 keV の領域であるので、このエネルギー領域のビームラインの開発がぜひ望まれるところである。一方で、希土類金属の *M* 吸収端であれば 3*p*→4*f* 吸収端が軟 X 線領域になる。そのとき、4*d*4*f* などの双極子励起が活性になり、加えて 8 重極子励起（4*f* 状態の揺らぎ？）の観測も期待される。

このように、放射光を用いた 2 光子吸収による非弾性散乱を行うことで、埋もれた 3*d* 状態や 4*f* 状態を抽出できるようになり、巨大誘電や磁性体さらにはマルチフェロイックス物質などにおける電子強相関に関する基礎的知見を得る事ができる。強相関物質や誘電体、磁性体などの物質において、多極子励起に起因するような新たなサイエンスへの展開が期待される。

	励起内殻	中間状態	吸収端／検知エネルギー (eV)	励起エネルギー(eV)
軟Ｘ線	3*d* 遷移金属 2*p*	(4*f*) or 連続準位	400 ~ 1000	200 ~ 500
	希土類金属 3*d*	連続準位	800 ~ 1500	400 ~ 750
	希土類金属 3*p*	4*f*	1200 ~ 2200	**600 ~ 1100**
硬Ｘ線	3*d* 遷移金属 1*s*	3*d*	4500 ~ 9000	**2250 ~ 4500**
	希土類金属 2*p*	4*f*	5800 ~ 10000	**2900 ~ 5000**
	4*d* 遷移金属 1*s*	4*d*	17000 ~ 25000	8500 ~ 12500

（3）必要とされるビームライン・実験設備

X 線非弾性散乱測定装置（軟 X 線、硬 X 線）

ワイドなエネルギーレンジ

高コヒーレンス・高輝度（高フラックス）ビームライン

時間コヒーレンスが重要

短パルス化して光子の時間密度を上げることが重要

3-9. 蛍光Ｘ線ホログラフィー法による構造・機能材料研究の新展開

（1）背景

科研費・新学術領域「３Ｄ活性サイト科学」の基盤技術の１つである蛍光Ｘ線ホログラフィー（XFH）は、物質中の特定元素周辺の局所的な原子配列を、EXAFS よりも広範囲に（～2 nm）、３次元的に明らかにすることができる手法である（K. Hayashi, *et al*., J. Phys.: Condens. Matter, **24**, 093201, 2012）。この XFH は原理上、単結晶試料を必要とする。数年前までは、やや大きめ（2～3 mm 角以上）の単結晶を必要とした。（これが XFH における最大の短所であり、そもそも多結晶試料（粉末試料）やアモルファス試料を測ることはできない。）最近、マイクロＸ線ビーム（10～20 μm）の利用と高解像度マクロズームカメラを使用した光軸調整技術の向上により、100～200 μm 角程度の単結晶試料の測定が可能となり、それまで困難だった微結晶の測定ができるようになった。例えば次世代の軽量構造材料である長周期積層（LPSO）型マグネシウム合金や、軽量で柔軟性に富むことから、折り曲げ可能な電子回路や埋め込み可能な生体センサーとして期待される有機半導体、酸化ヌクレオチド加水分解酵素や一酸化窒素還元酵素などのバイオ系試料である。これらの試料は、大きな単結晶の成長が難しく、マイクロＸ線ビームの利用で初めて測定ができるようになった。更にサイズの小さなビーム（サブマイクロ・ナノビーム）を利用することで、測定対象が大幅に広がることが期待される。

サブマイクロ・ナノビームが切り開き、期待される XFH 研究の例を紹介する。電流をほとんど流さずに垂直磁気異方性を制御する「電圧印加型スピン素子」（T. Maruyama, *et al*., Nature Nanotechnology, **4**, 158, 2009）である。この垂直磁気異方性の物理的メカニズムは、現象論にとどまり、明らかになっていない点が多い。この垂直磁気異方性のメカニズムを明らかにするためには、原子レベルでのイメージングが必要となる。この電圧印加型スピン素子のようなデバイス（図１）を電圧印加状態で測定するためには、1 μm 角サイズのビームが必要となる。図２に SPring-8・BL39XU でのマイクロビーム利用 XFH 測定の典型的な様子を示す。このビームラインでは、集光ミラーシステム（K-B ミラー）により、そのボックスから 10 cm のところで最小 0.1 μm 角サイズの集光ビーム利用が可能である。しかし、XFH 実験では、稼働域も含めた装置の大きさによる制約のため、 この集光点に試料を置くことができない。KEK-PF や SPring-8 では、マイクロ・ナノビームラインが整備されてきている。しかし、前述のようにビームラインの性能を最大限に利用して XFH 実験ができるビームラインは存在しない。そこで KEK 新リングでは、ナノビームが利用できる XFH 専用ラインの整備を期待したい。

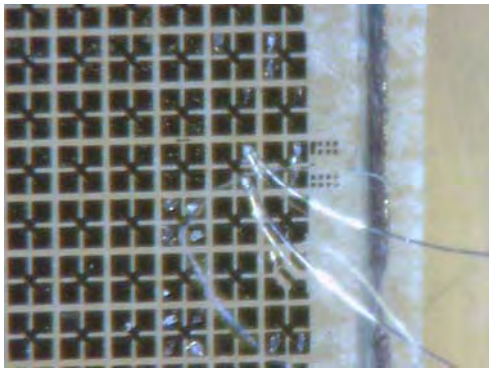


図１　電圧印加型磁気デバイス

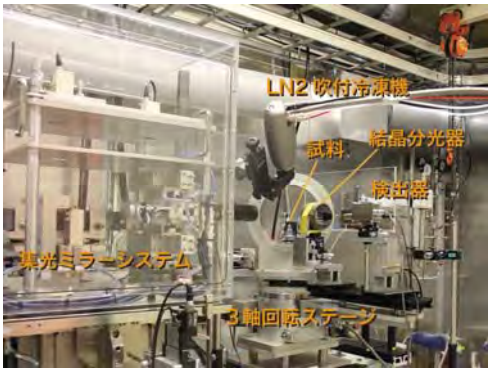


図２　マイクロビーム利用 XFH 測定

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

磁気デバイスのような 1 μm 角サイズ以下のビームを必要とする XFH 測定は、新 KEK 放射光のナノ集光ビームライン（48 nm×50 nm、@10 keV）で実現可能となると考えられる。これまでの XFH 研究では、バルク結晶にしろ、薄膜結晶にしろ、材料状態の試料について、その物質中の特定元素周辺の局所的な原子配列を明らかにしてきた。しかし、その材料の実用レベルの研究推進においては、デバイスに加工された状態で、更にそれが稼働状態の原子配列の知見を得られることが非常に有意義であると考える。例えば、電圧印加型スピン素子については、その垂直磁気異方性のメカニズムを説明するような、原子配列の異方性が発見される可能性がある。その結果、デバイスの更なる高性能化に貢献し、電子・磁気デバイス分野のサイエンスの展開への大きな寄与が期待できる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・硬Ｘ線サブマイクロ・ナノビーム XFH 実験ビームステーション
（XFH 用３軸ゴニオステージ（Ｘ線回折実験に流用可能）、
蛍光Ｘ線用結晶分光器（集光機能を有する円筒型）、
蛍光Ｘ線検出器（APD や SDD。蛍光 XAFS 実験に流用可能）、
液体窒素吹き付け冷凍機）

または、

・硬Ｘ線サブマイクロ・ナノビーム汎用実験ビームステーション
（1 m ×0.5 m の持ち込み測定装置が設置利用できる硬Ｘ線マイクロビームライン）

3-10. 社会インフラ・構造材料のマルチスケール観察による材料特性制御

(1) 背景

航空機材料の開発においては、機体材料を含めすべての構成部材の高強度化と軽量化、エンジンにおける効率の向上や高温使用を可能とする耐熱性および耐環境性の向上が重要課題となる。これらの部材の優劣は、機械強度、破壊限界、クリープ強度や使用可能な時間（寿命）の計測をもって判断され、部材としての性能（パフォーマンス）向上のため製造プロセスにフィードバックされており、その主な計測アプローチは、実際に亀裂が発生した後、組織形態を中心に観察を行う、ものがほとんどであった（図1）。従来は、例えば亀裂がある程度進行して数 μm 以上になった試料の“死体解剖”的な観察が主であった。

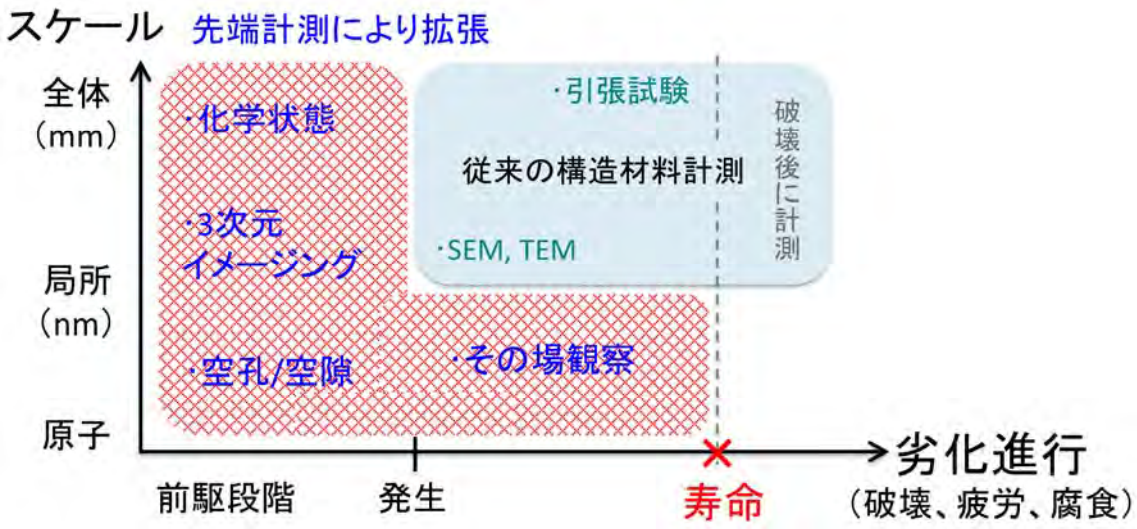


図1　構造材料の劣化に関わる計測アプローチ。

KEK 放射光を用いると、亀裂発生後にμm～mm スケールでの観察主体の従来の領域(水色塗り)から、発生前の前駆段階の nm スケールで亀裂の起点を見つける領域(赤斜線域)へとパラダイムシフトが期待できる。

現状では実験的アプローチ法で得られる情報は、バルク試料の数～数十μm の結晶粒の平均的なマクロ情報か、表面・薄膜試料による数 nm のミクロ情報の、両端に限定されている（図２）。そのため、マクロ的な力学特性についての理論的アプローチの面でも、マクロの現象論とミクロの転位論との間を埋める領域が大きな課題となっている。そのために、micromechanics や有限要素法(FEM)などの計算的手法によるアプローチが行われている。これらの手法は材料を連続体と仮定する考え方であり、実際の材料の heterogeneity（ex. 界面，欠陥，ヘテロ組織）を取り込むことが必須とされているが、それを解明する実験的手法が限られているのが現状である。

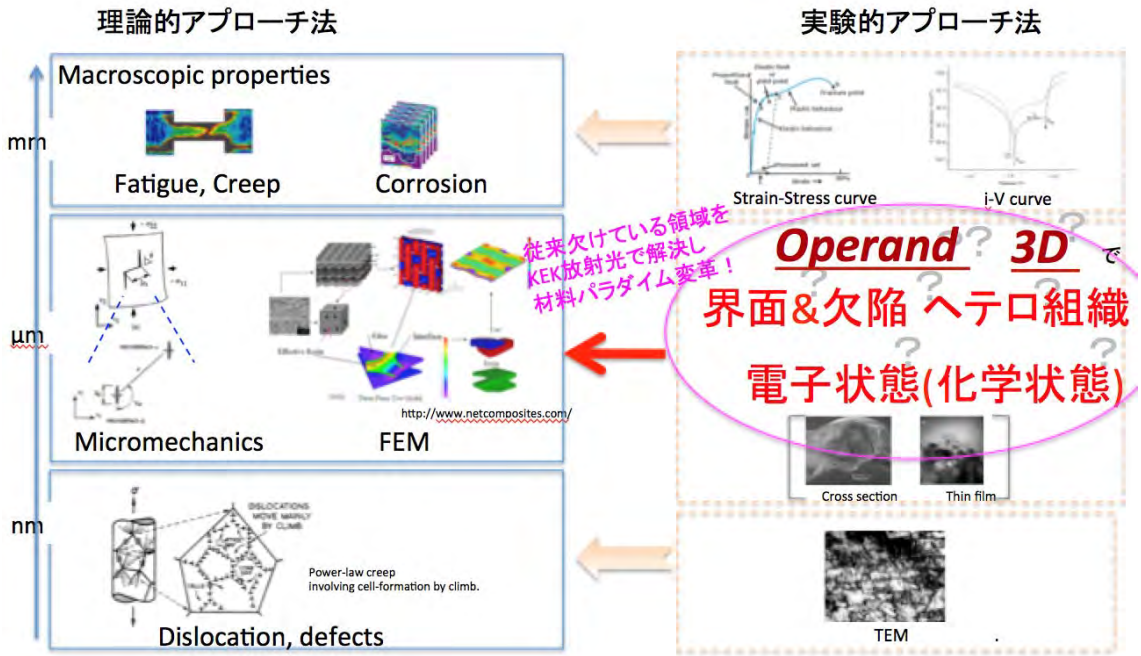


図2　構造材料の空間的階層構造と個々の階層の構造を明らかにする
代表的な理論的(左)および実験的(右)アプローチ法

ESRF において放射光 X 線パルスとレーザーとを組み合わせ、1 パルスの X 線で測定可能な時間分解 X 線回折および吸収分光システムを開発し、外部刺激を付与した直後に材料中で生じる反応の極初期の状態を観察されており、ユニークな成果がでている。しかしその性能の限界のため、“不可逆反応”の反応観察に必要とされる更なる高度化を進め、今後も競争力を維持していくことは困難である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光では、空間的&時間的階層構造をマルチスケールで観察可能となる（図 3）。

例えば、10 秒～数分程度で、組織や欠陥構造だけでなく化学状態を三次元 CT 観察する on-the-fly 測定が可能になり、数時間で材料三次元内の任意の位置でのエネルギースペクトルからなる化学状態の“階層構造(三次元ヘテロ構造)”を高空間分解能（～50nm）で得ることが可能になる（1-1 参照）。

さらに KEK 放射光では、こうした階層構造の観察を ms～ns の広範囲で時分割測定が可能となる。弾性域を超えた領域での弾性変形から塑性変形への移行に伴うナノレベルの原子構造の変化、さらに局所で発生した原子レベルでの変形が synchronize してマクロの協調現象（例えば、破壊や相転移）へと変化していくメカニズムを明らかにすることができる。KEK 放射光による 10 ピコ秒のパルス幅の X 線とナノビームの利点を使用することにより衝撃波の立ち上りや、衝撃波面での原子移動などの不均一な状態から発生する破壊初期過程を現象論としてではなく不均一系の物理現象として議論が生まれる。その結果、従

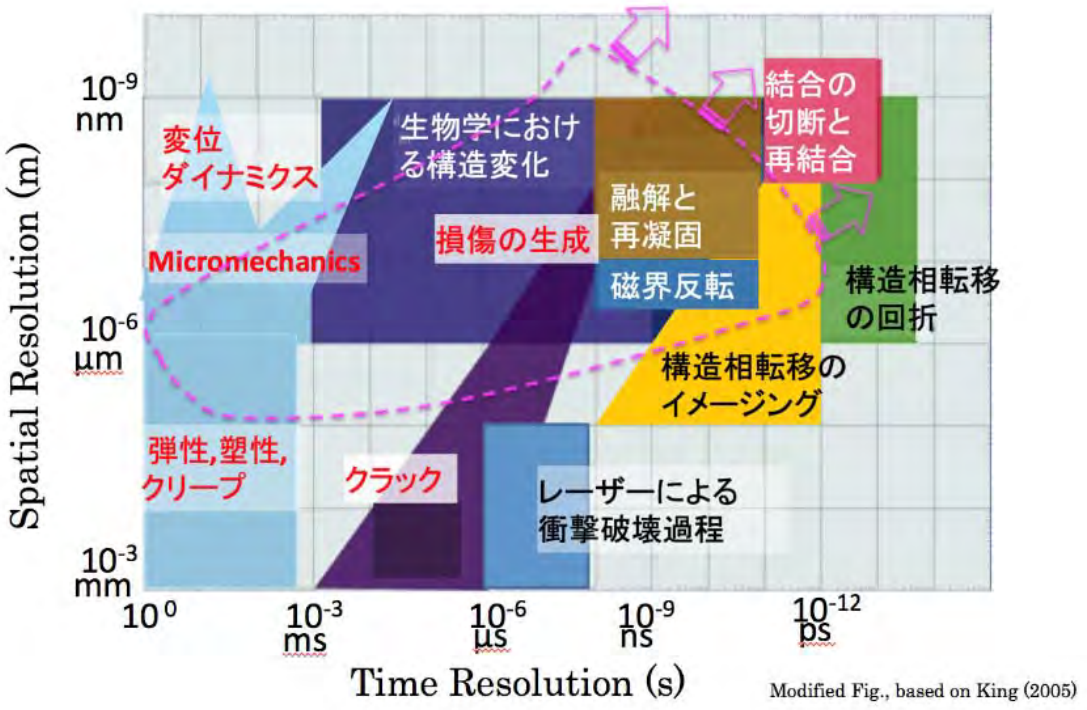


図３　構造材料の代表的な現象が対応する空間的&時間的スケール。それぞれの領域（階層構造）での観察と現象解明により様々なサイエンスの発展が期待できる

来欠けていた破壊のメカニズムをシームレスにつなぐサイエンスの構築が可能になる（図３）。さらに、パルスナノビームを用いた局所構造解析＋マイクロ構造解析と多量データ解析により破壊ダイナミクスの空間階層構造を統一的に解明することが可能になる。不均一な反応が発生し構造が安定化するまでの原子の移動、ずれの初期過程の物理現象を理解することでクリープから衝撃破壊までの材料破壊における初期破壊過程を KEK 放射光のパルス性とナノビームにより明らかにすることが出来る。さらに、10 ピコ秒レベルでの準安定・非平衡状態の観察と非平衡状態を可視化することにより、パルス外場による材料の準安定・非平衡状態を介した材料創製という新たな展開も期待できる（図 4）。

こうしたサイエンスは、(1) 構造物の重要な構造材料である鉄鋼等の金属系材料やセメントなどの製造や劣化の制御、(2) 航空機の次世代材料であるSiC/SiC,CFRP,耐熱合金,耐環境セラミックスコーティングの製造と亀裂の制御、(3) 発電やプラントのシステムの省CO_2・省エネ化、(4) 自動車や鉄道の軽量化によるに省エネ化、と広く社会的インパクトを与えることが期待できる。

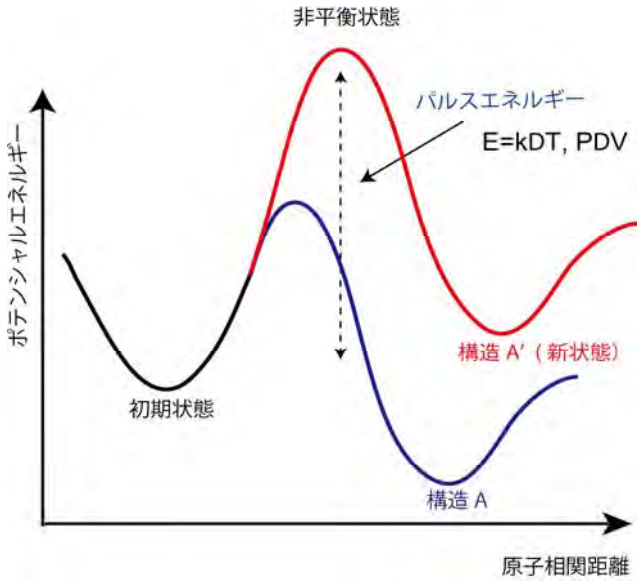


図 4．パルス外場による「極短時間にも現れる準安定の非平衡状態」を介した反応制御のイメージ図

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

[空間的階層構造解析]三次元結晶方位マッピング実験ステーション、advanced XAFS-CT 実験ステーション、XAFS-ptychotomography 実験ステーション、反応環境下測定実験ステーション

[時間的階層構造解析]シングルショット型の時間分解X線回折測定装置ならびにエネルギー分散型の X 線吸収分光装置を切り替えられるビームライン、かつ大強度の孤立バンチを有する運転モードでの運転（必須）。高強度のパルスレーザー、高強度の連続波(CW)レーザー

[材料評価実験ラボ]各種試料加工＆前処理装置、各種基礎物性測定装置、FIB-SEM、TEM、蛍光 X 線顕微鏡、実験室系 X-CT 装置、実験室系 XRD 装置。

3-11. DXAFS 法による改質触媒、光触媒研究の新展開

(1) 背景

持続可能なエネルギー供給は現代社会が抱える重大課題の一つであり、その解決の鍵を握る材料が触媒である。燃料電池などでのエネルギー源として期待される水素を製造するための改質触媒の高性能化がそのための有効な解決策であり、現状利用される担持金属触媒での副反応による失活を抑制し、より一層の高効率化が求められている。そのような熱的励起によって進行する触媒としては、他にも有用化合物の合成触媒や環境浄化触媒など様々な重要材料があり、それらの触媒反応メカニズムの解析が高活性化に必要不可欠である。そのためには、気体である場合が多い反応物質の導入をトリガーとした時間分解 XAFS 解析が極めて強力であるものの、現在の光源で用いられている波長分散型 XAFS（DXAFS）法では光源のエミッタンスとサイズが大きいため不均一触媒の解析に不向きであるが故に、十分な精度での EXAFS 解析が困難な点に問題がある。

炭化水素を原料として水素を製造するのが改質触媒反応であるが、結果的に二酸化炭素を生成することになり、環境問題を誘発する可能性が否定できない。よりクリーンな水素製造技術が水の光分解であり、そのための光触媒の高効率化も急務である。特に不均一系の光触媒材料については、反応過程に存在する光励起状態の状態解析手法の欠如から十分なキャラクタリゼーションがなされておらず、試行錯誤的な材料開発の域を脱していない。不均一系光触媒に関して、反応過程に存在する短寿命励起状態の XAFS 解析を行うことが、より高活性な光触媒材料の創出に向けて極めて重要である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

反応物質の導入をトリガーとする時間分解 XAFS 法での触媒反応の動的解析に関しては、より高精度な DXAFS 測定法を確立する必要がある。湾曲結晶をポリクロメーターとして用いる DXAFS 法では、波長分散した X 線が集光する位置に試料を配置するものの、集光位置での X 線の収差によって、異なるエネルギーの X 線が異なる試料位置を通過してしまうことが現在の問題点である。光源サイズの大きさが収差を生み出す主要因であるため、約 100 pm rad の低エミッタンスを達成する KEK 放射光を適切なポリクロメーター湾曲機構と組み合わせて用いることにより、従来は困難であったマイクロ秒の時間分解能での EXAFS 解析が可能な DXAFS 測定が達成される。また、反応系によってはミリ秒までの時間分解 XAFS 解析が不可欠であり、通常の XAFS 測定環境を備えたクイックスキャン型ステーションは、多くの触媒材料の解析に用いられる汎用測定環境として整備が不可欠である。マイクロ秒～ミリ秒の広い時間域での測定法を複合的に用いることで、動的構造変化の詳細な知見を基にした触媒反応解析が可能になる。反応の過渡過程に存在する短寿命中間体が存在する場合には、その原子間距離や配位数などの構造情報を指標とする反応メカニズムの直接解析が可能となる。中間体が存在しない場合にも、触媒活性種の動的時間変

化の反応条件に対する応答を解析することで、反応メカニズムにアプローチできる。改質触媒についての反応メカニズムの理解は、炭化水素から水素への物質変換に必要な触媒の状態を明らかにすることになり、近未来の社会で必要となる量の水素を生成し、それをモバイルで達成するための技術革新を導くものと期待される。

炭化水素からの物質変換による水素生成の効率化と並行して、現在は効率面で現実性に乏しい光触媒による水分解技術の高度化が急務である。触媒活性な励起状態の生成効率を高めることと可視光による励起を達成することが、改善が必要な二大要素である。その達成のためには、触媒活性を発現する光励起化学種を帰属し、その構造や電子状態を知ることが必要不可欠である。X 線をプローブとして用いるポンプ・プローブ XAFS 法は、この目的に対して最も直接的な情報を与える。光触媒活性種の解析は、その状態を効率的に生成するための担体修飾の指針や、より高い活性を導くための助触媒の選択のために不可欠な情報となる。現在の触媒開発においては担体や助触媒の選択が試行錯誤的であるが、光励起化学種の直接解析は世界を先導する光触媒材料の開発に最も効果的と考えられる。特に不均一系の光触媒材料に関しては、その動的解析を行うための技術の欠如により、活性種の生成や失活に関しての時間スケールすらも明確ではない。約 10 ps のパルス幅を有する KEK 放射光に fs パルスレーザーを組み合わせるポンプ・プローブ XAFS 解析は、ここで述べた不均一系光触媒材料のキャラクタリゼーションを実質的に可能にすると期待される。

上述した触媒は、ともに次世代のエネルギー源として期待される水素を生成するために重要な材料要素である。それらが反応条件下にあるとき、反応物である炭化水素や水から生成物である水素分子へ至る過程での水素原子の状態解析は、従来はほとんど手をつけられていない未開の研究分野である。水素に対しての感度が高い中性子などのプローブを、上述した時間分解 XAFS 解析技術と同時に用いることができれば、反応相手である触媒活性種の状態解析に重要な情報を与える。現状ではプローブ光の時間分解能や空間スケールに隔たりがあると予想されるが、それらを同等にし、真に同時にマルチプローブ測定を行うための技術開発がなされた時、水素生成技術の大幅なブレークスルーをもたらす材料革新がもたらされると期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- DXAFS 解析用ビームステーション（1 keV 以上のバンド幅を持つ幅広 X 線、2～約 25 keV 域、10^{13} photons/s 以上）
- ポンプ・プローブ XAFS 解析用ビームステーション（単色、2～約 25 keV 域、300～600 nm 域の fs パルスレーザー）
- 汎用クイックスキャン XAFS 解析用ビームステーション（単色、2～約 25 keV 域、1 ms までのクイックスキャン計測環境）

3-12. 次世代 XAFS 法によるサステナブル触媒研究の新展開

(1) 背景

成長の限界とされる 2030 年以降も人類の持続可能社会を実現するには、化学反応をコントロールし、太陽光等の自然エネルギーの化学エネルギーへの変換や化学エネルギーの電気エネルギーへの効率変換を実現するエネルギー触媒開発が必要である。また，資源やエネルギーを有効に利用し, 欲しいものだけを自由エネルギーのロスなく, 小さい E-factor(環境因子＝廃棄物(kg)/生成物(kg))で,効率よく有用物質を生成する資源触媒も求められている。また，廃棄物を処理し，生活環境を維持する環境触媒も重要な役割を果たす。

触媒の主流である固体触媒は表面で反応が起こる。その表面積を大きくするため，ナノ粒子が利用される。かつては触媒活性構造を解析する手法がなく，活性点はブラックボックスとして扱われていた。この状況を一変したのは放射光を用いた XAFS(X-ray absorption fine structure)法の登場である。XAFS 法は，局所構造解析手法であり，in situ 反応条件下の測定が可能である。このため，触媒反応メカニズムの解明，構造活性相関の取得などの多くの研究がなされ，触媒科学においてなくてはならない手法となった。

触媒科学の目から見て XAFS 法の今後の目指すべき道としては,

(a) 触媒表面の解析に必要な高時間，高空間分解測定の両立と深化

(b) 化学種選択・サイト選択・結合選択性の付与と化学状態分析の高度化

(c) 実試料の“そのまま解析”と産業の活性化につなげる

(d) 新しい制度・運営体制の創設

があげられる。

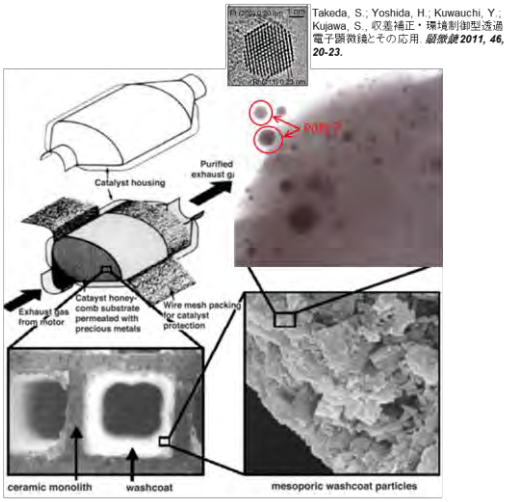
このうち，(a), (c), (d) は次に述べる KEK 放射光で真剣に検討し，実現すべき課題と考える。(b) については，一部において KEK 放射光でも可能と考えられるが，大多数は次次世代光源である CW-XFEL などで検討されるべきものと考えられる。また，(a), (c), (d) についても次次世代光源でさらに高度化と深化を遂げるであろう。一方で，KEK 放射光の課題としては，X 線照射による試料のダメージの問題があり，タブー視するのではなく，真剣に考えられるべきである。特に，高輝度化に対して，今のままのパルス幅ではほとんどの材料がダメージを受け，ダメージを受けたサンプルの解析を行うことになる。可変ビームサイズなどの検討を進め，高輝度化のメリットを享受できるよう放射光コミュニティー全体での討議を期待する。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

i) 2 次元高時間分解能測定ないしは 3 次元空間分解測定

触媒反応は，不均一な表面で進行する。KEK 放射光で実現可能なことは，最高 10 nm 程度の微小焦点を持ち，200 nm x 100 nm で 10^{13} photons/ s である。これにより不均一な表面を解析することができる。たとえば，1-10 nm 程度の金属ナノ粒子触媒を 1 つずつ解析することが可能になる。大きな立体角で試料からの信号を計測可能な Bent Crystal Laue Analyzer (BCLA)などの結晶分光器により，しかも数秒-数＋分程度の時間分解の XAFS を実現させ，反応条件下での定常状態 1 ナノ粒子解析や非定常下（温度，圧力ジャンプ）による秒オーダのダイナミック in situ 測定を実現する。さらに今後の技術開発により, ms から μs のオーダの時間分可能を達成することで，反応メカニズムの詳細を解析できると期待される。これにより様々な活性構造の平均構造をえる今までのアプローチから、反応中ダイナミック変化する 1 個 1 個の粒子の表面・内部(図 1)の不均一構造を明らかにするアプローチが可能となる。こうした進歩は触媒理解を進める全く新たな計測技術が可能となり，ブラックボックスとして扱われた触媒の 1 面が明らかになる。また，反応サイトのナノレベルの特定から TEM や SEM などを実験ハッチや施設内に整備し，同視野分析を可能にすることにより総合的な触媒研究が可能となることから、KEK 放射光ではその整備が必須である。



Freund, H. J., Introductory Lecture Oxide Surface. *Faraday Discuss* ***1999, 114, 1-31.***

図 1　触媒のイメージ図 10nm の空間分解能が実現すれば、1 つの粒子を捉えることが可能になる.

（参考: Freund, H. J., Introductory Lecture Oxide Surface. *Faraday Discuss* ***1999, 114, 1-31.*** Takeda, S.; Yoshida, H.; Kuwauchi, Y.; Kujawa, S., 収差補正 ・ 環境制御型透過電子顕微鏡とその応用. 顕微鏡 2011, 46, 20-23.http://www.apc.saitama-u.ac.jp/bukka/research.htm）

ii) 多次元高エネルギー分解能発光分光

発光分光法は、高輝度化し点光源が得られることで，さらに深化する。この手法により期待されるサイエンスは，吸光-発光分光法による電子状態，結合状態の高度解析（一例として Pt ナノ粒子の吸着種の同定研究など（Nanoscale 5 8462、2013）特定の発光スペクトルエネルギーに基づくサイト選択測定, 2 種類の元素の間の相互作用に基づく結合選択ス

ペクトル，和周波混合界面選択 XAFS（SFG-XAFS for Interface analysis）, X 線ラマンによる軽元素の XAFS の高エネルギー測定の実用化など KEK 放射光やその次の CW-XFEL などの光源で新たな可能性が広がることが期待される。

iii）実触媒のハイスループット解析によるイノベーションの創出

透過型電子顕微鏡（TEM）の飛躍的進歩（大気下,超高分解能化,3 次元測定,超高速測定,低ダメージ化）により，従来 XAFS でしかわからなかった情報が次々と明らかになり，XAFS の必要性は薄れつつある。高性能 TEM でできず，XAFS でしかできないことは，唯一実サンプルを薄片化処理なしで観測することである。すなわち，実サンプルをそのまま実条件下で測定することである。さらに、動作中の触媒粒子をそのまま透過 X 線による高度解析（chemical imaging および ptychography による 10nm 以下の空間分解能での微細組織観察）により、触媒粒子の表面/内部のどの部分が変化して反応に寄与しているかを明らかにすることができるのも、電子線では不可能なことのひとつである。XAFS が実サンプルを解析し，それが大きな進展をもたらした例として，化学センサーの例が挙げられる。(Physical Chemistry and Chemical Physics, 18,7374,2016)）さらに，サンプルをそのまま測定に加えて，一括して処理,同時測定する high throughput 測定技術は，high throughput 解析技術と相まって，構造・物性と活性相関の取得やビックデータベースの創出など産業界へのインパクトの大きな技術として発展するであろう。

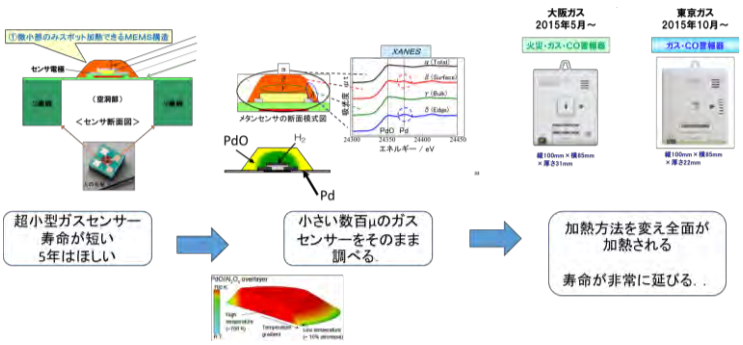


図 2　XAFS を用いたガスセンサー実試料の現場解析を行い、失活メカニズムを解明、商品化を実現した．モデルから実試料の現場解析へ（Phys.Chem.Chem. Phys.　2016,18,7374）

こうした研究は触媒に特化した測定環境の整備と他手法（放射光 XRD、時分割 IR,TEM,SEM）の組み合わせなどで，加速度的に進展する。また，硬 X 線だけでなく軟 X 線も利用し，重元素からなる活性点構造解析に加えて、軽元素からなる軟 X 線の同時観測可能なマルチエネルギー利用ビームラインの整備など新しい可能性を模索することが必要である。

一方、学術と教育、人材育成に重点を置いた共同利用の精神を生かした運営体制と産学官をまたいだ研究共同体の構築および知財管理システムの確立の検討が必要である。

最後に，XAFS のコミュニティーでは，共同して，新しい光源で展開されるサイエンスをまとめている。(pfwww.kek.jp/jxs/File/XAFS_proposal.pdf 現在新版作成中）コミュニティーの叡智を絞り出したものであり，この内容を参考にしていただくことを望む。さらに放射光コミュニティーが一丸となり，施設間競争からコミュニティー全体の真剣な議論により生み出される協奏へと止揚され，よりよい放射光光源が建設されることを希求する。

3-13. 硬Ｘ線発光分光・非弾性散乱によって期待される物質・材料科学の展開

（1）背景

二次光学過程であるＸ線発光分光・非弾性散乱は、一次過程であるＸ線吸収分光と比べて情報量が多く、物質・材料の電子状態をより詳細に調べることができる手法である。その利用法は、入射Ｘ線、出射Ｘ線のエネルギーの選択により多岐に渡っている。例えば、出射Ｘ線として蛍光を高エネルギー分解能で検出し入射エネルギー掃引をする場合には高エネルギー分解能 XAFS となること、入射Ｘ線で 1s 内殻に正孔を作り、蛍光 $K\beta_{1,3}$、Kβ’線の分裂を検出することで局所磁気モーメント観測できることなどはよく知られている。一方、入射Ｘ線を元素吸収端にあわせ、入射Ｘ線と出射Ｘ線の差が小さい領域を測定する共鳴非弾性Ｘ線散乱（Resonant Inelastic X-ray Scattering, RIXS）では、物質中の素励起を観測できる手法として発展している。いずれの場合も、バルク敏感性、極限環境への適用性、運動量可変性、元素選択性など、硬Ｘ線を利用した実験手法の利点を活かすことができる。

これらの手法を高効率で行うためには、まず高フラックスが必要である。加えて、高エネルギー分解能を得るための良い集光、結果として高い輝度も不可欠となる。世界的に見れば、第三世代放射光施設の稼働以降、強相関電子系物質、磁性材料、触媒材料、生体物質中の金属核など、多くの分野で有効性が示されている。それに対し、日本国内では、例えば ESRF の ID20 や ID26 のような本手法に特化した共用のビームラインがなく、結果としてコミュニティも小さいままにとどまっているために出遅れているのが現状である。加えて、装置性能の鍵となる分光素子、特に出射Ｘ線を分光するアナライザーの開発においても、放射光施設の専属スタッフが行っている海外と比べて技術力は大きく水をあけられている。

（2）KEK 放射光における新展開と期待される成果

当該分野においては、ビームラインや光学素子開発技術の問題が解決できれば、KEK 放射光で計画されているフラックス・輝度をもってすれば、世界と伍した研究展開が可能である。ここでは、高エネルギー分解能・高効率化した硬Ｘ線発光分光・非弾性散乱を利用したいくつかの研究を挙げることで、本手法を用いた物質・材料科学の新展開を議論したい。以下で議論するＸ線発光・非弾性散乱過程の概略図を図１に示す。

2-1）高エネルギー分解能共鳴非弾性Ｘ線散乱による 5d 遷移金属化合物の電子励起

近年、イリジウム酸化物を中心に、強いスピン軌道相互作用に由来した 5d 遷移金属化合物の物性や磁性に大きな注目が集まっており、1 Å 程度の波長をもった 5d 遷移金属の L 吸収端を利用した RIXS がその電子励起の研究に利用されるようになってきている。例えば、その代表物質である Sr_2IrO_4 では、5d 電子の電子相関、スピン軌道相互作用、運動エネル

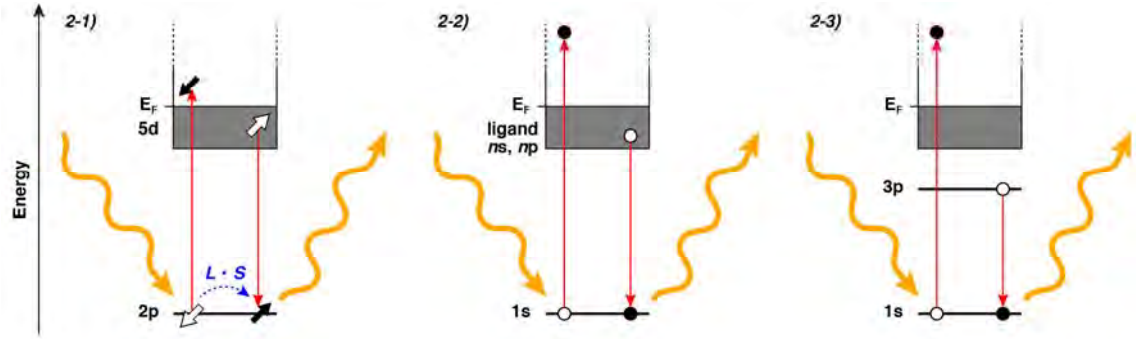


図１：KEK 放射光における新展開と期待される成果として議論するＸ線発光・非弾性散乱過程

ギーが拮抗による特異なモット絶縁体状態が実現しており、そこを舞台として”excitonic quasiparticle”といった他の系ではみられないようなスピン・軌道ダイナミクスが RIXS で観測されている(J. Kim et al., Nat. Commun. **5**, 4453, 2014)。しかし、今のところこういった励起が観測されるのは 5d 遷移金属化合物の中でも相互作用が比較的大きなエネルギースケールにある物質に限られており、現状のエネルギー分解能（世界最高で 25 meV 程度）では不十分である。

RIXS を行う上で、発散の小さい入射Ｘ線は比較的容易に高いエネルギー分解能が得られるのに対し、出射Ｘ線側は強度を稼ぐためにある程度の立体角内に広がったＸ線を集光かつ分光する必要があり難しい。従来は、凹面状に湾曲させた Si 結晶のブラッグ反射を利用して角度分散により分光を行ってきたが、ブラッグ反射の固有幅と検出器の空間分解能による制限でほぼ限界に達している。この限界を克服する方法として、最近、試料の直後に設置したモンテルミラーによってある立体角内のＸ線を平行化した後に平板 Si 結晶で分光するというシステムが提案された(J. Kim et al., J. Synchrotron Radiat. **23**, 880, 2016)。期待されるエネルギー分解能はイリジウム L_3 吸収端で 10 meV 程度とされており、今後、それ以外の吸収端でも湾曲型アナライザーを超えたエネルギー分解能を得るためのスタンダードとなっていくと予想される。加えて、出射Ｘ線が平行化されていることで、これまでは困難であった高エネルギー分解能と出射Ｘ線の偏光解析の両立が可能となる。RIXS の偏光依存性は励起の対称性と密接に関わっており、励起の起源を議論する上で有用な情報となる(K. Ishii et al., Phys. Rev. B **83**, 241101, 2011)。

高エネルギー分解能 RIXS を利用した研究展開例として、イリジウム酸化物における量子スピン液体を挙げる。スピン液体は基底状態でもスピン秩序が生じない状態として、長らく磁性研究の中心的課題の一つとなっている。Ir^{4+}を持つ IrO_6 八面体が辺共有により結合し 90 度の Ir-O-Ir ボンドを作った場合には、スピン軌道相互作用の影響を受けたイリジウム 5d 電子の波動関数の特殊性により Ir^{4+}イオン間にボンド依存強磁性的相互作用が働き(G. Jackeli et al., Phys. Rev. Lett. **102**, 017205, 2009)、3d 遷移金属の磁性などの等方的なハ

イゼンベルグ型の相互作用とは全く異なってくる。さらに辺共有 IrO_6 八面体がハニカム格子を形成する場合にはこの相互作用のフラストレーションが生じ、いわゆる、キタエフ模型に相当するスピン液体状態が実現するとされ、理論・実験の両面から数多くの研究がなされている。また、このような特異な基底状態は量子コンピュータへの応用の面からも注目されている。実際、その候補物質が合成されたとしても単結晶試料は非常に小さいと予想され、さらに、吸収の大きなイリジウムを含んだ物質は中性子非弾性散乱には不向きであることから、スピン液体状態の検証として Q-ω空間での励起が観測可能な RIXS が重要な役割を果たせると期待できる。

2-2) 価電子帯からのＸ線分光を利用した触媒金属への吸着元素の弁別

遷移金属やその化合物は、化学反応を促進するための触媒としてしばしば用いられる。多くの触媒反応環境下では反応には関わらない物質も数多く存在し、触媒活性を向上させるためには、触媒への反応種の吸着・脱離を促進し、一方で反応の阻害要因となる原子や分子の吸着は抑制する必要がある。XANES や EXAFS などＸ線吸収分光は、触媒金属の電子状態や構造に関する情報を提供し、触媒の研究を進める上で重要な役割を果たしてきた。しかし、反応させるべき原子・分子と阻害要因となるそれらを弁別すること、特に原子番号が近い軽元素を弁別するのは容易ではない。

最近、価電子帯から内殻への遷移によるＸ線の発光分光（Valence-to-core x-ray emission spectroscopy V2C-XES）を利用することで、鉄に結合した炭素、窒素、酸素を区別できるということが報告された(K. M. Lancaster et al., Science **334**, 974, 2011)。触媒金属の価電子帯は化学結合状態に当然敏感であり、そこからの蛍光を分光することで、Ｘ線吸収分光よりもはるかに精緻な電子状態の議論が結合元素の区別まで含めて期待できる。現時点ではまだデモンストレーションの段階であり、この手法の普遍性、汎用性については、これから検証していく必要があるが、分析ツールとして確立できれば、触媒科学の進展に大きな貢献ができるはずである。

その際の実験上の問題は、価電子帯からの発光は非常に弱いことである。例えば 3d 遷移金属については Kα線よりも 3 桁程度弱いが、KEK 放射光から得られる高輝度・高フラックスのＸ線を利用し、できるだけ多くの立体角からの蛍光Ｘ線を検出できるように多くのアナライザーを配置した分光器を建設することで、この問題は克服できる。手法の検証のための系統的な測定に加え、触媒反応時の変化を時分割測定するようなことを考えた場合、高効率での測定は必須と言える。

2-3) 内殻正孔寿命時計を利用した遍歴電子磁性体のスピン揺らぎの観測

遍歴電子磁性体では、守谷らによる SCR 理論（Self-Consistent Renormalization Theory）が、転移温度以上で観測されるキュリーワイス則に従う磁化率の説明など、大きな成功を収めたことはよく知られている。SCR 理論では、ストーナーモデルでは考慮されていなか

ったスピンの熱揺らぎを取り入れたところがポイントとなっており、スピン揺らぎは遍歴電子磁性体の理解においては重要な役割を果たしているのである。さらに、磁化の温度依存性や磁化曲線など遍歴電子磁性体のすべての磁気的特性を理解するためには熱揺らぎに加えて量子的なスピン揺らぎも考慮することが必要であることも指摘されている(高橋慶紀, 物性研究 **75**, 1, 2000; **94**, 531, 2010)。熱的スピン揺らぎは k_BT 程度のエネルギースケールであり中性子非弾性散乱が観測に適しているのに対し、量子揺らぎはさらに高いエネルギーまで及んでおり、より高速な測定法が必要となる。

そのような量子揺らぎまで含めたスピンを観測する手法として、Kβ線蛍光分光が期待できる。遍歴電子磁性体の多くに含まれる 3d 遷移金属の Kβ線は、終状態で生じる 2p ホールと 3d スピンとの交換相互作用により $K\beta_{1,3}$ 線と Kβ'線に分裂し、その分裂から 3d スピンの大きさを知ることができる。最近、母物質が遍歴電子反強磁性体である鉄系超伝導体に対して磁性についての様々な測定が系統的に行われた結果、X線分光の高速性が改めて認識されるようになってきた(N. Mannella, J. Phys.: Condens. Matter **26**, 473202, 2014)。具体的には、内殻正孔寿命が測定の時間スケールとなるX線分光は、NMR、μSR、Mössbauer などよりもはるかに高速で、遍歴電子磁性体の中で揺らいだスピンのスナップショットが測れるということである。量子スピン揺らぎの時間スケールが遍歴電子のバンド幅、eV 程度であるとすると、3d 遷移金属の 1s 内殻寿命幅とちょうど合致する。

KEK 放射光から得られる高輝度・高フラックスのX線を利用し、できるだけ多くの立体角からの蛍光X線を検出できるように多くのアナライザーを配置した分光器を建設することで、Kβ線蛍光の温度、磁場依存性を短時間で系統的に測定することが可能になり、遍歴電子磁性体研究の新展開が期待できる。遍歴電子磁性体の高エネルギースピン揺らぎは J-PARC においても中性子非弾性散乱を用いて観測が試みられており、X線分光はさらに高速（高エネルギー）部分を観測できるという意味で、相補的な側面を持っている。また、量子的なスピン揺らぎは、量子臨界点近傍で現れる非 BCS 型超伝導においてもその重要性が指摘されており、極低温、高磁場、高圧など、極限環境下まで含めて Kβ線蛍光分光が迅速に測定できるようになれば、単に遍歴電子磁性体にとどまらず、物性物理学の発展への大きな貢献が期待できるであろう。また、遍歴電子磁性体はスピントロニクスの基盤となる材料であり、その理解の進展は応用上も重要なものである。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・硬X線発光分光・非弾性散乱実験用ビームステーション

（X線のエネルギーは 5-15 keV 程度、高エネルギー分解能 RIXS 分光器、高効率X線発光分光器、試料環境として低温、磁場、高圧など）

・出射X線分光アナライザーを製作するためのラボ（クリーンルーム、ドラフトなど）

アナライザーは吸収端ごとに違うものが必要であり、高効率化のために多数のアナライザーを製作することを考えると、自前できることが望ましい。

3-14. 燃料電池研究の新展開

(1) 背景

固体高分子型燃料電池（PEFC）の本格普及のためには、電極触媒の耐久性の向上と高効率化が解決すべき問題の一つとして残されている。燃料電池作動条件における電極触媒の働きや劣化現象を捉えて理解することが重要であるが、燃料電池内部では電極触媒と高分子電解質から成る膜/電極接合体（MEA）、ガス拡散層（GDL）、反応ガス、水などが複雑に混合分散しており、電極触媒が 3 次元空間的に不均一となって分布している。各場所に位置する触媒がどのような化学状態・局所構造を持ち、どのような触媒活性を持っているかを燃料電池動作条件下の非破壊で知るには in-situ 時間分解 3 次元 XAFS イメージング計測が必要となる。

電極触媒のダイナミックな反応は速度定数 1～10 s^{-1} 程度であるため、ミリ秒時間分解 XAFS 計測（N. Ishiguro, *et al.*, *J. Phys. Chem. C*, **120**, 19642, 2016）を利用した電極触媒の反応モデルの構築が進められている。しかし、従来の時間分解 XAFS 計測では 100 μm 程度の X 線ビームを利用しており、MEA 内の電極触媒の位置に対する時間情報が全て平均化された情報となっている。

MEA 全体を観察可能するためには 100 μm 程度の視野が必要であるが、同時に厚さ 10 μm 程度の電極触媒層内の微細構造を観察するためには nm スケールの分解能の 3 次元イメージング計測が必要である。PEFC に対しては 100 nm 集光ビームを利用した 2 次元走査型顕微 XAFS 計測（S. Takao, *et al.*, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **53**, 14110, 2014）の報告があるが、集光するためにスリットを入れることでフラックスの大部分をカットしてしまうため、時間分解 XAFS 計測をするための強度が得られず時空間軸を同時に計測するには至っていない。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

(a) 10 nm 空間分解 XAFS イメージング計測

フレネルゾーンプレート（FZP）などの結像素子を用いる結像型 CT XAFS 計測では全視野を同時に計測するため、1 枚の投影像を測定するために要する時間が短くて済むが、透過 X 線を用いるため感度が低い。電解質に溶出した金属化学種やクラック等に脱落した希薄な触媒粒子などに対しては、高感度な蛍光 X 線を利用した走査型顕微 XAFS 計測が有効である。

KEK 放射光では 10 nm 集光ビームを利用した走査型顕微 XAFS イメージングが可能となる。低担持量触媒のように担体上に触媒が疎らに分散している試料では 1 つ 1 つの触媒粒子を区別して観察することが期待される（図 1）。さらに走査型顕微 XAFS 計測では透過 X 線、蛍光 X 線、回折 X 線を各々同時計測することが可能であり、試料全体のモルフォロジー（透過 X 線）、微量元素に対する化学状態・局所構造分布（蛍光 X 線）および

結晶構造・粒径分布（回折 X 線）のマルチプローブ 3 次元イメージング計測の実現が期待される。

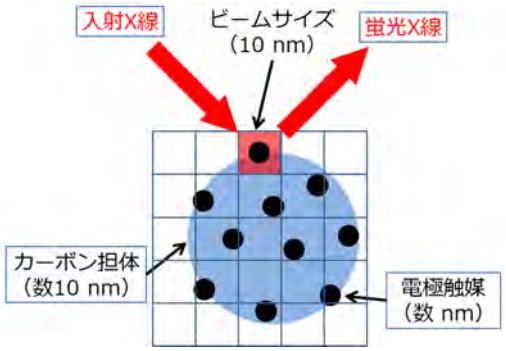


図 1　低担持量触媒における空間分解 XAFS 計測の模式図

(b) マルチスケール時空間分解 XAFS 計測

KEK 放射光では 50 nm 集光ビームでも 1×10^{12} phs/s 以上の高いフラックスの利用できるため、ナノ集光ビームを利用した時間分解 XAFS 計測が可能となる。電極内部や界面といった電極触媒反応の位置依存性について、詳細な反応・劣化メカニズムを解明することが期待される。PEFC に対してはミリ秒時間分解 XAFS 計測が必要とされるため、分光器を高速に角度掃引（10～100 Hz）をする必要がある。テーパー付アンジュレータ光源、チャンネルカット分光器と KB ミラーを組み合わせて利用することでミリ秒･ナノスケールを有する時空間分解 XAFS 計測の実現が期待される。さらに多素子半導体検出器と高計数率読出回路を組み合わせた蛍光時間分解 XAFS 計測への展開も期待される（図 2）。

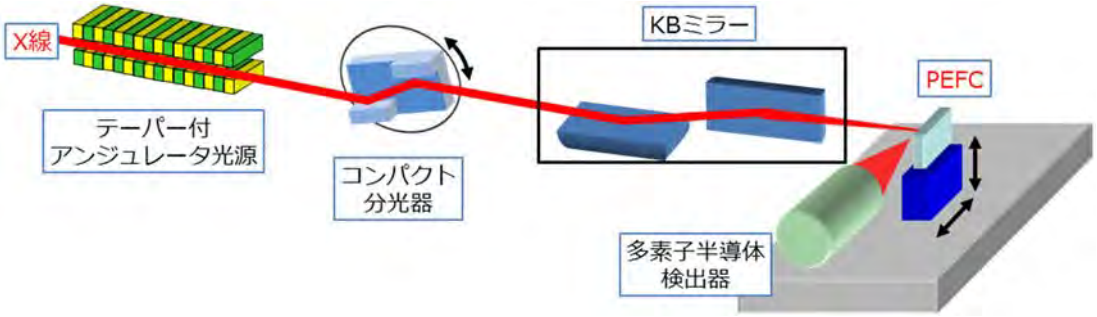


図 2　マルチスケール時空間分解 XAFS 計測の模式図

(c) 倍率可変型 3 次元イメージング XAFS 計測

10 nm ～ 1 μm の集光ビームサイズを任意に選択することで、倍率可変型の走査型 CT XAFS 計測が可能となる。さらに 2 次元検出器を用いた投影型・結像型 CT XAFS 法などの技術も併用することにより、10 nm ～10 μm の分解能での倍率可変型 3 次元イメージング XAFS 計測が可能となり、PEFC 全体から触媒 1 粒子までの構造・化学状態の階層構造を解明することが期待される。

これらの時空間分解XAFS計測手法はPEFCだけではなく他の電池材料などの幅広い材料を対象として利用可能な手法であり、機能発現下におけるミリ秒・ナノスケールの時空間軸を持つマルチスケール化学状態分析への展開が期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

時空間分解 XAFS 実験ステーション

・テーパー付アンジュレータ光源
・時間分解 XAFS 用チャンネルカット分光器
・多素子半導体検出器および高計数率読出回路
・10 nm ビーム集光用 KB ミラーを含む走査型顕微 XAFS 実験装置
・高速・高感度 2 次元検出器
・結像型 CT XAFS 装置
・高速・大容量ストレージサーバー
・解析用 GPU サーバー

３．化学・材料科学

＊担当一覧

監修：田渕　雅夫（名古屋大学）

執筆分担：

まえがき　木村　正雄（KEK 物構研）

3-1　木村　正雄・武市　泰男（KEK 物構研）

3-2　小野　寛太（KEK 物構研）

3-3　野澤　俊介（KEK 物構研）

3-4　片山　真祥・稲田　康宏（立命館大学）

3-5　上村　洋平（分子科学研究所）

3-6　新田　清文（高輝度光科学研究センター）

3-7　中島　伸夫（広島大学）、手塚　泰久（弘前大学）

3-8　手塚　泰久（弘前大学）

3-9　八方　直久（広島市立大学）、林　好一（名古屋工業大学）、
細川　伸也（熊本大学）

3-10　木村　正雄・一柳　光平・丹羽　尉博（KEK 物構研）、その他 1 名

3-11　稲田　康宏（立命館大学）

3-12　朝倉　清高（北海道大学）
（日本 XAFS 研究会、XAFS 将来検討委員会の答申をふまえて作成）

3-13　石井　賢司（量子科学技術研究開発機構）

3-14　関澤　央輝・宇留賀　朋哉（高輝度光科学研究センター、電気通信大学）

校閲協力：

阿部　仁（KEK 物構研）、安達　成彦（KEK 物構研）、植草 秀裕（東京工業大学）、
奥田 浩司（京都大学）、奥部　真樹（東北大学）、木村　正雄（KEK 物構研）、
近藤　敏啓（お茶の水女子大学）、近藤　寛（慶應義塾大学）、佐賀山　基（KEK 物構研）、
高橋　嘉夫（東京大学）、田渕　雅夫（名古屋大学）、手塚　泰久（弘前大学）

4．生命科学

地球上に生命が誕生したのは約40億年前であるが，それ以来，生命は自己増殖・自己修復・機能分化・恒常性維持・進化などといった「生き物らしい」現象を，人類が開発した機械では到達し得ない精度で実現してきた。これらの生命現象の総和として，人類は理性・感情・言語を獲得し，社会活動・経済活動・芸術活動などを自律的に行い，その活動範囲を深海や大気圏外にまで拡大している。しかし生命が繁栄を極める一方で，これらの活動を遂行するために必要な遺伝情報が，人間でさえたったの750メガバイトしかないことは驚嘆すべき事実である。すなわち，生命はわずかな情報を有効利用して複雑な現象を生み出す，何らかの仕組みを獲得したと考えられる。もし，40億年にわたる進化の過程を経て生命が構築してきた仕組みを理解することができれば，「生命とは何か」，「我々はどこからきてどこへ行くのか」，「理性や感情はどのようにして生み出されるのか」などといった根源的な疑問に解答を与えることができるだけでなく，新たな医療技術の開発や生命の基本原理を応用したナノデバイス・ナノマテリアル・人工知能などの開発につながることが期待される。

生命科学研究の黎明期においては，生物が有する様々な機能に対して，それらを担う物質の存在を仮定し，その物質を同定・単離することに重点が置かれて研究が進められてきた。その結果，遺伝情報を担う実態がDNAであること，遺伝情報から一時的に情報を読み出す実態がRNAであること，生体内での様々な反応を担う主役がタンパク質であることが明らかにされ，全ての生命が持つ基本的な仕組みとして，1958年にセントラルドグマの概念が提唱されるに至った。ただし，当時の水準では解析対象の大部分をブラックボックスとして扱って入出力を観察し，「機能」として理解することが限界であった。しかし，より深い理解に到達するためにはブラックボックスとして扱っていた対象の中味を知ることが重要である。そもそも機能とは「系の構成要素の相対位置の変化」と「エネルギーの授受」に還元される事象であることから，機能解析にはブラックボックスを構成する成分の座標情報を得ることが前提条件となる。その上で，構成成分間のインターフェースと相対位置の時間変化やエネルギー状態の変化を明らかにし，座標情報と組み合わせて現象を理解することが必要不可欠である。

このような状況下で重要な研究アプローチが，原子分解能で座標情報（立体構造情報）を知ることができるX線結晶構造解析である。1953年に，Max Perutz，John Kendrewにより初めてタンパク質の結晶構造が解明されて以来，これまでに10万件あまりのタンパク質の立体構造が解明され，数多くのノーベル賞が授与されてきた（1962年：Max Perutz，John Kendrew，1964年：Dorothy Hodgkin，1982年：Aaron Klug，1988年：Johann Deisenhofer, Robert Huber, Hartmut Michel, 1997年：Johnnie Walker, 2003年：Roderick MacKinnon，2006年：Roger Kornberg，2009年：Venkatraman Ramakrishnan，Thomas Steitz，Ada Yonath，2012年：Brian Kobilka）。これらの研究成果は，生命が持つ基本原

理の一端を解き明かしただけでなく，医療分野においては「構造に基づく創薬」という新たな概念を生み出し，近年の医学創薬研究の強大な推進力となっている。

過去数十年にわたり，放射光光源の高度化・解析ソフトウェアの開発・計算機の処理速度の高速化・検出器の性能向上・データ測定の自動化などが推し進められ，X線結晶構造解析は飛躍的な進展を遂げた。特に，国内外における数々の構造ゲノミクスプロジェクトを通して行われた重点的かつ網羅的な立体構造解析によって，低分子量の水溶性タンパク質については，ほぼオートマティックに立体構造を決定できるほどに解析技術は成熟しつつある。しかし，今後重要になるのは，より複雑な生化学的機能を分子レベルで明らかにしつつ，それらを細胞レベルの生物学的機能と結びつけることであり，現在の研究の方向性だけでは不十分である。なぜなら，生命の基本単位である細胞は内外の環境変化に応じて生体分子を「作って運んで組み立てて壊す」という反応を繰り返しているが，このようなサイクルに対応すべく，多くの場合，タンパク質は何種類かの異なる機能を持った分子が集合した超分子複合体を形成しており，かつ，それらが離合集散を繰り返す動的なネットワークを多種多様な階層で形成しているためである。

今後，生体内により近い状況で生命現象を理解するためには，超分子複合体の立体構造解析が必須である。また，細胞外の状況を細胞内の超分子複合体へと伝えて物質生産の制御を行うネットワークを理解するために，細胞膜を貫通して細胞内外をつなげる膜タンパク質の働きを知ることが重要である。さらに，医学創薬分野への応用に向けて，得られた立体構造情報に基づいて薬剤となる化合物を発見するために，タンパク質と化合物の複合体の立体構造解析を大規模スクリーニングとして行うことが肝要であり，現在よりもさらに自動化された迅速な立体構造解析パイプラインの構築が必要となる。加えて，分子集団ネットワークの動的構造を，近年特に発展の著しいX線小角散乱法などによって理解することや，得られた立体構造情報と細胞・個体を対象とした放射線科学の研究成果と組み合わせることによって，生命現象の背後にある分子機構を幅広い階層性で理解することが求められている。しかしながらこれらの研究課題は，後述する通り，既存施設の延長線上に想定される研究では解決が困難であり，強度10^{12} ph/sec以上かつビーム径が1-50 μmで可変など高い能力を有する新しい光源と，それを最大限に生かすための付帯設備の整備を行うことで初めて解決されうる課題である。以上のような生命科学分野の最先端の状況を踏まえて，本項目では，KEK放射光における生命科学研究について記述を進めたい。

4-1．細胞の運命決定を担う超分子巨大複合体の立体構造解析

（1）背景

生命の基本原理を理解するためにはタンパク質の立体構造情報が必要不可欠であるが，単体のタンパク質の立体構造情報だけでは不十分である。生体内でタンパク質が単体で存在している状態は，いわばエンジンのみの車のようなもので，そのままの状態では精密な機能制御は困難である（図 1A）。車として成立するためには，ギア・アクセル・ブレーキ・ハンドルなどといったエンジンを制御する部品が必要であるのと同様に，多くの場合，生体内のタンパク質は異なる機能を持つ分子が集まって超分子複合体を形成することで，互いの機能を制御している（図 1B）。例えば，生体内において遺伝情報の読み出しを担う超分子複合体は，遺伝情報の本体であるゲノム DNA と結合するタンパク質，ゲノム DNA を保護するヒストンと結合するタンパク質，それらの相互作用を正負に制御するタンパク質，などが適切な組み合わせで集合しており，個々の反応のバランスを互いに制御している。さらに，超分子複合体の構成サブユニットが部分的に入れ換わることで，反応や反応制御に多様性が生み出されている。そのため，タンパク質の立体構造解析は，生体内での状況を色濃く反映させた超分子複合体の状態で行うことがきわめて重要である。

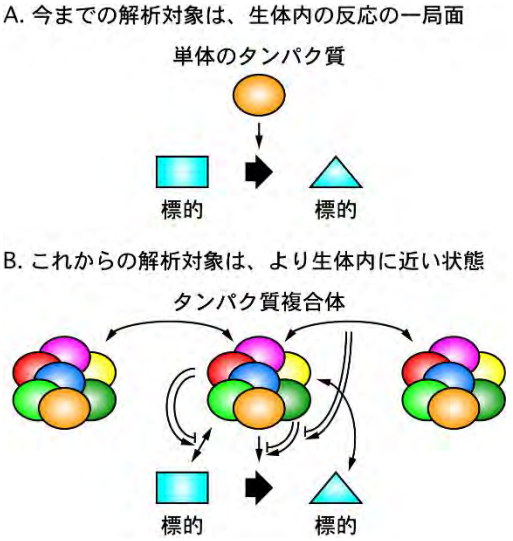


図 1　(A) 今までの解析対象と，(B) これからの解析対象。超分子複合体の立体構造を解析しないと，実際の状況がわからない。

しかし，超分子複合体は結晶化に必要な量と質の精製標品を確保することが難しいため，その立体構造解析は大変困難である。近年，国内外の先進的な研究機関において超分子複合体の立体構造解析が進められているが，成功例は細胞内で大量に発現している一部の例に限られている。しかしながら，細胞の運命決定を担う司令塔的な役割を果たす因子は，その重要さ故に細胞内ではわずかな量しか発現しておらず，これらの超分子複合体の立体構造解析については全く手つかずの状態にある。戦略上のボトルネックは

①サブユニットの分子量が大きく多種類になると，大量に発現できない
②精製の過程でサブユニットが外れやすく，構成が不均一になりやすい
③機能発現のために形状に柔軟性があり，形状が不均一になりやすい
④結果として，結晶が大きく成長しない

という 4 点に集約されるため，これらを克服して細胞の運命決定を担う司令塔的な超分子複合体の立体構造を解明することが期待されている。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光で利用可能となる下記のビームライン・実験設備によって上述の問題点を克服し，超分子複合体の立体構造解明とそれに基づく生命の基本原理解明を行う（図 2)。KEK 放射光では④に対応して，結晶サイズに合わせて 1-100 μm 径のビームを自由に選択可能で，かつ高輝度で平行性の高いビームが利用可能となる。その結果，得られた結晶が数 μm 程度の微小結晶であってもデータ収集が可能になる(図 3)。さらに，高速・高感度・低バックグラウンドでデータ収集を遂行できる検出器を導入することによって，放射線損傷の影響を軽減できる。また KEK 放射光では，結晶の位置を発見するラスタースキャンなどのシステムを導入することによって，視認困難な結晶からもデータ収集が可能になる。加えて，Serial Crystallography に対応した装置および解析ラインを導入することによって，1 つの結晶からではフルセットのデータを得られない場合でも，複数の結晶から集めたデータを重ね合わせることによって解析が可能になる。

図 2　分子複合体の立体構造解析に向けた戦略

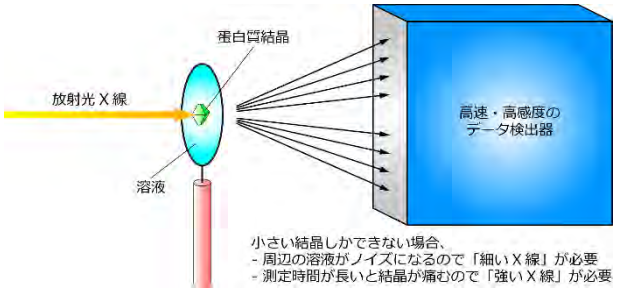


図 3　タンパク質の X 線結晶解析に必要なデータ測定装置

また，放射光での研究を支える技術として，以下の点においても KEK 放射光では改善が望まれる。①については，KEK 放射光では数百リットル規模での大量培養装置や大量精製装置を備えた付属施設を設置し，出発材料の量を増やすことによって，発現量が少ないという問題点の克服が可能になる。また，ナノリットルスケールでの結晶化スクリーニングが可能な自動微量結晶化ロボットを導入することによって，大量の精製標品を得にくい超分子複合体であっても網羅的な結晶化スクリーニングが可能になる。②については，KEK 放射光では動的光散乱や静的光散乱などの装置に加えて，現状の 1 割程度の濃度で測定可能な高感度かつサンプルへの放射線損傷が少ない BioSAXS ビーム

ラインを構築することによって，精製標品の単分散性や粒子サイズの均一性が測定可能になる。また，CryoSAXS（抗凍結剤中で 100 K で測定）を導入することによって，露光時間を数百倍に延長することで，少量かつ低濃度でしか得られない精製標品からのデータ測定が可能になる。③については，KEK 放射光では超分子複合体の形状を確認するのに最も適した方法である極低温電子顕微鏡を備えた付属施設を設置することによって，超分子複合体が均一な形状となる条件を検討することが可能となる。

以上，KEK 放射光における超分子複合体の結晶構造解明を通して，遺伝子発現制御・エピジェネティック情報伝達・細胞の癌化・オートファジー/糖鎖修飾を通したタンパク質の品質管理・万能細胞の創出などといった，基礎的にも社会的にもインパクトの大きい生命現象について，それらの背後に潜む分子機構の解明が期待される。これらの成果は，過去に結晶構造が決定された超分子複合体と同様に（光合成反応中心複合体（1988 年ノーベル化学賞），ATP 合成酵素複合体（1997 年ノーベル化学賞），RNA polymerase II 複合体（2006 年ノーベル化学賞），リボソーム複合体（2009 年ノーベル化学賞）など），重要な構造生物学上のマイルストーンとなるはずである。さらに，KEK 放射光で得られた超分子複合体の立体構造情報（Å レベルの解像度の写真）と，タンパク質を蛍光色素などでラベルし，顕微鏡下においてタンパク質の動きや力発生をリアルタイムで可視化する一分子生理学的実験（nm レベルの解像度の動画）を組み合わせることで，生体内でタンパク質が超分子複合体として働く様子を克明に再現することができる。このような構造と機能の精密な相関研究を通して，生物が持つ分子機構の定量的な理解が飛躍的に進めば，ノーベル賞級の基礎科学上の成果となるだけでなく，今後の医学創薬の発展にも指針を示すことができる。結果として，新規の薬剤や，生物の持つ巧妙な仕組みを応用したナノデバイスなどが，次々と生み出されることが期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- タンパク質のX線結晶解析用ビームライン（エネルギー : 12.4 keV，ビーム径 : 1-50 μm 径を自由に選択可能，強度：10^{12} ph/sec 以上，その他：ラスタースキャン対応・Serial Crystallography 対応・結晶化プレートからの直接測定対応・自動マウント，自動センタリング，自動測定，自動解析が可能）
- DNA 組み換え実験・大量培養・大量精製が可能な付属施設
- 低濃度で測定可能な BioSAXS 用ビームライン（CryoSAXS 対応）
- 極低温電子顕微鏡
- 自動微量結晶化ロボット

4-2. 膜タンパク質巨大複合体の立体構造解析

(1)背景

細胞は脂質二重膜によって外界と厳密に隔てられており，細胞内と外界との情報や物質の交換は，すべて膜を介して行われている。これらの情報/物質交換の役割を担うのが細胞膜を貫通して存在する「膜タンパク質」である。膜タンパク質は，細胞外の情報受容伝達，物質の取込みや細胞内の不要物の排出，エネルギー変換など，生命活動維持に必須な機能を担っており，その機能と構造の理解は生命科学において重要な課題と認識されている。また，受容体・イオンチャネル・輸送体などの膜タンパク質は多くの疾患に関連することが知られているが，細胞表面に露出していることから薬剤の標的となりやすく，現在市販されている薬の半数以上は膜タンパク質が標的となっている（図１青・オレンジ)。近年，薬剤の設計・改良において，標的タンパク質の三次元構造を基にしたアプローチの有効性が示されており，膜タンパク質の立体構造の解明が強く求められている。しかしながら現時点において膜タンパク質の立体構造解析は水溶性タンパク質に比べて大きく遅れている。ヒトゲノムには 20-30%の膜タンパク質の遺伝子がコードされているが（約 4000-6000 種類に相当)，構造決定されたヒトの膜タンパク質でユニークなものは約 70 種類しかない (2016 年 2 月 1 日時点)。

膜タンパク質の構造解析が水溶性タンパク質よりも遅れている最大の理由は，膜タンパク質が脂溶性である（水に溶けにくい）という性質に由来する。そのため，結晶化用サンプルの調製の段階においては，① 可溶化の際に使用する界面活性剤が失活の原因になるという問題がある。結晶化の段階では，② 膜貫通領域は膜に埋もれているために結晶形成への寄与が少なく，わずかに露出した膜外領域のみで結晶形成がなされるために結晶化しにくいという問題がある。抗体との共結晶化法や脂質キュービックフェーズ（LCP）法などの導入により結晶が得られやすくはなってきたが，依然として，③ 得られる結晶が微小であったり質が悪い傾向が高かったりなどの問題があり，これらの点を克服して膜タンパク質の立体構造情報を得ることは依然として困難な状況にある。

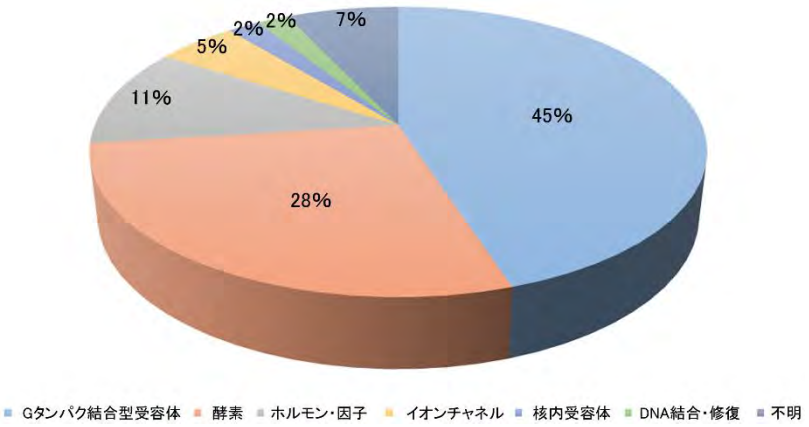


図１　現存する薬剤の標的タンパク（BioMed 社調べ）

(2)KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光で利用可能となる以下のビームライン・実験設備によって上記の点を克服し，膜タンパク質の結晶構造を解明し，膜タンパク質がつなぐ細胞内外のネットワークの全容を解明する。③に対応して KEK 放射光では，1 μm × 1 μm 程度の微小ビームが利用可能となる。その結果として，全自動結晶観察データベース・結晶の反射能の評価などに関わるデータベースを構築し，さらに結晶化デバイスから直接回折データを収集するシステムを有機的に統合することによって，最適な測定条件を戦略的に予測することが可能になる。以上の KEK 放射光における研究を通して，生物学・医薬学への進歩に大きく貢献できることが期待される（図 2)。

また，放射光での研究を支える技術として以下の点においても KEK 放射光では改善が望まれる。①については，KEK 放射光においては蛍光ゲル濾過法（F-SEC)・X 線小角散乱（Bio-SAXS)・電子顕微鏡などの結晶化前の品質確認が可能な装置を備えた付属施設を設置することによって，発現コンストラクト・可溶化条件などの系統的な最適化が可能になる。②については，LCP 法に対応した自動微量結晶化ロボットを導入することによって，より少ないサンプル量で，より多くの結晶化条件の検索が可能になる。

さらに，現在の世界的な水準では単独で働く膜タンパク質の構造解析でさえ困難であるが，多くの膜タンパク質は生体内で複合体を形成して働くことが知られている。KEK 放射光においては高輝度・低エミッタンスのビームおよび超分子複合体の立体構造解析に必要な付属施設を設置することによって，膜タンパク質を複合体の状態で構造解析することが可能になる。2011 年に初めてβ-アドレナリン受容体と G タンパク質との複合体構造が決定され，その功績によりブライアン・コビルカ博士は 2012 年にノーベル化学賞を受賞しており，KEK 放射光においてこれらの結晶構造解析を行うことで，同等の医学的にも重要な成果が得られるものと期待する。また，

図 2　生体分子構造解析施設設立への概念図。生体の分子構造や反応の解明によって社会問題の解決に貢献することが可能になる。

現状では生物学的に重要な電子伝達系複合体，病原性に関わる病原菌外膜複合体などの構造学的知見も十分に得られていないが，KEK 放射光ではこれらの膜タンパク質複合体の結晶構造解析が大きく加速されるであろう。これらの構造に基づき，細胞内外をつなぐ情報伝達の様子や，薬剤の作用機序の解明が可能となり，そのような知見が蓄積することで，生物学に新しい展開をもたらすと思われる。さらに，回折実験と分光実験とを同時に行えるビームラインを構築し，構造と化学的機能とを直接結びつけることが可能になる。加えて，光源の高輝度，高コヒーレンスなＸ線を用いた時分割ラウエ法を導入して，結晶構造解析の分野においては比較的苦手とされてきたタンパク質の動的な情報も収集することが可能になり，ミリ-ナノ秒単位での構造変化を伴う反応現象の中間，前駆過程が解明されることが期待される。

以上を通して，KEK は生命現象を担う根幹となるタンパク質情報を提供することが可能な基幹施設となり，産出する科学は生命科学，医学の基礎となり，社会問題にも切り込んでいける研究の基盤を支える役割を担うことが期待できる。

(3)必要とされるビームライン・実験設備

- タンパク質のＸ線結晶解析用ビームライン（エネルギー：12.4 keV，ビーム径：1 μm × 1 μm 程度，強度：10^{12} ph/sec 以上，その他：ラスタースキャン・結晶化プレートからの直接マウント・自動結晶判定からデータ解析が可能）
- 自動微量結晶化ロボット，自動観察システム，結晶回折実験-データ処理を有機的に結びつける処理システムとデータベース
- 白色Ｘ線ビームライン（ラウエ回折実験測定）
- 超低エネルギービームライン（4.6 keV）（天然タンパク質に含まれる硫黄原子を用いた SAD に用いる）
- BioSAXS 用ビームライン

4-3. 医学創薬研究のための生体高分子の構造学的基盤研究

(1)背景

疾病発生の理解やその知見に基づいた創薬を行うために，ターゲット分子である生体高分子（ほとんどはタンパク質）の立体構造情報は極めて重要である。タンパク質の立体構造を決定する手法としては，X線結晶解析，NMR，電子顕微鏡があるが，測定の迅速さ（生産性），原理的に分子量の制約がない，などの点で，X線結晶構造解析が現在の主流である（図 1)。上記目的のために，タンパク質単体の立体構造情報はもちろん重要であるが，タンパク質複合体やタンパク質とリガンドとの複合体の原子レベルでの立体構造情報がますます重要となっている。さらに加えて，生体内でタンパク質は単体のみで機能しているのではなく，他のタンパク質と相互作用ネットワークを作ることやシグナル分子などの低分子化合物と結合解離することにより，生命機能が発現している。創薬においては，どの分子がどの分子と相互作用するかを理解した上で，多数の候補化合物とターゲットタンパク質との複合体構造を決定する必要がある。

	到達可能な分解能	特徴
X線結晶構造解析	原子分解能	万能選手だが解析には結晶が必須
NMR	原子分解能	ダイナミクス解析に適しているが， 解析対象は 40kDa 以下に限られ測定時間が長い
極低温電子顕微鏡	サブナノメートル	解析対象は 200kDa 以上に限られ 専用機器と専門家の双方が極端に不足している
X線自由電子レーザー	原子分解能	微小結晶から立体構造を決定できるが ビームライン数とビームタイムが少ない

図 1　医学創薬研究における様々な構造生物学的手法

このような背景により，多数の製薬会社が PF を利用しているが，現状においては運転期間・性能を含めたサービス全般の点などで，海外の放射光施設に比べ魅力に乏しいと指摘されている。しかし，秘密保持の観点，利便性の観点から，国内の先端施設が望まれている。これまで文科省の国家プロジェクトである「ターゲットタンパクプロジェクト」,「創薬等支援技術基盤プラットフォーム」により，アカデミアで初めての大規模化合物ライブラリーが整備され，また，タンパク質立体構造解析の基盤も整備されてきた。この事業は 2015 年度より，省庁横断的な日本医療研究開発機構（AMED）に引き継がれ，日本政府として日本初のアカデミア創薬に初めて具体的に取り組んでいる状況であるが，以下 3 点においてさらなる改善が必要であろう。

① まず運転時間については，年間ビームタイムを維持しつつも，運転時間のさらなる有効利用法を模索する。② 性能面については，世界的に標準となっている top-up 入射を常時執り行う。また，供給されるX線ビームは，太いものと細いものそれぞれ専用のビームラインに分かれているが，一般に細いビームの方が適応範囲は広いが現状では強度が弱いため，より高輝度のビームが必要である。現状より高輝度で，ビーム径が数μm から 100 μm 程度まで自由に選択可能であれば，膜タンパク質を含む多様な大きさの結晶と多様な測定法に対応できる。また，波長の選択についても，native-SAD に対応する長波長側でのより幅広い波長域，セレン，ヨウ素，臭素，重原子などに対応する短波長域，がより自由に選択できる

ことが望ましい。③ この他に考慮すべき点は，未経験者による構造解析の希望が増加している点である。現在，当該分野における放射光施設のユーザーのほとんどはＸ線結晶解析の経験者であり，各自の研究室でタンパク質の発現精製結晶化を行い，得られた結晶を凍結して放射光施設に持ち込んで測定を行うケースが多い。しかし未経験者の場合，サンプルの純度や物性の点での事前評価が不十分であることや結晶化自体についてのノウハウがないことが多い。今後，Ｘ線結晶解析を幅広い層に普及させ，放射光ユーザーの拡大を図るためには，技術的なサポートを行うことが必要である。また，結晶化プレートを用いて直接Ｘ線回折データ測定を行う in situ 測定においては，結晶化を行うサイトと放射光ビームラインが隣接していることが重要である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

上述の背景を踏まえて，KEK 放射光においては多数の結晶から効率よく回折データ収集を行う体制を整えることで，今後の構造生物学に基づいた医学創薬分野を発展させる（図 2）。KEK 放射光では②に対応して，測定試料のサイズに応じてＸ線ビームのサイズを自由に選択可能で，且つ高輝度のビームが実現されるため，多種多様な特性（結晶サイズ，回折能等）を持つタンパク質結晶に対して，最適な条件下で最高品質の回折データ収集を行うことが可能になる。ここに最先端の検出器や結晶交換ロボットなどの自動化技術，そして高度なデータ解析技術を織り交ぜることで，1 試料あたりの測定時間を極力短縮し，爆発的な試料処理能力を有するビームラインを構築することが可能で，現在よりもはるかに効率的に構造解析が行えるようになり（現在：毎時 10 データセット，KEK 放射光：毎時 50 データセット），今までは諦めていた多数の複合体の構造決定が可能になる。

また，①については，KEK 放射光においては様々な物理化学的実験装置が設置された付属施設を設置し，Ｘ線照射前にサンプルの事前評価を行うことでビームタイムを有効利用することが可能になる。さらに，最終的な結晶の評価をＸ線回折によって行うが，KEK 放射光では迅速な測定が可能となるため，多様なタンパク質-リガンド複合体の結晶の評価を効率的に行うことが可能になる。それだけではなく，得られた結晶の質が悪い場合の post-crystallization treatment を効果的に行い，迅速に必要十分な回折データ収集を行うことが可能になる。その結果，タンパク質-リガンド間相互作用の原子レベルでの情報を

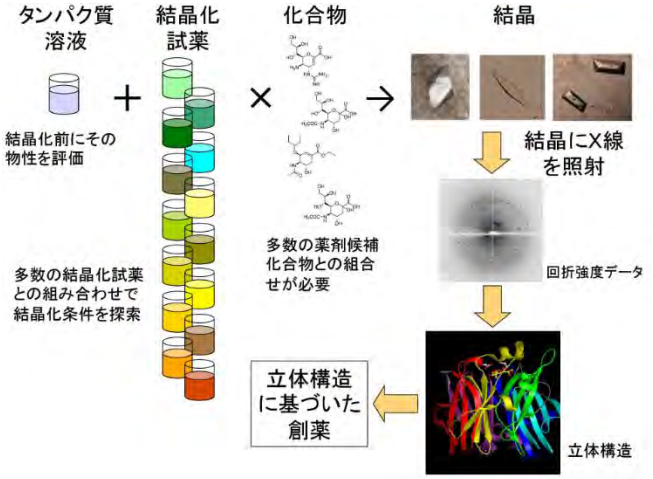


図 2　立体構造に基づいた創薬研究のワークフロー

迅速に得ることができるようになり，タンパク質の機能や基本的生命現象の理解へとつながることが期待される。③について，KEK 放射光においては，隣接した施設でタンパク質の発現精製結晶化および性状評価を行える設備を利用可能とすることで，より迅速に結晶化に適したサンプルの調製を行うことができるようになる。これらの設備とＸ線回折データ測定と合わせて構造解析パイプラインを形成できれば，幅広いユーザーが効率的に成果を出すことにつながる。以上の技術は，医学創薬における利用にとどまらず，前項の超分子複合体や膜タンパク質のＸ線結晶解析にも適用可能であり，全体として世界の科学水準を引き上げる効果が期待される。

上述の三点を改善することで，現在，製薬企業ユーザーなどが研究開発を行う上で不足していると考えている部分を解消することができ，利用の拡大と研究の進展が期待されるだけでなく，同様の指向を持つアカデミア創薬に取り組むユーザーの利用と研究の推進も期待される。また，創薬候補化合物のスクリーニングの場合には，１つのターゲットタンパク質について数百以上の低分子化合物との複合体の原子レベルでの立体構造解析を速やかに行うことにより，合成化学分野，生理活性評価分野とのスムーズな連携を行う必要がある。創薬スクリーニングにおいては１つのターゲットタンパク質が複数のリガンドと結合することが多々あり，その場合は解析対象が組み合わせで増加するため，効率的なデータ収集により研究の加速をはかることが極めて重要である。KEK 放射光においては，ビーム性能の向上，ハイスループット化を推し進めることによって，構造に基づいた創薬が推進されることが期待される。さらに，XFEL を中心に進められている Serial Crystallography の手法を取り入れ，より先端的な常温下の高分解能構造解析や多数の微小結晶を用いた構造解析も視野に入れることが可能になる。

(3)必要とされるビームライン・実験設備

- 以下の性能を有するビームライン（幅広い波長選択性と十分なエネルギー分解能を有する・高輝度（10^{12} ph/sec 以上の強度）かつ結晶サイズに応じて 5~100 μm 径を自由に選択可能・最新の大面積ピクセルアレイ検出器と高精度の試料ステージを有する・高速のシャッターレス測定に対応・自動測定装置を備えカセットに入った凍結サンプルおよび結晶化プレートからのＸ線回折データの自動収集が可能・1 日で 1000 程度のサンプルについて自動回折データ収集，回折能チェック，自動構造解析に対応・増大する回折データを取り扱うことのできるデータサーバー，高速ネットワーク，解析用計算機なども併設）
- ビームラインあるいは放射光施設に隣接したタンパク質発現精製結晶化の装置を備えたラボ（サンプルの事前評価のために CD（円偏光二色性），光散乱装置，ITC（熱量計），SPR（生体分子相互作用装置）などを備える）
- 数千枚以上の結晶化プレートの保存と観察が可能な自動結晶化観察システム

4-4. 原子レベル動的立体構造解析を基盤とした酵素反応機構の解明

(1) 背景

化学反応は遷移状態を経由して起こる。一般に反応温度を上昇させると分子集団の力学エネルギーが増加し、遷移状態をつくり出す機会が増すことになるため、温度上昇により化学反応の速度は加速される。また、触媒により活性化自由エネルギーを低くすることで反応速度を加速させることもできる。有機合成などでは、目的物を創製するために触媒を用いかつ加熱を行うことが多い。

ヒトの体温は 36 ~ 37℃である。生物によっては、生体内温度はそれより低い。しかしながら、生体内では多種多様な化学反応が効率よく起こっている。これは酵素が関与しているからであり、言い変えれば、酵素は生体内の化学反応を触媒するタンパク質であると定義できる。酵素は反応の場を提供し、基質を反応しやすいコンホメーションに変え活性化し、活性化エネルギーを減少させる。酵素は人工の触媒と比べ複雑な構造をもち、より高度に反応を制御しているため、酵素反応は非常に高い基質・立体特異性を示す。また、細胞内には様々な化合物が含まれるが、酵素はターゲット分子のみを特異的に目的の生成物に変換している。このように高度に制御された反応を人工的に行うことは非常に難しく、その機構を理解することは、生命科学者や化学者のみならず人類の夢である。また、すべての生命活動には酵素が関与していると言っても過言ではなく、創薬や環境保全のターゲット分子としても、酵素はもっとも重要なものの一つである。酵素の反応機構を理解することは、生命の神秘を解き明かすとともに、合成化学の新しい方法論の提唱、人工触媒の設計、創薬やバイオマス発電などへの貢献が期待できるため、基礎科学だけでなく産業界にも貢献する。多種多様な酵素それぞれの反応機構の詳細な解明には、それぞれの酵素について、1. 水素原子レベルの立体構造解析、2. 反応中間体の構造解析あるいは動的な構造解析（構造変化の可視化）、3. 酵素の状態を把握するため分光測定などと組み合わせた構造解析、の三者が必要だが、これらを行うためには現存の KEK の装置では不十分である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

水素原子レベルの構造解析には、高角の X 線回折データだけでなく、水素の原子散乱因子が相対的に大きい低角側のデータを低バックグランドで収集しなければならないため、より高輝度かつマイクロフォーカスのビームラインの整備が必要である。また、バックグランドを極力抑えるため、ヘリウムチャンバーなど付属の装置を必要とする。高輝度の X 線を用いれば X 線結晶構造解析単独でも水素原子の可視化が可能である場合もあるが、酵素の結晶が X 線照射線損傷を受けることが危惧される。そのため、極めて細いビームを用いて一つの結晶への照射位置をずらしながら回折実験を行うことが求められる。また X 線結晶構造解析で水素原子が可視化できない対象については、中性子結晶構造解析と組み合わせた相補的構造解析が不可避である。

酵素反応中間体（例、図 1）は、短寿命のものも多いが、液体窒素温度や液体ヘリウム温度で結晶中に捕捉する事が出来る。補因子や金属を含んだ酵素（図 1）の場合には、結晶の分光測定（紫外可視分光、ラマン分光、赤外分光、X 線吸収分光など）により結晶中での酵素の反応状態を把握し、それぞれの状態に対応した回折データを収集することが出来る。また、X 線の照射は結晶内にラジカルや電子を生じ、酵素によっては、結晶の放射線損傷よりずっと早く活性中心の状態変化（およびそれに伴う構造変化）が起こることが報告されている。ゆえに、構造解析するべき対象が X 線照射中に変化してしまうことも考えられるため、各種分光光度計は“オン・ビームライン”（図 2）で、結晶への X 線照射時にも同時に使用できることが望ましい。これによって、“電子レベル”の構造情報も得られる。

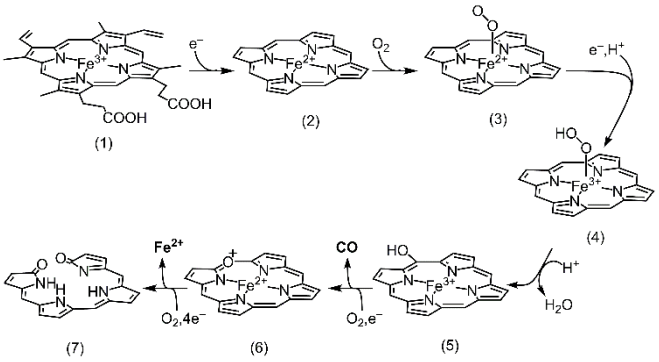


図 1. ヘム分解酵素 heme oxygenase の反応を例として示した。多段階の反応中間体があることが解っている。(1)の状態は比較的安定だが、他の中間体を結晶中に捕捉することは容易ではない。また、(3), (4)の構造変化は非常に微細であることが容易に予想できる。水素原子レベルの構造情報が必要である。

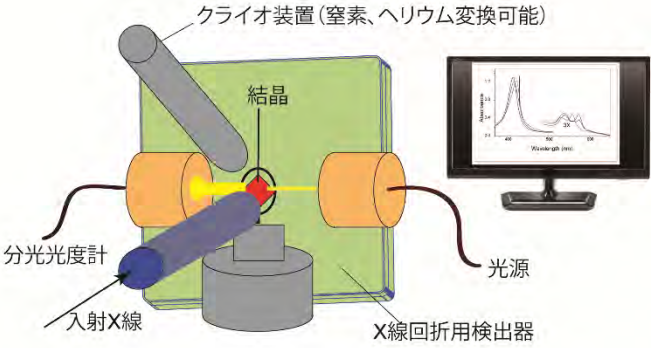


図 2. “オン・ビームライン”紫外可視分光光度計のセットアップの例。ラマン分光や赤外分光ではさらに複雑な装置になる。

X 線による還元力を逆手にとって、X 線照射（による電子の発生）をトリガーとして酵素反応を開始させる場合もある（図 3）。さらに、窒素やヘリウムのクライオ装置をユーザーが制御して結晶の温度を目的温度に上昇させることにより、続く中間体まで反応を進めた後に低温に戻し、次の反応中間体を捕捉する方法も考えられる（図 3）。それには結晶試料を動かさずに温度制御と結晶の分光測定を同時に行えることが必要である。以上のことが可能になれば酵素の各反応中間体構造を高分解能で、“スナップショット”として解析できる。また、KEK 放射光の高輝度な X 線とシャッターレスの検出器の利用により、タイムラグなく連続して吸収 X 線量に応じた酸化還元状態を追跡でき、“スナップショット”ではなく“分子ムービー”として反応を可視化す

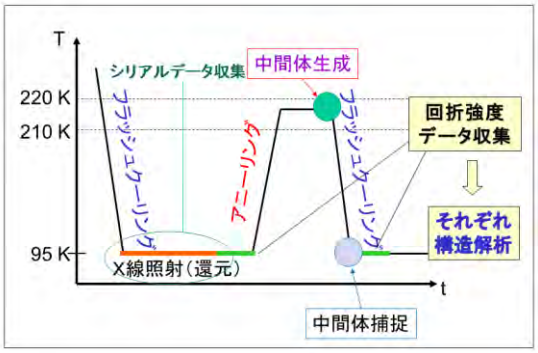


図 3. 温度制御による反応中間体捕捉と回折実験のスキームの例。常温では速すぎて捉えられない中間体を、中間温度で捉える。

る動的構造解析も可能となる。例えば各結晶、0.1°振動あたり数十ミリ秒露光の回折データセット収集を繰り返し（単結晶シリアルデータ収集、図 3)、セットごとに構造解析すれば、還元に応じた微細な構造変化を可視化することができるようになる。

その他に、ラウエ法で短時間にデータを収集し、動的な構造を得る方法も考えられる。例えばヘム酵素中のヘム鉄に一酸化炭素（CO）を結合させておき、ある波長のレーザー光を照射する。このパルスレーザーとパルス放射光を用いる「ポンプ―プローブ法」が適用できれば、結晶構造解析により酵素側の微小な動きと CO の動きを解析することができる。場合によっては、結晶は常温付近で扱われる。効率よく回折データを収集するために白色（あるいはピンク）X 線を用いたラウエ回折実験を可能にするべきである。白色 X 線の吸収を極力抑えるために、ここでもヘリウムチャンバーを必要とする。KEK 放射光の実現でピコ秒からナノ秒のタイムスケールの時間分解構造解析が期待される。

これらの方法（あるいはそれらの組み合わせ）を適用できれば、酵素が反応していく様子を原子レベルの立体構造とその変化から目で見て理解することができ、様々な酵素の反応機構の解明に大きく寄与することは間違いない。得られる動的な構造情報と生化学的・生物物理学的な実験や計算科学と組み合わせることで、酵素の化学反応式を細かく記述することが可能となる。上述したように、酵素の反応機構を理解することは生命の神秘を解き明かすとともに、合成化学の新しい方法論の提唱、人工触媒の設計、創薬やバイオマス発電などへの貢献が期待できる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・高輝度（10^{12} ph/sec 以上の強度）かつ 1-100 μm 径の微小かつ可変ビームサイズのビームライン
・分光光度計（紫外可視、ラマン、赤外、X 線吸収）のオン・ビームライン設置
・極小のビームストッパー
・ユーザーが簡単に温度制御を行え、設定値への温度変化が速いクライオ装置
・自動結晶交換ロボット
・ヘリカルスキャン（並進と回転を同時に行う）が可能であり、かつ、常温測定用のキャピラリーを設置できる試料ステージ
・ピクセルアレイ型検出器
・ヘリウムチャンバー
・パルス性白色 X 線（ラウエ回折実験時のみ）
・パルス性レーザー光装置

4-5. 個から集団の理解へ：
動的構造解析による細胞内分子集団ネットワークの網羅的解析

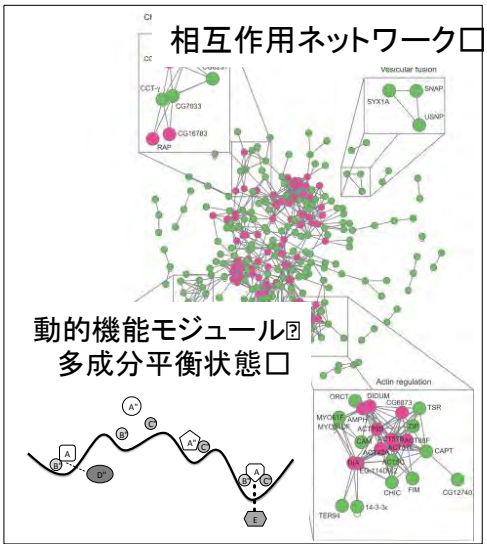
（1）背景

X 線小角散乱測定（SAXS）は、ナノメータースケールの構造に由来する散乱を元に物質中の構造を評価する手法の総称である。従って、その対象は高分子、脂質、繊維、液晶といったソフトマテリアル、金属、無機材料といったハードマテリアル等、世の中に存在するほぼ全ての物質を対象とする。生命科学分野においても、DNA の二重らせん構造を例に示すまでもなく、歴史的には BioSAXS が生体関連物質の構造解析をリードしてきた。これは結晶化などの特殊な試料調製を必要とせず、「ありのままの状態」に近い試料に X 線を照射するだけで構造評価できるという簡便さによるところが大きく、それだけに X 線ビームの質が向上するのに歩調を合わせ、より難易度の高い対象への展開を実現してきた。

構造生物学は、生化学の素反応を担う原子・分子の解析から生物の最小単位である細胞応答まで、実にサブナノからマイクロメータースケールに至る空間階層まで対象を広げてきた。ここでは、単に結晶構造解析から得られる蛋白質や安定複合体の「個」の情報のみならず、超解像光学顕微鏡等で得られる細胞内での多種多様な蛋白質「集団」の振る舞い（動的挙動）に関する情報を関連づけることで生物システムの原理的理解を目指す学問へと発展を遂げようとしている。BioSAXS においては、近年、*Ab initio* 構造解析や Ensemble modeling に代表される様々な革新的解析手法の開発や、HPLC と組み合わせた SEC-SAXS 測定等の一般化による測定インフラの最適化が行われてきた。その結果、現在では、X 線結晶構造解析が苦手とする困難な複数のドメインから構成される蛋白質や明確な構造を示さない蛋白質等を対象とした構造解析を実現することで、互いに相補的な手法として広く認知されている。今後は、新世代の構造生物学の実現に向け、BioSAXS も「個」から「集団」に測定対象を拡張し、「ありのままの状態」に近い蛋白質群の動的構造解析を実現することで、「個」の理解と「集団」の理解の橋渡しを担わなくてはならない。

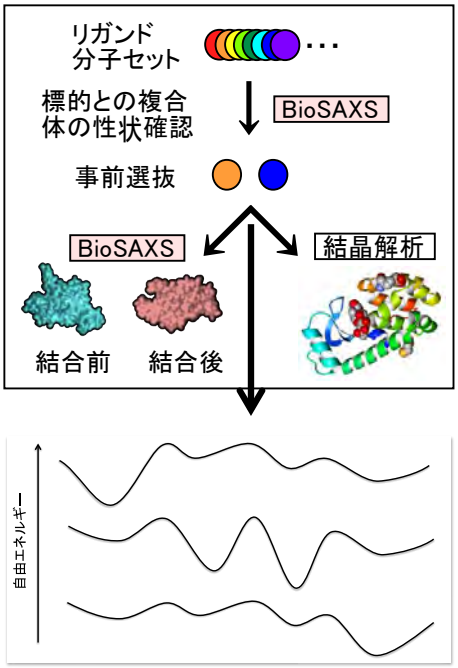
元来、BioSAXS は「ありのままの状態」を観測する上で最適の測定手法の一つである。しかしながら、将来的に、究極のありのままの姿、すなわち、細胞内での生体分子集団の動的構造解析を実現するためには、少なくとも、超解像光学顕微鏡で実現されているサブマイクロメータ程度の空間分解能でのマッピング測定、さらには、様々な生体分子が共存する Crude な環境から、意味のある情報を抽出するための測定・解析手法の開発が必要不可欠となる。蛋白質、脂質、核酸などの生体試料は、異なる組成の炭素、酸素、窒素、硫黄、リンからなる物質である。Tender から軟 X 線領域の X 線の吸収端を活用することで、様々な種類の生体物質の動態を区別し観測することが可能となり、Crude な環境での各物質の空間的な不均一性の評価や動態評価への有力なプローブとなり得る。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果



細胞内では、多種多様な蛋白質が互いに相互作用しネットワークを形成している。ネットワーク中では、必ずしも安定な複合体を形成しているわけではなく、1 つの生理機能を実現する複数の蛋白質群（動的機能モジュール）が多成分平衡状態に有り、他のネットワークからの摂動を受けることで、その自由エネルギーランドスケープを変調させ生理機能を調節している。すなわち、「ありのままの状態」を理解するためには、個々の蛋白質の解析に加え、それらが集団として振る舞う状態（多成分平衡状態）の解析が必要となってくる。平衡状態にある各成分を分離するためには、組成比率や活性化因子の濃度を変える等して、平衡状態をシフトさせた多数の試料を測定し、多変量解析やビッグデータ解析を活用することによって、応答する成分を区別し定量化することが可能となる。このような測定・解析を実現するには、濃度が薄い試料条件でもデータ収集が可能な高輝度ビームと流体を利用したハイスループットな自動測定が必要不可欠となってくる。流体を利用することで超高輝度化に伴うダメージを軽減でき、結果として、試料精製が困難な場合でも、少量で測定・解析する道が開ける。

ハイスループットな測定環境と X 線結晶構造解析を始めとする生体高分子の構造解析手法とたやすく連携できる環境が整えば、製薬企業などの利用を誘起できると考える。現在、ドラッグデザインを行なう場合、リガンドやフラグメントと蛋白質の共結晶を作製し構造解析を行なうのが一般的であるが、共結晶化の前に BioSAXS 測定によるリガンド等のマトリックススクリーニングを実施することができれば、溶液中で最適化・選択化された条件の下での共結晶化が可能となるため、結果的に闇雲に結晶化を行なうよりも創薬開発研究全体のスループットを向上する事ができると期待される。言うまでもなく、創薬の目的は、蛋白質と強く結合する分子を発見することではなく、生理機能を調節することにある。蛋白質分子集団の挙動を解析することが可能となれば、ターゲットとなる生理機能を実現する動的機能モジュールをプラットフォームとしたスクリーニングによって、より合理的な創薬法を構築することができる。



(3) 必要とされるビームライン・実験設備

小・中・高角同時測定可能な BioSAXS 専用実験ステーション、ピクセル検出器（小、中、高角用各 1 台）、HPLC（複数台）、多角度静的光散乱装置（MALS）、溶液サンプルチェンジャー、溶液分注機、クロマトチャンバー、マイクロ流路システム、シリコン PIN フォトダイオード検出器、ストップトフロー装置

4-6. 放射線ストレスに対する量子効果に基づくゲノム安定化機構の解明

(1) 背景

放射線と生体分子との相互作用、そしてその後の生物学的効果の全容を明らかにすることで、放射線発がんメカニズムの解明や、放射線がん治療の高度化に資する知見を得ることが、放射線生物学研究の一番の目的である。放射光を用いた放射線生物学研究は、我が国の放射光利用実験が INS-SOR リングにおいて開始された当初から行われており、初期４ビームラインのうちの１つは、生体分子に対する照射実験や吸収分光を行うことのできる放射線生物研究専用のビームラインであった。その後、PF においても放射線生物専用ビームライン（BL27）が整備され、現在では顕微鏡視野下において、個々の細胞に対して、照射を行うことができるマイクロビーム X 線照射装置が稼働し、低線量放射線影響評価において重要な、X 線被照射細胞とその周りの非照射細胞との細胞間コミュニケーションに関する知見を得ることに成功している。さらに、SPring-8 において軟 X 線領域の分光学的な研究が展開され、生体分子を含む水溶液の光電子分光実験装置や生体分子薄膜の分子分解分光実験装置を用いて、DNA 分子を取り囲む水和水分子が DNA 分子自身の分解過程に対して重要な役割を果たすことが見出された。これらの成果を通して放射光を用いた研究は、放射線生物研究分野において欠くことのできない存在となっている。

この研究基盤をもとに、KEK 放射光においては、真空紫外線・軟 X 線領域の高輝度・コヒーレンス特性を最大限に利用しながら、量子効果に基づいた放射線生物学研究のさらなる発展に資する研究成果が期待される。しかし、これまでの研究では、個々の細胞に対する照射効果を評価した成果はあるものの、DNA 損傷の初期過程に関しては、均質系の試料を用いた実験に関する研究が中心となっており、試験管内のような理想的な状況下での分解過程に関する知見の蓄積はあるものの、実際の細胞内を模擬したような不均質系での実験は皆無である。また、放射線発がんの原因となると考えられている、難修復性 DNA 損傷のメカニズムは明らかになっていない。KEK 放射光における分光学的研究は、放射線生物分野における喫緊の課題である、不均質系における構造と電子状態との関係を明らかにすることに重点を置くことにより、当該研究分野に対して強力なツールとなることは間違いない。さらには、後述の真空紫外線円偏光二色性分光を用いることで、DNA 損傷を修復するためのタンパク質の動的構造変化に関する知見を得ることができると期待される。そこで、放射線生物 UG は、DNA 損傷を起点とした放射線発がんのメカニズムの解明および放射線照射された細胞内で生起する様々なストレス応答の結果として現れるタンパク質群の構造変化を探索すること、特に分子内電荷移動のような量子効果に基づいた分子レベルでの機構を解明することを目的とした研究を提案する。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

上述のような研究を展開するため、以下の 2 本の異なる波長領域をカバーするビームライン（①軟 X 線反応素過程分光ビームライン、②真空紫外円偏光二色性ビームライン）および、その光を利用した分光実験設備（③軟 X 線スペックル測定装置など）が必要となる。

① 軟 X 線反応素過程分光ビームライン

DNA を構成する分子に対して、細胞内の状況を模擬した水溶液あるいは水和環境下における分解過程を分光学的な方法を用いて明らかにする（図 1 (a)）。軟 X 線領域の実験はこれまで真空に置かれた乾燥固体試料が用いられ、水環境化における知見を得ようとする本提案は、新しい挑戦である。重粒子線のように高いエネルギー付与効果を与える単色軟 X 線の照射により、始状態を指定した光子吸収に限定してイオン化/励起を誘発させた上で、DNA 分子の切断・分解に関与する水分子との反応を含めた素過程を明らかにする。光電子分光や分解生成物である分子フラグメントの質量分析、あるいはそれぞれの生成時間の相関の測定、および時間発展密度汎関数法などの第一原理的な手法を用いた動力学シミュレーションなどを駆使した総合的な探索を実施し、DNA の放射線損傷のメカニズムを明らかにする。

② 真空紫外円偏光二色性ビームライン

がん関連の遺伝子や DNA 修復遺伝子がコードするタンパク質の機能発現には、リン酸化やアセチル化などの化学修飾が必要となることが最近明らかになりつつある。これらの化学修飾による構造変化は、従来の結晶構造解析ではまだほとんど明らかになっていない。化学修飾による立体構造の時間的な変化や熱力学的なパラメータの変化を明らかにすることが、DNA 修復などのゲノムの安定化機構の理解には必須である。化学的な修飾によってその機能のスイッチの ON/OFF が制御される動的なタンパク質の振る舞いを、αヘリックスやβシートといった二次構造に着目して解析するために、タンパク質の二次構造に敏感な真空紫外線領域の円偏光二色性分光測定を行う（図 1(b)）。この分光法は、X 線結晶構造解析のような原子座標レベルの情報は得られないものの、細胞内の環境に近い水溶液試料を用いた実験が可能であり、細胞内の動的分子機構の解析に最も適した分光法の一つである。

③ 軟 X 線スペックル測定による DNA 相転移の観測

放射線ストレスによって生じた DNA 損傷を効率よく修復するためには、修復タンパク質群が作用しやすいように、凝縮した DNA 分子の構造を緩める機構が備わっている。しかし、その詳細については明らかになっていない。そこで、放射光のコヒーレンス特性を生かして、軟 X 線スペックルパターンの変化を観測することで、放射線ストレスに応じて変化すると予想される、不均質な細胞核内での DNA 分子の分布とこれを含む染色体の細胞分裂時の構造転移を観測する（図 1 (c)）。スペックルパターンの変化から予想される DNA 分子の構造変化の時間依存性に関する知見を得ることで、放射線ストレスに

対する染色体の動態変化と遺伝子発現の状態を再び元に戻すゲノムの安定化メカニズムを探る。

このように、波長領域の異なる二つのビームラインを相互に利用しながら、将来的には両ビームラインにおいて分光した光を空間的に交差させた、特殊な放射場環境を作り出し、ポンプ-プローブ分光法などを駆使して量子効果の分子メカニズムを解明する実験を実施する。KEK 放射光では、これまで PF において培ってきた高度な放射光ビームライン操作技術により、高輝度、低エミッタンスおよび高いコヒーレント特性を最大限に生かしたビーム利用実験を行うことができると期待される。これにより世界の真空紫外線・軟 X 線分光研究を先導することができる。本研究により得られると期待される放射線に対するゲノムの安定化とその破綻による発がん機構に関する知見に基づき、積年の課題である低線量放射線影響評価法の確立と、がん治療の高度化に資する知見を提供する。一方、タンパク質の静的な構造解析から、化学修飾による構造変化を通じた動的な活性制御という新しい研究分野を提唱することができる。さらに、細胞核内で放射線ストレスに応じて生じると予想される DNA 分子を含む染色体の構造転移を直接観測するという試みは、生命科学分野に対する放射光科学の新たなアプローチであり、

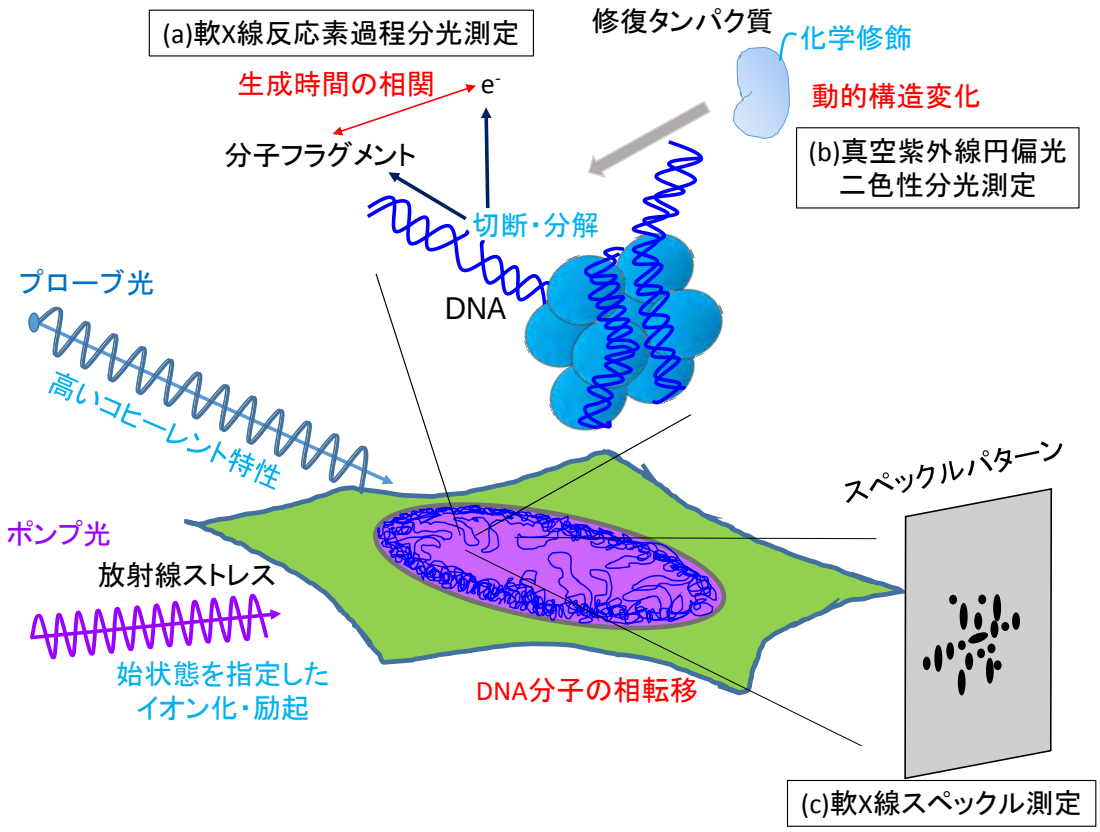


図 1　KEK 放射光における放射線生物分光研究の概略

がん化の抑制や、放射線がん治療において懸念される、正常組織の二次がん発生の低減には必要不可欠な知見である。さらには、細胞内のような非平衡系の放射線ストレス応答をコヒーレント光によって直接観測する実験を発展させて、生体内の多様な反応システムを量子レベルで理解する研究へと展開したい。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・軟 X 線反応素過程分光ビームライン（100eV-2.2keV）
・液体分子線光電子分光実験装置
・生体分子固体薄膜脱離イオン分光装置
・電子―イオン生成時間相関分光装置
・軟Ｘ線スペックル測定装置
・真空紫外円偏光二色性ビームライン（2-30eV）
・円偏光二色性測定装置

4-7. 新しい放射線治療を目指した細胞応答メカニズムの研究

（1）背景

放射線治療は、手術、化学療法（抗がん剤）に並ぶ、がんの三大療法の一つであり、手術に比べて身体への負担が少ない治療として年々患者数が増えている。放射線治療には、様々な手法が存在するが、共通しているのは、「正常細胞への影響を最小限にして、がん細胞への効果を最大限にする」ということである。これを実現するには、大きく分けて２つのアプローチがある。一つは、がん細胞と正常細胞の（生物学的）放射線感受性の差を利用するものである。もう一つは、がん組織に物理的に放射線のエネルギーを集中させ、がん細胞に選択的にダメージを与えるものである。前者の例としては、多くの放射線治療で行われている分割照射が挙げられる。これは、正常細胞とがん細胞の修復能の差を利用し、インターバルの間に正常細胞が回復することによってがん細胞に選択的にダメージを与えている。後者の典型的な例が、陽子線治療や重粒子線治療であり、身体の深部で線量が高くなる特性を利用している。一方、X線は表面から徐々に減衰する性質から、必然的に体表面に近い正常細胞にダメージを与えるが、強度分布を持つビームを多方向から照射することにより、腫瘍の形状に合わせた線量分布を作る強度変調放射線治療なども開発されている。

身体の深部のがん組織に選択的にエネルギーを与えるという観点からは、放射光は治療に適しているとは言い難い放射線源である。しかし、SPring-8 や ESRF, APS などの放射光施設で研究されている Microbeam Radiation Therapy (MRT) は、放射光の指向性を利用して作成した細いすだれ状マイクロスリットビームで照射する手法で、ビームとビームの間の高線量が当たっていない領域では正常組織はほとんどダメージを受けないのに対し、腫瘍組織では照射された部分も含めて細胞が死滅するという現象が起こる。メカニズムとしてはもともと低酸素状態にある腫瘍組織が血流の低下によりさらに低酸素状態に陥り壊死に至ると考えられており、放射光の特性により、物理的なエネルギー付与の分布ではなく、腫瘍細胞特異的な細胞応答を引き起こすという、新しい発想の治療法ともいえる。

最近、米スタンフォード大学の Weissman 教授らにより、がん細胞の細胞膜に存在する CD47 タンパク質の抗体を添加することにより、がん組織が縮小あるいは消滅するという報告がなされ、CD47 が抗がん薬のターゲットとして注目されるようになった。CD47 は “Do not eat me” シグナルを出すことにより、免疫細胞による貪食作用を防ぐと言われており、このような免疫細胞の貪食作用を制御する膜タンパクは他にも多数あることが明らかになってきた。さらに、CD47 の発現は、放射線照射によっても制御できることが報告されていることから、がん細胞にダメージを与えるのではなく、がん細胞のタンパク質発現を放射線照射によってコントロールするという、全く新しい発想の放射線治療法が展開できる可能性を持っている。

(2) KEK放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光は、軟 X 線~10keV 領域と比較的低エネルギー領域のＸ線を発生するため、がん治療の実用光源としては不向きであるが、散乱が無視できることや二次電子の飛程が短いことにより、サブミクロンレベルのマイクロビーム照射が可能なため、細胞応答のメカニズム研究には最適の光源である。新しい発想の放射線治療法を開発するためには、がん細胞と正常細胞の細胞応答のメカニズムを知る必要がある。マイクロビーム照射により細胞内の特定のオルガネラに局所的にエネルギーを付与することにより、DNA 損傷とシグナル伝達機構を分離することができ、がん細胞特異的に発現を制御するためのメカニズム解明につながることが期待される。現在、CD47 を始めとする免疫系の反応に関わるタンパク質の発現を制御することによってがん細胞特異的に放射線効果を増強する薬剤の開発に取り組んでいるが、現在の PF のマイクロビーム細胞照射装置では線量（フラックス）が１～２桁不足しているため、現象の確認にとどまっており、がん細胞と正常細胞の応答の差が何に起因するのかは不明のままである。また、ミトコンドリアや細胞膜などのオルガネラをターゲットにした照射のためには、ビームサイズが１桁小さくなる必要がある。

MRT のように、放射光を治療の実用光源として用いるには、KEK 放射光より高エネルギーの高輝度Ｘ線を発生する SPring-8 の方が向いているが、KEK 放射光はメカニズムに関する知見を与えることで MRT の実用化にも貢献できると考えられる。また、KEK 放射光では、輝度が現在の PF から３～４桁上がることにより、重粒子線や陽子線といった、現在治療に使われている高 LET（Linear Energy Transfer）放射線のエネルギー付与のパターン（Ｘ線に比べて著しく不均一になる）を模擬することが可能になる。したがって、実際の治療に近い条件で細胞応答を調べることができる。得られた情報は、随時 QST HIMAC での重粒子線治療（実験）に活かし、メカニズム研究のための KEK 放射光、治療への応用のための HIMAC と、実験の進行状況に応じて使い分けることにより、様々な新しい発想の放射線治療の早期実用化を目指していく。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・マイクロビーム細胞照射装置（PF の BL-27B に設置されているものと同様な装置を考えているが、空間分解能が上がることにより、ステージの位置精度や再現性、試料の保持機構などに新たな開発要素が必要である）

・細胞培養実験が可能な実験室（ビームラインに併設）

4-8. Ｘ線イメージング−医学応用を中心に−

(1) 背景

放射光単色Ｘ線を利用したＸ線イメージングでは、高エネルギー分解能のＸ線であること、平行性が良いことなどの優れた物理的特性を活かして、被写体内でのＸ線吸収を利用する吸収コントラストイメージング法、被写体内でのＸ線の屈折や位相変化などＸ線の波としての物理的特性を利用する位相コントラストイメージング法に関して、各種イメージングシステムの開発とその応用に関する研究が世界各国の放射光施設において精力的に展開されている。

ここでは、比較的大きな照射面積を必要とする医学試料や生体試料のＸ線イメージングによる評価に関して提案する。PF においては、世界に先駆けて開発されてきた多くのイメージング法を利用して、吸収コントラストイメージング法では血管系や血管系疾患の機序解明、がんの機序解明、化石試料の形態学的評価などを目的とする微小血管造影法や高空間分解能 CT、蛍光Ｘ線 CT など、位相コントラストイメージング法では乳がんや関節軟骨、脳組織、ヒト初期胎児標本、眼球、心臓、腎臓、血管壁などの軟部組織試料の形態や病変の評価、気管支系の機序の解明などを目的とする、DEI (Diffraction Enhanced Imaging)、DEI-CT、DFI(Dark Field Imaging)、Bonse-Hart 型干渉計法、Talbot 干渉計法などの開発・評価やそれらを用いた応用研究が実施されている。

例１：吸収コントラストイメージング

PF において開発がなされてきた血管造影法に関して詳述する。血管造影検査とは、カテーテルなどを用いて血管の中に造影剤（主成分がヨウ素など）を注入し、血管の構造や血流の状態などをＸ線などを用いて撮影する方法である。近年、MD-CT や MRI により非侵襲的に血管像を得られるようになったが、MD-CT や MRI では細い血管系や、血管内壁の詳しい性状までは評価できない。また血流の動画像を得ることに制限がある。血管造影は末梢血管までの血流を動画で観察でき、また血管内壁の不整や閉塞の状態が観察できるので重要な検査法となっている。通常線源のＸ線による血管造影で判定できる最小血管径は、拍動する心臓では 400 μm、非拍動の下肢動脈では 200 μm である。放射光血管造影では、高い空間分解能を得ることができ、50 μm の血管が in vivo で撮像可能である。また、時間分解能が 30 images/sec であることや高い濃度分解能を利用することにより、微小血管系の形態と機能を同時に検出することができている。これらを用いて、動物実験では、冠動脈、肺動脈、腎動脈、下肢動脈を造影し、糖尿病、がん、腎皮質血管構造、肺高血圧、血管新生、肺胞再生などが検討されてきた。また、経静脈的冠動脈造影に関しては、世界で唯一の二次元動画診断システムを用いて先駆的に臨床応用が実施された。

ヒトの循環系は内径 2.5 cm の大動脈から、10 μm の毛細血管まで連続してつながり、循環している。赤血球のサイズが全哺乳類で 10 μm と一定のため、動物のサイズによらず、

たとえば、体重 25 g のマウスでも毛細血管は 10 μm である。現行の放射光血管造影システムでは、in vivo では 50 μm までしか撮像できず、その先の前毛細血管（動脈系）～毛細血管～後毛細血管（静脈系）は、画像上ブラックボックスである。全身の毛細血管の総表面は 6,000 m^2 におよび、横断面積の総和は大動脈のほぼ 800 倍に相当する。血液はこの広い面積で細胞に対し酸素と栄養素を供給し、二酸化炭素と代謝産物を受け取る。それにより、それぞれの細胞はエネルギーを産生し、細胞の特質に沿って機能を発現する。組織循環系で重要な分野は、心臓、肝臓、腎臓、脳組織、骨格筋、ついで消化管、内分泌組織、骨髄となる。とくに血管径 50 μm 未満の微小循環系研究分野としては、生理的には、運動、老化における変化、病理学的には、糖尿病の細動脈病変、がんの血管新生、心臓虚血、脳虚血、腎障害があるが、これらの in vivo での血流研究においては直接的な画像化によるアプローチはなされていない。

例２：位相コントラストイメージング

ＥＳ細胞やｉＰＳ細胞を用いた再生医療技術の発展による臓器再生が現実のものになりつつあり、網膜などシート状の単純な組織については、すでに臨床試験も始まっている。しかしながら、その他の臓器については、立体的な構造を再現することが難しく、臨床応用への道のりは見えていない。これを解決するには、臓器が発生する過程の詳細な情報が必要である。実験動物を用いての研究は行われているが、その情報がヒトと同じかは保証されず、最終的にはヒトの発生過程を調べる必要がある。

発生過程の形態学的な情報は、従来は組織学的検討によって得られてきた。しかしながら、組織切片は平面であり、立体であるヒトの構造を把握するためには三次元的なイメージング法が必要であり、発生の時間経過や臓器組織の多様性を考えると、新しい多元的な解析法が求められてきた。微細な標本に対する従来の三次元イメージング法としては、マイクロＸ線ＣＴやＭＲＩの原理によるＭＲ顕微鏡などが挙げられるが、妊娠初期胎児のような柔らかいサンプルでは通常のＸ線ＣＴでは透過してしまい撮像ができず、ＭＲ顕微鏡では詳細な解析に至る解像度が得られない。

そこで、縦偏向放射光を用いて世界最大のＸ線干渉計によるイメージング法で試料の撮像を行ってきた。波としてのＸ線は物質を透過すると位相がシフトすることを利用し、この位相差を画像化することで、従来の吸収Ｘ線によるイメージングの 1000 倍の感度を実現したものである。解像度はＭＲ顕微鏡の 10 倍近くになるポテンシャルがあり、非破壊イメージングでは世界最高の空間分解能に到達している。

その数や保管状況において日本が世界に誇る数万体の京都大学ヒト初期胎児標本（世界三大標本センターのひとつとなっている）を用いた立体画像の位相イメージング法による撮像を試みていて、新しいヒト発生に関する知見が得られているが、ヒト初期胎児試料（摘出された標本試料）を大量に撮像し、再生医療につながる形態学的な知見を得ることが今後の課題となっている。現在、倫理的もこれらの標本を収集することは困難であり、人類として特

にアジア地区の標本として大変貴重な標本となっている。また、ヒト初期胎児以外にも各種がんと正常組織の無造影観察と識別、アルツハイマー病モデルマウス脳内に蓄積されたβアミロイドの可視化と加齢に伴う定量変化などの知見も得られていて幅広い医学分野への応用も期待される。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

大型放射光施設における医学応用研究は、基礎研究と日常臨床との間の知見の交換に関して、以下のような点で寄与できると考えられる。

- 先駆的、先進的診療法の提唱
- 貴重な学問的知見の提示
- 関連産業分野への啓蒙、新しい産業分野創設への知見の提示

小動物を用いた研究や症例数は限られるものの臨床試行で得られる知見は、広く医学界に還元できると期待される。

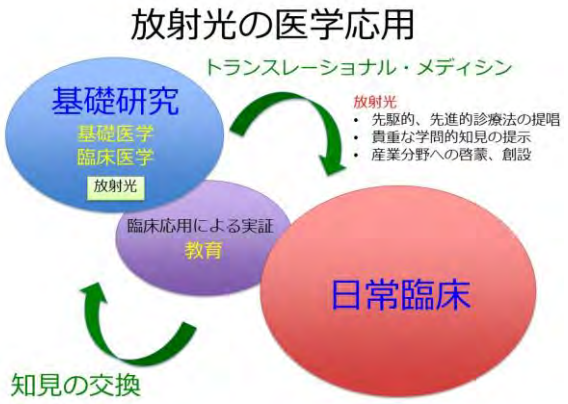


図１　大型放射光施設における医学応用研究に関する社会的役割の概念

現在、日本においては、第二次健康日本２１のプロジェクトが厚生労働省のもとで進められている。そこでは、生活習慣病の発生予防と重症化予防の徹底が謳われている。「高齢化社会対策」、「生活の質の向上」は重要なキーワードであり、がん、循環器疾患、糖尿病、慢性閉塞性肺疾患の機序の解明などに関して、放射光単色 X 線を用いて得られる微細構造情報を提供することで、放射光を利用した医学応用研究も積極的に寄与できると期待される。

これらの社会的背景のもとで、今後は、X線イメージングシステムの開発・評価とともに、具体的な個々の疾患に関する機序の解明、診断率向上への寄与の評価が、より重要になると

考えられる。また、将来的な小型装置によるＸ線イメージング法に関する知見提唱も大型放射光施設の大きな役割であると考えられる。小型専用放射光源の設計や逆コンプトンＸ線装置、タルボ干渉計を用いたＸ線発生装置などへの知見の提供も行われつつある。また、各大学研究室の独自性を活かした大型放射光施設とのネットワーク化が望まれる。

CDR で紹介されている KEK 放射光計画は、超低エミッタンス光源に相当する光源性能を実現し、得られる輝度は、PF と比較して 3 桁以上の向上が図られることが期待されている。この高輝度性と、現在、国内外で開発されつつある高時間分解能、高濃度分解能を有する flat panel detector 等を用いることにより、空間分解能 1 μm 以下、時間分解能 1000 images/sec 以上、16-20 bit 以上の濃度分解能の放射光血管造影システムの構築を目標とする。この撮像システムにより、毛細血管までの可視化が可能になった場合、次の研究が可能になる。

１）再生医学分野（ティッシュエンジニアリングと血管）

骨、軟骨を除き、ほとんどの組織では血管系が必要であり、臓器再生においても再生組織を作成する際には血液供給が必要である。人工物を足場として組織を再生する tissue engineering では、完成した組織に対し、血液によって酸素や栄養が直ちに細胞に届けられないと、生体組織はすぐに飢餓状態になり脱落する。そのため、足場には血管内皮細胞や細胞間作用物質（成長因子、接着分子）を組み込んで血管ネットワークを作る。このような再生組織の血管系、および生体の血管系との結合性を確認するためには、移植個体おいて in vivo の血管造影が必要であり、その解析すべき血管径は毛細血管と同様の 10 μm である。また、治療的血管新生（therapeutic angiogenesis）では、幹細胞、蛋白、遺伝子導入を用いて虚血に対応する血管系を新たに創り出す。この場合の確実な評価法は、毛細血管レベルまでの描出が可能な造影法である。

２）がんの血管新生（がんの生物学、がんの早期診断、がんの治療）

がんは遺伝子、細胞の病気（単クローン性増殖）でありながら、実際には腫瘍という複雑な組織の病気である。この腫瘍組織の増生には、非腫瘍性細胞、とくに腫瘍内の間質細胞と血管内皮細胞の共同が必要である。また、腫瘍の増殖には酸素と栄養分が必要である。そのルートとして新たに血管内皮細胞を用いて血管を増殖し、従来の組織血管系にアクセスしようとする。さらに、一度のがんの血管系が成立したあとも、がんの成長速度が大きい場合は腫瘍内部に低酸素領域が出現し、この低酸素に依存してさらに血管新生因子が増加し、毛細血管が増殖する。このがんの新生血管は、通常とは異なり、蛇行、血液成分の漏出、血管構成や分布の不均一などの所見を示し、がん微小血管の異常性を特徴づけている。がんの抗血管新生療法は、抗血管新生因子抗体を用いて、このような血管を“正常化”させ、化学療法や放射線療法の効果を上げようとするものであるが、毛細血管の性状が正常化されたかどうかは、現在の造影システムでは、画像上確認できない。また、がんの新

生血管の易漏出性は、微小のうちからがんの早期診断を可能にする。これらのがんの新生血管を造影剤を用いて可視化することは、がんの生物学的性状の研究、早期診断、治療効果の早期判定において、非常に重要である。

３）生活習慣病（糖尿病、動脈硬化、メタボリック症候群、肥満）とその対応（運動、薬物療法）

生活習慣病は、メタボリック症候群に代表され、肥満、高血圧、糖尿病、動脈硬化、心血管疾患、脳血管疾患、腎疾患と範囲が広がる。これらの大多数の疾患の病因は、血管の病態との関連が深い。

糖尿病では、大血管は動脈硬化促進に基づき心筋梗塞や脳血管障害になるが、小血管（細小血管性）では炎症、閉塞による３大細小血管症（糖尿病性網膜症、腎症、神経症）が知られている。糖尿病の心臓冠動脈の微小循環系は、血管内皮障害、低酸素応答性の低下、代謝性血管拡張物質に対する反応性の低下により、拡張性が低下している。

心筋梗塞では、発症後直ちにカテーテルによる再開通療法が行われるが、その後も毛細血管の血流の十分な回復が見られない場合も多い（no reflow phenomenon)。この現象の毛細血管での血行動態は現在のシステムでは可視化できない。

腎臓の皮質における微小循環は、糸球体濾過圧を適切にコントロールするため、輸入細動脈と輸出細動脈のトーヌスを多くの調節因子を用いて適切に調節している。この調節と糸球体濾過の機能を、1糸球体レベルで検討が可能になると、腎臓の病態の解明に役立つ。

運動は、主に骨格筋を収縮―弛緩させて、エネルギーを消費する活動である。この活動を維持には、酸素とグルコースによるエネルギー産生要素の供給増加が必要であり、その流通基盤として微小血管径の拡張、増加、機能亢進は必須である。運動が適切に実行されると、インスリン抵抗性の改善、血圧低下、血中脂質異常の改善、運動機能の改善、アンチエイジングなど、ほとんどすべての疾患に有効である。一部のがん（大腸がんなど）でも進展抑制効果がある。運動の基本単位である骨格筋束は、高度に微小血管に覆われており、運動による骨格筋の要求に応じて流量と血管数が増加する。たとえば、運動によって、骨格筋の血流は数秒で最大 100 倍まで増加する。それには、正常な血管内皮細胞機能が必要であるが、生活習慣病では損なわれている。運動を継続的に行う事で糖尿病も心不全も改善する可能性がある。文明化による不活動と高齢化社会が生み出した問題について、微小血管系はどのように影響をうけ、運動という非薬物治療でどのように改善していくのかを、直接微小血管レベルで検証し、運動の最適化を図ることは大切である。

老化関連では、アルツハイマー病は病期により毛細血管の流量が大きく異なり、病態との関連が示唆されている。また、微小循環系の加齢の影響は、一酸化窒素（NO）の低下、酸化ストレスの増加、血管収縮因子の増加、炎症性サイトカインの増加、血管新生因子（VEGFなど）とその血管新生促進作用の低下があり、老化組織、老化筋肉での質量、機能低下（サルコペニア）の原因になっている。これらの微小血管系の老化に対して、さまざまなアン

チエイジングの手段がどのように効果を示すか、可視化して直接的に検討することも重要である。

そのままでは見えない血管系を可視化することの意義は大変大きい。循環器研究の第一人者である米国の Forrester JS (UCLA, CA)は、2006 年の再生医学の論文で、”Seeing Unseeable”という副題をつけ、臓器再生には血管再生が必須であり、それを可視化することの意義を述べている。新しい放射光システムを用いた放射光血管造影法が、毛細血管を含む全血管系を可視化し、任意の部位を切り出し、3D 化するなどして、微小循環系の病態を解明し、治療介入を行うことより、人類の健康寿命の延長に寄与することを目指したい。

またさらに、適切な光学系、撮像系、試料交換システム等の利用により、日本が世界に誇る数万体のヒト初期胎児標本を用いた立体画像の位相イメージング法による撮像により、ヒトの発生に関する人類としての新しい知見を獲得できるとともに、日本の再生医療研究を支える基盤になりうる知見を獲得できると期待される。

医学分野の課題解決に関して実用的で効果的な研究推進が可能となり、放射光でしか得られない具体的知見の社会への還元、診療放射線技師や医学物理士への生涯教育への対応などにより、「光」が科学のフロンティアを牽引する役割への貢献が期待される。放射光が、より社会に身近な存在になる日が来ることを期待したい。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

目的とする画像情報を得るには、光源、X線光学系、撮像系が試料に関して最適化されていること、さらに得られた画像情報の中から目的とする画像情報を抽出すること、画像処理が重要なパラメータである。X線イメージング法とその対象試料の組み合わせが確立された場合では、スループットを向上させるために、対応イメージングシステムの常時設置と試料の自動調整、自動交換システムの設置が課題である。

得られる画像の空間分解能、濃度分解能、時間分解能は、撮像系の物理特性が大きく関係している。研究目的、対象試料により、必要な画像特性は異なるが、それぞれの研究目的に必要な画像特性が得られていない場合があることが現在の課題となっている。ここでは、比較的大きな照射面積を必要とする医学試料や生体試料のX線イメージングによる評価を検討しているが、現在実現できていない空間分解能数μm 以下、画像フレームレート 100-1000 images/sec 程度の画像を得ることで新しい展開が可能となる研究対象は多い。また、目的に合わせて最適な検出器を開発することに積極的に関与していくことも必要であると考えている。

研究目的、対象試料に最適なX線エネルギー、照射面積は、過去の例が示すように研究の進展により、大きく異なってくると考えられる。<u>X線エネルギーの可変性</u>(15-50 keV 程度)、<u>大きな照射面積</u>（20 mm 角程度以上、10^{8-11} photons/mm^2/sec at 30 keV）の確保は、医学イメージング用ビームラインの特性として必須であると考える。また、同時にこれら

の特性は産業試料イメージングへの応用へも期待される。

さらに、将来の研究進展を考慮して、例えば大型動物実験や臨床応用が実現できるような拡張性のあるビームライン、施設設計も必要であると考える。また、現在も課題となっている実験ハッチ内外の空調管理、実験装置の振動対策などは必須である。医学研究で多用されている遺伝子改変動物（P1、P2 レベル）や試料の利用を可能とするビームライン、施設設計、動物一時保管室、動物手術室などの設置は、医学における戦略的研究推進には必須であり重要であると考える。

放射光を用いたＸ線イメージング研究では、小型 MRI や微小焦点Ｘ線発生装置などの他のモダリティで得られる画像との比較検討は重要であり、身近にそれらの装置が設置されることが望ましいが、それらの装置を保有する機関との有機的ネットワークを構築して放射光Ｘ線イメージング研究を推進していくことは重要であると考える。また、画像を利用する研究では、画像処理の役割は大変大きい。放射光関連研究者以外も参加する画像処理に関する有機的ネットワーク構築が、先進的画像処理方法の適応による放射光Ｘ線画像研究分野の確立、効果的効率的な研究推進に必要であると考える。上記二点は、大型放射光施設が核となる研究推進が可能であると考える。

4-9. 放射光 X 線顕微鏡を用いた脳神経回路配線図の解読

（1）背景

脳神経系科学分野においては、神経ネットワークの 3 次元構造とその配線図を解明するコネクトミクスと呼ばれる領域に大きな焦点が当たっている。脳機能を支える神経配線が明らかになることで、知能の源泉や脳疾患のより深い理解が期待され、人型知能の開発や痴呆や精神疾患を含む神経病態の治療に大きく貢献できる。脳内の神経配線図を完全に解明するためには、シナプスと呼ばれる神経結合部の同定と、神経線維の追跡が必須である（図 1)。そのために、空間分解能 4nm でボリュームサイズ cm オーダーの 3 次元空間イメージング技術が求められている。そのような巨大 3 次元イメージを高速で実用的な時間で取得することが必要であるため、それを実現するための新たな放射光施設が望まれる。

現在の高分解能コネクトミクスは、電子顕微鏡が主力装置として活躍しており、特に MultiSEM 505 の導入により、並列化による高速 SEM イメージング（1 G pixel/sec）が可能になった（図 2)。得られる空間分解能は所望の 4nm を達成しているが、1mm^3 サイズの 3 次元画像を取得するには 6 ヶ月程度かかり、例えば、正常群と疾患群のマウス脳を比較するには、膨大なデータ取得時間が予想される。一方、X 線による結像型顕微鏡により電子顕微鏡の分解能に近い画像も取得されているが、MultiSEM に比べて画像取得スピードは圧倒的遅く、高い空間分解能による低コントラスト画像の安定した取得は未だ困難である。

X 線を用いた脳神経の 3 次元イメージングには、硬 X 線とコヒーレント軟 X 線の双方の特徴を活かしたアプローチが一つの選択肢として考えられる。具体的には、硬 X 線を用いたマイクロ CT により、サブミクロンレベル（< 0.5μm/pixel）で mm～cm サイズの全体的な 3 次元構造を取得することと、それを分割したサンプルにおける軟 X 線回折顕微（またはホログラフィー）法を用いたナノ分解能 3 次元画像取得である。それぞれの X 線イメージング技術を最大限に活かすことで、私達が目指すスケールサイズの 3 次元画像を手に入れることが考えられ、脳神経機能の解明が大きく進展すると期待される。

図 1、3 次元画像から再構成された神経ネットワーク構造

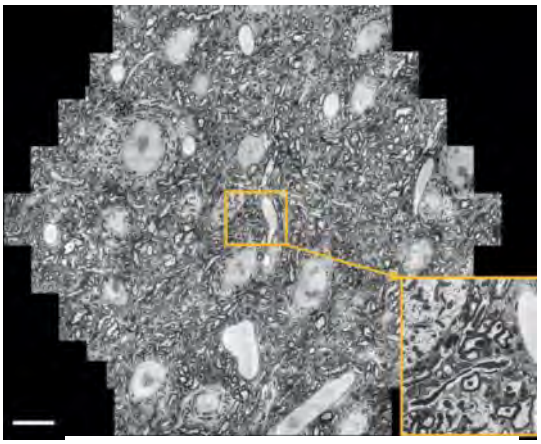


図 2、MultiSEM の並列ビームで高速撮影された高分解能画像

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

硬 X 線を用いたマイクロ CT においては、現状の 10 倍速に相当する 1 分間で 1mm^3 ボリュームをサブミクロン分解能（可視光分解能）で撮影できることが期待できる。本ボリュームサイズで使用するエネルギー領域は、脳のような軟組織の場合、通常 8~12 keV である。1mm^3/min という高速 3 次元画像化が実現すれば、マウス全脳（< 1cm^3）を半日程度で撮影し切ることができ、複数の全脳を測定することも現実的である。それにより、病態グループ毎にラフな神経ネットワーク構造を比較した統計学的な解析等が可能となり、脳機能と構造の関係をより詳細に明らかにすることができる。このような測定には、30Hz 以上のフレームレイトで安定的に供給される十分な X 線フラックスが必要であり、さらには、それを高速で撮影できる画素数の多い X 線検出器の設置が要求される。さらに、cm ボリューム規模の体積を可視光分解能で高速に処理できる計測系の確立により、光学顕微鏡と電子顕微鏡を橋渡しする受容能力も高くなり、脳神経科学分野を超えて、多様な光源と光学系を使用した生体マルチスケールイメージング技術の発展に貢献できる。

軟 X 線を用いた回折顕微（またはホログラフィー）法においては、電顕切片より厚い脳神経試料の高速 3 次元撮影が可能となることを期待している。使用するエネルギーは、炭素の透過性が高い 270eV（λ=4.6 nm）付近を想定しており、この領域でのコヒーレント比は SPring-8 標準では 4%程度であるが、KEK 放射光では 50%程度にまで上昇する。新しい放射光によりコヒーレントフラックスが増えることで高速でナノ分解能 3 次元撮影が可能になれば、硬 X 線マイクロ CT で撮影した後に、興味のある領域の細胞内小器官やシナプス結合を含めた詳細解析が実現する。希望的観測であるが、4nm/pixel の分解能で、100 G pixel/sec 以上の高速 3 次元画像化を達成すれば、電子線でのナノイメージングを圧倒的に凌駕することができると考えられ、脳というダイナミックレンジの大きい臓器の機能をネットワークレベルで議論することが可能となる。個人的には、走査が必要な回折顕微鏡より、面で撮影できるホログラフィー法が高速化には向いていると考えている。上記が達成される場合、電子顕微鏡による高分解能撮影は X 線顕微法に置き換えられると予想される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- 硬 X 線高速マイクロ CT 専用ビームライン
  - 1 mm^3/min　（サンプルサイズ：0.5～1 mm 以上）
  - サブミクロン分解能（< 0.5 μm/pixel）
- 軟 X 線高速回折顕微鏡・ホログラフィー専用ビームライン
  - 100 G pixel/sec　（サンプルサイズ：1 mm 以下、サンプル厚：1 μm 以下）
  - 4nm/pixel 分解能

4-10. 骨科学～形態形成と修復

(1) 背景

人間の脳や脊髄、肺、子宮などの臓器は様々な形の骨に守られている。脊椎動物の特徴である背骨や、大腿骨のように長い骨は運動に必要である。大腿骨内部の骨髄は血液細胞の産生の場となっており、骨はカルシウムの貯蔵庫としても働く。すべての哺乳動物は、３つの耳小骨をもち、鼓膜の振動を増幅して内耳に伝え音を聞いている。このように、人間の 200 個を超える骨には、機能に適した多様な形とサイズがある。これらの骨が、限られた種類の細胞によって作り出されるメカニズムついては不明な点が多い。骨基質は、たんぱく質のコラーゲン線維と、ヒドロキシアパタイトと呼ばれるリン酸とカルシウムの結晶の複合体である。コラーゲン線維という“鉄筋”とヒドロキシアパタイトという“コンクリート”の両方を分泌して骨基質を作る細胞が骨芽細胞であり、骨に埋まると骨細胞と呼ばれる。骨基質を溶かす細胞が破骨細胞である。大部分の骨は軟骨内骨化ででき、軟骨細胞が分裂増殖して骨の大まかな形をつくり、そこに破骨細胞と骨芽細胞が血管とともに侵入して軟骨を骨に置換していく。

カルシウムを含むので骨はＸ線による観察に適している。通常の骨折は単純 X 線で容易に診断でき、加齢とともに骨量が減少する骨粗鬆症もマイクロ CT などで検査できる。しかし、骨芽細胞はどのように自らの局在を認識しているのか、骨基質を分泌するという細胞レベルでの機能がマクロな骨の形づくりにどのように貢献しているのかについてはほとんど解明されていない。骨粗鬆症だけでなく、多くの骨疾患の治療を考える上でも、細胞レベルの知見と骨形態形成や修復との間を埋めることは不可欠である。現状では、骨基質だけを観察するにとどまることが多い。マウスなどの実験動物において、ダイナミックな骨形成メカニズムを解析し、骨化を担う細胞内小器官のレベルから、細胞レベル、そして細胞の集団（組織）を可視化できれば、細胞からマクロな骨形態へスケールを超えて展開する原理を解き明かすことが可能になる。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

骨基質だけでなく細胞を KEK 放射光で見る

骨代謝の制御は細胞レベルで行われている。細胞および細胞内小器官のレベルで、骨基質の原材料の輸送、分泌、成熟の過程を可視化して、その制御を解明することに放射光は適している。細胞を観察するための染色法、造影法を開発することは、骨科学以外の分野とも共通の課題である。またＸ線タルボ干渉計を用いた X 線位相イメージングにより、細胞やオルガノイド（組織の性質をもった細胞塊）などの弱吸収物体についても高感度に観察できる。細胞が直接観察できれば、現在、急速に発展している、生体透明化法を用いた蛍光イメージングとも補完しながら、細胞レベルの３次元構造解析が可能になる。またホールマウントの抗体染色法と組み合わせれば、特定の機能を持つ分子を可視化できるよ

うになる。

骨形成性血管を KEK 放射光で見る

発生過程で軟骨を骨に置換する過程において、個々の細胞はランダムに機能しているわけではなく、一定の空間方向性をもって骨基質を分泌したり、吸収したりしている。この空間方向性を規定しているものは、骨基質や軟骨基質に加えて血管である。実際に、骨芽細胞の一部は、微小な血管の外側に張り付いて、骨基質を産生している。さらに骨細胞に変化して骨に埋まり、骨小腔をつくる（図)。軟骨内に侵入し、周囲に骨を作っている血管のイメージングを通じて、その制御機構が理解できれば、軟骨を出発材料とする骨再生医療の道も開ける。顕微鏡ではない低分解能のステーションにおいて、生きたマウスを用いたライブイメージングにも挑戦したい。

微細構造から高次構造への連関を見る

骨の形は、軟骨原器の形で大まかに決められ、それが骨に置換される。つまり軟骨細胞がどのように増殖するかで骨の形が決定される。この軟骨原器の形態形成メカニズムには不明の点が多い。放射光により軟骨の細胞分裂の様式を解明し、軟骨塊の周囲の微小環境（増殖因子などの濃度分布など）と軟骨細胞分裂による形態形成を追究できれば、多様な骨形態とサイズを生み出す基盤となる原理が解明できると期待される。

図　骨形成性血管（赤）周囲の骨小腔（白）の放射光 X 線顕微位相イメージング（SPring-8）の例。成体マウスから摘出したツチ骨。画像の空間分解能は約 1μm（約 200nm/voxel)、撮影視野は約 300μm 幅。骨が微小血管周囲に形成されることが示された（K. Matsuo et al., Development 142, 3912, 2015)。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・X線顕微位相イメージング用実験ビームステーション（Grating interferometer搭載による位相イメージングモードを備えた結像型顕微鏡として常設されていることが望ましい。空間分解能<100nm以下。撮影視野>500μm。X線エネルギー：5-20keV。トモグラフィ

による三次元観察を可能とする。**複数試料の自動交換。試料への照射ダメージを軽減するためのクライオ撮影環境。オンラインでの画像再構成**）

・細胞組織解析用ビームライン（フルフィールドのイメージング・トモグラフィビームライン。上記顕微ビームラインと相補的に利用できること。すなわち、『木を見て森も見る』コンセプト。空間分解能～数 μm、視野 1cm 角以上。X 線エネルギー：10-40keV。最先端の（世界と競争できる）X 線画像検出器が常に使える体制がほしい。結晶モノクロメータに加え、高フラックスの多層膜モノクロメータがあってライブ撮影ができるとよい。）In vivo イメージングのためには麻酔機器・逃亡防止構造も必要である。

・マウスやラットなどの小動物を一時的に保管、手術などが実施できる実験施設がビームライン近傍に必要。

4-11. 軟X線発光分光：電子論に立脚した生命科学の構築

(1) 背景

近年のタンパク質の結晶化とその構造解析の技術進歩は著しく、次々に新しいタンパク質の構造解析がなされ、構造生物学の立場から機能が明らかにされている。しかし、生体中の触媒作用、物質運搬・貯蔵、電子伝達といった様々な”機能”は生体物質中の反応中心における電子の授受を経由して発現しており、構造を眺めるだけでは生体化学反応を真に“理解”したとは言えない。近年の計算科学の急激な進歩によって、生体中の局所構造と電子状態の関係を理解する試みが多数なされるようになり、従来は困難であった電子状態レベルでの機能発現メカニズムの解明が始まりつつあるが、実験的に生体物質の電子状態を観察する手法はまだ確立していない。

ここ数年、日本の先端的な放射光利用と技術開発の推進により「機能中のその場電子状態解析技術」の加速的な進展がみられ、生体を扱う物質科学への新たな展開が始まった。光を励起・検出の両方に用いる軟 X 線発光分光は大気圧下の物質の電子状態分析が可能なことから特に注目され、近年の世界的に熾烈な分解能競争により 50meV を切る目覚ましい発展を遂げている。この分解能を活かせば金属タンパク質の機能発現時における金属反応中心の 3d電子状態の微細な価数・軌道混成の変化やアミノ酸の側鎖のイオン化、ATP のようなエネルギー伝達物質の反応経路の解明など、電子論に立脚した生体物質の機能解明に本質的な役割を果たすことが期待される。これまでも DNA やごく一部のヘム・非ヘムタンパク質などにおいて軟X線吸収・発光分光を用いて反応中心の電子状態を捉えた萌芽的な研究があり、原理的には構造と電子状態の相関から反応を理解する試みはすでに始まっている。しかしこれらの研究においては試料の濃度と量においてニーズとシーズに大きなギャップがある。例えば金属タンパク質は、軟 X 線分光で測定可能な濃度と実際に存在する濃度が乖離する典型的な例である。金属タンパク質は生体内に微量に存在する遷移金属を配位したタンパク質で、呼吸や光合成などの多様な生命現象で中核的な役割を担っており、軟 X 線測定技術の進歩により生理活性状態での研究が可能となった。しかし必要な試料濃度は 1～10mM と高く、試料量は最低でも 1mL 程度を必要とする。一方自然界で活性を発現する重要な金属タンパク質の多くは発現系を用いて調製しても極微量（10μL 程度）しか取れず、濃縮もそれほどできない場合（10μM)）が多く、軟X線発光分光が適用できない。以上のように、軟 X 線発光分光による電子状態分析を生体物質へと展開するためには物質量で 4 桁程度のギャップがあり、これを解決する手法・分析機器開発が急務となっている。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

軟X線発光分光において、KEK 放射光に期待すべき性能は高いエネルギー分解能と光の集光性能、および入射光強度である。一方で、強いフラックスが狭い領域に集中すれば、試料の損傷を免れることができない。特に生体物質では、これまでの第３世代光源を用い

た場合も、軟X線発光を取得するために試料位置を常に移動させて dose 量を減らすことが不可避であったことを考えれば、そのままでは上記の物質量のギャップを埋めることはできない。しかし以下に示す技術を導入して物質量のギャップを埋めつつも平均 dose 量を減らせば、試料を選ばずに信号強度を稼いで生体物質の電子状態分析が可能なステーションを構築できる。

① 軟X線の究極集光と準白色光の利用：軟X線発光分光器のエネルギー分散方向で 5μm 以下、その直交軸方向で 1μm の集光を実現するミラー集光を導入しつつ、エネルギー分散方向はさらに回折格子刻線を行う。これを用いて、試料位置で準白色光をエネルギー分散直交軸方向は 1μm 以下に絞りつつ、エネルギー分散方向は試料上で 300μm 程度の半値幅で色分散するビームを生成する。この色分散ビームを発光点とすることにより、吸収端近傍で入射エネルギーを振って共鳴軟X線発光スペクトルを取得する、いわゆる”2 次元マップ”を 1 回の測定で描くことができる。

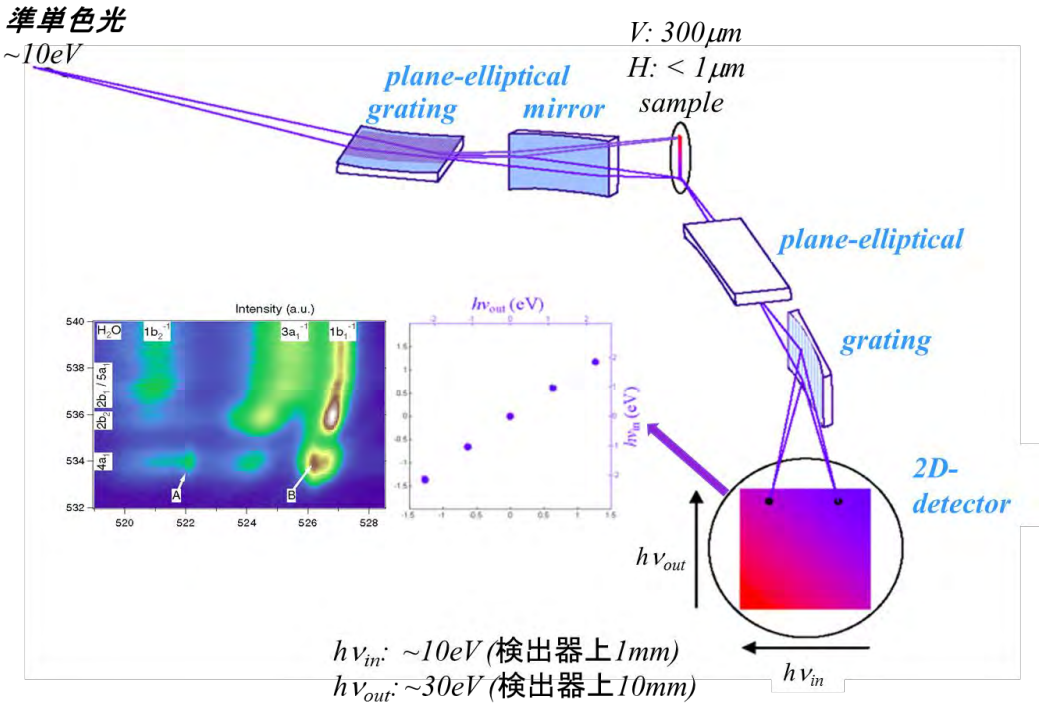


図１．２次元軟X線発光マップ取得の概念図

② マイクロジェット技術の応用：XFEL でもしばしば採用される溶液用のマイクロジェットを導入することにより、照射ダメージを回避する。①の色分散ビームを最大限有効活用するため、入射光が照射するエリアのみに開口部を持つフラットジェットを採用して真空漕との間に差圧を持たせる。また試料回収型のジェットシステムを採用し、用いる試料の量が 10μL でも実験可能とする。

試料を 1 m/sec でジェットを飛ばした場合、1μm の照射エリアを試料が通過する時間はわずか 1μsec のため、入射光のフラックスが 3 x 10^{13} photons/sec/0.01%BW、入射エネルギー分解能が E/ΔE ~ 30000 を実現すると仮定すれば、dose 量は 3 x 10^{4} photons/μm^2 となる。これは放射光実験で照射ダメージを回避できる従来のセットアップによる dose 量（1 x 10^{9} photons/μm^2）と比較しても 1/10000 程度である。試料が 10μL あれば、1 μm x 500 μm のシート状のジェットで 20 m 飛ばせるため、20 sec ごとに元の試料に入れ替えで、10000 回繰り返したとして 200000 sec の実験が可能となる。従来のフラックス（例えば 1 x 10^{12} photons/sec/0.01%BW @ SPring-8 BL07LSU）であれば、1mM の試料に対し 1 スペクトル 1 時間を要していたことから、KEK 放射光のフラックスなら 10μM で 30000sec、よって 2 次元軟X線発光分光を導入すれば必要十分な測定時間を確保できる。

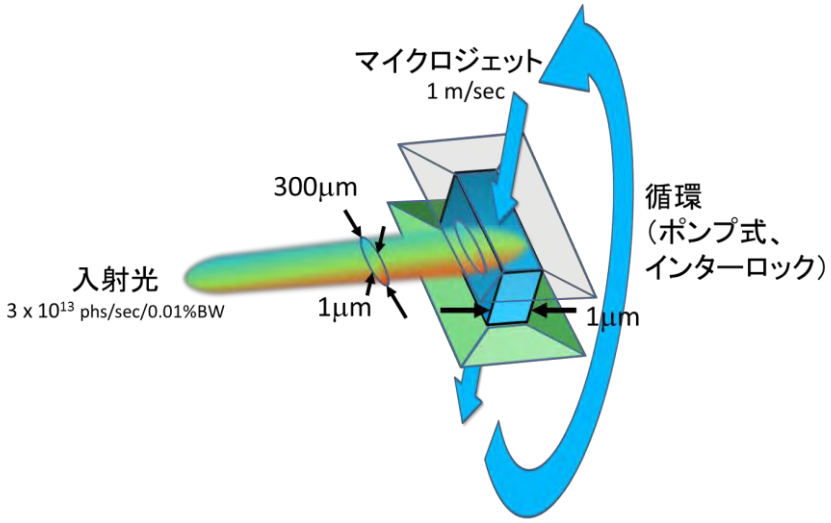


図２．マイクロジェット技術を利用したタンパク質溶液の放射光解析

以上により、KEK 放射光で液体ジェットと 2 次元軟X線発光分光システムを採用することにより、自然界で活性を発現する重要な金属タンパク質の多くが測定対象となり、軟X線発光分光を用いて電子論に立脚した生命科学研究を展開することが期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・高フラックス軟X線ビームライン（> 10^{13} photons/sec/0.01%BW）
（従来比較：1 x 10^{12} photons/sec/0.01%BW）
・「集光＋回折」機能を持つ後置鏡（1 μm x 5 μm、$E/\Delta E_{入射光}$ > 30000）
（従来比較：2μm x 30μm）
・軟X線発光分光実験ステーション（$E/\Delta E_{total}$ > 30000）
（従来比較：$E/\Delta E_{total}$ ~ 10000）

4-12. 筋収縮の理解に向けた筋内の微細構造変化の観測

(1) 背景

筋肉は大きく分けて結晶様構造のはっきりした横紋筋と明確な結晶様構造をとっていない平滑筋がある。さらに横紋筋にはいわゆる筋肉を動かす骨格筋と心臓の動きをつかさどる心筋がある。これらの筋肉は重要な体の一部として、また非常にエネルギー変換効率の良い機械としても古くから研究されているが、今なお収縮の仕組みの詳細は不明となっている。

・骨格筋と心筋

骨格筋および心筋は規則的なサルコメア構造で出来ておりミオシンフィラメントとアクチンフィラメントの構造変化・相互作用により収縮を行っていることはわかっているが、それぞれの具体的な変化はわかっていない。骨格筋に関しては超高齢社会に伴って増えている加齢性筋減弱症(サルコペニア)に対する筋萎縮の予防や筋増強の方法が必要とされている。筋収縮の仕組みが分かればこれらの疾患に対するより良い運動処方の開発が進むと考えられる。一方で突然死の原因となる肥大型心筋症などの心臓病の病態理解には心筋の収縮メカニズムの理解が必須である。近年、クライオ電子顕微鏡などにより詳細な像が撮られつつあるが、これらの実験では試料の固定等の操作が必要であり“生きた”筋肉の像をとらえることができない。さらに病態を含めた筋肉の動きは筋全体において均質とは限らない。この不均一性も含めた筋肉の動きを生きたまま高分解能で観察するためにはコヒーレンスが高い光による回折像の測定が必須となる。

・平滑筋

平滑筋は内臓器官の「うごき」を司り、規則的なサルコメア構造をとってはいないものの、サルコメア様構造（ミニサルコメア）におけるミオシンフィラメントとアクチンフィラメントの重合脱重合で収縮の調整がされることが分かっている。このミニサルコメア構造の重合脱重合の変化は血管攣縮・気管支喘息などの病的平滑筋収縮に関与することが指摘されているが、実態は不明である。これは不安定な生物試料であるがゆえに固定などの操作を加えた電子顕微鏡観察や生化学的手法ではフィラメント構造そのものの変化が起こり“生きた”筋肉のそのままの像を解析するのが困難であるからである。病気による変化というのは全体が一様に変化する前に組織の一部分が先行して変化し、それが広がっていく。病態変化の初期をとらえるためには生きた平滑筋標本の不均一な状態も評価できなくてはならない。

・現状の放射光の問題点

現状の放射光では、骨格筋・心筋での規則的なサルコメア構造中のミオシン・アクチンを定常状態の平均として解析することはできるが、収縮初期の収縮と弛緩が混在している状態や病態初期の変化等を観察することは難しい(図 1)。また、平滑筋標本のような規則的なサルコメア構造をとっていない標本ではミニサルコメアの観察は出来るが、それぞれのミオシン・アクチンの状態を詳細に解析できるような X 線回折像は取得できていない。

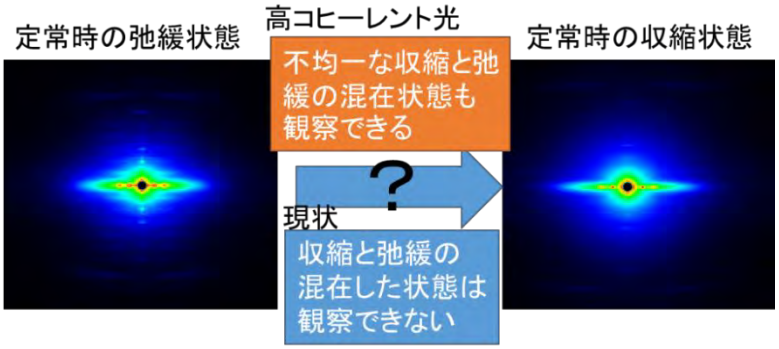


図 1　未解明な収縮初期の収縮・弛緩の混在状態

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果（図 2）

高コヒーレント光を使用できる新しいビームラインにより、今まで不可能であった弛緩と収縮が混在している状態や筋線維の一部に変化が起きるより初期の病態の観察が実現される。

不均一性も評価可能な回折像を用いることの具体的な一例としては、筋萎縮の対策である伸張性収縮の有効性評価が考えられる。骨格筋の萎縮はサルコペニアを引き起こし、介護予防等も含めて重要な問題となっている。それに対する一つの対策として筋そのものを伸ばしながら収縮する伸張性収縮が注目されている。伸ばしながらの収縮は筋肉の損傷を起こし、その程度が適度なら筋萎縮防止効果があるが、過度であると肉離れを起こしてしまう。しかしながらこの適度な強度というのはまだわかっていない。適切な強度を決定するため

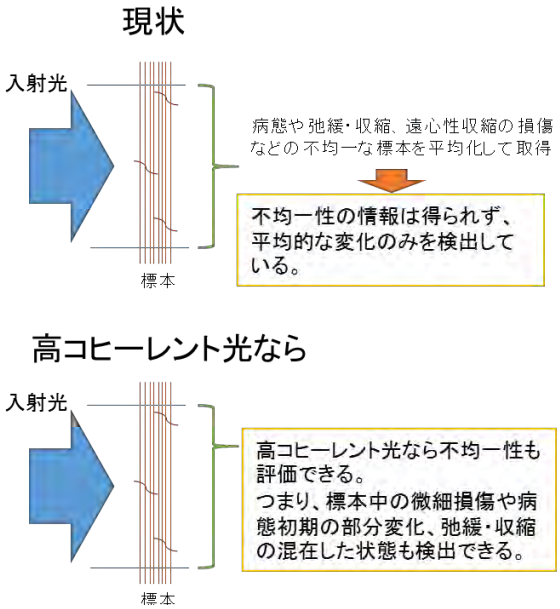


図 2　現状と高コヒーレント光で実現される観察

には従来の平均化した回折像などでの評価では足りず、不均一な微細損傷を生きた筋肉で評価することが必要だと考えられる。肉離れを起こさず、筋萎縮防止効果がある適切な強度を探るためには生きた筋肉の不均一な微細損傷を観察できる KEK 放射光で利用可能となる強いコヒーレント X 線の利用が効果的な観察方法といえる。

このように KEK 放射光の実現は筋肉の研究には欠かせないものであり、今後の医学・生命科学への貢献は大変大きいものである。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・ファイバー標本不均一性評価のためのビームライン

高解像度偏光顕微鏡および大気圧走査型電子顕微鏡と高コヒーレントな放射光を同時測定可能な SAXS ビームライン

ビームラインの性能は強度 10^{12}photons/sec かつ 100 μ m 径のもの

同時測定により従来の電子顕微鏡等の観察でわかっている現象と回折像の対応付けが明確になる。

4-13. 放射光Ｘ線の医学応用：微量元素異常疾患の高精度診断

(1)　背景

放射光の医学・生物学領域への応用は、蛋白質の高次構造解析や化学小分子との相互作用解明による薬剤開発などに圧倒的な貢献をしてきた。一方、細胞レベルの解析は発展途上で、2009 年英国王立科学アカデミー紀要誌に”Biological physics at large facilities: from molecule to cell” の特集が組まれ、急速に拡大する分野として注目を集めている。しかし、生物学への応用は操作の容易な培養細胞などのモデル系を用いて、物理化学・光学的に新しい技術や機器を試し新規性や性能の向上を強調することに限られていた。すなわち、生命科学としては実験室レベルでの基礎研究で詳細な情報は得られるが、実際の診断に使った報告は皆無である。私たちは微量元素異常疾患の組織標本を対象とした放射光蛍光Ｘ線分析法（SR-XRF）を樹立し、既存の遺伝子・生化学的解析を組み合わせることで、精度の高い正確な診断に繋げることが可能となった。さらに、細胞下（細胞小器官）レベルの局在や微小領域の X 線吸収微細構造 XAFS (X-ray absorption fine structure) を知ることで、X 線吸収原子の電子状態やその周辺構造（隣接原子までの距離やその個数）などの情報を得ることができる。病気の発症や増悪に決定的な役割を果たすフリーラジカルの産生など「細胞傷害機序」を統合的に解明し、その制御法（治療薬）の開発のきっかけを掴むことが期待される。生命維持に必須な微量元素とその異常を来す代表的なヒト遺伝病について解説し、具体的応用例と解決すべき問題を示す。

(1-1) 必須微量元素

重金属は主に道具や武器の材料に利用されてきたが、医学的な注目はその毒性である。12 種類の重金属が組織における含有量が一定で必須であると推測されている。その中でヒトの遺伝病と関係するものが 3 種（鉄、銅、亜鉛）ある。近年、銅代謝経路の理解が進んでいる。生体における銅の役割は銅を補因子として利用する酵素機能と深く関わっている（表）。銅代謝異常には、銅過剰ウィルソン病 WD と銅欠乏メンケス病 MD がある。さらに、銅結合性血清蛋白セルロプラスミン CP の欠損する無 CP 血症で鉄過剰ヘモクロマトーシスをきたすことが発見され、銅と鉄の代謝のクロストークが判明した。

表：微量元素を含む酵素

金属蛋白・含金属酵素・ビタミン	含まれる重金属	生理的役割や効果など
シトクロムP450（酵素群）	Fe	薬物の解毒（薬物代謝）
カタラーゼ	Fe	過酸化水素（ROS)を分解
ニトロゲナーゼ	Fe、Mo、V	大気の窒素からアンモニアを合成
DNAポリメラーゼ	Zn	DNAの複製・修復
アルコールデヒドロゲナーゼ	Zn	アルコールを酸化して分解等
ヒドロゲナーゼ	Fe、Ni	水素の酸化還元反応に関係
スーパーオキシドジスムターゼ	Cu、Zn、Mn	スーパーオキシド（活性酸素）を消去
グルタチオン・ペルオキシダーゼ	Se	活性酸素の除去反応を助ける
ウレアーゼ	Ni	尿素をアンモニアに分解

(1-2)メンケス病 MD における銅の存在と分布

MD は消化管からの銅吸収の障害による全身の銅欠乏を来たし、発育不良, kinky hair, 神経発達不全を起こす。本症は診断がつくとすぐに銅の注射療法を開始することで、ある程度の症状の改善、血清銅・セルロプラスミン値の改善がみられるが、ほとんどが年少児で死亡する重篤な希少難病である。私たちは銅投与の効果をより正確に知るため、インフォームドコンセントを得た症例について、全身組織における銅の局在と量を SR-XRF にて検討した。腎近位尿細管上皮、消化管吸収上皮、肝、血管において有意な銅の蓄積・増加を認めた(図 1)。現在の治療プロトコールで全身への銅の補給はほぼ十分だが、神経系における利用障害が示唆された。脊髄において血管と神経間隙 gap（リンパ路相当）という 2 つの銅流出経路を初めて明らかにした（Kinebuchi M. et al. Sci Rep 6: 33247, 2016）。現在の空間解像度では、gap の構造や本態の解析が困難である。より高輝度・高解像度のイメージングが可能になれば、銅の血液脳関門の基礎的理解が進み、新しい治療法の開発に繋げることが期待できる。

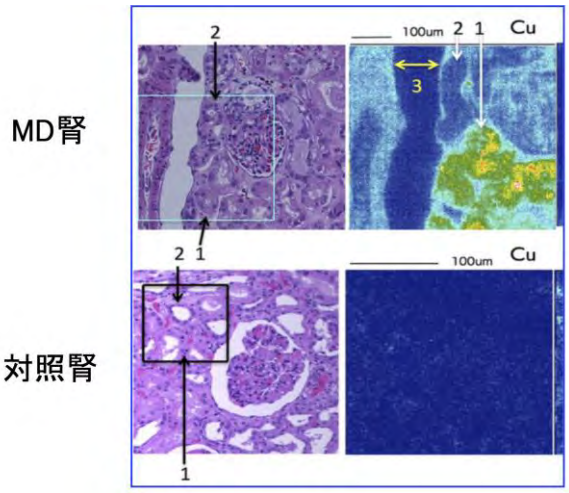


図 1：メンケス病腎における Cu 蓄積（Kinebuchi M. et al., Sci Rep 6: 33247, 2016）

(1-3) 敗血症性ショックにおける神経細胞への元素蓄積について

敗血症性ショックは死因のトップであるが、最終的な死に至る過程はその要素も議論も多岐に渡る。中枢神経の循環・呼吸中枢に明確な組織変化を示さない症例で、脊髄の交感神経節前ニューロンへの異常な Ca の蓄積を見出した（図 2）。どのような機序で蓄積が起こるかについて検討を行っている。中枢神経系は幅広

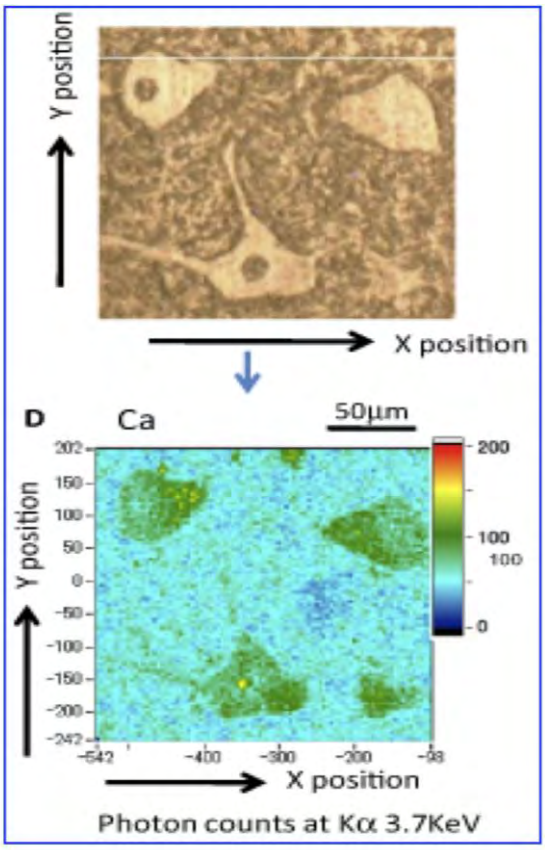


図 2：敗血症性ショック骨髄における Ca 過剰。（Kinebuchi M. et al., Acute Med. Surg.: 2, 169, 2015）

い範囲にわたってイメージングを行う必要があるが、現在のマッピングスピード（照射時間 x 測定ポイント数に加え、移動時間がかなり掛かるので、計算値の約 1.5-2 倍；例えば 0,5sec,6 万ポイントで約 23 時間）ではビームタイム内に十分な視野を解析することは難しい。イメージングの高速化が切望される。

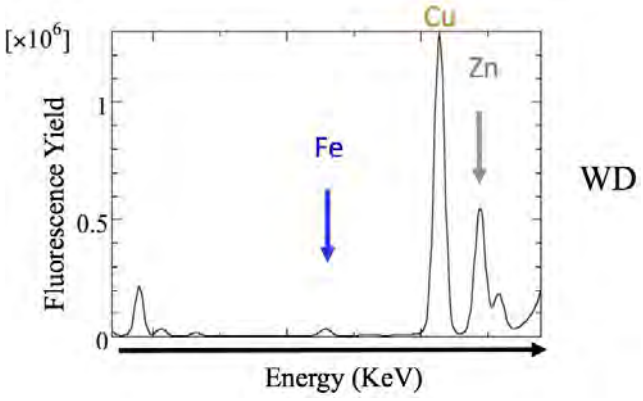


図 3：X-ray energy-dispersive spectrometry

(1-4)ウィルソン病 WD における銅の蓄積と早期診断法の開発

銅過剰をきたす WD 肝においては、発症前から大量の銅の蓄積があることが判明した。WD は遺伝子検査で約 15%の症例で病原変異が見つからない（Yamaguchi A. et al. Hum Mut S1:S320-S322, 1998）。さらに銅組織染色はほとんどが陰性である。組織切片を用いて蛍光Ｘ線分析の spot analysis を行った所、ＷＤでは銅の高いピークがみられた（図 3）。マッピングを行ったところ、肝実質に大量の銅の蓄積がみられた。現在、様々な病期の WD 症例、非 WD 肝疾患について、銅イメージング解析と微小領域での定量と XAFS 解析を行い症例を蓄積している。SR-XRF 解析だけで定量的観察や閾値の設定が可能かどうかを検討する必要がある。本手法は、生化学的解析ができない症例にも応用可能である。多くの症例の解析が必要で、イメージングの高速化が必須である。また。病態との関係を明確にするためには、より高輝度・高解像度での分析が望ましい。

（2）KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光が稼働すると、高輝度・高解像度・高速の元素イメージングが可能になる。病理組織切片を用いて、銅・鉄・亜鉛の元素分布と化学状態情報を同時に取得し、組織学的情報と対比して検討することで、まず、元素異常を示す疾患（ヘモクロマトーシス、腸性肢端皮膚炎、特発性銅過剰症など）を正確に診断することが可能となる。ついで、広範囲、超高解像度解析を組合わせて、病変が組織のどの細胞・どの細胞小器官から開始し、変化を受けやすいかを明らかにできる。適切な細胞あるいは疾患モデル動物を用い、蛍光Ｘ線分析と生化学的解析、RNAseq や microRNA 解析などを組み合わせて、発症の機序、急性憎悪機構を明らかにする。治療が奏功しやすい症例との比較をすることで、発症抑制機構を解明できると期待される。微量元素の異常が背景に潜むコモンディジーズが見つかる可能性が高い。

現状では実践的な SR-XRF による組織全体の元素分布測定および Cr 以上の金属元素の XAFS 測定を BL-4A で、ミクロンレベルの高分解能元素分布測定は SPring-8 を併用して行っているが、高効率で位置精度の高い測定のためには、これらが 1 サイトで行えること

が望ましい。KEK 放射光では、標準的な X 線光学系にて 30 μm(VxH)程度の高輝度のセミミクロビームや 5μm(VxH)程度のマイクロビームの利用が可能である。生物試料中の微量元素は不均一で、大型の標本をマクロレベルで観察し、さらに光学顕微鏡の弱拡大～強拡大で組織～細胞の様々なレベルで観察し、微量元素の分布、化学種の存在形態を明らかにできるはずである。病理診断のみならず、疾病概念の形成に大きなインパクトを与えることができる。現状では、Photon Factory, SPring-8 いずれの施設でもイメージング速度が遅く、限られたビームタイム内に十分な情報量を取得することが困難である。

微量元素異常の発症メカニズム解明には細胞小器官レベルでの局在・量的情報、化学状態などの情報が重要である。病気の発症は微小～極微小領域の原子や分子の相互作用における化学状態の変化を背景に有することが想定されるためである。病気や傷害の制御機構や新規薬剤の開発にも繋がることが期待される。この目標のためには、高輝度・高空間解像度・高速のイメージング技術の導入が必須である。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

本手法に必要な放射光源として、以下が挙げられる。

・数十μm 径程度のセミミクロサイズからサブミクロンまで可変なビームサイズで、蛍光 X 線マッピングと蛍光 XAFS 測定の双方が可能であること。100nm までの集光が可能であれば、細胞内小器官レベルでの微量元素動態を明らかにできる。

・4 keV から最大 25 keV 程度までのエネルギーの X 線が発生でき、低エネルギー側では高次光除去が可能であること。

・フラックスについては全エネルギー域にわたって、10^{10} ~10^{11}photons/sec 程度あることが望ましい。現状では、PF 偏向電磁石を光源とする BL-4A が 10^{9} photons/sec 程度で、微量元素の場合には測定時間が長くなる（10-30 時間/試料程度）ことから、これを 1/10 程度に短縮できることが望まれる。

・複数試料を自動で長時間測定が可能であること。スキャン駆動のためのピエゾ素子の性能が重要である。スキャンモードも stepwise のみでなく、continuous mode での測定ができると時間短縮に有用と考える

・病理試料の分析は不定期に発生するため、年間複数回の分析機会が必要であり、試料の大きさや種類を考えると病理診断専用ビームラインが設営されることが必須である。微量元素の蛍光X線分析イメージングを主眼とする生物学的研究と併用することも可能である。

４．生命科学

＊担当一覧

監修：清水　敏之（東京大学）

執筆分担：

まえがき　安達　成彦・千田　俊哉（KEK 物構研）

4-1　安達　成彦・川﨑　政人・千田　俊哉（KEK 物構研）

4-2　田辺　幹雄・松垣　直宏・湯本　史明・安達　成彦・千田　俊哉（KEK 物構研）

4-3　加藤　龍一・山田　悠介・千田　美紀・安達　成彦・千田　俊哉（KEK 物構研）

4-4　海野　昌喜（茨城大学）

4-5　上久保　裕生（奈良先端科学技術大学院大学）、清水　伸隆（KEK 物構研）、
杉山　正明（京都大学）

4-6　横谷　明徳・藤井　健太郎（量子科学技術研究開発機構）

4-7　宇佐美　徳子（KEK 物構研）

4-8　松下　昌之助（筑波技術大学）、山田　重人（京都大学）、
兵藤　一行（KEK 物構研）

4-9　水谷　治央（University of Chicago）

4-10　松尾　光一（慶應義塾大学）、百生　敦（東北大学）

4-11　原田　慈久（東京大学物性研究所）

4-12　中原　直哉・山口　眞紀・竹森　重　（東京慈恵会医科大学）、
渡辺　賢　（首都大学東京）

4-13　松浦　晃洋・杵渕　幸（藤田保健衛生大学）

校閲協力：

足立　伸一（KEK 物構研）、五十嵐　教之（KEK 物構研）、植草　秀裕（東京工業大学）、
宇佐美　徳子（KEK 物構研）、上久保　裕生（奈良先端科学技術大学院大学）、
櫻井　伸一（京都工芸繊維大学）、清水　敏之（東京大学）、清水　伸隆（KEK 物構研）、
高野　秀和（東北大学）、野澤　俊介（KEK 物構研）、兵藤　一行（KEK 物構研）、
松下　昌之助（筑波技術大学）、山田　悠介（KEK 物構研）、
横谷　明徳（量子科学技術研究開発機構）

５．ソフトマター科学

ソフトマターとは、界面活性剤、両親媒性分子、ブロックコポリマー、タンパク質やDNAに代表される生体高分子のような物質を指しており、たくさんの構成要素（多成分）が特徴ある構造を自発的に形成するという特徴を有している。具体的には、マイクロエマルジョン、コロイド、液晶、ミクロ相分離構造などである。このような構造が、機能や性質とどのように関係しているかを解明することが、ソフトマター科学の目指すところのひとつである。ソフトマターは、ゲルやゴム、プラスチックなどの材料も研究対象としており、近年では、環境調和型の材料や従来なかったような種々の元素を構成要素に含んでいるような元素ブロック高分子材料の研究・開発が注目されている。

２１世紀の幕開けとともに、ソフトマター研究は飛躍的に加速したと言われているが、その理由は、スーパーコンピュータの性能向上によって分子動力学的なシミュレーションが発展したことで、ミクロからマクロの領域にわたる構造と機能性の相関の理解が進展したためである。一方で、構造の詳細を理解する実験技法の飛躍的進展もソフトマター研究の加速に大きく寄与したと言える。これは、２０世紀後半から目覚ましく発展した放射光施設によるところが大きい。しかしながら、構造と機能、あるいは構造と性質の相関性が完全に理解されたとは到底いえないのが現状であって、構造と機能・性質の相関性の理解は、永遠のテーマである。この命題解決に一歩でも近づくために、空間的な構造の詳細解析だけではなく、時間的な構造変化も解析しなければならない。このような時空間構造の階層性（特にナノメータからマイクロメータに至る領域）を詳細に把握することが、次世代の放射光施設に期待されている。

ソフトマター科学の研究は、生物学、化学、物理学、工学の知識を総動員しなければ進めることのできない学際領域である。時空間構造が階層性を有しているという特徴は、まさに生物の有する特徴であり、その意味で生命現象を司っている「時空間構造」の理解を目標に、化学的、物理学的な視点からモデル系を使った研究、さらには、生物機能を模倣したような機能性材料開発研究も行われている。階層構造が機能や性質とどのように関係しているかを解明するためには、外部から力学的な刺激や種々の外場を与えた状態での時空間構造を解析する必要がある。つまり、試料に外部刺激を与えながら、X線ビームを入射して構造を調べるというような「同時測定」が重要となる。

一方、ナノフィラーを含んでいるようなナノコンポジット材料、結晶性のポリマー材料の研究では、外部刺激に対する構造の応答性の問題として「材料の耐久性や破壊」が重要な課題である。例えば、破壊のイニシエーションはいかにして起こるのかを解明するため

に、力学的負荷状態での階層構造の変化の初期状態を明らかにする必要がある。このような破壊のメカニズムの詳細を解明できれば、安心・安全な社会の構築に寄与できる。また、持続成長可能な環境調和型社会形成に資するポリマー材料（サステナブルポリマー材料、脱石油由来ポリマー材料、バイオベースポリマー材料などと呼ばれている）も２１世紀のソフトマター研究として注目に値する。ポリマー材料がどのようなメカニズムで合成されて行くかを分子レベルで解き明かした実験は今までになされていないので、次世代の放射光性能を活用することができれば、固・液界面はもちろんのこと、液・液界面で高分子が合成される過程を解き明かすことが可能である。そのための実験手法は、気・液界面、すなわち表面で起こるナノ構造変化の研究にとっても非常に有益なものとなり得るのは間違いない。それは、生物学、化学、物理学、工学の分野の研究者やエンジニアが集うソフトマター科学の分野で、共通の実験手法になり得る。

上述のような観点から、以下の９件の提案をさせて頂く。これらの提案は、高コヒーレンス、tender 領域の X 線ビーム、低エミッタンス、ナノビームなどの次世代の放射光性能の活用に大きな期待を寄せている。いずれの提案も、従来の放射光性能では決して実現できなかったサイエンスであり、新しいサイエンス分野の開拓につながるものである。

5-1. 石油資源からバイオベースマテリアルへの転換を目指して：異常 X 線小角散乱によって解明する未踏破ソフトマター構造解析

（1）背景

高分子材料（プラスチック、高強度繊維など）、ゴム、液晶、ゲル、生体や医薬品、食品などに含まれる両親媒性分子や、脂溶性分子が作り出す分子集合体といったソフトマターは、nm からμm にわたる空間スケールで階層的高次構造を形成し、各階層が空間・時間的に相関し協働することで系全体の物性や機能が決まる。この複雑で不均一な時空間階層構造を形成機構（微細構造と機能発現の相関）から理解することで、機能を最大限に引き出すことが期待できる。また、石油資源を原料とした材料開発から持続可能な社会の実現に不可欠な微生物・植物などから得られる再生可能資源を利用したソフトマター材料開発（バイオベースマテリアルサイエンス）への転換も重要である。ソフトマターは、炭素を中心に窒素、酸素、硫黄、リン等により構成されており、他 Na、Mg、K、Ca、Si などのイオンが相互作用することで構造・機能・物性に影響を及ぼすため、標的元素が材料中にどのように分布し相互作用しているかを知ることが重要である。これらの元素の X 線吸収端は、主に軟 X 線（数 100 eV）からテンダーX 線（1～4 keV）領域にあるため、各元素の異常分散効果を活用した異常 X 線小角散乱（Anomalous SAXS=ASAXS）によって、構造の形のみならず、特定元素の空間分布、様々な結合環境、機能性原子団、配向性の評価が可能である。しかしながら、ソフトマターでの ASAXS 実施例は極めて少ないのが現状である。また、サブμm ビームによる Scanning ASAXS による構造不均一性を理解することや、X 線光子相関分光法（XPCS）によるダイナミクスの理解により、ソフトマターの“ありのまま”の姿が描ける。KEK 放射光は、軟 X 線からテンダーX 線までの領域において高輝度で高いコヒーレンス性能を持つ光を利用できるため、このような測定解析に関して、さらなる発展が期待される。

（2）KEK 放射光における新展開と期待される成果

①軟 X～Tender X 線領域での ASAXS によるソフトマターの相互作用・動的構造解析

通常の SAXS では、階層的高次構造解析において各成分の空間分布を直接得ることはできないため、多成分でより複雑な実用材料では特定成分の配置を確定することは不可能であるが、これを解決する手法が ASAXS である。ソフトマターの主な構成元素の X 線吸収端は、軟 X 線からテンダーX 線領域にある。また、天然生体高分子セルロースを代表とする多糖類等では、溶媒中のイオンによりコンフォメーションが変化すると知られており、イオンによって構造状態が制御されることを示唆している。従って、標的とする種々の元素の吸収端近傍での ASAXS により、イオンを含む溶液中の高分子鎖のコンフォメーションのみならず、イオンの空間配置を明らかにできる。また、X 線吸収微細構造解析（XAFS）と組み合わせることができれば、化学構造分析とともに階層構造と物質の空間分布を知ることもできる。さらに、炭素の吸収端を活用すれば高分子鎖間自体にコントラストが生まれる

（図 1）ため、より複雑な系（多成分・多相系）のソフトマターにおける各成分の空間配置を解析し、新しい構造制御手法および機能性材料の創製プロセスを開拓するための重要な知見が得られると期待できる。測定として、元素のマッピングを行うために組成（機能）傾斜型材料のサブ μm の極小ビームによる Scanning ASAXS 測定も非常に有用であるが、SEC-MALLS、精密熱量計、屈折率計、旋光度測定及び円偏光二色性測定と組み合わせたマルチプローブで、その場観察やオペランド観察により、多様な構造とその動的変化を追跡することができれば、ソフトマター分子設計に対する有効な足がかりを得ることが可能である。

図 1 Multi domains seen by X-rays at near K-edge of specific elements.

②自己修復機能を持つ有機/無機ナノハイブリッド材料の創製

自己修復機能には従来型の結合･破断と独立した状態が当てはまらず、結合と解離が準静的に生じる、ある種の平衡状態であることが重要であり、高分子マトリックス中での無機ドメインの正確な運動性の評価が求められる。従来の非コヒーレントな光源では、平均化した構造情報しか得られず、無機ドメインの微視的な挙動が平均化されてしまい正確な運動性の評価には繋がらない。新光源による高コヒーレントな X 線を利用した X 線光子相関分光法（XPCS）を利用すれば、その運動性評価が可能となり、構造のみならず、ハイブリッド材料の自己修復機能との相関が明らかになる。これにより機能制御、材料の長寿命化などが期待でき、資源、環境問題に対する新たな糸口になり得る。

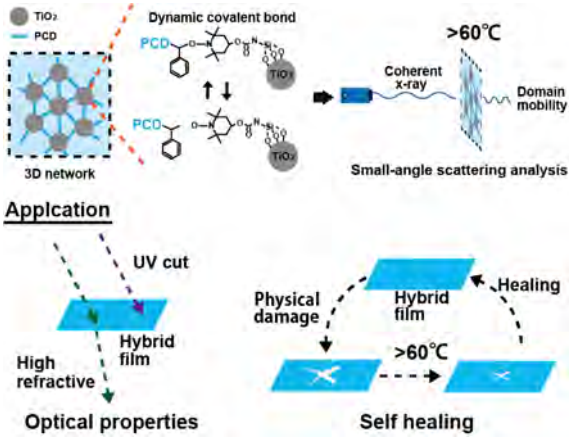


図 2 Images of organic/inorganic nanohybrid materials with the function of self-healing.

（3）必要とされるビームライン・実験設備

軟 X 線からテンダーX 線領域における高輝度コヒーレンス SAXS（XAFS も測定可能）ビームライン、USAXS/SAXS/WAXS 同時測定計測システム、サブ μm サイズのビームによる Scanning 法と流動液状試料が利用可能な真空（He 置換下）における自動試料交換調整装置、ビームラインに隣接した試料準備ステーション（試料事前評価調製用のための SEC-MALLS、恒温恒湿槽、ミクロトーム、偏光レーザー顕微鏡、遠心分離機、ドラフトチャンバー、SEM、TEM などを備える）。

5-2. ソフトマターの時空間階層ゆらぎの解析

(1) 背景

高分子，液晶，コロイドなどのソフトマターは，nmから数十μmの幅広い階層的内部構造を有し，その構造が時間的・空間的にゆらいでいる。その結果、ソフトマターは外部刺激に対して柔軟な応答を示すとともにゆっくりとしたダイナミクスを発現し，構造をもつ流体と捉えることができる。したがってソフトマターの構造・物性を議論する上で，時間・空間での階層的なゆらぎが本質的に重要な概念となる。このゆらぎを可視化するためには，広い空間（nm-μm）、広い時間（ns-min）スケールでの測定が必須である。

このような時空間階層ゆらぎを可視化する場合，従来のＸ線回折を用いた結晶構造解析や小角Ｘ線散乱を用いた平均構造の解析等の枠組みを超えた方法論が必要であり，近年コヒーレントＸ線散乱を用いた構造の可視化、時間揺らぎ測定の開拓・応用が進められている。既存の放射光施設でもコヒーレントＸ線を用いた測定は可能である。しかし光源のエミッタンスが十分に小さくないためコヒーレントＸ線を利用するにはフラックスを大幅に制限する必要があるため，ゆらぎ測定の空間・時間分解能の限界が生じており，結果としてソフトマターの時空間階層ゆらぎに関する理解は未開拓である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光を利用することにより，近年 tender Ｘ線として注目を集めている 1-4 keV 程度のＸ線エネルギーにおけるコヒーレントＸ線散乱実験を実施可能となる。このエネルギー領域では，リン，イオウなどの吸収端を活用することで，散乱長コントラストの低いソフトマター試料のゆらぎ解析を可能とし，さらに元素識別解析が可能となる。またエネルギー領域をさらに低くして炭素の吸収端（284 eV）などを活用することで，官能基を識別したゆらぎ解析も可能になる。このような軟Ｘ線や tender Ｘ線のコヒーレント散乱実験を中性子・ミュオンを用いたダイナミクス測定と組み合わせることで，ソフトマター時空間階層ゆらぎの可視化が初めて可能となり，基礎学理・応用の両面で重要なソフトマターのゆらぎ構造を決定するとともに、各階層・ゆらぎ間の相互作用を定量化することで、新規材料設計や物性発現が期待できる。具体例を以下に２例挙げる。

（A）<u>複雑液晶構造におけるゆらぎの解析</u>

液晶では，全体的な分子配列は秩序性を有するが，構成分子は液体のように運動している。近年では複雑な液晶構造を形成する化合物が次々に合成されており，基礎・応用の両面から精力的に研究されている。例えば双連結型キュービック（Cub_{bi}）液

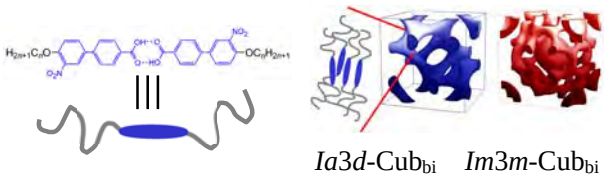


図１．双連結型キュービック（Cub_{bi}）液晶相の構造。例に挙げた化合物は両端のアルキル鎖長と温度に依存して 2 種類の Cub_{bi} 液晶相を形成する。

晶相（図１）では，分子両端のアルキル鎖と分子中央部がミクロ相分離することで，10-20 nm 程度の周期構造を形成する。KEK 放射光で ns-μs の時間スケール、sub-nm の空間スケールのゆらぎを測定することで，この複雑液晶構造の揺らぎや不均一性を解明できる。さらに tender X 線を用いた斜入射散乱法により，基盤界面や液晶膜表面での局所構造およびその揺らぎの深さ依存性に関する知見が得られ，液晶構造とその特性を制御することが可能となる。

（B）時空間ゆらぎ構造に基づく特殊反応場形成の解明：超臨界混合溶液の時空間ゆらぎ

超臨界状態はゆらぎが最も顕在化する物質相である。このゆらぎを主因として広範な機能デザイナー性を有し，特殊な反応場特性を発現するため，数密度揺らぎや溶媒和挙動の時間変化の解明が求められている。超臨界混合溶液の数密度ゆらぎは，従前の方法論では解析できないが，KEK放射光により，超臨界状態等の異常分散小角散乱を時分解測定し，溶媒和状態を実時間観測できる。さらに超臨界相に特異的に観測される溶媒和状態と反応特性との関連が解明される。超臨界溶液のゆらぎの解明は広範な特殊環境液体の研究の進展に寄与し，数密度ゆらぎや溶媒和挙動の時間分割直接観察は，ゆらぎを定性的な変化挙動から定量的な数密度ゆらぎとして解析できることとなる。tender X線を活用することで実用系に近い軽元素に対する実験が可能となり，重元素単原子分子液体から軽元素複雑分子系への実験展開が可能となる。

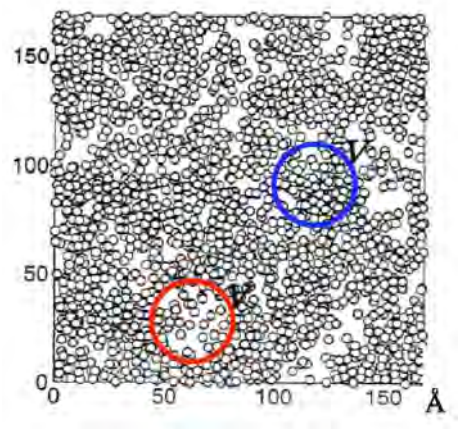


図２．超臨界状態の数密度ゆらぎ
青と赤の丸の中で大きく数密度が異なり顕著な構造ゆらぎが観測される．

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

A. ビームライン

- コヒーレント小角X線散乱ビームライン（ビームサイズ：数 μm～数十 nm、エネルギー：0.2 – 10 keV）
- 高強度および広エネルギー帯 X 線解析用ビームライン（エネルギー：1 - 50 keV）
- 小角広角散乱時間分解同時測定ビームライン（q-range: 0.006-50 nm^{-1}）

B. 実験設備

・tender X 線大気圧測定用差動排気測定系

・高速光子計数型高空間分解能２次元検出器（時間分解能：ナノ秒程度）およびデータ処理システム

・高精度透過光ビームモニター装置

5-3. 複雑系ソフトマター構造の時空間ゆらぎを放射光で見る
～見かけ倒しか本物か、見極める！～

(1) 背景

ソフトマターの構造やそのダイナミクスの解析は，ソフトマターならではの特徴のために困難なことが多い．具体的には①ソフトマターの多くは構造に乱れを伴う．したがって散乱データから構造に関する直接的な知見は得られない．散乱データの理解にはモデルを仮定した解釈や時間・空間的な**「不均一性」**の考慮が必要である．②きわめて小さな単結晶しか作らないものが多い．したがって，ソフトマター（高分子）の結晶回折データは質・量ともに著しく劣り，その解析は極めて難解かつ精度が低い．③構造のダイナミクスやその外場とのカップリングによる構造転移や配向過程の直接的観測が困難である．

コヒーレントマイクロ・ナノビーム X 線源を用いて，これら困難を克服することでソフトマター研究での新展開が期待できる．

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

高い空間分解能で高速に散乱データを得られるマイクロ（ナノ）ビームコヒーレント X 線を用いた X 線回折顕微鏡(CXDI，タイコグラフィー法とそれに基づくトモグラフィーを含む)，および X 線非弾性散乱は，ソフトマター科学の進歩に大きく寄与すると期待する．前者では，従来の散乱法で得ることのできなかった不均一構造の三次元実像を取得できる．特に X 線では有機物でも十分なコントラストが期待され，従来の透過電子顕微鏡観察で必須であった重金属染色による構造変化・構造固定化の課題が解決され，実像に基づくソフトマターのダイナミクス評価への道が開かれると期待する．後者は，従来の中性子散乱法では困難であった微小試料のダイナミクス評価に適用できるだけでなく，軟 X 線と併用することで薄膜表面等の局所領域のダイナミクス評価へも応用できると期待する．これらを踏まえ，以下の 4 つを提案する．

①ソフトマターに特徴的な不均一構造（ゲルの架橋点分布，コンポジット材料中のフィラー界面と周囲の高分子鎖の凝集，液晶の欠陥周囲，極細繊維の表面と内部など）の局所ごとに CXDI で散乱データを収集することで, 不均一性とそれぞれの構造の知見が得られる．また材料の吸収端に波長を合わせることで，組成分布計測も可能である．特に，膨潤したゲルの架橋構造等のソフトマター特有の構造を，その自由度を保持したまま観測するには散乱法が唯一の手段であるが，すべての散乱データはモデルに基づく解釈と考察を必要とする．この種の構造は他の観察手法（重金属染色が必要な電子顕微鏡など）で可視化することは不可能であり，モデルの一意性が保証されないという根本的な課題をはらんでいる．ソフトマターの三次元像に基づく時空間揺らぎが解明できれば，これまで推測の域を出なかった構造（ゲルの架橋構造，コンポジットの界面構造や分散状態）と巨視的物性（力学物性など）の相関に関する種々の科学的課題が一挙に解決する．

②極小領域における結晶性高分子はその特有の不均一構造と格子定数の統計的な乱れに由来して，低分子単結晶に対して一般化した「直接法」による解析が適用できず，その構造解析には現在もなお膨大な時間と経験を要する．マイクロ（ナノ）ビームコヒーレント X 線によって、超薄切片化し奥行き方向への不均一性を排除した高分子の多結晶中のできるだけ狭い（ナノスケール）領域，究極的には一枚のラメラ結晶（厚さ約 10 nm の単結晶）からの回折データを得ることができれば，高分子結晶構造解析に対して直説法が適用可能なほどの飛躍的な精度向上とそれに伴う構造決定の迅速化が期待される（図 1）．さらに，ナノスケールの高分子結晶の加熱時や応力下での構造変化を時分割 WAXD/SAXS 同時測定で追跡することで，各種転移や破壊のメカニズムの解明が期待される．

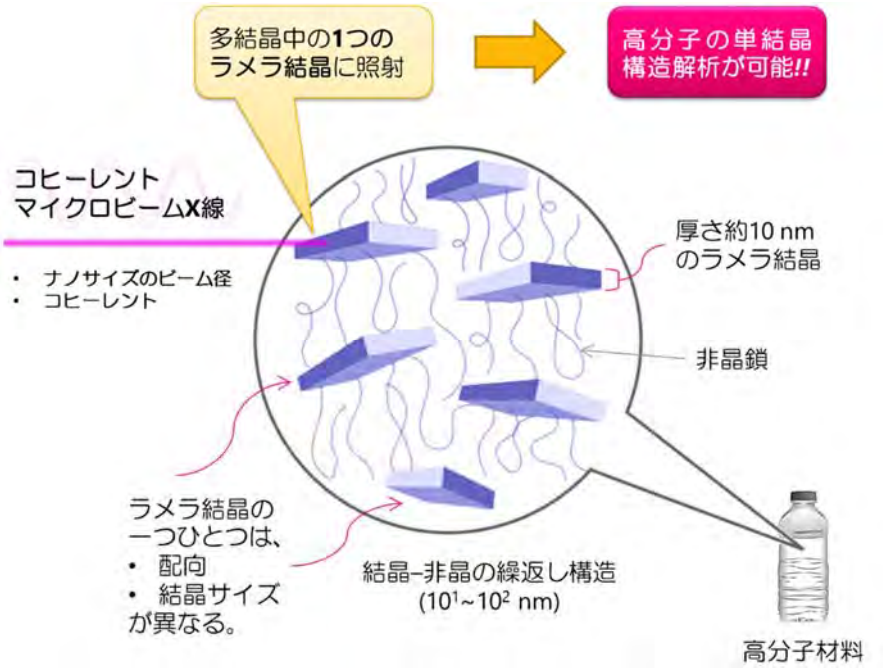


図 1

③X 線非弾性散乱実験では，試料室サイズが 100 μm 程度の高圧セルを用いた超高圧・高温下の種々の材料の弾性率・音速などの物性値の定量評価，広いレンジでの動的構造因子 $S(\mathbf{q}, \omega)$（固体結晶であれば格子振動と波数の分散関係，モデルを必要とする）の評価を通じたダイナミクス解析が可能になる．この測定は，ビーム径が cm オーダーである中性子線では困難であり，X 線を用いることで，水素による非干渉性散乱を低減するために高価な重水素化試料が必須である中性子散乱の制約から解放されるため，幅広い試料（高分子ガラス）のダイナミクスの解明を可能とする．さらに軟 X 線を非弾性散乱実験に適用できれば，平滑試料への斜入射により最表面領域（侵入長）における動的構造解析への展開も考えられ，KEK 放射光独自の技術になり得る．

④マイクロ・ナノビームコヒーレントＸ線とレオメータを組み合わせれば，ずり流動化での不均一構造も解析できる（図２）．ずり流動下にある試料は数 nm～数十μm のスケールでは不均一であり，速度勾配も壁面からの距離に応じて不連続に変化することもある（図2(c)）。また，このような微細空間における流動，特に壁面におけるレオロジー挙動は，工学上極めて重要でありながら不明な点が多い摩擦･摺動の科学と深く関連することから，興味深いものである．図 2(a)のセルの回転中心を 90 度傾けた図 2(d)のような水平配置型レオメータで回転中心方向に径 50 nm～50 μm（試料に依存）のビームを通し，セルを上下に微動させることにより，散乱パターンを壁面からの距離の関数として測定する。これにより，例えば転移や配向が起こり始めるときの位置と局所構造の特定が可能となる。

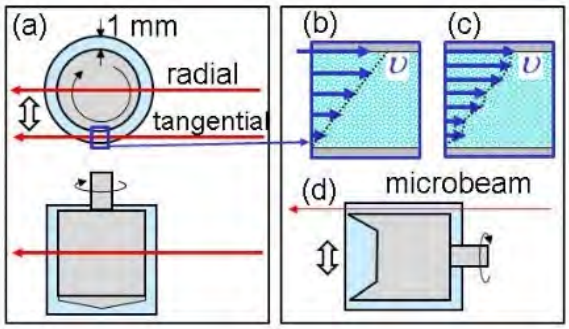


図 2

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・X 線回折顕微鏡(XRDM)ビームライン：ビーム径を 10 nm～50 μm の間で可変，波長可変のマイクロ・ナノビームコヒーレント X 線，高位置精度の試料台（熱膨張の影響を抑える恒温槽），SAXS/WAXD 同時測定用検出器，レオメータ（水平配置型レオメータ）

・非弾性散乱実験ステーション：ビーム径が 10～100 μmの軟～硬 X 線，高分解能分光器(meV オーダー)．

5-4. アクティブマターの運動と構造

(1) 背景

非平衡条件下で自由エネルギーを運動に変換する系はアクティブマターと呼ばれ、近年、盛んに研究されている。このようなアクティブマターに関する研究は生物の運動を物理的に理解するために重要であるのみならず、非平衡物理学の新たな一分野として着目されている。過去の多くの研究において、アクティブマターを構築する上で生物材料が使用されている。しかしながら生物材料は試料の準備一つとっても多くの隠れた要素を含んでおり、シンプルな物理的記述ができない、再現性に欠けるなどの問題点がある。それに対し、生体材料ではない非生物材料を用いたアクティブマター系の実験は高い再現性がある上、物理化学的な素過程が明らかで理論的な考察がしやすいというメリットがある。

これまでに我々のグループでは、カチオン性界面活性剤水溶液にアニオン性界面活性剤の液滴を加えたときに界面で複合体が形成され、複合体の粘弾性に起因して界面の揺動が生じ、更には液滴が運動する現象を見出した。この運動機構を明らかにするため、界面付近で生成した複合体の構造に関しマイクロビーム小角 X 線散乱を用いて解析したところ、生成した界面活性剤複合体は面間隔が数十 nm のラメラ状構造を持つことが明らかとなった。さらに、ミリメートル（mm）スケールでの界面の形状とナノメートル（nm）スケールのラメラ構造の配向方向に相関があることが明らかとなった（Sumino *et al*. (2012) *Langmuir*, **28**, 3378-3384；図 1）。また小角中性子散乱を併用することにより、面間隔の広いラメラと狭いラメラの構造変化が起きていて、それが界面の自発運動の原因になっていることが分かった（Sumino *et al*. (2016) *Langmuir*, **32**, 2891-2899）。

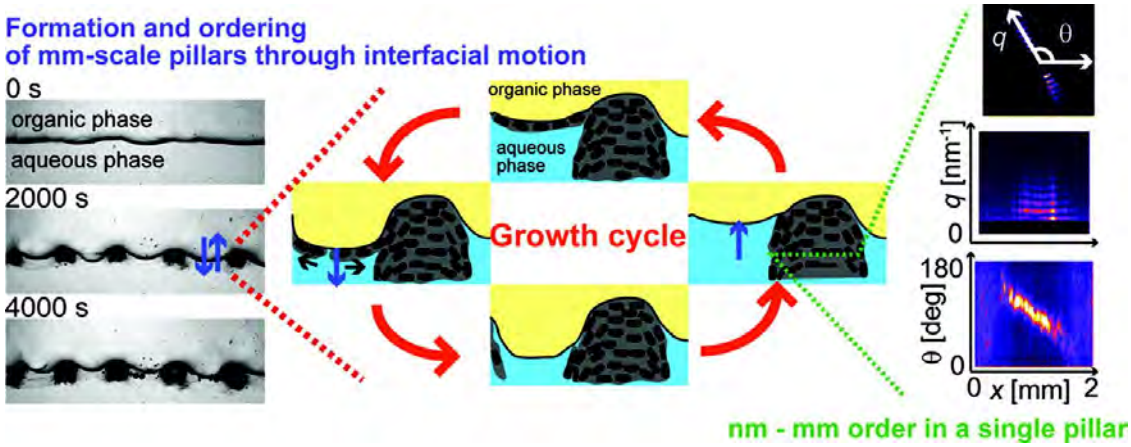


図 1：液液界面で生成する複合体（左）と複合体の小角 X 線散乱パターン（右）。これらより mm の構造と nm の構造に相関があることがわかった（中央）。

このように界面物性のダイナミクスに基づいたアクティブマター系においては、マクロなスケールの構造とミクロなスケールの構造に相関が自然に生まれることが予想される。これは非平衡開放系で研究対象となる「協同現象」が物質レベルで現れている系だと考えて良い。このようなマルチスケールの構造と運動様相との相関は、アクティブマター一般について言える可能性がある。そのような研究のためには、マイクロビーム X 線を対象位置に正確に照射できることが重要である。また、光学顕微鏡の解像度と同じ空間解像度を得るため、マイクロビーム X 線のビーム径を 0.5 μm に絞る必要がある。加えてより大きな構造の情報を得るためには、X 線小角散乱のカメラ長を長くする必要がある。その上、アクティブマター系の実験は液面など水平面で行うことが多いため、鉛直方向の X 線ビームが実現できればより成果が上がることが期待される。このような現象の確認のためには顕微観察が必須なので、様々なアクティブマター系に対応できるよう長作動の顕微鏡で、位相差、偏光、暗視野、蛍光観察が同時にできるものが望ましい。また、観察したい現象を自動的に追尾できるような XY ステージの導入も望まれる。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

上述の新たな知見を得るための一例として、マクロスケールでの時間的な振動反応とミクロスケールでの構造変化が結合していると期待される系が挙げられる。マクロスケールの時間的振動反応としては、Belousov-Zhabotinsky（BZ）反応と呼ばれる化学振動反応を利用する。これまでに BZ 反応の水溶液にエアロゾル OT（AOT）を混合することにより、マイクロメートル（μm）スケールのエマルジョンが生成されその中で振動反応が起こることが報告されている。そのエマルジョンの構造は化学組成に応答性があると期待されることから、その構造変化を顕微観察マイクロビーム X 線小角散乱の同時測定を行う。また、同じく BZ 反応と同期して膨潤収縮するゲルにおいては、ゲルの中の振動反応が位相差を持って進行し波（化学波）のように見える。化学波の進行に伴うゲルの構造変化についても同様に顕微観察しつつマイクロビーム X 線で観察することで、化学波の伝播方向とゲル中の高分子のミクロな構造の変化の相関を観察できる。このようなミクロスケールとマクロスケールの構造の相関がアクティブマター系に普遍的に観察されることが明らかになれば、非平衡物理学の一般的な議論を行う上で非常に有用なモデル系としてアクティブマター系が重要な役割を果たすと期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・マイクロビーム小角散乱用ビームライン

ビーム焦点位置の長作動（数 mm 程度）顕微観察および試料の二次元スキャンができる必要がある。顕微観察の際には、多様な界面活性剤系の観察に対応できるよう位相差観察、偏光観察、暗視野観察、蛍光観察ができるものが望ましい。また、ビーム

径は光学顕微鏡の解像度と同じ 0.5 μm で、観察対象を自動追尾するために自動 XY ステージの導入が望まれる。

また、実験系のデザインの自由度を確保するため、鉛直方向のX線ビームによる観察ができることが望ましい。

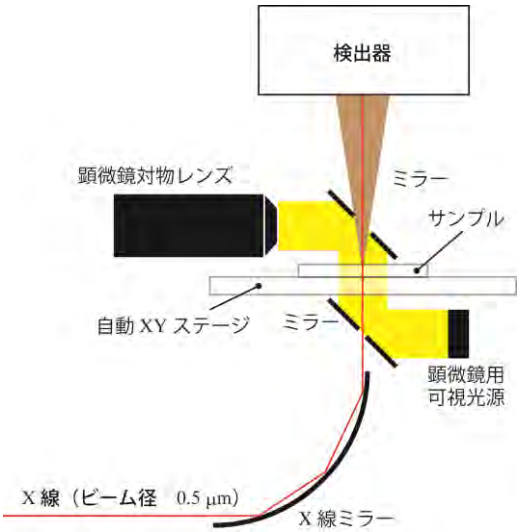


図 2：提案する装置の模式図。

5-5. 分光的小角散乱及び小角高角散乱による ナノスケールでの化学状態・局所構造分布の解明

(1) 背景

ナノスケールで 3 次元のヘテロ構造を持つ材料は次世代の軽量高強度構造材料や複合材料から有機・無機の自己形成型薄膜太陽電池や電極材料、磁性材料や触媒材料など、材料開発において幅広く使われており、研究が進められている。このようなナノスケールのヘテロ構造材料で構造と特性の評価をおこなう場合、構造評価と特性評価を同時におこなうことは、一般的には困難であった。構造と機能の関係の直接的な理解には、機能の分布状態を構造と結びつける、すなわち機能・構造の可視化が有効であると期待される。放射光の高輝度化、低エミッタンス化により、マイクロビーム X 線の走査による吸収・分光解析、構造分布の可視化などが進められている。その一方で、表面科学の観点からはバルクに属するが通常のバルク材料とは異なる、すなわち表面から数ナノ～数十ナノメートル程度、薄膜の内部の部分に関して、ナノ構造と特性の関係を評価することは今後ますます重要になってくると予想される。次世代測定として、ナノ構造解析、元素識別解析（異常分散）に加え、より詳細な電子情報までを実現する分光的な小角散乱法ならびに小角高角同時測定法を実現することにより、ナノ構造に付随した価数や結合様式の分布や磁化分布などの解析が可能になる。また、蛍光 X 線の処理技術の検討を進め、吸収端より高エネルギー側への拡張を試みることにより、ヘテロナノ構造領域に限定した原子配列のような解析も可能になると期待される。

(2) KEK 放射光における展開と期待される成果

新軽量構造合金の候補材料は数ナノ～数十ナノメートルの強化相が分散している。複雑な構造をもつ新規構造材料群、例えば Mg-LPSO（Long-Period Stacking Ordered Structure: 長周期積層秩序構造）などは、その安定性の基盤となる単位構造がどのように形成されるか、どのような熱的安定性を持つかについては不明な点が多く、非経験的な新材料探索の指針を立てづらい状況にある。さらに複合化や複雑な組織制御によって強化相周辺での材料の強化/破壊機構と界面偏析や局所構造がどのようにかかわるか、加えて疲労破壊などの信頼性にかかわる転位や空孔・ボイド形成がこのようなナノ構造とどのように相関を持って進行するかという問題は重要である。異常分散効果を利用した異常 X 線小角散乱法（ASAXS 法）は特定元素の吸収端での散乱因子を変化させることによって多元系、あるいは通常ではコントラストのつかない合金系のナノ構造評価を可能にしている。エネルギー分解能をさらに上げることにより、吸収端近傍での化学シフトなど、化学状態に起因するコントラスト変調を利用した散乱像を得ることができるため、次期光源での高輝度化、低エミッタンス化を利用することによる、高精度（ケミカルシフト）ASAXS とマイクロビーム ASAXS マッピング、最終的には Tomographic　ASAXS（ASAXS 信号を用いた

トモグラフ）の実現はこのような実用材料開発の上で非常に大きな寄与をすると期待される。金属ならびに無機(セラミック)材料の多くは有機材料と比べて照射損傷耐性が高く、直接的にこのような手法の拡張が可能であると予想される。さらにエネルギー領域を下げ、いわゆる tender 領域と呼ばれる X 線領域(1～4keV)を利用することにより、Na~S の領域での ASAXS を実現すると、従来の XAFS、非共鳴の散乱解析、中性子などに加え、これらの軽元素についての元素識別、価数識別の可能な小角散乱解析が可能になる。現在 PF の BL-15A2 においてこれらのエネルギーのうち、高エネルギー側（2.1keV 以上）での共鳴散乱は実験が開始されているが、分光測定を同時におこない、化学シフトに対応する共鳴散乱測定を実現することにより、化学状態の情報が重畳されることによって得られる構造情報は格段に豊かになる（図 1）。例えば太陽電池の電極構造やナノ構造に担持された触媒膜構造などにおいて、どの深さまでが化学変化に寄与しているか、価数や結合状態の分布をナノ構造との相関を持って解析する可能性が期待される。また、薄膜材料が Si 基板上に形成される場合が多いことを考えると、薄膜に対するすれすれ入射（GISAXS、GIXD）測定で基板（Si）と高分子/有機薄膜や水の X 線屈折率をほぼ一致させることのできる Si 吸収端でのコントラストマッチングは、詳細構造解析に対して有力な実験手法になると期待できる。さらに 100-800eV 領域までの低エネルギー領域には C、N の K 吸収端や Fe などの L 吸収端が存在する。C の吸収端での化学シフトを利用することによって高分子の内部構造にコントラストをつけた小角散乱構造解析は ALS のグループがおこなっており、有力な解析手段であることが示されている。また、Fe や Co の磁区構造による小角散乱が L 端の共鳴磁気散乱の利用によるコントラスト変化で観察されることはハンブルグで FEL の高調波を利用した実験で報告されている。

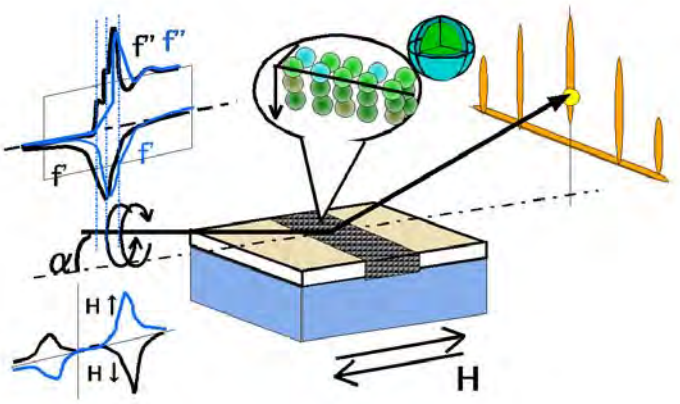


図 1　共鳴小角測定の模式図。機能性粒子が薄膜内に分布している場合、化学シフトによるコントラスト変化から化学状態の深さ依存性の評価が、磁性粒子の場合には共鳴磁気散乱コントラストから磁化の深さ依存性評価が可能と期待される。

これらの先行例を踏まえて KEK 放射光でさらに進んだ材料研究の観点から望まれるのは、（I）反応過程/形成過程などの In-situ 解析を実現するための時分割測定（時間変化）と、拡散/構造揺らぎを解析するための Photon Correlation（定常/平衡）の切り替え、（II）トモグラフィックな GI 配置の小角および小角高角散乱測定を偏光スイッチングや化学シフトの利用によって、深さ/元素/化学状態/磁気構造/キラリティーの 3 次元分布評価を実現す

ることである。トモグラフはデバイス構造などのようにトップダウンで材料を加工したヘテロ構造の中にナノ構造が分布しているような場合、動作中の各位置での構造・状態を評価するために重要であり、GI に限らず透過でも重要な手法となると期待される。

（3）必要とされるビームラインと設備

1.中エネルギー領域（5-10keV） 高フラックスマイクロビーム SWAXS ビームライン

必要な装置：高精度試料位置/角度制御機構つき小角・高角複合散乱計測装置

→XAFS との組み合わせの場合には蛍光との分別手法（湾曲結晶光学系か数百 eV のエネルギー分別が可能な 2 次元検出器）

2.低エネルギー領域（A:100-800eV、B:1～4keV） 偏光制御単色マイクロビーム散乱ビームライン

A: 高精度位置制御機構つき偏光制御小角(広領域）散乱測定装置/クライオステージ

B. 高精度位置角度制御機構つき小角・高角散乱吸収測定装置

3. ピンクビーム(バンドパス）による同時散乱分光トモグラフ装置 XAFS 解析に必要な程度のバンドパス（高調波は含まない程度、硬 X 線で数百 eV、軟 X 線で~100eV）を想定。または１００eV のエネルギー分別能のある 2 次元検出器（吸収端直上で蛍光を排除して 2 次元検出可能な検出器）

4. Off-line 予備評価／加工ステーション

FE-SEM/EBSP、FIB（試料のマイクロビーム用の予備評価（方位だしなど）と微細切り出し加工。低レベルクリーンブースと Ar/N_2 置換グローブボックス

4 の装置群は次世代光源による研究がマイクロビーム、軟 X 線の方向を指向することにより、測定に用いる試料自体がマイクロメートルレベルで結晶方位や試料内での採取位置などの選別と準備の高精度化を必須とするようになることへの対応として必要である。コスト的にビームラインごとの設置やユーザ側だけでの全面的な対応は現実的ではないため、BL でのマシンタイムに対応した準備のための基盤ユーティリティーとしての整備は重要と考えられる。

5-6. GI-SAXS 法を活用した界面の構造ダイナミクス解析に基づく界面反応過程の解明

(1) 背景

表面・界面の組成・高次構造は材料の濡れ性や接着性等の重要な物性を左右するため，各種分光法（和周波分光，赤外分光など）と併せて GI-SAXS 法に基づく評価・解析が展開され，科学的に十分な成果を収めている。従来の GI-SAXS 法は一部を除いては**静的測定**が主であり，その対象も「表面（気体-固体界面）」が大半であったが，表面における分子運動性，外部応答に対する構造変化などの「**構造ダイナミクス**」の詳細を把握する事がさらに求められている。X 線散乱法の最大の特徴は，X 線の高い透過性と非破壊測定，すなわち，あらゆる環境下における「**その場同時測定**」が可能な点であり，「**構造ダイナミクス解析**」に対して唯一無二の手法となり得る。また測定対象も「表面」のみならず，気体-固体，液体-固体，液体-液体の「界面」の応用実例が多く，また科学的にも未踏領域である。したがって，各種「界面」の構造ダイナミクス測定に特化したビームラインは極めて大きな潜在的需要を持っているといえる。特に，界面においてはバルク状態（溶液，溶融体，固相）における常識では予期できない種々の化学反応（触媒反応，分解反応）が起こると考えられているが，そのほとんどが未解明である。界面の極小領域における反応の解明には大きな困難を伴うことが容易に想像できるが，その分，科学的のみならず産業界に対しても大きなインパクトを与える成果が期待できる。KEK 放射光の特性，特にマイクロビーム，コヒーレント光，軟 X 線（波長可変）を活用した「構造ダイナミクス解析」と「X 線分光法」等を融合した新技術によって初めて界面反応過程の解明が達成されると考えられる。

以下に，適用が期待される具体的な事例，測定対象を界面の種類により分類し，列挙する。

(1) 気体-固体界面

(1-1) 化学気相法(CVD 法)による各種炭素材料の生成過程の解析(グラフェン，CNT 等)

(1-2) 各種高分子のプラズマ処理過程の解析（プラズマ処理による表面改質・接着性向上）

(2) 固体-液体界面

(2-1) 摩耗の化学全般（潤滑油添加剤の吸着，表面吸着分子構造，摺動・摩耗に伴う化学反応）

(2-2) 表面開始重合（ATRP 法など）過程と高分子鎖形態の追跡

(3) 液体-液体界面，気体-液体界面

(3-1) 界面重合反応：ナイロン 6,6 など各種エンジニアリングプラスチックの重合反応解析

(3-2) 物質輸送：抽出・分離のダイナミクス解析，層間移動触媒の空間分布

(3-3) 液界面上のダイナミクス：コロイド粒子の界面における自己組織化など

上記のうち特に（3）については，重力により液界面が常に地面と平行になるため，**X 線ビームを試料に対して傾斜させる必要**があり困難を伴うが，実現すれば極めて優位性の高い技術となり得る。

（2）KEK 放射光における新展開と期待される成果

（1）気体−固体界面における構造と反応解析

グラフェン，カーボンナノチューブ(CNT)等の低次元ナノ炭素材料は，特異な電気的特性や高い力学強度を有することから，次世代の機能性電子材料（透明電極など）や高機能性フィラーとして高い注目を集めている。特に，グラフェンの先駆的物性研究成果は 2010 年のノーベル物理学賞対象となった。当時の研究に用いられたグラフェンは，黒鉛からセロファンテープで剥がし取って得られた小さな破片であり，その優れた電子物性をデバイスへ応用することは困難であった。しかし近年，極めて清浄な基板上での CVD 法による 450 φ にも及ぶ大面積単層グラフェン合成(Lee *et al*. *Science* **2014**, *344*, 286–289)や数百 μm 長の CNT の量産化技術(http://www.zeon.co.jp/press/151104.html)が報告され，技術的には極めて高い水準に達しつつある。この CVD 法の詳細な科学的知見を得ることができれば更なる飛躍的発展が期待できる（二次元のグラフェンの核が基板上にどのように出現し，成長するのかは未解明な点が多い）。CVD 過程における，その場 GI-SAXS および軟 X 線 XAFS 測定（おもな対象は炭素，窒素，酸素等の軽元素，Si，及び Ti，Ni，Co などの遷移金属）が実現すれば，GI-SAXS を活かしたグラフェン・CNT の分子配向・結晶構造等の構造解析と，XAFS を適用した基板（触媒）の電子状態やグラフェン・CNT の反応機構の定量解析（成長末端における炭素―炭素結合状態，sp^2，sp^3 の分率，基板との結合状態の評価）が達成され，大面積化に不可欠な核生成・成長過程機構を解明できると期待される。すなわち，大面積化・欠陥の制御には核形成機構の理解とそその知見に基づく基板の形状・物理化学的性質（どの結晶面が最適なのか，核形成に有効な不均一核となり得る欠陥構造の解明など）の制御，核成長機構（成長末端の化学状態）の理解に基づく反応条件の最適化が不可欠である。また，本技術は高分子表面の改質技術として広く利用されているプラズマ処理工程における表面の組成・化学結合変化と構造変化の追跡にも適用できる。

（2）液体−固体界面におけるダイナミクスと反応解析

あらゆる機械の摺動部に存在する液体-固体（潤滑油-基材）界面で起こる摩擦・摩耗は，機械のエネルギー損失の主たる原因であるため，その低減が常に望まれているが，摩擦・摩耗機構に関する詳細な科学的知見は未だに乏しい。摩擦・摩耗には界面の分子のダイナミクスや化学反応が深く関与していると考えられ，マイクロビームコヒーレント X 線による摺動部の極小空間におけるその場ダイナミクス解析が望まれる。摺動部の基材間隔は nm ~ μm スケールであるため，極小サイズ（10 nm ~ 1 μm）の X 線が必要となる。また，摺動部界面における添加分子（MoS 等の無機平板状結晶や，界面活性剤・両親媒性ブロック共

重合体などの有機分子）の定常状態におけるダイナミクスの解析にはコヒーレント X 線を活用した **X 線光子相関法**(XPCS)が適している。特に，高分子添加物は末端・側鎖等を介して基材界面に吸着することで潤滑性を発揮する（基材に吸着した高分子ブラシ層が潤滑油で膨潤し浸透圧を生じる結果，基材間に斥力が作用する）と推測されるため，この摺動時の吸脱着過程を捉えることができれば合理的な分子設計に不可欠な知見が得られる。さらに，これらと軟 X 線 XAFS（対象は高分子を構成する炭素，窒素，酸素などの軽元素）を併用できれば基材の化学反応(摩耗)の追跡が可能となり，これまで未踏であった構造と反応の相関を解明できる。また，この手法は高分子分野で近年盛んに研究が展開されている高分子ブラシ（固体界面に高密度にグラフトされた高分子）の反応機構・ダイナミクス解析にも適用可能と考えられる(**図 1**)。高分子ブラシは高分子潤滑剤の理想的なモデルでもあり，また基板に拘束された高分子鎖はグラフト密度に応じてバルク・溶液系と異なる特異的な挙動（膨潤に伴う高い伸長度，大きな浸透圧など）を示すことから，生成過程や膨潤過程を定量評価が望まれている。高分子ブラシの多くは表面開始原子移動ラジカル重合(ATRP)法により溶液中で作製されるが, その成長過程を直接評価した例はほとんどない(Limpoco *et al*. *JACS* **2011**, *133*, 14864–14867. 光リング型共振器の共振周波数と外部屈折率の相関を利用してブラシ層を評価)。ATRP 法は成長末端が Br 等のハロゲン原子であり，Br 末端の解離･結合によって反応が進行する。したがって， Br 吸収端近傍の X 線による液中 GI-SAXS 測定を実施できれば, 高分子鎖形態と成長度の相関をリアルタイムで観測が実現し，鎖成長の均一性についての知見が得られる（X 線を溶液表面から入射することになるため，ブラシ層に対して任意の角度で X 線を入射するには，基板ではなく線源を傾ける必要がある）。

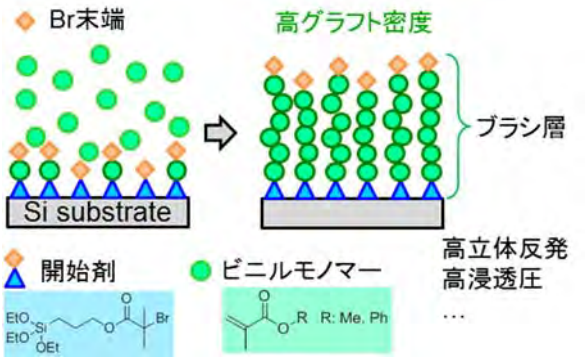


図 1 高分子ブラシ成長過程の模式図.

（3）液−液界面，気−液界面におけるダイナミクス

液界面は固体界面と異なり，物質の並進・回転運動が極めて活発であり，ダイナミクスに特化した計測が特に望まれる。液-液界面ではナイロン 6,6 に代表される界面重合反応や光合成の鍵過程である電荷分離過程など，界面を通じた物質の輸送に関わる興味深い現象が測定対象となる。界面重合は水層と油層に各々溶けている塩基性モノマーと酸性モノマーが界面で反応することで反応が進行し，層間移動触媒(塩)を添加することで飛躍的に重合度が向上する(**図 2**)。また，重合対象は不溶・不融の高分子であるため，界面において秩序化(固化)が重合と同時に進行する。波長可変の GI-SAXS を適用すれば，層間移動触媒の空

間分布，および高分子の成長・秩序化過程を同時に捉えられると期待できる。また，液界面におけるダイナミクス（拡散，凝集など）が関わる興味深い現象として，コロイド微粒子の秩序化が挙げられる。コロイド結晶はフォトニック材料，イオン輸送材料へ応用展開され，極めて多くの論文が報告されている分野である。コロイド粒子は臨界濃度を超えると Alder 転移により結晶化し rhcp (random hexagonal close packing)構造を形成することが理論的に予測されているが，液界面やメニスカスにおいてはより低濃度で秩序化し，面心立方格子を形成しやすいことが知られている。この秩序化過程には液界面におけるコロイド粒子の特異的な運動と凝集が関わっていると推測されるため，GI-SAXS，XPCS を併用した構造ダイナミクス解析が極めて有効な手段となり，コロイド化学の飛躍的進展に大きく寄与すると考えられる。

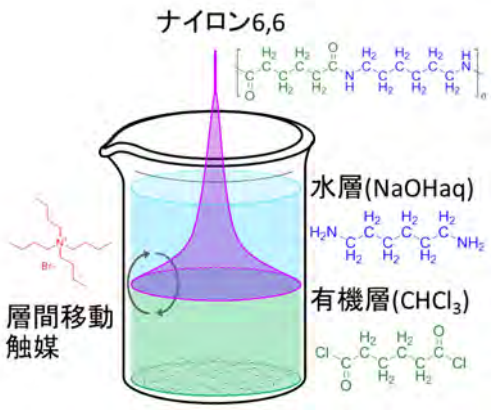


図 2 ナイロン 6,6 の界面重合の模式図.

（4）まとめ

以上に列挙したように，マイクロビーム，コヒーレント光，軟 X 線と GI-SAXS 測定技術の複合化が実現すれば，あらゆるソフトマター界面現象，特に反応が関わる複雑な現象に関する未解決問題の端緒が開かれ，科学的なインパクトのみならず，産業界に対しても極めて有益な成果が得られると期待される。

（3）必要とされるビームライン・設備

10 nm ~ 1 μm サイズのマイクロビームコヒーレント X 線(高空間コヒーレンス性の光源)。
XPCS 測定に適用可能な高感度・高速応答・高解像度検出器。
X 線の入射角を変更可能な光学系（液体界面）。
XPCS 測定のための単色光と，XAFS 測定のための軟 X 線～テンダーX 線（100 eV ~ 4 keV）にわたる広波長域の X 線の即時切替が容易な光学系（XPCS 測定と XAFS 測定を同一の光学系で実施することを想定）。
窓材の影響を極小化するための試料周りの工夫（線源，試料，検出器を全て真空環境，または He ガス環境とする一体式チャンバなど）。

5-7. 材料の破壊を予測し高性能化・信頼性獲得に貢献する！
～X 線ナノビーム・回折トモグラフィーによる物質の破壊現象の解明

(1) 背景

物質の破壊は身近な現象であるとともに，その予測・制御はあらゆる工業製品・社会インフラの開発・維持・管理の根幹に係わる極めて重要な課題である。また，軽量で高強度な材料の開発は，航空機や自動車などの輸送機器が排出する二酸化炭素や消費するエネルギーを大幅に削減する効果があり，地球環境の保全に大きく貢献すると期待される。これらを実現するためには，物質の破壊現象の本質を捉えることが重要である。

脆性な材料の破壊は製造過程で生じる微細な初期欠陥からのクラック進展によって引き起こされ，その強度はクラック先端の局所領域における物質の構造及びクラックの形状やサイズによって決まる。しかしながらこれまでの研究は，クラック先端の局所領域ではなく, X 線ビームなどによって照射された比較的大きな領域の平均構造と強度の関係を議論したものが殆どである。破壊の起点となる局所領域の構造を詳細に解析して，その領域の強度との関係を明らかにすることが不可欠である。

通常の力学試験では，予め位置を特定することが困難なために形状やサイズが不明な初期欠陥を起点として材料の破壊が生じるが，微細加工技術を利用して材料表面に微小なノッチを導入すると，所定のノッチ先端部を起点として材料を破壊させる事ができる。一例として集束イオンビームミリング装置(FIB)を用いて直径数μm の炭素繊維の表面にノッチを導入した後に引張試験を行った状況を図 1 に示す。図中の矢印で示したように，破断面にはノッチ先端の中央から放射状に延びたストライプが見られる。これは，この部分を起点として材料が破壊したことを示しており，力学試験に先立ってこの位置の局所領域の構造を明らかにする必要がある。このような局所領域の構造解析にはマイクロビームを用いた X 線回折などが有効である。しかし，マイクロビームを用いた場合でも，得られる回折パターンには光路上の全ての物質の回折パターンが重なっているという問題がある。従って，物質内の局所領域の回折のみを抽出する技術の開発が強く望まれ，これを実現しようとするのが本提案の目的である。

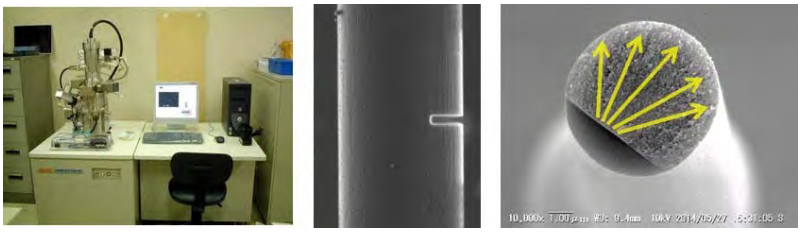


図 1　FIB(左)を用いて表面ノッチを導入した炭素繊維(中央)及びその引張試験後の破断面(右)。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

本提案の実施には高輝度のナノビームを用いることが不可欠である。更に，回折トモグラフィー技術を併用することによって，局所領域のみからの回折パターンを抽出する(図 2)。構造解析のターゲットである局所領域に対して，様々な方向と位置からビームを入射して回折パターンを測定し(図 3)，得られた回折パターンから逆問題を解くことによって特定の局所領域のみからの回折パターンを再構成する。このようなナノビームと回折トモグラフィー技術を併用した物質構造の解析は，濃度分布のようなスカラー量の分布に対しては, 既に研究例が報告されている("マイクロビーム X 線回折トモグラフィーの試み", 八木ら, SPring-8/SACLA 利用研究成果集, DOI 10.18957/rr)。これに対して本提案では，結晶配向など異方性のある物理量の空間分布を明らかにしようとしており，この点が新たな展開に繋がるものと期待される。物理量の分布の対称性や空間的な周期性など系の複雑さに応じた新たな実験方法及びアルゴリズムの開発が必要となると予想される。このため，本提案は極めてチャレンジングな課題であるが，その成果は破壊現象のみならず，固体物性に関する様々な現象の本質的解明に大きく貢献するものと期待される。本提案で得られる結果は，学術上・科学技術上重要であるだけではなく，社会インフラの維持・管理，地球環境の保全など社会的にも極めて大きな意義がある。

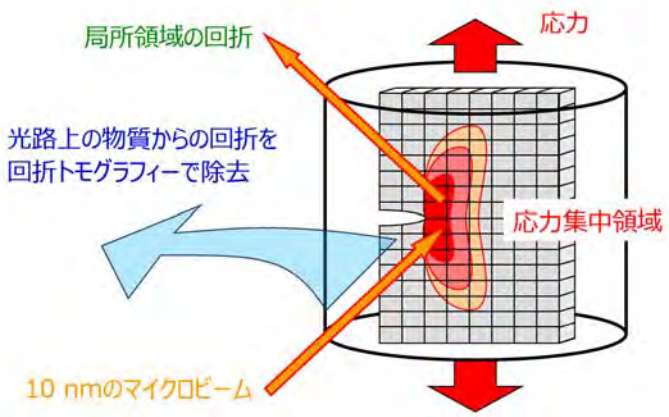


図 2　マイクロビーム及び回折トモグラフィーを併用して物質内の局所領域のみからの回折を抽出する方法。

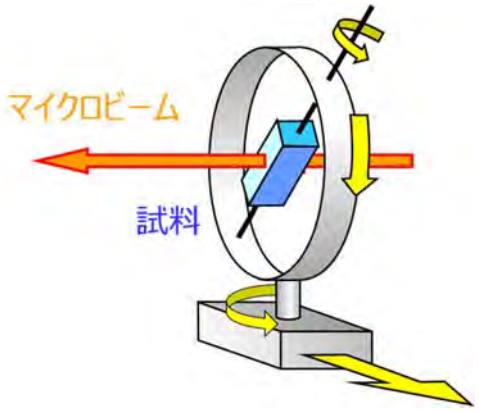


図 3　マイクロビームと試料の配置。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

① 断面サイズを 10 nm 程度に絞ったナノビーム

② ビーム照射位置のスキャン及び全方位の回折が可能な並進・回転試料台

5-8. 生体分子ネットワークの変化から生命の仕組みを探る
～光ピンセットを利用したX線散乱で探る、分解酵素による膜の破壊過程

(1) 背景

ソフトマター材料から成る最も精密なシステムは、生き物であろう。そして、生物は、細胞を基礎にして出来上がっている。細胞内では、タンパク質をはじめとする生体分子が相互に作用し、ネットワークを作って機能している。したがって、細胞機能を理解するためには、個々の分子の構造に加えて、他の分子と相互作用した際の構造変化を詳細に知る必要がある。つまり、ネットワーク全体での変化を捉えることが、必要不可欠である。

放射光の出現により、個々の生体分子の構造は詳細に解明できるようになった。次の課題は、相互作用した際の構造変化、生体分子間のネットワークの解明である。1つの細胞には何万を超える分子種が存在するため、細胞そのものは、さすがに無理であろうが、KEK放射光を使えば、数から十程度の分子種から成るモデル細胞系であれば、それらの構成要素の構造変化を、1度に捉えることが可能であると期待している。そのようなことが実現できれば、ネットワークの繋がりの中での、生体分子の構造変化による情報やエネルギーの流れなどを制御する仕組みへの理解が格段に進むと考えられる。

(2) KEK放射光における新展開と期待される成果

KEK放射光が実現した際に、はじめて測定が可能となるものとして、リン脂質分子の膜からなるリポソームを基本とするモデル細胞系の破壊過程観察について述べる。

リン脂質分子からなる膜は、細胞の内外を分ける境界を形作り、イオンチャンネルを始めとする機能する膜タンパク質を細胞や細胞内小器官の境界に留めおく役割を果たす。また、膜のリン脂質の分解生成物が、シグナル伝達物質として働き、情報の流れを作る役目も知られている。分解物を生成するのは酵素であるタンパク質である。このリン脂質分解物が情報の流れを生み出す過程の解明に、まず、取り組みたい。この膜と相互作用するタンパク質としてリン分解酵素ホスホリパーゼ（PLA2）を用いる。リン脂質膜をガラスビーズ（細胞の大きさを考慮し、径500nm程度）上に形成させて、このガラスビーズ内包リポソームを光ピンセットで水中に固定し、この1つのリポソームにX線ビームを照射し、単一のモデル系のみで小角・広角X線散乱実験が可能になるようにする。これまでX線ビーム内に多数のリポソームが存在する状況でしか、実験ができず、そのため、各リポソームでの破壊が同調せずに進行するために、全く解析ができない状況であった。この方法により、1つのリポソームで起こることを確実にモニターできる。具体的には、このガラスビーズ上に形成させたリポソームにPLA2を作用させ、リン脂質の分解に伴う膜の構造変化（破壊過程）を追跡するとともに、PLA2自身の構造変化をPLA2に含まれる硫黄原子に注目し、異常散乱により調べる。KEK放射光のコヒーレント、輝度等の性能からすれば、この実験は可能と考える。

従来のように、散乱像から構造変化を探っていく手法では系の複雑さから言って難しく、コンピュータによる分子動力学シミュレーションから得られる系全ての構造情報から、散乱パターン、および、その変化を計算し、それに基づいて解析していく方法を開発する。これには「京」のようなスパコンは必要になると思われる。

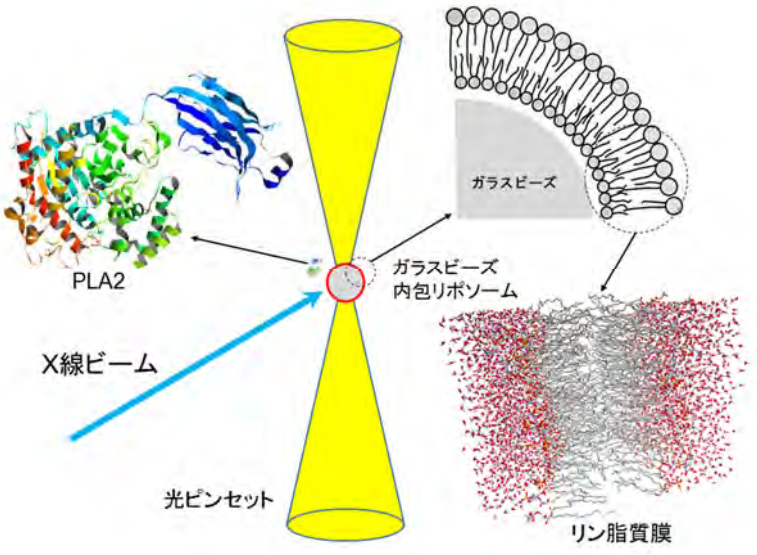


図 1　実験系の模式図。光ピンセットでリン脂質膜がガラス表面を覆ってガラスビーズ内包リポソームを固定し、その 1 つのサンプルに絞った X 線ビームを照射する。左上：リン分解酵素ホスホリパーゼ PLA2 の結晶構造解析から求められた構造、右下：分子動力学計算から求められたリン脂質膜の構造。

PLA2 には幾種類かあるが、それらは細胞内情報伝達、動脈硬化、皮膚炎、生殖等に関連していることが報告されている。この研究の成果は、細胞機能の理解、各種疾病の発病メカニズムの解明に貢献すると期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- 実空間距離で 1,000nm から 2nm までの範囲をカバー
- ビーム径を 1μm 程度まで絞れる
- 十分な試料操作が可能な空き空間のあるハッチ
- 測定試料（ガラスビーズ）固定用光ピンセット装置

5-9. 美肌のサイエンス～放射光利用研究で化粧品も貼り薬も画期的な製剤開発が可能に！

(1) 背景

経皮投与は、皮膚を経由して薬物を全身循環に送達する薬物投与法である。投与された薬物が末梢血管より直接体循環にはいることから、一般的な「経口投与」に比較して、肝初回通過効果の回避が可能で、副作用として頻度の高い消化管への直接障害もない。また、静脈内投与、すなわち「注射」のように痛みを伴わず、自己投与も可能であることから、臨床現場でも経皮投与に対する関心は高まる一方である。小児や高齢者にも投与しやすい剤形として、経皮吸収型製剤の開発は急務であるといえる。また、薬物送達法（Drug Delivery System、DDS）の手法の代表的な方法としても、経皮吸収型製剤は広く研究が行われている。活発に行われる研究のみならず、実際に上市されたいくつかの経皮吸収型製剤は、医療現場で高い評価を受けている。しかしながら、皮膚の表面には、「角層」とよばれる薄い膜が存在し、生体を脱水や異物侵入から保護する役割をもつ。そのため、通常の状態では治療上必要量の薬物を皮膚から体内へと送達することは難しい。そこで、薬物の皮膚透過を改善する方法が多数研究されている。なかでも、製剤成分として、主薬の吸収改善を図るような化合物を選択することにより、経皮吸収の効率が飛躍的に向上するため、化合物の選択や主薬との組み合わせが精力的に研究されてきた。より効率的な DDS として経皮吸収を考える際には、吸収改善をする化合物の皮膚表面での作用機構の解明が鍵となる。

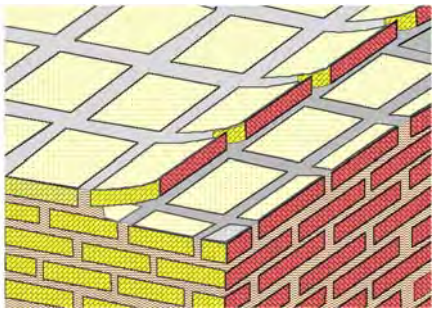


図１：角層のレンガ-モルタル構造。

角層はレンガ - モルタル構造として摸式化されるが（図 1)、レンガに相当する角層細胞が、細胞間脂質のモルタルに囲まれた構造をしている。モルタルに相当する細胞間脂質は、規則正しい配列、すなわち「ラメラ構造」を形成することで、皮膚のバリア機能の物理的な意味での中核を成している。細胞間脂質は、セラミド、コレステロール、脂肪酸が中心であるが、なかでも、セラミドと総称される細胞間脂質の約 50%を占める化合物群は、12 のサブクラスが同定されている。一方、セラミドの種類は分類の要であるスフィンゴシン塩基の構造ばかりでなく、炭化水素鎖長の変動もあるため、実際にはヒト角層のセラミドは 350 種類以上に上ると推定されている。

ラメラ構造を直接調べるには、X 線回折実験が有効であるが、細胞間脂質は、角層全体の質量のうちわずか 10%程度といわれ、細胞間脂質由来の回折を得るには、実験室レベルの装置では数時間の露光が必要である。しかも、得られる回折は夾雑信号のなかに埋もれており、詳細な解析を行うのに必要な S/N 比をもたない。角層は、タンパクや脂質からなるため様々な夾雑信号が細胞間脂質の回折の足元に横たわったり、重なったりすることで関

心のある回折ピークの解析を阻むことがしばしばであった。

そこで、近年、放射光 X 線を利用した実験が行われるようになり、ラメラ構造の解明が進んできた。細胞間脂質のラメラ構造は、約 13 nm の長周期ラメラおよび約 6 nm の短周期ラメラが六方晶または斜方晶に充填している（図 2）。なかでも、皮膚のバリア機能にとっては、長周期ラメラの存在が重要であり、また、細胞間脂質のなかにごく少量存在する水は短周期ラメラに含まれている可能性が示されている。

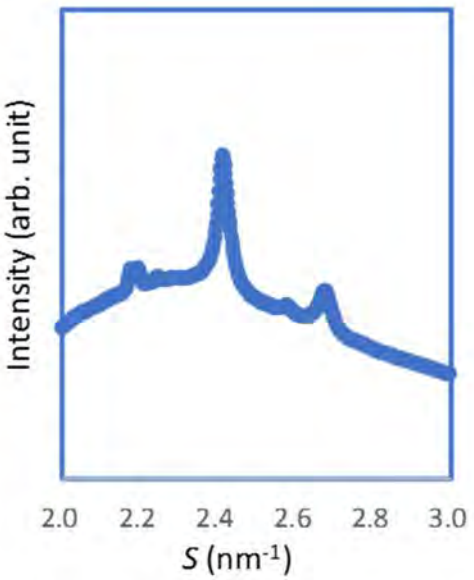


図 2：ヒト角層の X 線回折プロファイル。

物質の皮膚からの吸収改善は、医薬品の開発にとどまらず化粧品の開発にとっても重要な要因である。表皮層内の作用部位に成分を届けることは、機能性化粧品の開発には不可欠である。そのためにも、角層のバリア機能の解明は重要である。また、化粧品の業界では「皮膚」すなわち「肌」表面の特性を改善することで、美しい肌、すなわち「美肌」が達成されるが、肌の状態はバリア機能とも関連が深く、肌の視覚的状況、すなわち光学特性との関連も今後解明するべき課題である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

細胞間脂質のラメラ構造は、周期構造と充填構造の共存により形成されることから、ナノメータ領域を中心に広い領域の測定が必要である。現在小角散乱のビームラインでは、細胞間脂質のラメラ構造に及ぼす製剤成分の影響が次々と明らかにされている。各種の学会で、細胞間脂質のラメラ構造に関する発表には、口頭、ポスターの発表様式に関わらず、多くの参加者が聴講、質問に訪れている。このように本研究の社会的インパクトは非常に大きく、研究結果が間接的に製剤開発へと生かされており、ライフサイエンスの分野へのますますの貢献が期待される。今後も継続的に研究を行い、製剤成分の影響を詳細に調べるとともに、皮膚表面で生じる瞬時の変化に着目して測定を行いたいと考えている。とくに充填構造に関しては、図 2 に表れている S=2.4nm^{-1} および S=2.7nm^{-1} 付近の回折の比を求めることで、適用した成分が六方晶、直方晶のどちらに優先的に作用するか、また、これらの回折の液晶化の度合いを適用前と比較することで、細胞間脂質への作用の程度を定量化できる。種々の化合物の皮膚表面への作用について、データベース化できれば、今後の製剤開発にとって大きな指標となり、開発コストの削減に寄与するものと考える。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・マイクロビーム小角散乱用ビームライン

顕微観察および試料の二次元スキャンができる必要がある。顕微観察の際には、多様な観察に対応できるよう偏光観察、蛍光観察ができるものが望ましい。

・斜入射小角散乱測定

角層試料は少量であるが、より少ない試料量の測定が可能になると、研究の進捗が加速される。斜入射小角散乱測定であれば、角層 1 枚でその表面を解析することが可能になり、角層の表・裏の状態を個別に調べることもできる。

５．ソフトマター科学

＊担当一覧

監修：櫻井　伸一（京都工芸繊維大学）

執筆分担：

まえがき　櫻井　伸一（京都工芸繊維大学）

5-1　山本　勝宏（名古屋工業大学）、相澤　秀樹（摂南大学）、市川　創作（筑波大学）、秋葉　勇（北九州市立大学）、綿岡　勲・浦川　宏（京都工芸繊維大学）、伊掛　浩輝・原　秀太・高田　昌子・室賀　嘉夫・清水　繁（日本大学）、清水　伸隆（KEK 物構研）

5-2　三輪　洋平・沓水　祥一（岐阜大学）、森田　剛（千葉大学）、西川　惠子（千葉大学）、篠原　佑也（東京大学）

5-3　戸木田　雅利・石毛　亮平・丸林　弘典・野島　修一（東京工業大学）、加藤　直・川端　庸平（首都大学東京）

5-4　瀬戸　秀紀（KEK 物構研）、北畑　裕之（千葉大学）、住野　豊（東京理科大学）、武仲　能子（産業技術総合研究所）

5-5　奥田　浩司（京都大学）

5-6　石毛　亮平・戸木田　雅利（東京工業大学）

5-7　塩谷　正俊（東京工業大学）

5-8　高橋　浩（群馬大学）

5-9　小幡　誉子（星薬科大学）

校閲協力：

奥田　浩司（京都大学）、加藤　直（首都大学東京）、金谷　利治（J-PARC）、上久保　裕生（奈良先端科学技術大学院大学）、木村　正雄（KEK 物構研）、佐藤　衛（横浜市立大学）、清水　伸隆（KEK 物構研）、瀬戸　秀紀（KEK 物構研）、高橋　浩（群馬大学）、戸木田　雅利（東京工業大学）、沓水　祥一（岐阜大学）、野島　修一（東京工業大学）、平野　馨一（KEK 物構研）、山本　勝宏（名古屋工業大学）

6．強相関電子系科学

物質が示す特性は多種多様であり，人類の歴史において物質がもつ性質に応じた様々な活用が行われ，さらに新たな機能を目指した開発が繰り広げられてきた。原子や分子から構成される物質では，その性質は原子や分子がもつ電子の様々な自由度によって発現する。なかでも，電子同士が強く相互作用しあう強相関電子系と呼ばれる物質では，原子や分子が集合化することで生じる電子間のバランスによって構成要素単体では見られない複雑な物性を実現している。電子が自由な一粒子として振る舞うことで記述可能な系(一電子近似系)とは異なり，強相関電子系では集合体における電子の振る舞いを考える必要がある。

著名な理論物理学者フィリップ・アンダーソンによる“More is different”という言葉はこのことを的確かつ簡潔に示している。集合化することによって単体とは異なる，言い換えると，物質を構成する原子や分子そのものと，それらが多くの自由度をもって集まった系では，その本質を理解するために異なる概念を必要とするということである。強相関電子系科学は，多種多様な物質において，原子や分子の性質を追求するものとは異なり集合化したことで初めて露わになる物質の本質を探り，その機能発現を解明するための新たな学理の構築を目指すとともに，複雑に絡み合う電子の自由度を緻密に制御し，これまでに見られなかった新たな物性の開拓を推進する分野である。

強相関電子系における物性発現の顕著な例として知られる高温超伝導や，近年注目されるマルチフェロイックスなどは，物質のもつ本質を探究するための学術的好奇心の対象となるばかりではなく，これらの特性を活かした強相関デバイスの実現は現代における社会的責任・要請に基づく持続可能社会のためにも重要である。また，物質のもつ特性を活用するばかりではなく，その物質の本質を新物質・新物性の開拓へフィードバックさせることは持続可能社会のために必要とされる省資源の面からも期待されている。

強相関電子系の数十年にわたる研究の歴史のなかで，放射光は広く利用されてきた。従来，放射光による物質研究ではその構造（電子構造，結晶構造）を明らかにし，物質のもつ機能の発現機構が解明され，これによって数多くの物質の本質が明らかにされてきた。特に電子のもつ，軌道・電荷・スピンの自由度が結晶格子上で複雑に絡み合いながら振る舞う様子を明らかにするためには，放射光は必須のプローブといえよう。このように，複数の自由度をもち，その結果複数の相が競合する系においては，電子系の相分離がしばしば出現し，かつ今日ではこの相競合が，ある種の強相関物質特有の物性の発現に本質的に寄与していることが知られている。これは，一電子近似の崩壊した強相関電子系における，一電子相では記述できない物質の姿であり，まさに強相関電子系の複雑さを体現したものといえよう。このような複数の相が競合する系では，外部からのわずかな刺激によって，系全体の物性が劇的に変化する。高速応答や巨大応答といった現象を引き出す外場による物性の制御は，光誘起相転移現象や，マルチフェロイックスに代表される交差相関物性などに代表される。このように，複数の相競合によって実現される新奇な物性を理解するためには，従来の原子スケー

ルによる精密な構造の解明のみならず，多様な空間スケール・時間スケールによる観測を駆使する必要があろう。マルチスケールによる階層構造の理解は物質の本質を探る上で欠かせないものであり，この部分ひとつにしても高輝度・高コヒーレントという新たな放射光が欠かせないことは明らかである。

強相関電子系科学の確立のためには，物質開発から物性評価，また強相関デバイス技術の実証など，放射光利用のみならず，数多くのプロセスと，それらを統一的に理解するための理論的考察をも必要とする。そのためには，放射光利用のための実験ステーションのみならず，放射光施設に隣接した強相関電子系研究拠点を提案したい。これを実現させることにより，物質探索からイノベーションまでの一貫した研究体制，解析的アプローチの物質開発への迅速なフィードバック体制が整い，この分野における国際的競争力を高めるとともに，研究開発の低コスト化がはかれると期待される。

本章では，KEK 放射光によって測定可能となる強相関電子系科学分野において重要かつ注目されるサイエンスケースから，付帯設備や運営組織を含めた新たな放射光施設を活用することで期待できる展開を含めて，1)不均質系，2)マルチフェロイックス，3)強相関デバイス，という 3 つの項目について記述を進めたい。

6-1. 準粒子の波動関数と固有エネルギーの解明

(1) 背景

物質科学の特徴は、極めて多数の粒子の振る舞いを対象とすることにある。結晶の場合は、これを周期的な粒子の配列とそれからのずれに分けて考えることが有用である。20 世紀に確立した X 線結晶学は、結晶における粒子の平均的な配列を明らかにすることで、半導体産業の隆盛と情報社会の出現に大きく貢献してきた。

結晶の外部刺激応答は、周期配列からの動的なずれとして捉えられ、量子化された準粒子の振る舞いとして理解される。例えば、フォノン（格子振動）やマグノン（スピン波：図 1）は準粒子の代表例である。半導体中の電子や正孔も準粒子の一種である。準粒子は物質における情報・エネルギーの検出・伝達・変換を支配しており、応用の観点からも重要な役割を果たす（図 2）。強相関電子系物質では、電子や正孔がそのスピンや軌道を通じて、他の準粒子と強く相互作用する。その結果、準粒子間で頻繁な相互変換が生じ、時には、複数の準粒子が結合した複合準粒子として振る舞う可能性があり、電気マグノンや多極子波などが盛んに研究されている。このような強相関電子系の準粒子の特徴は、高速な情報・エネルギー変換を可能にするものとしても注目されている。

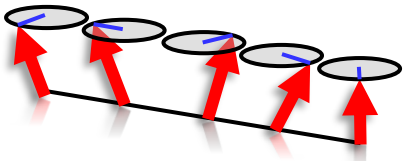


図１：スピン波の模式図

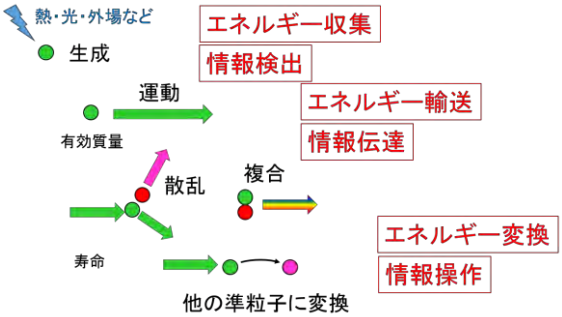


図２：準粒子と物質機能

ブロッホの定理により、結晶における準粒子は結晶運動量とエネルギーを固有値として持つ。したがって、強相関電子系においても、準粒子を理解するには、結晶運動量とエネルギー（分散関係）、波動関数、および、寿命を明らかにする必要がある。放射光は、準粒子を測定する有力な手段としても期待され、実際に非弾性散乱や光電子分光等の分光学が利用されている。

これらの手法における最大の課題は、エネルギー分解能にある。準粒子の分散関係や寿命の情報としては、少なくとも熱エネルギー程度（室温で約 25meV）のエネルギー分解能が望まれる。現状でこのエネルギー分解能を達成している放射光の手法はごく一部である。測定の統計精度を現実的なものとするためには、波数ベクトル立体角当たりの入射 X 線のフラックス強度の向上が絶対的に必要である。一方で、物質から放出される光子や電子を分解能よく測定するような検出器側の開発も必要となる。

既に述べたように、強相関電子系の準粒子計測に際しては、波動関数に関する知見も重要である。放射光計測においては、光子のストークスパラメータ（偏光状態）と分光強度の関

係に関する情報取得が望ましい。硬 X 線領域では結晶を用いた移相子や偏光解析素子の技術開発が進んだが、10nm より短波長の軟 X 線領域では、そのような技術が未開拓である。

さらに、強相関電子系では、しばしば熱平衡状態以外に様々な準安定相が存在し、空間的にヘテロな組織構造が生じやすい。このような場合は、準粒子の性質が領域ごとに異なることが想定されるだけでなく、組織構造の界面に特有の準粒子が存在する可能性も指摘されている。しかし、現状の放射光光源では、ビームサイズの問題から、ヘテロな組織構造下の準粒子の研究は困難である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光は、特に、軟 X 線領域において、エネルギー分解能の向上とスペクトル強度測定の精度向上の要請に応えるものである。また、10 nm スケールのビームサイズが実現することにより、ヘテロな組織構造を持つ場合においても、各領域における準粒子計測が可能となる。

かつて Photon Factory の出現により硬 X 線領域の移相子や偏光解析素子の開発が進んだように、軟 X 線領域でも移相子や偏光解析素子の開発が進むことが期待される。二次元検出器の利用による計数効率の飛躍的な向上（第ゼロ近似では効率は面積に比例する）と組み合わせることで、偏光解析 X 線非弾性散乱測定が可能になることが期待される。

軟 X 線の各種分光法におけるエネルギー分解能と空間分解能の向上、二次元検出器を用いた計数効率の向上、および、偏光解析法の確立は、軟 X 線分光手法を大きく発展させる。さらに、マイクロ波から紫外領域の光や中性子などの分光手法、輸送現象測定、モデル計算や第一原理計算等の理論的考察等を組み合わせることにより、強相関電子系における準粒子の分散関係と波動関数の理解が格段に進歩する。以下に、具体的な研究項目例を挙げる。

対象物質群	準粒子	計測手法	波及効果・意義
磁性誘電体	電気マグノン	軟X線非弾性散乱、中性子非弾性散乱、硬X線非共鳴非弾性散乱、テラヘルツ分光	ピコ秒スケールの電場による磁気制御
軌道整列物質	軌道励起	軟X線非弾性散乱、中性子非弾性散乱、硬X線非共鳴非弾性散乱、ラマン散乱	磁気熱量効果、電子ネマティック相互作用を利用した超伝導
かご状物質等	ラットリング	軟X線非弾性散乱、中性子非弾性散乱、硬X線非共鳴非弾性散乱、テラヘルツ分光	ラットリング超伝導、高効率熱電素子
トポロジカル絶縁体等	Dirac'電子、'Weyl'電子	スピン・角度分解光電子分光	スピントロニクス
半導体、磁性体等	スピン流	スピン・角度分解光電子分光、中性子非弾性散乱、軟X線非弾性散乱	スピントロニクス
水素結合型誘電体	プロトン－電子分極連成波	軟X線非弾性散乱、中性子非弾性散乱、硬X線非共鳴非弾性散乱など	有機エレクトロニクス素子

なお、近年では、準粒子をコヒーレントに多数作って時間軸で測定する方法が可視やテラヘルツ領域を中心に著しく発展している。高エネルギー硬 X 線を用いた時分割回折測定（動的構造解析）による準粒子計測との相乗効果も大いに期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・軟 X 線偏光解析素子開発用ビームライン

・エネルギーおよび位置分解能の高い軟 X 線用二次元検出器開発実験設備

・軟 X 線非弾性散乱用ビームライン（入射偏光制御、偏光解析、温度可変機構）

・スピン・角度分解光電子分光用ビームライン（集光機構）

6-2. 不均質系の機能発現機構

(1) 背景

強相関電子系は、高温超伝導・巨大磁気抵抗効果・巨大電気磁気効果などの量子効果が顕著な物性を発現し、基礎科学としての興味だけでなく、その応用面においても、注目されている研究対象である。これまでの放射光などの研究から、強相関電子系の多彩な物性の本質は、電子同士が強い相関を持ち、その電子の内部自由度（電荷・スピン・軌道）が、結晶格子上で複合的に結合することであるとわかってきた。また、これら電子多自由度の混成効果によって創出される量子秩序状態は外場に敏感なため、強相関電子系は、新規な物性が発現する恰好の舞台であることも明らかとなってきた。このような知見のもと、複数の電子秩序相が競合状態にある物質群が集中的に研究され、新たな物質が次々と開発されている。

強相関効果と自由度混成の効果により発現する量子相転移点近傍の相競合状態では、ナノスケールでの相分離・２相共存というドメイン状態の存在が常に報告され、このドメイン状態が物性発現の鍵を握っていることが示唆されてきた（図１）。この相競合により出現する不均質なドメイン状態の観測には、広い空間（nm-μm）・時間（ns-ms）スケールでの測定が必須である。しかしながら、コヒーレントX線イメージングやその時間変化を測定するスペックル散乱法、ナノビームイメージングといった先端的測定は、光源性能の制約のため限られた例しかなく、物性発現と相競合との関係は未解明の問題として残されている。

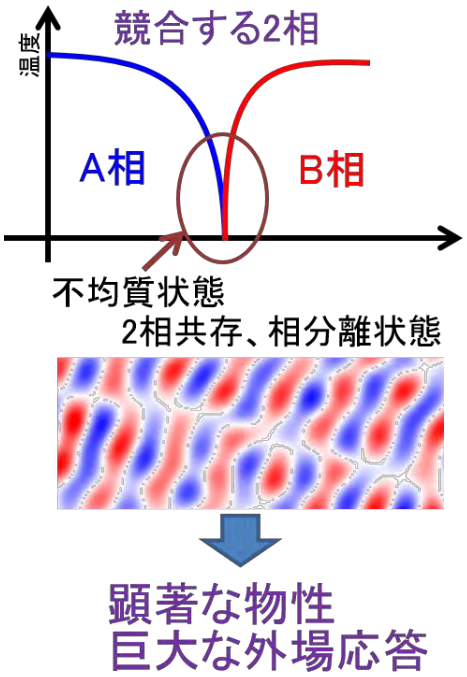


図１：強相関電子系の顕著な物性、巨大応答の鍵である複数電子相の競合と不均質（２相共存・相分離）状態。

さらに、複数電子相がエネルギー的に競合している結果、複合的な量子揺らぎが生じ、系に自発的に電子相分離状態が誘起される。従って、この不均質状態固有の物性を理解するためには、「nm」の空間スケール、かつ、「meV」のエネルギースケールでスピン・軌道・電荷・格子のダイナミクス（フォノン、スピン波、軌道波など）を測定して相互作用を解明することが必須となる。特に、基底状態として自発的に出現する複雑な電子相分離状態が、エネルギー的に競合する個々の電子相とどのような関係にあるかは未知の問題であり、空間分解した素励起の観測が期待されている。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

これまで国内では利用できなかった軟 X 線領域での高輝度光が、KEK 放射光では利用可能となり、空間分解能（～10nm）でのドメイン状態やドメイン壁まで含めた電子秩序状態、さらにエネルギー分解能（～10meV）での動的状態の観測が、共鳴軟 X 線非弾性散乱イメージング装置（図２）を用いることで可能となる。この非弾性散乱のナノスケール空間分解能での観測は、現在の中性子では不可能であり、これまで調べることの出来なかった全く新しい情報の取得が実現される。結果、不均質状態下での静的・動的状態を観測することで、相競合状態でのみ発現する物性、さらには化学圧力などで局所的に極端条件を実現した系での新奇な局所物性の発見と解明が期待できる。例えば、キャリア濃度の空間不均一構造が自発的に現れる銅酸化物高温超伝導体では、超伝導状態と非超伝導状態の相分離状態を、超伝導ギャップと電子秩序状態(CDW ギャップ)の同時イメージングにより直接的に捉えることで、電荷不均性と超伝導の関係を明らかにすることができる。特に、局所超伝導相における多自由度複合ダイナミクスの観測は世界でも例はなく、その背後に存在する相分離状態特有の電子状態が解明されれば、ノーベル賞級の成果となることは間違いない。そこで得られた知見をもとにミクロからナノスケールでの相分離状態の制御が可能となることで、長年の夢である室温超伝導体の開発、さらにその実用化が期待できる。このような広い空間・時間スケールでのダイナミクスの観測を通じて、これまで実態の把握が困難であった、強相関電子系を舞台とする電子多自由度の混成状態の微視的な理解が飛躍的に進み、結果として、近未来の強相関電子物質を用いた新規電子デバイスが、次々と生み出されることが期待されている。

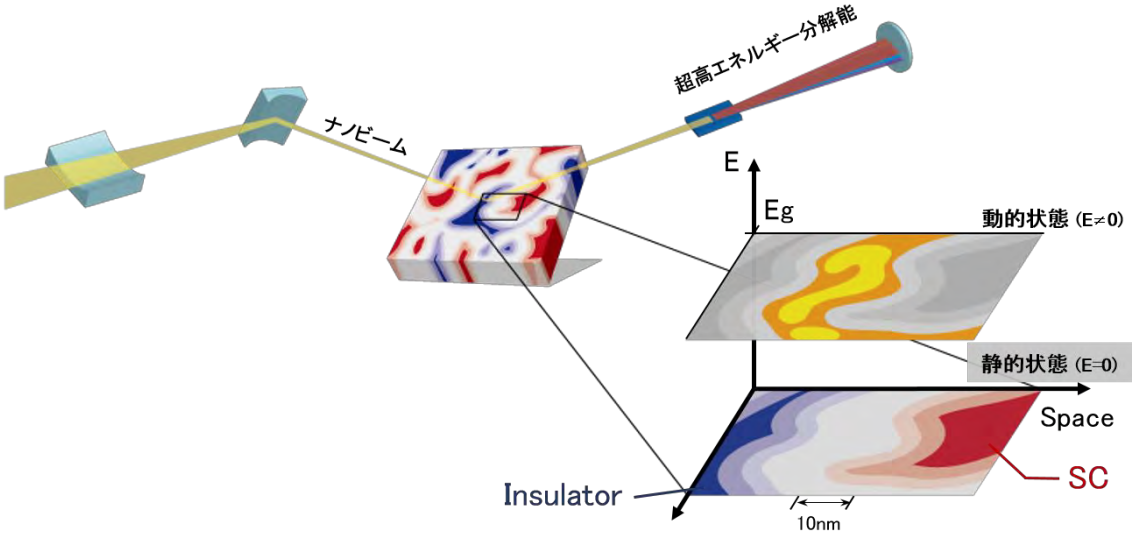


図２：共鳴軟 X 線非弾性散乱イメージング実験ステーション。ナノビーム(~10nm)と超高エネルギー分解能を組み合わせ、不均一系の静的・動的状態の空間分解イメージングを可能にする。右下の図にあるように、静的状態(E=0)と動的状態(E≠0)の違いとしての相分離状態特有の電子状態の観測が期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・共鳴軟 X 線非弾性散乱イメージング実験ステーション：空間分解能（～10nm）、エネルギー分解能（～10meV）、X 線偏光の任意制御。

・上述の実験に加え、相補的な実験が重要

軟X線コヒーレント回折実験ステーション、超高分解能スピンARPES＋ナノARPES実験ステーション、ナノビーム XAFS 実験ステーション、軟X線 STXM 実験ステーション、HAXPES ステーション実験ステーション、極限環境下構造物性実験ステーション、単結晶・粉末X線回折実験ステーション、各種基礎物性測定装置。

6-3. 本質的な不均一性を示す強相関電子系の電子状態研究の新展開

(1) 背景

1986 年の高温超伝導発見をひとつの契機として、固体中の電子集団が生み出す多様な量子相および物性機能の創出と解明を目指した研究が国内外で盛んに行われてきた。このなかで勃興した大きな物性物理分野が強相関電子系である。強相関電子系においては、極端に強い電子間斥力により電荷励起が抑制され電子のスピンや軌道の自由度が顕在化し、多彩な秩序形成や巨大外場応答などの異常物性が現れる。超伝導、巨大磁気抵抗、金属絶縁体転移、マルチフェロイクス、強誘電金属などの様々な現象がこれまで見出され、その一部は応用にむけた研究も進められている。また、モット絶縁相やスピン/軌道/電荷秩序相、金属相、超伝導相などが並列的もしくは階層的に共存したドメインや相分離状態（50 nm ~ 1 μm）を作るケースが多く確認されており、このような不均一構造が巨大な非線形応答や高温超伝導などに果たす役割についても議論されている。最近ではさらにトポロジカル絶縁体やワイル半金属の発見により電子バンドの持つベリー曲率の重要性が見直され、これと電子相関を重畳する形で強相関トポロジカル物質という分野が理論先行で広がりつつある。これらの物質においては界面やドメイン壁などの境界領域に出現するいわゆる「トポロジカルに守られたエッジ状態」の存在が本質的に重要であり、実験的にその電子構造を解明することができるかどうかが今後の本分野の発展を大きく左右することは間違いない。

強相関電子系を含む物性物理の研究を牽引するうえで先端計測は重大な役割を担ってきた。そのなかで、角度分解光電子分光（ARPES）は物質中の電子状態をエネルギーおよび波数で分解し観測することのできる数少ない手法のひとつである。スピン分解や共鳴元素選択測定などの多様化に加えその分解能や実験効率の向上は非常に目覚ましいものがあり、最近 10 年間の大きなテーマである単層物質（グラフェンなど）、鉄系超伝導体やトポロジカル絶縁体の研究などを顧みても、ARPES なくしてここまでの著しい発展はなかったと言えるであろう。しかしながら、実空間における ARPES の空間分解能は励起光源照射エリアのサイズによって決まっており、エリア全体を平均化した測定となる。一般的な励起光源のサイズは、実験室光源で数 mm、放射光源では数 10 μm～数 100 μm 程度であり、従って現在の ARPES 測定ではこれより小さな空間不均一構造が存在する物質の電子構造を分離して決定することは不可能である。この制約のために、これまで ARPES 測定試料の大多数は比較的劈開の容易な層状の大型単結晶や大面積単結晶基板を用いた表面電子系に限定されており、このことが常にダイナミックに展開される新物質研究や、上述のような不均一な電子状態（電子相分離、ドメイン、エッジ状態など）の解明に挑むうえでの妨げとなっている。

このような現状から微小領域の測定が可能な ARPES 実験への需要が日々高まっており、国外のいくつかの放射光施設では数μm 程度の微小集光光源による ARPES 装置の開発が進められている。しかしこれまで挙げたような不均一電子構造の観測を目指すためには、

軟 X 線領域で回折限界に到達しうる 100 nm 以下の光源が求められる。これまでこのような軟X線領域のナノスケール集光については、ゾーンプレート光学系により行われることが一般的であり、現在の技術で数 10 nm 程度の集光が可能である。しかしながらゾーンプレートでこのレベルの集光を行う場合には、仮想光源のピンホールやゾーンプレートの透過時に光子フラックスの大部分をロスしてしまい、ARPES 測定のために必要な光子フラックス（>10^{10} photons/s）を得ることが困難である。従って、数 10 nm のスポットサイズと ARPES 測定に耐えうる高フラックスを両立するためには、光源及び光学系の技術革新が必要不可欠である。

（2）KEK 放射光における新展開と期待される成果

次期光源では、ARPES 測定に適した真空紫外～軟 X 線領域において、数 10 nm 以下のビームサイズと 10^{10} photons/s 以上の光子フラックスを兼ね備え、更にデータ積算中の長時間にわたってビームサイズと同程度の位置安定性を有する光源を実現することが可能である。これにより従来の ARPES 測定における空間分解能の制約を打破し、新たに 1 μm 以下の微細構造を持つ物質の電子構造を空間的に分離したうえで決定することが可能となる。また、高い再現性でナノ集光ビームと拡散ビームの切り替えを行うことで、同一試料表面において結像型光電子顕微鏡（PEEM）によるドメイン構造の実空間イメージングと、ナノビーム ARPES による各局所位置のバンド構造を直接対応させることが可能となり、不均一電子構造の全貌を理解する上で大きな役割を果たすことが期待できる。

さらに、空間分解能を極めたうえでスピン分解測定を行うことにより、高温超伝導体や分子性導体をはじめ強相関系に広く見られる電子相分離状態や多様な磁気ドメインなどの不均一構造におけるエネルギー、波数およびスピンの空間分布情報を得ることが可能となる。100 nm 程度以下の微細電子構造に関しては原子分解能を有する走査型トンネル顕微分光（STM/STS）が強い威力を発揮してきたが、スピンと波数の直接的な情報が加わることにより、より完全な理解と応用にむけて大きく貢献できる。また、SQUID 磁気顕微鏡やマイクロ波顕微鏡など様々な走査型プローブ顕微鏡の進展により、トポロジカル絶縁体の端や境界に現れるエッジカレントの可視化が近年急速に進んでいる。ここで述べたようなナノ集光 ARPES 測定によってトポロジカルなエッジ状態が示す電子・波数・スピン構造の直接解明を推進することにより、低消費情報伝達や量子計算などが期待される応用にむけての道を拓くことができる。

（3）必要とされるビームライン・実験設備

本研究を実現するために、前述した拡散ビームによる PEEM 像観察とナノ集光ビームによる局所 ARPES 観察とを同一試料表面上で行うことが可能な複合システムを整備することが必要である。具体的なビームライン・実験装置の仕様を以下に述べる。

i. ARPES 測定に適した、30 eV ～ 1 keV のエネルギー範囲で高エネルギー分解能（$E/\Delta E$ > 10,000）と高フラックス（> 10^{13} photons/s）を両立したビームライン

ii. 100 μm程度の拡散ビームと数十 nm 程度のナノ集光ビームを同一試料位置に照射可能な集光光学系

iii. 1 nm レベルの移動精度と位置安定性を持つ超高真空試料位置決めステージと、PEEM 分析器、ARPES 分析器を備えた PEEM-ナノ集光 ARPES 複合システム

iv. 超高真空中で準備した試料清浄表面を評価するための、STM 装置や低速電子線顕微鏡（LEEM）– 低速電子線回折（LEED）装置等の付帯設備

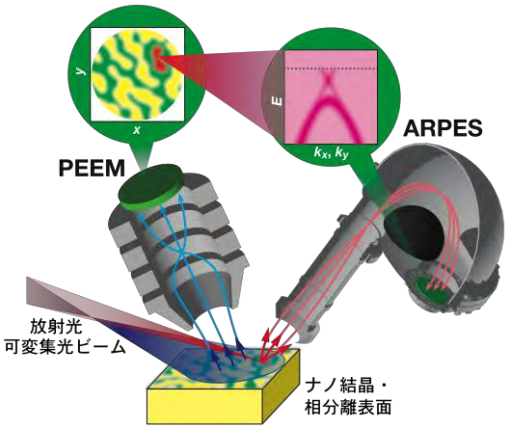


図 1: ナノ集光 ARPES における局所表面構造のバンド分散決定システムの模式図

6-4. コヒーレント共鳴軟 X 線回折による磁気テクスチャダイナミクスの観測

(1) 背景

電荷・スピン・軌道状態といった電子がもつ自由度のうち、電荷を使った従来の半導体エレクトロニクスに対して、スピンの自由度も活用したデバイス技術であるスピントロニクスが近年盛んに研究されている。例えば、電子のスピン角運動量の流れであるスピン流を使った磁場を介さない磁化の制御や、熱勾配によって生じるスピン流によって起電力が発現する熱電効果など、次世代デバイスへの応用が期待される物性現象が多く観測されている。また、空間反転対称性が破れたカイラルな格子をもつ磁性体において発現する磁気テクスチャの一種である磁気スキルミオンは、外的要因に対して安定なトポロジカル磁気構造を形成しているため、電流や電場、熱流、光による制御が可能となり、より高密度・低消費電力・高速で駆動するスピントロニクスデバイスへの応用が期待される。スピントロニクスデバイスでは、電場などの外場印加に対して磁気テクスチャの空間・時間変化を通じて情報の媒介や処理が行われるので、磁気テクスチャの外場応答ダイナミクスを解明することが基礎物性研究や応用研究では重要となり、それらを直接的に観測できる実験手法の必要性が高まっている。

数 nm から数百 nm に渡る磁気モーメントの空間変調構造となる磁気テクスチャを観測する手法としては、放射光を用いた共鳴軟 X 線回折が有効な実験手法である。この手法は、対象とする元素の吸収端に対応するエネルギーの X 線を使った X 線回折により、スピンや電子状態の空間変調構造を観測することができる。軟 X 線領域であればスピントロニクス材料に多く使われる 3d 電子系の L 吸収端や 4f 電子系の M 吸収端がある。さらに、コヒーレントな軟 X 線を用いることで、数 μm 程度の領域に渡ってスピンの実空間分布像を可視化することも可能になり、磁気テクスチャの不均一構造も観測することができる。散乱波と参照波の干渉を使ったホログラフィ測定や、オーバーサンプリング条件を満たす試料からの散乱像を使い位相回復アルゴリズムによって実像観測が行われる。高精度の磁気テクスチャの実像観測には、高い統計精度で高角領域まで測定する必要があり、そのためには高いフラックス・純度のコヒーレント軟 X 線光源が求められる。現状の PF 軟 X 線ビームラインにおいてもコヒーレント軟 X 線散乱によって磁気テクスチャの可視化は実現できているものの、有用な精度での磁気テクスチャの可視化には数百秒以上の積算時間が必要である。また、放射光のパルス特性を活用した時分割共鳴軟 X 線回折の場合、チョッパーを用いてパルス軟 X 線を切り出す必要があり、軟 X 線フラックスが大幅に減少してしまう問題がある。仮に全体の 10 分の 1 の電荷量を持つ孤立バンチから発生する軟 X 線パルスを切り出して時分割計測しようとする場合には、磁気テクスチャの観測に必要な積算時間はさらに 10 倍となる。そのため、一つの時間点の計測に数千秒の積算時間が必要になってしまい、現実的なマシンタイムでの磁気テクスチャダイナミクスの観測は、現状の放射光施設では不可能な状況である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光では、共鳴軟 X 線散乱による磁気テクスチャの実空間可視化で求められる高フラックスコヒーレント軟 X 線ビームラインの実現が期待される。例えば、KEK 放射光で想定される軟 X 線ビームラインでは、コヒーレント軟 X 線の純度（Fe の L 吸収端では 30 % 程度）が高輝度 SPring-8 軟 X 線ビームラインよりも 1 桁以上向上し、高い軟 X 線フラックスを有する PF 軟 X 線ビームライン BL-16A よりもコヒーレントフラックスで 3 桁程度の増加（10^{11} phs/s 以上）が見込まれている。そのため、既存の PF や SPring-8 の軟 X 線ビームラインよりも、格段に高速・高精度・高空間分解能で磁気テクスチャの可視化が可能になるであろう。

さらに、KEK 放射光で期待される高コヒーレントフラックスによって、時分割共鳴軟 X 線回折実験も短時間で計測できるようになるため、磁気テクスチャダイナミクスの直接的な観測も可能になると期待される。パルス外場を印加した後に、パルス軟 X 線を用いた共鳴軟 X 線回折によって磁気テクスチャを Pump-probe 計測すれば、放射光のパルス幅に対応する数十 ps 程度の時間分解能で観測できるだろう。これにより、例えば、パルス電流を試料に印加してスキルミオンなどの位相欠陥が試料中を運動していく様子や、試料の端にパルス電場や光を照射することでマグノンが強磁性体中を伝搬していく様子などが、カメラのフラッシュ撮影のように観測できると期待される。走査型 XMCD 顕微鏡や光電子顕微鏡 PEEM などの放射光を用いた時分割顕微実験で得られた情報と総合することで、より多角的な磁気テクスチャダイナミクス情報を抽出することも可能になるであろう。

コヒーレント共鳴軟 X 線回折を利用した顕微測定は、Photon-In-Photon-Out 実験であるため、磁場や電場などの外場印加と干渉せず、ある程度深い試料領域まで観測できることも利点として挙げられる。そのため、組み上げたスピントロニクスデバイスも測定対象となり、実際にデバイス動作中の試料状態を In-situ 観測できると期待される。

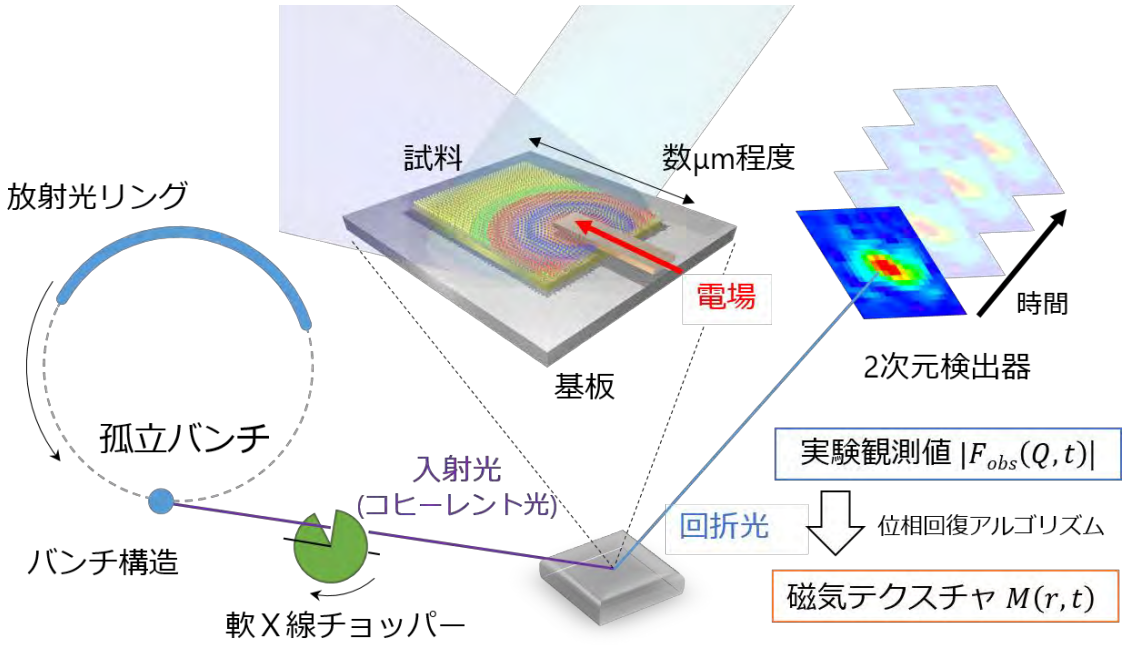
また、本手法は、透過配置の計測では強磁性の面内空間変調構造が観測できる一方で、図のような反射配置の計測では反強磁性の面内空間変調構造も観測できる。反強磁性でも磁気テクスチャが観測できるのは、回折現象を使った本手法の利点である。反強磁性体の磁気共鳴周波数は THz オーダーであるため、強磁性体よりも格段に高い周波数でのスピンダイナミクスがあり、超高速スピントロニクスデバイスへの応用が期待されている。KEK 放射光では高コヒーレントフラックスであることから、バンチ圧縮技術などにより更なる短パルス軟 X 線での時分割計測が可能になれば、反強磁性体の磁気テクスチャダイナミクスの観測も可能になると期待される。

本実験では、磁気テクスチャの空間分布の経時変化$M(r,t)$が測定できるので、時間・空間のどちらのダイナミクスも直接的に観測できる。そのため、得られた情報を時間と空間に対してフーリエ変換することによって低エネルギー・低逆格子空間領域の磁気分散関係$I(Q,\omega)$を計測できることになる。そうすれば、非弾性中性子散乱など逆格子空間における低

エネルギーのダイナミクス観測手法との協奏的な研究展開も期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- 高フラックスコヒーレント軟 X 線ビームライン
- 共鳴軟 X 線回折装置、共鳴軟 X 線小角散乱装置
- 軟 X 線チョッパー
- ビームラインに併設した試料・デバイスの作製・加工装置



6-5. マルチフェロイックスにおける動的交差相関物性の微視的解明

(1) 背景

電子間の相互作用が強い強相関電子系では電子は局在し、その電荷、スピン、軌道占有自由度、軌道角運動量、が自由度となる。これらは互いに強い相関をもち、競合あるいは協奏することで巨大な外場応答や高温超伝導等の多彩で興味深い物性を示す。複数の自由度が同時に秩序化(マルチフェロ状態)するとき、単体で高度な機能を実現することができる。実際に、歪み－電圧、歪み—磁場の応答を利用したピエゾ素子、磁歪アクチュエータが実用化されている。磁性と強誘電性は相関が弱いためにデバイスとしての利用は難しいと考えられていたが、最近、スピン配列により誘電性を発現する物質群が発見され、飛躍的にその性能が上がっている。当初は静的あるいは準静的な動作に限られていたが、測定技術の進歩により動的な領域まで拡張され、光の巨大非相反吸収、磁場による誘電率の制御、電流によるスピン構造の駆動、光誘起相転移などの動的な交差相関物性がつぎつぎと発見されている。近年では動作する周波数領域が可視光～GHz～THz まで広がり、新規エレクトロニクスデバイスとしての実用化が期待されている。

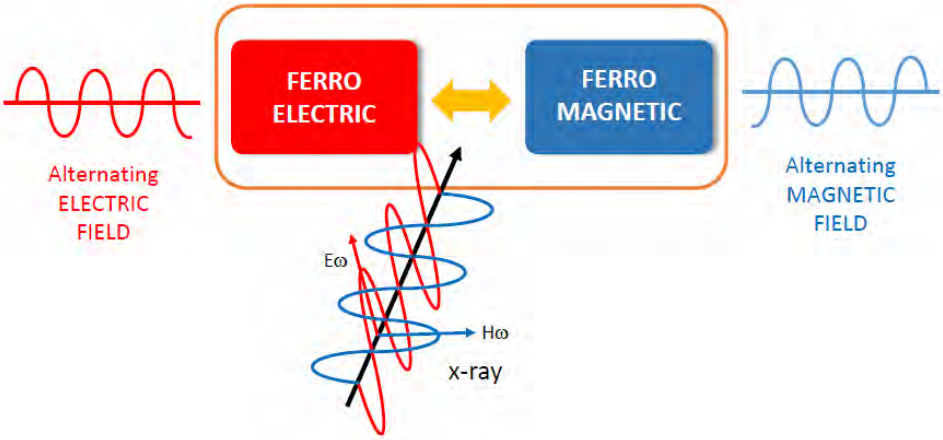


図１　マルチフェロイックスにおける動的交差相関と交流外場応答の概念図

マルチフェロイックスにおける交差相関物性、すなわち巨大電気磁気効果の発現機構の微視的な解明には、既存の放射光、中性子施設を用いた構造物性研究が中心的な役割を果たし、電気磁気効果の静的あるいは準静的なプロセス対称性について対称性の観点から理解が進んできている。一方で、動的特性に対するアプローチは進んでいない。その解明のためには、スピン、電気双極子、格子、電荷、軌道自由度、軌道角運動量といった複数の自由度が絡み合うダイナミクスを広い時間空間スケールで調べる構造物性研究が求められている。また、強相関系物質群のように多自由度間に働く複雑な相互作用が物性を支配する系は、素励起を相互作用が繰り込まれた準粒子とみなすことで単純化できるため、基礎科学の観点からもその励起状態を観測することは大変重要である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

複数の自由度が協力的に状態を変化させるマルチフェロイックスの動的特性について構造物性研究を行うためには、直接的に電子状態を観測し、しかも電場と磁場で「磁性」と「誘電性」を同期して励起し、その動きを同時に観測することができる放射光が最も適当である。具体例として光の非相反吸収効果を挙げる。非相反効果とは光の電場成分による励起と磁場成分による励起の干渉効果に起因して、その吸収量が入射方向により大きく異なる現象である。マルチフェロイックスではその方向依存性を外場で制御できるため光アイソレーター等のデバイスへの応用が期待されている。その動作原理を微視的に解明するためには、磁気応答を担うスピン励起と誘電応答を担う電子励起、Phonon を同時に観測し、その干渉や混成等の相関を Q 空間において調べることが必要になる。KEK 放射光において実現される数 meV 級の超高分解能非弾性 X 線散乱実験でそれが初めて可能になる。

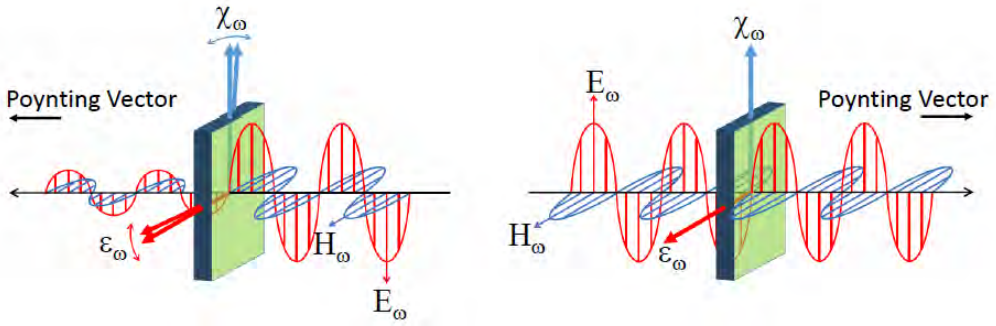


図２　マルチフェロイックスにおける光の非相反吸収効果

低速領域(GHz≈μeV)ではドメイン構造の揺らぎ、すなわちドメイン壁の動的特性が外場応答を決定する。KEK 放射光で実用化される空間コヒーレント光によりドメイン構造を調べ、その揺らぎを実時間で観測する。さらに、ナノサイズのビームを用いた非弾性散乱、弾性散乱実験によりドメイン壁の構造やダイナミクスを微視的に明らかにすることで、マクロな動的特性を決定するパラメーターを抽出する。

強相関物質群を実際にデバイスとして活用するにあたっては、動作温度、操作性など、改善すべき問題が存在する。本稿で述べた動的特性に関する微視的な研究の結果は、高性能デバイス開発に向けた物質設計に対する具体的な指針を与え、20 世紀に半導体産業が花開いたように、強相関エレクトロニクス産業としての発展の大きな原動力となるものと期待されている。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

共鳴軟 X 線非弾性散乱実験ステーション、軟 X 線コヒーレント回折実験ステーション、極限環境下構造物性実験ステーション、単結晶・粉末X線回折実験ステーション、 各種基礎物性測定装置。

6-6. 強相関エレクトロニクスの開発に向けた電子・構造物性を同時に解明する複合放射光実験

(1) 背景

強相関電子系物質はスピン・電荷・軌道などの電子がもつ自由度が秩序化し、外場によって電子状態が巨大応答や高速応答を示す。このようなユニークな特性は現在の半導体デバイスの性能を遙かに凌駕する次世代デバイスへの可能性を秘めており、強相関エレクトロニクスを実現するための研究が盛んに進められている。

強相関電子系における巨大かつ高速な応答現象は、従来の半導体デバイス設計において成功を収めてきた自由電子近似から逸脱した所にその本質があると考えられている。例えば相転移近傍の強相関電子系物質においては、強い電子同士の相互作用により電子秩序相がナノスケール空間に分離した相分離状態（多ドメイン状態）がしばしば出現することが知られている。相分離状態にある単一電子相のドメインサイズは、数 nm から数百 nm であり、これはナノサイズのデバイス構造を作製した際には無視できないスケールとなる。すなわちこのような場合には、強相関電子材料をナノサイズに加工した際に、その物性がマクロスケールでの物性とは全く異なるものになることが予想される。従って、強相関エレクトロニクス実現のためには、このような強相関電子材料のナノ構造体・ナノ構造デバイスそのものの電子状態・構造状態を明らかにすることが必要不可欠である。

このような強相関電子におけるナノスケール相分離の微視的な状態を明らかにする場合、電子状態や構造状態を単独で測定するだけでは不十分であり、同一箇所の電子状態と構造状態を同時に測定し、その相関を解明することが物性を理解する上で重要となってくる。しかし、これまでの計測技術では、光電子顕微鏡などナノスケールの空間分解能で電子状態を観測することは可能であったが、ナノスケールの電子状態と構造状態を同時に明らかにすることは困難であった。このような同時計測を可能とするためには、励起光源を非常に高い安定性で集光し、光源側にナノスケールの空間分解能を持たせることが必須となり、既存の放射光施設では集光サイズにおける空間分解能の限界が生じていた。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光では、光源スポットを高い精度でナノメートルオーダーに集光することが可能となるため、電子状態・構造状態を測定する全ての手法において、ナノスケールの空間分解能を持たせることや、更にそれぞれの手法を組み合わせた電子状態・構造状態の同時観測を行うことも容易に可能となる。

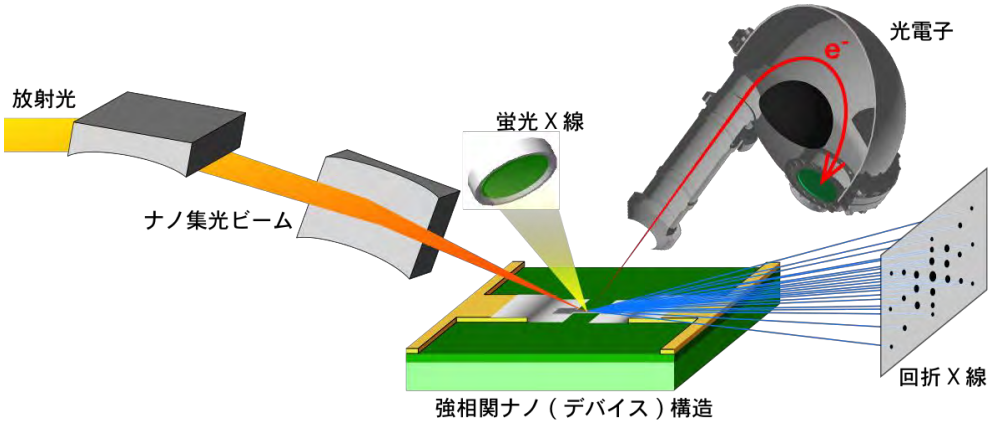
強相関電子系のナノ構造体における局所的な電子・構造状態を観測するために、数 10nm

程度まで集光されたナノビームを実現し、このナノビームに対して、様々な電子状態計測・構造状態計測手法を複合的に行うことができる実験ステーションを整備する。具体的な計測手法と必要なエネルギー領域としては、

- 電子状態：物質内部・デバイス界面のバンド構造を知るための軟 X 線角度分解光電子分光（300 eV ～ 1 keV）
- 電子状態：深く埋もれた界面の電子状態や深さ方向分布を知るための硬 X 線光電子分光（2 keV～ 10 keV）
- 電子＆構造状態：長周期の磁気・軌道秩序と電子状態との相関を知るための軟 X 線回折・散乱（400 eV ～ 2 keV）
- 構造状態：精密な結晶構造及び磁気・軌道秩序を知るための硬 X 線回折・散乱（6 keV ～ 10 keV）

などが考えられる。

強相関電子系の局所的な電子・構造状態の同時測定が可能になれば、強相関電子系で観測される巨大応答や強相関デバイス特性の微視的な発現機構を明らかすることができ、より巨大・高速の応答を示す強相関物質の開発も加速すると考えられる。例えばバナジウム酸化物等では金属–絶縁体転移（モット転移）と構造相転移が密接な関係にあり、またこれらの転移温度近傍では、各相が空間的にナノスケールで分離したドメイン構造をとることが知られている。このような相分離状態の単一ドメインにおける電子状態と構造状態の相関を明らかにするとともに、さらに系のサイズをドメインサイズ程度までナノスケール化した際にこの電子・構造状態がどのように影響を受けるかを直接観察することで、ナノデバイス構造における特異な物性のメカニズムを解明することができる。これらの測定結果をデバイス開発にフィードバックすることにより、巨大なスイッチング性能、大幅な省エネルギー化・高速化などの優れた性能を持つ強相関エレクトロニクスデバイスの開発が飛躍的に進むことが期待される。



図．ナノビーム電子状態・構造状態同時解析ステーションの概略

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

i. 数 100 eV ～ 10 keV 領域の広いエネルギー範囲で数 10nm のナノ集光ビームを同一焦点位置で実現できるビームライン

ii. 蛍光測定や全電子収量測定等の X 線吸収分光、角度分解光電子分光や硬 X 線光電子分光などの電子状態測定装置

iii. 表面・界面構造解析用回折計

iv. 磁気構造・軌道秩序などの電子秩序を観測するための共鳴 X 線散乱装置

v. レーザー照射や強磁場・強電場などの複合環境下での測定システム

vi. サンプル交換システムや In-situ 測定システムなど試料回りの自由度向上

vii. 試料（デバイス）作製から、各種物性測定といった付帯設備の充実

6-7. 硬 X 線光電子顕微鏡による強相関デバイス研究

(1) 背景

強相関化合物は電荷-スピン-軌道自由度の競合により、金属絶縁体転移や超巨大磁気抵抗等の機能的な物性を示す。近年ではこの複合自由度を制御することにより、従来の電荷制御型の半導体デバイスよりも省エネルギーで巨大な物性応答を引き出すことが期待され、次世代の抵抗変化型メモリや触媒材料、スマートウインドウ等への応用へ向けた研究が進められている。これらを集積化しデバイスとして利用する為には、ナノオーダーサイズの量子細線、または量子ドット構造における電子状態制御が求められる。

これまで軟 X 線領域において走査型光電子顕微鏡が開発され、グラフェン等の新規電子材料や酸化物抵抗変化メモリ材料等の次世代機能性材料の電子構造探索に対して大変な成果が上がっている。しかしながら、ナノ集光実現の為にゾーンプレートを用いるため、入射光のフラックスが大幅に損なわれる。また、実用的なデバイス構造の電子状態を決定する為には、キャップ層に埋もれた機能性材料の電子構造を直接観測する手法が求められる。以上の課題を解決する為には、5 ナノメートル程度の検出深さをもつ硬 X 線光電子分光（HAXPES）が適している。KEK 放射光の高輝度低エミッタンス放射光源によるナノ集光ビームと試料位置をナノメートルオーダーで制御するピエゾステージを組み合わせる事で、ゾーンプレートを利用する事無く高効率で顕微 HAXPES が可能となる。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光のナノ集光ビームではゾーンプレートを利用しないため、現在利用可能なナノビームと比較して数桁も明るい顕微分光実験が可能である。また、高い平行性を持つ硬 X 線光源の特徴を利用すれば、透過型移相子により高い偏光度で効率よく偏光を制御できる。直線偏光を制御し、軌道量子数に依存する光イオン化断面積の異方性を利用することで、価電子帯電子構造を軌道量子数に分解した計測が可能となる。これにより、キャリアドーピング等によりバンドギャップ中に現れるインギャップ状態の起源解明に力を発揮する。さらに、円偏光を利用すれば内殻光電子スペクトルの円二色性の符号により量子ドット等の磁化の向きを判定することが可能であろう。上記の線二色性や円二色性の測定では高いシグナルノイズ比が求められるが、高輝度ビームの恩恵を受け高効率で計測する事が期待できる。

また、材料評価の観点からは、特定のナノ構造を選んで不純物混入等の材料評価を行う事が期待できる。HAXPES に加えて、同程度の検出深さをもつ軟 X 線吸収分光も利用できると、価数の同定等を行う上で大変効果的である。また、内殻吸収スペクトルの直線偏光依存性を測定する事で、結晶場分裂や軌道占有量の評価に加え、波動関数の実空間分布を可視化することが期待できる。円偏光まで利用できれば磁気円二色性の測定も可能であり、デバイスの磁気特性まで評価できる事は論を待たない。さらに、硬 X 線と同じ位置に軟 X

線を照射する事ができれば、光電子の脱出深度を軟 X 線から硬 X 線領域まで連続的に変化させた光電子分光や、入射 X 線と反射 X 線により生成される定在波を利用した X 線定在波光電子分光を利用して、ナノデバイス構造や界面の電子構造を深さ方向に分解した計測が期待できる。また、励起エネルギーを内殻吸収端に選ぶ事で、価電子帯の電子状態を共鳴光電子分光により元素選択的に決定できる。以上に加えて、より固体内部の電子構造に敏感な軟 X 線共鳴非弾性散乱(RIXS)と組み合わせた研究の展開も興味深い。例えば、ピエゾステージで試料位置を走査しながら顕微 RIXS を測定することで、電荷励起を利用した実空間イメージングを計測できると考えられる。

また、光電子分析器側に、二台の静電半球型電子分析器をタンデムに組み合わせた運動量マイクロメーター型光電子分光装置（図 1）を導入すれば、特定の運動エネルギーを持つ光電子の二次元実空間マッピングを計測し、高効率で顕微 HAXPES を行う事が可能である。また、光電子分析器中の電子の飛行時間も補償されることから、検出される二次元面は等エネルギー面でありながら等時間面でもある。このため、フェムト秒パルスレーザーと X 線チョッパーを組み合わせた時間分解スペクトロスコピーへの展開も期待される。HAXPES では高い運動エネルギーの光電子を検出するため、微小な印加電圧や磁場であれば影響は比較的小さく、外場中でもスペクトルを計測可能と予想される。実際のメモリの駆動状況を想定した数ボルト程度のパルス電圧や磁場を印加した際のデバイスの電子状態の動的変化を計測できれば、デバイス開発において必要不可欠な評価技術になると考えられる。また、角度分解モードで内殻光電子スペクトルを計測すると、特定元素周辺の局所結晶構造を反映した回折パターンを得る事が可能である。以上の技術を融合すれば、強相関化合物の電子、スピン、格子の全ての自由度、およびそれらの動的挙動を一台の光電子顕微鏡で計測することができ、デバイス研究が飛躍的に発展すると考えられる。

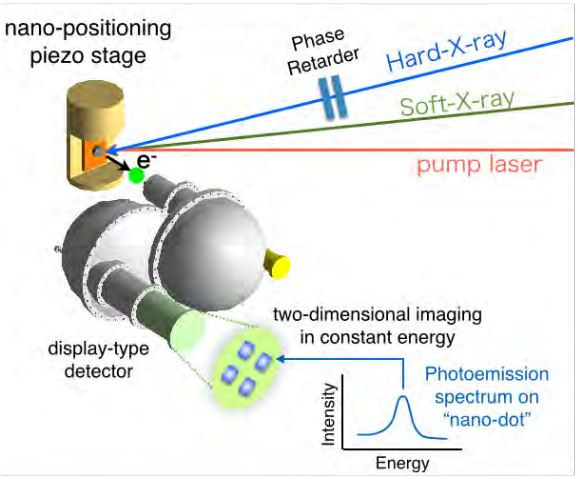


図 1　硬 X 線光電子顕微鏡の測定配置の例

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- 300 eV ~ 10 keV までの広いエネルギー領域で数１０ナノメートルの光を同一焦点位置で実現できるビームライン
- 硬 X 線様ダイアモンド移相子、及び軟 X 線アンジュレータ
- フェムト秒パルスレーザー、及び X 線チョッパー
- 二次元投影型（運動量マイクロメーター型）光電子分析器

6-8. 強相関酸化物デバイスの表面・界面物性：高輝度放射光による多自由度一括解析にむけて

(1) 背景

パソコンや携帯機器の高性能化にともない、電子デバイスの性能向上への要求はとどまることがなく、新しい動作原理にもとづくデバイスの開発が強く望まれている。2015年度の半導体国際ロードマップにおいて明確に示されたように、これまでの情報化社会を支えてきたシリコンなどの半導体デバイスにおいては微細化による高性能化や高集積化が明らかに理論的な限界を迎えつつあり、電子デバイスを様々な機能をもつ材料で置き換えることが喫緊の課題として浮上している。この次世代デバイスとして、強相関酸化物の類い希な機能を利用する「強相関酸化物エレクトロニクス」が注目されている。これは、強相関酸化物を用いたデバイスでは、電子の電荷のみを利用していた従来の半導体デバイスと異なり、電子の電荷・軌道・スピン・格子の多彩な自由度を利用することによる多機能化が期待されるためである。さらに、本質的に局在した電子の自由度を扱う強相関酸化物エレクトロニクスにおいては、その微細化極限が原理的に半導体にくらべて小さいという利点がある。この「多自由度」による代表的な機能として、銅酸化物における高温超伝導、マンガン酸化物における巨大磁気抵抗効果、バナジウムやチタン酸化物における金属-絶縁体転移等が挙げられる。

また、このような背景の下、固体物理学の研究領域においても、バルク体の物性研究から超構造による物性制御へと研究の舞台が急速に移動している。この移行はこれまでの半導体における研究経緯を顧みれば歴史的必然であり、「強相関酸化物エレクトロニクスに向けた酸化物表面・界面研究」は物性研究における大きな潮流となっている。半導体研究のアナロジーでいえば、強相関酸化物の多彩な機能を、電界効果トランジスタ構造、量子井戸構造などの手法により制御する試みが盛んに行われ、強相関酸化物ならではの新しい物理現象が多々報告されている。しかしながら、デバイス化に向けた次のステップに推移するためには、１）微細化（ナノ構造化）による電子の多自由度の変化、２）埋もれた界面における多自由度の精密解析、が必須となっている。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

これらの研究を推進するためには、*x*-*y* 面内に nm スケールのサイズを持つデバイス構造の表面・界面の深さ方向（z）数 nm 領域で発現する新奇な低次元量子（電荷・スピン・軌道・格子）状態を精密に決定することが鍵となる。そのためには、KEK 放射光におけるナノビーム（分析径～数十 nm 程度）を用いたナノ放射光電子分光で、ピンポイントに電子状態を観測するのが極めて有効である（図１）。電子・化学状態のみの計測で十分であった従来の半導体デバイスとは異なり、強相関酸化物デバイスの場合、その本質が電子の電荷・軌道・スピン・格子の多自由度にあるため、これらをそれぞれの自由度毎に決定する必要

がある。具体的には、電荷の自由度を光電子分光（PES）および X 線吸収分光（XAS）で、スピンの自由度をスピン分解 PES および XAS の磁気円二色性で、軌道の自由度を XAS の線二色性および共鳴 X 線散乱で、格子の多自由度を X 線回折で決定する。そのためには、これらの放射光解析を，真空紫外(PES，スピン分解 PES)、軟 X 線(XAS)、および硬 X 線領域(共鳴 X 線散乱，X 線回折)の広エネルギー帯域放射光を用いて複合的に一括で行う必要がある。特に、デバイス界面の測定は「埋もれた界面」の計測となるため、一般的にはシグナル強度が弱く困難を極めるが、これを KEK 放射光の超高輝度により可能にする。さらにナノビームを用いた表面回折から同一試料・同一領域の原子配置を測定することで，電子状態と構造を実験的に観測することが可能となる。これは，従来標準的であった理論と実験の比較である「パラメタを選べば，この理論で実験結果と矛盾しない」というレベルを超え，「実験を説明するにはこうでなくてはならない」という高いレベルでの議論を可能にする。

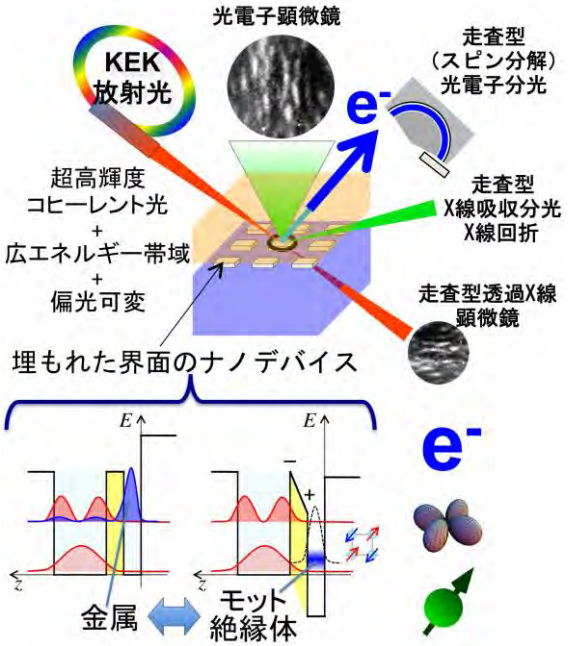


図１：KEK 放射光により可能となる強相関酸化物デバイスの多自由度一括解析の模式図。これらの解析をピンポイントで行うために、様々な顕微分光測定も複合的に可能となっている。

これにより、研究展開のボトルネックとなっている微細化されたデバイスにおける表面・界面状態の理解を，様々な自由度について一括観測することで、強相関酸化物エレクトロニクス発展に大きな役割を果たすことが期待できる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

○広いエネルギー範囲（30 eV ～ 10 keV）を高分解能かつ高輝度（30 ~ 2,000 eV 領域で分解能 > 30,000 かつフラックス > 10^{12}、2 ~ 10 keV 領域で分解能 > 50,000 かつフラックス > 10^{13}）でカバーする、広エネルギー帯域ビームライン

○全エネルギー領域で数十 nm 程度のナノ集光ビームを同一試料位置に照射可能な集光光学系

○作製した試料のその場（in-situ）解析が可能な酸化物薄膜作製装置とナノ集光 ARPES 複合システムが連結された複合装置

6-9. 光渦を用いた新しい観測手法による強相関電子物性研究の新展開

(1) 背景

強相関電子系物質中では，3d や 4f 電子の持つ電荷・スピン・軌道の自由度が絡み合い，多彩かつ新規な物性が発現する。新規物性は，単一の自由度によるもの（例えばスピンによる磁気秩序）だけではなく，他の自由度も巻き込んで形成された秩序によるところが多い。この代表例は電気と磁気が絡み合うマルチフェロイク系であり，スピンネマティック状態などが議論されている。また，複数サイトから構成される高次多極子(例えばスキルミオンやトロイダルモーメント)も注目されている。

共鳴 X 線散乱法は，このような電子秩序状態を観測する強力な手段である。実際，磁気八極子秩序や，トロイダルモーメント秩序がすでに観測されている。しかし、共鳴散乱は吸収端を利用するため、励起エネルギー領域に強い制限がある。特に 3d や 4f 電子軌道を直接的に観測できる軟 X 線領域では、波長が長いために広い運動量空間を用いることができない。一方、硬 X 線領域では運動量空間での制約は少ないものの，3d や 4f 軌道への遷移確率が小さいため，秩序状態にともなう信号強度が小さい。したがって電子状態の詳細を調べることは容易ではない。 遷移の選択則に伴う制約により，現在までに観測された多極子の最大ランクは 3（八極子）である。

最近、光の位相を制御したコヒーレント X 線の生成および測定技術の開発が進み、軌道角運動量を持つ X 線(光渦)の生成と観測が報告されている。光渦は，らせん状ゾーンプレートなどで光の等位相面をらせん状に制御することによって実現される。図 1 は、軌道角運動量が 1 の場合の例で，ビーム中心の強度はゼロで位相特異点になっている。X 線光渦の軌道角運動量を利用すると、非共鳴 X 線散乱においても高次多極子を観測できる可能性がある。一方，共鳴散乱においては，例えば 1s から 3d への仮想遷移が，X 線の軌道角運動量により最低次の光学過程においても実現される。そのため，K 吸収端で直接的に 3d 電子状態をとらえる可能性がある。このように，X 線光渦のもつ軌道角運動量を制御することにより、高次多極子の振る舞いを新しい角度から研究する展望が開ける。しかし現在の光源では，エミッタンスが大きく，しかもコヒーレントフラックスが低いため、X 線光渦の有用性を十分に活かすことは困難である。

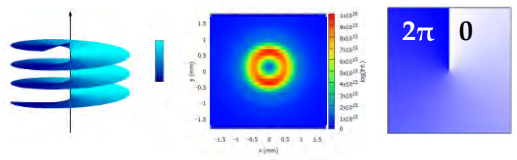


図 1:　軌道角運動量 l＝1 を持った光渦の波面、強度分布、位相。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光は超低エミッタンス光源であることから、コヒーレントフラックスの大幅な増加を見込むことができる。これにより、コヒーレント X 線の位相制御が可能になると期

待される。軌道角運動量を制御した光渦を用いた共鳴 X 線回折により、硬 X 線領域にある 3d 遷移金属元素の K 吸収端や 4f 希土類金属元素の L 吸収端で 3d 電子や 4f 電子状態を直接的に観測できる。これは現光源に比べて大きなメリットである。また高エネルギーの X 線を用いることで、任意の電子秩序に対して広い波数空間での観測が可能になる。また高圧・強磁場・低温下といった多重極限環境下での測定可能性も期待される。

さらに，この光渦の軌道角運動量により，通常用いられている双極子・四極子遷移より高次の遷移が許容となる。このような遷移を含む共鳴回折実験では、八極子よりもさらに高次の多極子秩序の観測を期待できる。またビームの広がりを積極的に利用すると，複数サイトから構成されるトロイダルモーメントやスキルミオンなども詳細に観測できる。これにより秩序状態波動関数の位相や動的構造を明らかにできる。

光渦の軌道角運動量は，トポロジー的には巻き数と見なされる。スキルミオンや超伝導体の渦糸などのトポロジカル状態と光渦の相互作用を研究することは，トポロジーの観点からも新しい展開をもたらす。例えば，光渦中心とスキルミオン中心の相対的位置により，共鳴散乱強度が特徴的な挙動を示すことが理論的に提案されている。またトポロジカルな局所状態の巻き数を観測することにより，局所的状態と大域的な秩序状態の相関についての知見が得られる。

電荷・スピン・軌道自由度による複合的な物性発現機構を理解するためには，秩序パラメータを観測し，基底状態からの励起構造を同定することが必須である。さらに外場環境下での挙動を明らかにできれば、応用も視野においた物性研究の新しい展開をもたらす。KEK 放射光はこのような強相関電子系研究のニーズに応えるものである。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・コヒーレント硬 X 線吸収用実験ステーション、コヒーレント硬 X 線共鳴散乱実験ステーション（両ステーションともコヒーレントフラックス 1.0×10^{12} 以上）

・極限環境下実験ステーション

・コヒーレント軟 X 線吸収用実験ステーション、コヒーレント軟 X 線共鳴散乱実験ステーション（両ステーションともコヒーレントフラックス 1.0×10^{11} 以上）

・コヒーレント状態を乱さない光学素子（ミラー・スリットなど）：光渦生成素子

６．強相関電子系科学

＊担当一覧

監修：若林　裕助（大阪大学）

執筆分担：

まえがき　熊井　玲児（KEK 物構研）

6-1　有馬　孝尚（東京大学）

6-2　中尾　裕則（KEK 物構研）、石井　賢司（量子科学技術研究開発機構）、
藤田　全基（東北大学）

6-3　石坂　香子（東京大学）、堀場　弘司（KEK 物構研）

6-4　山﨑　裕一（東京大学／理研）

6-5　佐賀山　基（KEK 物構研）

6-6　堀場　弘司（KEK 物構研）

6-7　藤原　秀紀（大阪大学）

6-8　組頭　広志（KEK 物構研）、若林　裕助（大阪大学）

6-9　水牧　仁一朗（高輝度光科学研究センター）、
中尾　裕則・倉本　義夫（KEK 物構研）

校閲協力：

奥部　真樹（東北大学）、小澤　健一（東京工業大学）、岸本　俊二（KEK 物構研）、
熊井　玲児（KEK 物構研）、組頭　広志（KEK 物構研）、齋藤　智彦（東京理科大学）、
酒巻　真粧子（KEK 物構研）、高野　秀和（東北大学）、田渕　雅夫（名古屋大学）、
手塚　泰久（弘前大学）、野澤　俊介（KEK 物構研）、間瀬　一彦（KEK 物構研）、
若林　裕助（大阪大学）

7．表面・界面科学

「表面・界面」というキーワードで私たちの身の回りを見渡すと，生活の隅々にまで表面や界面を利用したものに溢れているのに気づかされる。例えば，洗剤には両親媒性分子である界面活性剤が含まれており，これが水/油“界面”に単分子膜を形成してミセルを作ることで油汚れを落としている。Langmuir と Blodgett に端を発する単分子膜の研究は，現在でも自己組織化（SAM）膜による表面改質などの研究に引き継がれている。また，コンピュータやスマートフォンの集積回路には，シリコン基板とゲート絶縁膜の“界面”を利用してスイッチングする電界効果トランジスタ（MOSFET）が数千万個も搭載されている。ここでも界面が重要な役割を担っており，現在の IT 社会は界面により支えられていると言っても過言でない状況にある。

「表面・界面」利用のおそらく最初の全世界的な恩恵は，20世紀初頭にもたらされている。19世紀末に人類が直面していた課題は，増大した人口を支えるための食糧増産と，そのための窒素肥料の増産であった。しかし，当時の窒素源であるチリ硝石は枯渇が懸念されており，空気中の窒素固定法が模索されていた。そのような状況において，鉄触媒を用いてN_2とH_2ガスからアンモニアを合成するHaber-Bosch法の工業化が成功し，窒素の安定供給が保証されるようになった。窒素分子の解離反応のような通常では全く進行しない（あるいは極めて進行が遅い）化学反応が，鉄触媒のような不均一触媒を用いると，固体“表面”が反応場となることで促進される。しかも触媒自体は反応前後で変化しないように見える。触媒作用がなぜ，どのように発現するのかを追及する学問が「表面科学」として花開き，その成果の一つは，2007年にG. Ertlに授与されたノーベル化学賞（固体表面における化学プロセスの解明に対する業績）として結実している。

表面・界面科学は，固体表面，固液界面，あるいは固固界面のような境界面で特異的に発現する物理現象，化学現象を理解した上で，新規物性を開拓しその利用を追及する研究分野である。この分野では，技術革新による大きな進展がいくつかあった。一つは超高真空技術の確立である。これにより電子ビームやイオンビーム，真空紫外光や軟 X 線などをプローブやシグナルとして利用できるようになり，様々な表面・界面評価法が開発された。走査トンネル顕微鏡をはじめとする走査プローブ顕微鏡の登場は，それまでは想像でしかなかった固体表面の原子構造を実際に“見る”ことができるようになり，固体表面の認識を一変させた。さらに，その応用技術として原子一つ一つの操作が可能であることが示され，「機械による原子操作で化学合成をする」という Feynman が 1959 年の講演“There's plenty of room at the bottom”で概念を示した物質設計を一気に現実味のあるものとした。

シンクロトロン放射光の登場もまた，表面・界面科学研究に大きな進展をもたらしている。固体内部（バルク）に比べると表面や界面を構成する原子数は少ないため，表面・界面物性を評価するには高輝度の放射光はプローブ光として極めて魅力的である。また，表面・界面を構成する元素は一種類とは限らないが，放射光のエネルギー可変性を利用して

元素ごとにフォーカスした測定を行うことで，波長固定の実験室光源に比べて圧倒的に多くの情報が得られるようになった。高輝度・エネルギー可変という特徴を持つ放射光の登場により実現した（あるいは実用に足るレベルに達した）実験法は，表面・界面科学分野で良く用いられる手法だけを挙げても，表面 X 線 CTR 散乱法，X 線吸収分光，磁気円二色性分光，スピン分解光電子分光，準大気圧光電子分光，硬 X 線光電子分光など数多い。現在では産業界からの放射光利用研究の需要も高まりつつあり，基礎と応用の双方での分野進展が著しい。

KEK 放射光は，現在の PF 光源に比べると，輝度・コヒーレンス・集光の三性能が著しく向上した光源である。この新光源を利用して展開できる表面・界面研究として本章で取り上げるサイエンスケースは，私たちが早急に解決しなければならない二つの大きな課題，すなわちエネルギー・環境問題と Moore の法則の先にある次世代デバイス材料開発に取り組むものである。様々なアプローチで課題解決を目指すサイエンスを提案するが，その根底に流れる共通の理念は，“あるがままに”，“正確に”，“実時間で”物質を評価することである。そしてそのためには，空間分解能，エネルギー分解能，時間分解能の全てが同時に要求される測定が必須であり，KEK 放射光により初めて可能となる。21 世紀前半期に主流となるであろう表面・界面科学の先鞭をつけるサイエンスが，KEK 放射光から発展することが期待できる。

7-1. 表面・界面における原子移動の時空間構造研究

(1) 背景

電池をはじめとしたエネルギーデバイスや触媒反応におけるエネルギーの輸送・変換は，環境・産業の面で重要であり，かつ物理の観点で見ても非平衡統計力学に繋がる挑戦的な研究対象である。これらの機能を支配するのは図 1 に示すように固体表面・界面における電荷・原子の移動であるため，その時空間構造の理解が求められている。次世代蓄電池として期待される全固体二次電池においては，固体電解質と正極との界面におけるイオン輸送速度の向上が課題となっており，原子スケール，かつ μs から ms の時間スケールでのイオン輸送ダイナミクスの解明が求められている。また，GHz 領域メモリ材料の動作速度を決めるドメインダイナミクスの解析には 10 nm のスケールで ps～ns の時空間分解能が求められる。触媒反応過程の追跡では，ナノメートル以下の大きさの分子の，周期構造を持たない動きを見る事が必要になる。

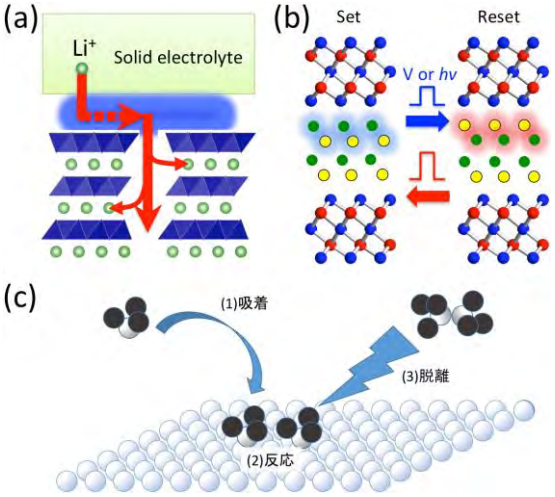


図 1：表面・界面における原子移動。(a) 全固体リチウムイオン電池界面のイオン輸送。(b) 相変化メモリ界面における原子変位。(c) 触媒表面での化学反応。

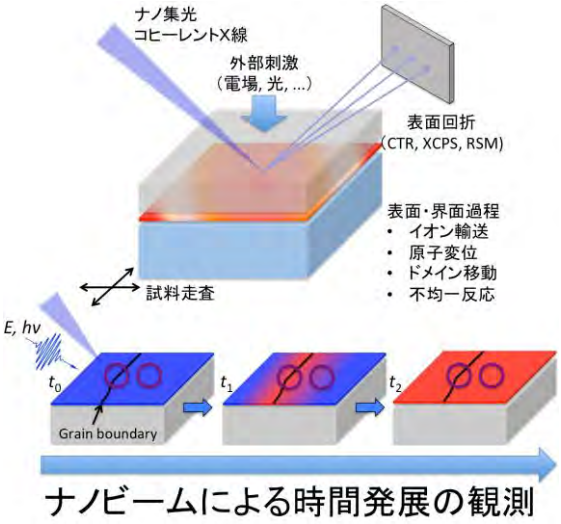


図 2：高コヒーレントフラックスのナノ集光X線を用いた表面・界面原子移動の時空間構造観測。

従来光源では，表面X線回折の時間分解能が秒程度に留まる，X線照射領域の平均構造しか得らない，という制限のために，表面の時空間構造については極めて限定的な理解に留まっている。また，X線ビーム径より十分大きな単結晶試料が必要であり，実材料とのマテリアルギャップや観察対象となる現象が制限されることも現実的問題である。高フラックスのナノ集光ビームの利用により，実材料に近い試料の界面現象のその場観察が可能になり，測定対象とする試料や現象が大きく広がることが期待される。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光では，高フラックスのナノ集光 X 線を用いた時分割顕微表面回折や，コヒーレント表面回折による X 線光子相関分光(XPCS)によって，固体表面や界面における物質移動過程の時空間構造の理解が飛躍的に進むことが期待される。表面付近の構造を反映する Crystal Truncation Rod (CTR)散乱強度分布をナノビームでマッピングする事により，表面近傍の構造を，面内方向数十 nm，面直方向サブ Å の分解能で三次元的に観測できる。これを時分割測定することで，図 2 に示すように物質移動過程の時空間構造が明らかになる。一方，表面に吸着する原子・分子一つ一つの動きを観測するには，コヒーレント X 線回折が適切である。極めて狭い領域に集光したコヒーレント X 線によって生じる X 線散乱はスペックルパターンを示し，その強度分布は，図 3 に計算例を示すように，表面に付着する原子一つからの散乱ではっきり変化する。そのため，スペックル強度の時間相関を見る XPCS 測定で，吸着した原子がどの程度の時間で移動しているかがわかる。これにより単一原子/分子スケール，ns 時間分解能の原子移動を観測できる。CTR 散乱に対する XPCS 測定について，実現可能性を確認するため，フラックスの検討を行った。現実の遷移金属酸化物試料について，現在の PF BL-3A における 10^{12} photons/sec 程度の入射強度で，図 3(c)に示すように CTR 散乱周辺の散漫散乱が数秒の露光時間で観測されている。KEK 放射光ではコヒーレントフラックスで 10^{12} photons/sec 程度の強度が見込まれるため，現在の BL-3A での測定がそのままコヒーレント光で実現できると期待され，CTR 散乱周辺の散漫散乱に該当する領域の XPCS 測定が可能である。このような時間相関を様々な散乱ベクトル(Q)で測定する事で，反応中にどこがどのような時間スケールで運動しているかが解明できる。

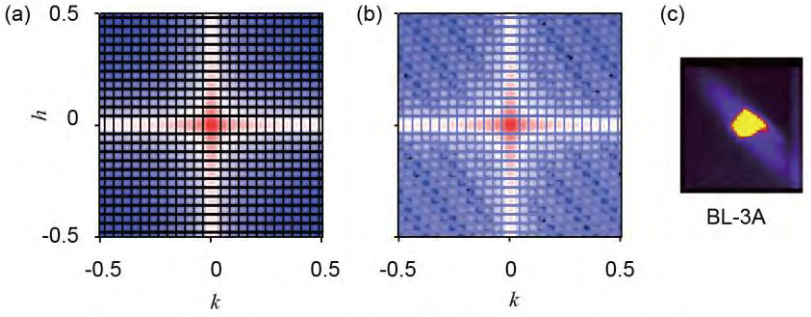


図 3：(a) 単純立方格子 10 nm 四方の平滑な表面からのコヒーレント散乱強度分布，(b) (a)の表面に原子を一つ付け加えた構造からのコヒーレント散乱強度分布。l =0.8 の面での計算。スペックルパターンより細かい Q 分解能で得られる強度の時間相関は，付け加えた原子がどれだけの時間同じ場所に留まっているかを反映する。(c) 10^{12} photons/sec 程度の入射強度である PF BL-3A で測定した CTR 散乱。中心の強い強度の周りに，面内の構造乱れを反映した散漫散乱が観測されている。

KEK放射光を用いたこれらの計測により以下のような成果が期待される。全固体二次電池においては，時間分解能μs～msの時分割CTR散乱測定によってイオン輸送に伴う電極界面の格子再編を観察することで，界面イオン輸送ダイナミクスを明らかにできる。高繰り返し測定が可能なメモリ材料においてはポンプ-プローブ法によるpsスケールの時分割測定が可能であり，界面原子移動やドメインダイナミクス観察により，メモリ動作の律速過程を解明できる。触媒反応過程で原子・分子の吸着により引き起こされる表面構造の変化は，XPCSによる緩和時間の測定により追跡でき，理論と比較する事で触媒機構のより深い解釈が可能になると期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

硬 X 線コヒーレント回折ステーション，オートコリレーター，2 次元検出器，試料走査ステージ（nm 位置分解能），パルスレーザーやパルス電場印加装置とX線パルスとの同期システム，有毒ガス処理設備

7-2. 固液界面におけるエネルギー変換反応のオペランドＸ線解析

（1）背景

電池、燃料電池、色素増感太陽電池、光触媒反応など多くのエネルギー変換反応は、固液界面で電子移動を伴って起こっている。これらの反応は固体（電極）表面上で起こるので，固体の表面構造や電子構造，さらには表面に吸着したアニオン等の種類や配列にも大きく影響を受ける。従って、固液界面での電子移動反応の反応機構を厳密に理解し、応用面へ展開してゆくためには、固体表面の原子・分子の配列構造ならびにそれらの電子状態を、高い空間/時間分解能で、しかも溶液中（その場）で実際に反応が起こっている条件下（オペランド）で追跡・決定することが不可欠である。

第三世代の放射光施設の登場と、表面Ｘ線散乱（SXS）測定やＸ線吸収分光（XAFS）測定、Ｘ線定在波（XSW）測定の技術進歩により、固液界面のその場追跡、とりわけ 0.01 nm という高い構造決定精度を有しての界面の静的な構造追跡/電子状態追跡は飛躍的な進歩を遂げた。しかし、厳密な構造/電子状態決定のためには測定データの S/N 比をさらに上げる必要があり、光源のさらなる高輝度化が必須である。また時間分解能においては、測定手法や電気化学セルの開発・改良により向上してはいるものの、未だに秒～十ミリ秒のオーダーに過ぎない。さらに、実試料は不均一であり、局所的な構造追跡・電子状態を追跡する必要があるが、現状の 100 μm 程度のビームサイズでは困難であり、ナノビームの利用が不可欠である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

高輝度かつ高コヒーレントな KEK 放射光を利用した新規ビームライン・設備によって上記の問題点を克服し、高い空間/時間分解能を有して固液界面のその場構造/電子状態の追跡を実施できれば、固液界面におけるエネルギー変換反応のより詳細な反応機構が解明され、実用化に通じる高容量/高耐久性を有する電池や高感度センサ、高活性触媒開発に展開できると期待される。例えば、燃料電池の正極触媒である白金の溶解過程と白金の電子状態との関係を、これまで以上に高い空間/時間分解能を有する測定、特に KEK 放射光の短パルス（ピコ秒レベル）を用いた高い時間分解での測定によって解明できれば、高耐久性を有する燃料電池開発につながる。また、リチウム系蓄電池において、実用化へ通じる最大の壁となっているリチウム負極のデンドライト形成反応のメカ

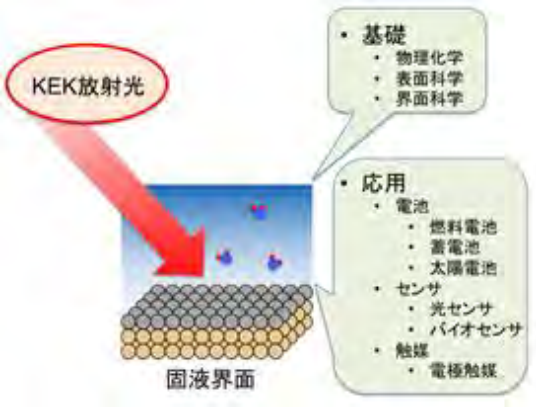


図１　KEK 放射光による固液界面研究の新展開。

ニズムを、場所に依存したデンドライト成長状態を KEK 放射光の高フラックスナノビーム（～30 m）により追跡することで解明できれば、高容量/長寿命/高安全性の蓄電池開発が可能となる。KEK 放射光の利用によって、これら現代社会の課題解決に直結する物理化学・表面科学の諸問題解明が可能となることは明確である。

サイエンスケースの具体例：

(i) 電極反応に伴う表面構造のオペランド SXS 測定

電極表面の構造は、電位によって吸着、電析、溶解に加えて電極そのものの原子の再配列などが起こり大きく変化する。このような電極表面の変化は、溶液中、電位印加状態のまま crystal truncation rod（CTR）散乱測定や表面 X 線回折（SXRD）測定により、非常に高い分解能で原子構造を決定しながら追跡することが可能である。図 1 は Au(111)電極表面への AgCl の電析過程を追跡した例であるが、Au(111)上に AgCl が√13×√13)*R13.9*°構造をとって析出していることがわかる。今後は高輝度 KEK 放射光に対応した検出器の高度化とともに、高コヒーレントな KEK 放射光を利用した X 線回折イメージングと時間分解測定を組み合わせたオペランド実空間イメージングによって、電位走査に追随した電極反応に伴う表面超構造形成/崩壊過程の実時間ダイナミクス解析への展開が期待される。

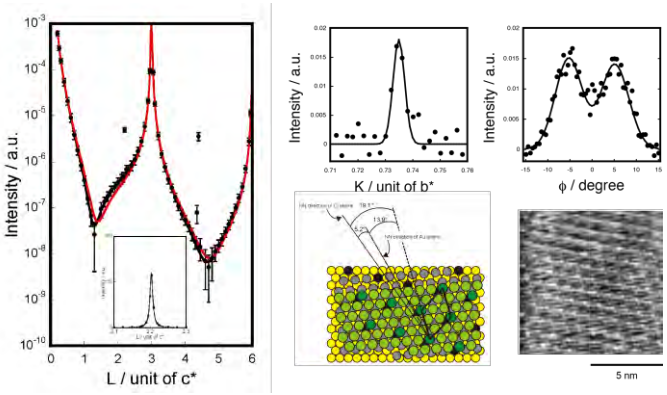


図 2　SXS その場測定による静的構造追跡結果の一例（Au(111)上(√13×√13)*R13.9*°_AgCl 構造）。

(ii) 固液界面反応のオペランド軟 X 線分光測定

固液界面エネルギー反応の理解には、溶媒である水や反応分子に含まれる酸素、炭素、窒素といった軽元素の振舞いを調べる必要があり、そのためには 1 keV 以下の軟 X 線領域での測定を行う必要がある。しかし、軟 X 線は大気、液体、窓材などに強く吸収されるため、超高真空下での測定が主であり、液体や固液界面を大気圧環境下でその場観察に用いることは難しかった。近年、軟 X 線を透過する薄い窓材を用いて超高真空の軟X線ビームラインと大気圧のヘリウム槽を分けることで、大気圧条件での固液界面や液体試料の XAFS 測定が可能となった。

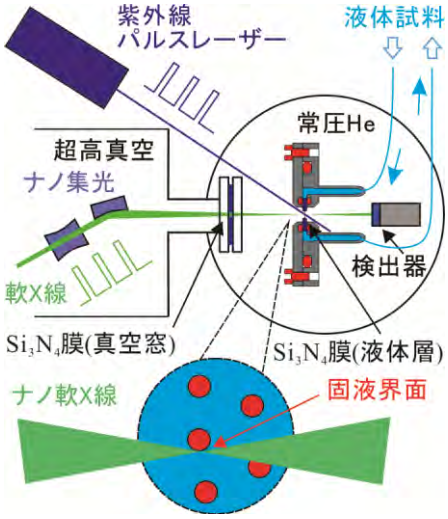


図 3. 固液界面反応のオペランド軟 X 線分光測定の模式図。

例えば、図３に示すように 100 nm 程度の厚みの 2 枚の窒化シリコン膜の間に液体試料を流すことで、液体試料の XAFS 測定が可能である。電気化学や光化学の分野では、燃料電池反応の追跡などに応用されるなど、軟 X 線分光によるオペランド観測技術が長足の進歩を遂げている。今後リチウムイオン電池（LIB）やポスト LIB 開発への展開が望まれている。

また図 3 に示すように、励起パルスレーザーと同期した高輝度軟 X 線パルスによる時間分解測定をすることで、光触媒反応などのナノ粒子と溶液の間の固液界面における光励起ダイナミクスを明らかにすることも興味ある課題の一つである。例えば、短パルス（～100 フェムト秒）紫外光レーザーと 10 ピコ秒の軟 X 線パルスを組合わせた時間分解軟 X 線分光測定を水溶液中に分散した TiO_2 ナノ粒子に対して行うことで、O-K 吸収端から固液界面に存在する酸素種（水および反応によって生じる中間体）の、また Ti-L 吸収端からは TiO_2 ナノ粒子の電子構造の過渡的な状態変化が追跡可能であり、TiO_2 ナノ粒子と溶液との間の光励起電荷移動に伴う化学反応の素過程を明らかにできるものと期待される。このように、固液界面の光反応の反応機構を解明するためにも、高エネルギー分解能、高輝度、ナノ集光の 3 つの特徴を備えた軟 X 線分光測定を可能にすることが必要である。なお、図 3 に示したセルと同様の超薄膜窓材を用いた電気化学セルと、硬 X 線を組み合わせて可能となるオペンランド電気化学 XPS も電子状態の追跡の有力な手法である。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

A. ビームライン

・数 100 eV～20 keV の広いエネルギー領域における輝度：> 10^{12} photons/sec。

・低エミッタンス性能を確保した短パルス性能。

・時間分解計測で必要なパルス輝度：> 10^{6} photons/pulse。

・可変集光サイズ：100 μm～30 nm。

・分光器のエネルギー分解能：< 0.1 eV。

・ヘリウム置換対応軟 X 線ビームライン(挿入光源)

B. 実験設備

・高精度多軸高速回折計。

・多素子高速Ｘ線検出器、二次元高速Ｘ線検出器。

・時間分解測定用波長可変短パルスレーザー（UV～IR、10 Hz～1 MHz）。

・軟Ｘ線大気圧測定用差動排気装置。

・ヘリウム置換対応 XAFS 測定装置

7-3. 時間分解 X 線反射率・回折法による表面・界面・薄膜不可逆過程の追跡

（1）背景

近年、表面・界面・薄膜の重要性は科学と技術の両方において増している。例えば、現在のシリコン電子デバイスやLED 等の光電子デバイスはナノメートルスケールの薄膜を使用している。多くの研究段階の電子デバイスも薄い膜の量子効果や界面による性質の変化を利用しようとしている。また、科学において、材料学、固体物理、化学、生物学のあらゆるところで、表面・界面・薄膜は重要で盛んに研究されている。

Ｘ線反射率法及び表面Ｘ線回折法は原子スケール～ナノメートルスケールの構造解析手法として広く使用されている。しかしながら、一般的に用いられている角度分散法では平行な単色Ｘ線の試料への視射角の関数として散乱 X 線強度を順次測定するため、放射光を用いたとしても測定には数分～数時間の時間を要している。このため、ほとんどの測定は静的な構造を解明することにとどまっている。動的な研究の、可逆的な構造変化の場合にはポンプ・プローブ法を用いて繰り返し測定すれば高い時間分解能を得ることができるが、変化が起こると状態を元に戻せないような不可逆過程（例えば、腐食等の化学反応、電子デバイス等の製作過程、結晶成長）には利用できないので、研究例が少ない。

一方、最近ＫＥＫで開発された波長角度同時分散型反射率・回折法は不可逆構造変化をサブ秒～秒の時間分解能で追跡することが可能である（T. Matsushita *et al.*, J. Synchrotron Rad. 20, 80, 2013）。この方法では、彎曲した結晶の回折を用いた光学系により白色 X 線から集束Ｘ線ビームを作り、注目するプロファイル全体を同時測定することが可能であり（図１）、測定中にモノクロメーター、試料、検出器などの機械的運動が不要で液体表面の測定にも適している。さらに、不可逆構造変化において強力な次世代のツールとなりうる世界

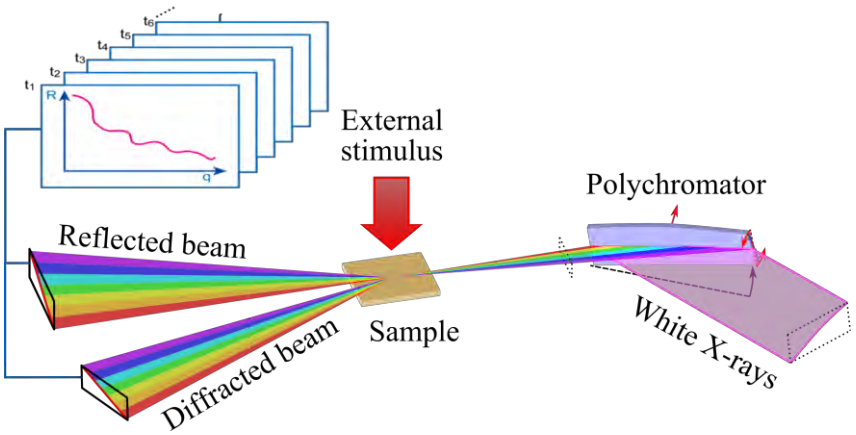


図１：波長角度同時分散型反射率・回折法の原理。集束Ｘ線ビームを用いて入射角が異なるＸ線を同時に入射することで、反射率曲線と注目する回折プロファイル全体を同時に測定する。KEK 放射光の高輝度光源を用いることで、外的刺激による不可逆構造変化をマイクロ秒オーダーの時間分解能で追跡できるようになり、触媒機構、吸着プロセス、初期腐食等の解明につながることが期待できる。

最短の時間分解能（10 ミリ秒、PF-AR）でX線反射率曲線の充分広い範囲を同時に測定できることが示された（W. Voegeli *et al.*, J. Physics:Conf. Series 425, 092003, 2013）。

これらの方法は、空気－水界面でのタンパク分子の吸着・unfolding、電位変化に伴うイオン液体の電気二重層の構造変化、光照射による有機薄膜の構造変化などの研究に利用されている。

以上のように、この方法によって表面構造の時分割測定が可能になったが、多くの試料において秒オーダーの時間分解能が限界である。一方、薄膜における化学反応などを追跡するにはミリ秒以下の時間分解能が必要な場合があるが、現状では不可能である。また、10 × 2 mm^2 以上の均一な試料が必要なため、測定対応の試料を選ぶ必要がある。光源の安定性も高精度測定にはまだ不十分である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光の高輝度光源を用いる最大の利点は、試料位置でのX線強度を数 10 倍～100 倍程度上げられることである。それによって、100 マイクロ秒程度の時間分解能を実現でき、ミリ秒以下の時間スケールで進む過程の追跡が可能になる。より遅い構造変化についても、統計誤差を減らせるので、測定データの質が上がり微小な変化も観測できるようになる。これにより、光照射や電圧印加やガス注入で起こされた化学反応等の動的な研究ができ、例えば、触媒機構、吸着プロセス、初期腐食の解明につながると期待できる。

また、KEK 放射光の光源が小さいため、試料でのビームの射影サイズは数 μm×数 100 μm まで小さくすることができるはずである。このような焦点サイズと迅速な測定を両方できる実験装置で不均一な試料をマッピングし、薄膜成長法の評価やピンホール・欠陥出現の解明に利用できる。

先端的な KEK 放射光で光源の高い安定性も期待できる。これは、高い精度の時分割測定につながるだけではなく、構造変化を超高精度で測定する新しい手法にも応用できる。波長角度同時分散型反射率・回折法では実験装置と試料が測定中は静止しているので、一般の方法で必然な装置の運動による誤差がない。したがって、反射率変化の観察精度がほぼ統計誤差で決まり、可逆的な変化を繰り返し起こし測定することで、統計誤差も極めて小さくすることができる。この原理を使えば、電子デバイス等の印加電圧による電子の移動や磁場による歪みのような微小な電子密度の変化を観察できるようになる。

以上のことにより、波長角度同時分散型反射率・回折法を KEK 放射光による高輝度光源と組み合わせることで、表面・界面・薄膜の構造変化を観察する手法が新展開を迎え、基礎科学から産業利用までの幅広い応用が期待できる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・白色光源か準単色光源（数 keV 以上のバンド幅をもつ幅広 X 線、15 keV～20 keV 領域で 10^{15} photons/s/0.1%b.w.程度）

・Ｘ線ミラーシステム（高調波除外のため及び二次光源を作るため）
・高速２次元検出器（photon counting、frame rate は 10 kHz）
・回折計
・環境制御できる試料雰囲気セル、測定系と同期できるレーザや電圧印加装置など。
・高精度試料走査装置（マッピング用）
・試料の清浄化や試薬の準備ができる化学準備室、有害ガス処理設備

7-4. 走査型大気圧光電子分光による表面反応のオペランド観測

(1) 背景

産業に使われている触媒の 7 割は固体触媒と言われており、触媒表面で起こる表面反応によって我々の社会が必要とする物質の多くが造り出されている。物質生産のためだけでなく、有害物質の浄化やエネルギー変換のためにも表面反応が使われている。社会を支えているプロセスであるにもかかわらず、固体触媒とその表面での化学反応の理解は道半ばであり、学理に基づいた触媒開発や反応プロセスの最適化は未だに限定的である。表面敏感な手法として光電子分光は代表的なものの一つであるが、試料から放出される電子の運動エネルギーを計測するために、試料周りの反応ガスの圧力は大きな制約を受ける。しかし、差動排気系を導入することで反応ガスの圧力上限はこの 10 年で大幅に上がり、1 Torr 程度の圧力下で光電子分光を測定することができる準大気圧光電子分光が各放射光施設で、近年、急速に立ち上げられてきている。この手法によって、実用触媒が動作する状態に以前よりずっと近い条件で表面反応を観測することができるようになり、これまで見えなかった反応中の触媒表面の様子や反応種の振る舞いが見えるようになった。準大気圧光電子分光はこの分野のサイエンスの発展と関連する触媒産業に大きなインパクトを与えている。

一方で、この手法には課題もある。一つは圧力上限の問題である。現在の圧力上限は百分の一気圧程度であるが、実触媒は大気圧下、もしくはそれ以上の圧力で用いられているので、未だに二桁以上のギャップがある。もう一つの課題は、位置敏感性の問題である。実触媒は多くの場合、ナノスケールの微粒子を担体に担持し、それを反応器に充填したものなので、不均一な構造を特徴としている。反応器の中でも、反応ガスの流路の中の触媒の位置によって反応条件が変わる、といった反応の不均一性もある。もし十分な位置敏感性があれば、不均一性を見分けた情報に基づいて反応機構の理解を深められるはずである。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光では、VUV-SX 領域で通常の集光系でも試料位置でのビーム径を 10 μm 以下にでき、ナノ集光系を用いれば 50 nm 以下にできる。この高いビームの集光性を用いることで、前節で述べた圧力上限と位置敏感性を改善することができる。

圧力上限は試料からの光電子がガスによって非弾性散乱を受ける度合いによって決まり、試料から差動排気系の入口までの距離が重要な因子になる。この距離は、現在は 1 mm からサブ mm 程度であるが、ビーム径が絞られていれば、さらに距離を縮めることが可能である。距離に大よそ反比例して圧力上限が決まるので、例えば 10 μm の間隔で実験を行うことができれば数百 Torr 程度での実験が可能になる。大気圧下での実験を行うことができれば、実作動環境と同じ条件で観測できる触媒の範囲が拡大し、実性能の解析が必要な産業界での有用性も増す。

集光性の大幅な向上によりビーム径がミクロンオーダーからナノメートルオーダーになれば、位置敏感性を活かした様々なサイエンスの展開が可能になる。例えば、触媒表面反応のミクロスケールの時空間発展の観測やコンビナトリアル化学と組み合わせて、組成や調製条件を系統的に変えた触媒が同一反応条件下でどのように応答するかを調べることができる。組成を系統的に変えた合金触媒の測定の模式図を下に示す。多くの実用触媒に合金微粒子が用いられているが、どのような組成にすればよいかは重要な問題である。図の

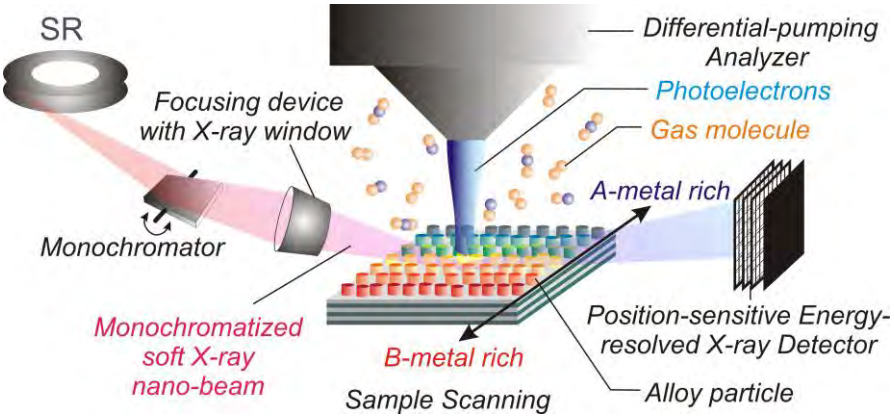


図　走査型大気圧光電子分光による組成勾配をつけた合金触媒のオペランド観測.

ように、担体基板上に担持した微粒子触媒を構成する２種類の金属の組成が一つの方向に系統的に変わるように調製した試料を用意し、反応条件下において、場所ごと（すなわち組成ごと）の光電子分光測定を行えば、反応中の微粒子表面の化学状態と組成の相関を容易に知ることができる。マイクロリアクターセルアレイを用いて場所ごとのガス組成を分析すれば、活性との相関もつけることができる。さらに、あるサイトで活性化された反応種が表面を移動して別の種類の活性サイトで反応するような物質コミュニケーションに関する直接的な情報を得ることも、ナノビームを用いることで可能になると考えられる。光電子分光測定が可能であれば、Auger 電子収量によって表面敏感な XAFS の測定も可能になるので、空準位や配向構造など、光電子分光と相補的な情報が得られる。図中に示したような位置敏感型エネルギー分解 2 次元 X 線分析器を設置しておけば、蛍光収量によるバルク敏感な XAFS も測定できるし、回折パターンを調べることによって、ある組成の微粒子の反応中のモルフォロジー情報も得ることができる。このような複合的なアプローチによって、これまで、経験的に良いとされてきた触媒組成の学術的理由や、間接的証拠によって提案されてきた触媒プロセスに関する概念を直接観察によって証明するチャンスを多くのユーザーに提供することが期待される。

励起光として 10 keV 程度の硬 X 線を使えば、大きな運動エネルギーの光電子を測定することによって、表面近傍だけではなく、10 nm 程度の深さの埋もれた物質からの信号を得ることができる。これによってゼオライトのような多孔質材料の細孔の中の反応や固体高

分子形燃料電池のような高分子に包まれている白金微粒子の上での反応など、埋もれた界面の上での化学プロセスを観測することができる。このような系は不均一な構造を特徴としており、複数のミクロスケールの材料のコンポジットになっていることが多いので、見たいものにスポットを当てられる空間分解能は重要になる。軟 X 線から硬 X 線までの幅広い光を同一の場所に集光できるようなビームラインができれば、表面だけでなくある程度の深さまでの 3 次元的な空間の化学状態が大気圧近い圧力下で位置分解的に観測できるようになる。そうなると、適用できる材料は触媒に留まらず、広範囲の材料のその場解析に活かすことができる。例えば、多層構造を持った電子デバイスやスピントロニクス材料などに対しても、雰囲気下・外場印加下で動作させながらのオペランド観測が可能になるだろう。新材料やそれを組み込んだ各種デバイスの性能発現機構の解明や、劣化や耐久性に関する知見を得ることもできるだろう。このように、本手法が触媒だけでなく、幅広い材料・デバイスの動作条件下でしか見られないサイエンスを切り拓く強力な手法になりうることを強調しておきたい。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

i. 数 100 eV ～ 10 keV 領域の広いエネルギー範囲で数μm から数 10 nm のマイクロ・ナノ集光ビームを同一焦点位置で実現できるビームライン
ii. 試料位置に関して試料面内方向にナノメートルオーダーの精度で走査でき、試料とアナライザー間の距離はマイクロメートルオーダーで制御できる 3 次元位置制御システムを装備
iii. 位置敏感型エネルギー分解 2 次元 X 線検出器による X 線吸収分光および X 線回折の測定システム
iv. レーザー照射や外場印加などの複合環境下での測定システム
v. 試料温度やガス導入の制御、試料実温度やガス分圧モニターなど試料周りの環境制御・観測システム
vi. 試料の清浄化、in-situ 調製やキャラクタリゼーションなどの付帯システムの充実

7-5. 太陽エネルギー変換材料表面における時空間キャリアダイナミクス

(1) 背景

エネルギー・環境問題を解決し持続可能な社会を実現するために、化石燃料に替わるエネルギー源として太陽光を活用することが現在強く求められている。太陽電池や光触媒は、半導体材料を利用して太陽光エネルギーを電気エネルギーや化学エネルギー（化学物質）に変換する。これらのエネルギー変換過程の高効率化には、光励起キャリア（電子と正孔）のダイナミクス制御が不可欠であるが、光励起キャリアの物理には依然として未解明な点が多い。例えば、有機薄膜太陽電池における発電メカニズムは（１）光吸収、（２）励起子拡散、（３）キャリア分離、（４）キャリア輸送、（５）電極によるキャリア捕集の５段階に分類できる。ドナー材料とアクセプター材料が複雑に入り組んだバルクヘテロ接合型の太陽電池では、キャリア分離に必要なドナー・アクセプター界面が増加することで光電変換効率が上昇することが知られている。この場合、ドナー（アクセプター）材料は通常数十～数百 nm のドメインで相分離している。従って太陽電池材料における光励起キャリアのダイナミクスの理解には時間スケールだけでなく空間スケールの情報が不可欠である。

現在までに光励起キャリアダイナミクスを調べる方法として、光励起キャリアによる半導体表面ポテンシャルの変化を軟 X 線光電子分光により内殻準位のエネルギーシフトとして検出しその時間変化を追跡する方法がある。しかし、軟 X 線のスポットサイズは通常数十μm 以上であり、空間平均した情報しか得られなかった。これに対し、フレネルゾーンプレート（FZP）と呼ばれる円形の透過型回折格子を用いて軟 X 線を数十 nm 程度に集光することで空間分解能を付加した走査型光電子顕微測定(nano ESCA)という手法がある。しかし、FZP の低い透過率に起因した低い光子フラックスのため、時間分解測定はこれまで不可能であった。また、投影型光電子顕微鏡(PEEM)では数十 nm の空間分解能で時間分解測定が可能であるが、エネルギー分解能が十分でないことが多い。

以上に述べたとおり、太陽電池を始めとしたエネルギー変換材料表面における光励起キャリアを、「nm」オーダーの空間分解能・「ps」オーダーの時間分解能・「meV」オーダーのエネルギー分解能で追跡することが現在求められている。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光では、超低エミッタンスにより光源サイズが小さいため、ミラー光学系により「nm」オーダーの集光ビームを得ることが可能になる。放射光のスポットサイズが空間分解能を決めているため、「nm」オーダーの空間分解能で軟 X 線光電子分光を行うことが可能になる。更に、ミラー光学系の採用により低光フラックスの問題も解消され、「ps」オーダーの時間分解測定を行うことが可能になる。超高分解能軟 X 線ビームラインおよび超高分解能光電子分析器の採用により「meV」オーダーのエネルギー分解能での光電子分光測定が可能になる。

時空間キャリアダイナミクス実験では、数十～数百 nm のドメイン構造から構成されるバルクヘテロ接合型の有機薄膜太陽電池にレーザー照射を行い光励起する。光励起により生成する励起子のドナー・アクセプター界面への拡散、界面での励起子から光励起キャリア（電子と正孔）への分離、光励起キャリアの電極への輸送といった光励起キャリアダイナミクスの各素過程を「nm」オーダーの空間分解能かつ「ps」オーダーの時間分解能で追跡する。具体的には、「meV」オーダーの高エネルギー分解能の軟 X 線光電子分光を用いて、局所表面ポテンシャルの変化を内殻準位のエネルギーシフトとして観測する。

有機薄膜太陽電池においてドナー・アクセプター界面はその変換効率を決定付ける特に重要な反応場であり、励起子の解離（キャリア分離）などの局所界面ダイナミクスをピンポイント観測する必要がある。ドナー・アクセプター界面のピンポイント観測には、「nm」オーダーを上回る「pm」オーダー空間分解能が必要になると考えられる。そこで原子レベルの空間分解能をもつ走査型トンネル顕微鏡（STM）の技術を活用し、「pm」オーダー空間分解能をもつ時間分解測定を実現する。KEK-PF では、これまでに放射光と STM を融合させた放射光 STM が開発され、STM の空間分解能に元素選択性を追加することに成功している（T. Eguchi *et al.*, Appl. Phys. Lett. 89, 243119, 2014.）。筑波大・重川らは、フェムト秒レーザーと STM を融合させたフェムト秒時間分解 STM を開発し、STM の空間分解能にフェムト秒の時間分解能を追加することに成功している（Y. Terada *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter 22, 264008, 2010.）。KEK 放射光では、レーザーと放射光と STM の３つを融合させた時間分解放射光 STM（tr-SRSTM）を開発し、光励起キャリアを原子分解能（「pm」オーダー）で元素選択的に追跡することを可能にする。なお、これまでに報告されている放射光 STM の最高空間分解能は 2 nm であるが（N. Shirato *et al.*, Nano Lett. 14, 6499, 2014.）、KEK 放射光により得られるナノ集光ビームを利用すれば試料から放出される光電子密度が大幅に増大し元素吸収端前後の STM 像のコントラストが改善し、空間分解能の更なる向上が期待できる。

なお本実験手法では軟 X 線チョッパーを導入する。軟 X 線チョッパーによりポンプ・プローブ測定に利用する軟 X 線パルスのみを切り出せば、検出器側に時間分解能は必要なくなり、既存の光電子分析器をそのまま利用することが可能になる。また、本研究提案では高輝度軟 X 線を「nm」オーダーに集光して試料に照射するため試料ダメージが心配されるが、軟 X 線チョッパーによるパルス切り出しは試料への X 線照射量を最小限にするため、試料ダメージを避ける上で有益である。本研究手法の時間分解能は放射光のパルス幅によって決まり通常 50 ps 程度であるが、蓄積リングのハイブリッド運転（1 ps と 50 ps のバンチが共存）により 1 ps、レーザースライシングにより 100 fs のより高い時間分解能を同じ測定系で達成することができる。また、太陽電池のデバイス構造を構成し、太陽電池が実際に発電・動作している最中の光励起キャリアダイナミクスを調べることを可能にするオペランド観察も行うことも重要である。このオペランド観測では、太陽電池の電流-電圧曲線を測定することにより、開放電圧・短絡電流・変換効率といった太陽電池の特性をその場で評価することが可能になる。

太陽エネルギー変換材料表面における時空間キャリアダイナミクス研究により光励起キャリアの分離・輸送メカニズムに関する理解が進めば、太陽電池のデバイス構造に対する設計指針を与えることが可能になり、より変換効率の高い太陽電池の開発が飛躍的に進むことが期待できる。また、この時空間キャリアダイナミクス研究で提案した研究手法は、有機薄膜太陽電池だけでなく無機半導体太陽電池やその他の光デバイスへの適用が可能であり，金属担持光触媒におけるキャリア移動と反応物の移動といった素過程の解明にも役立つことが期待される。

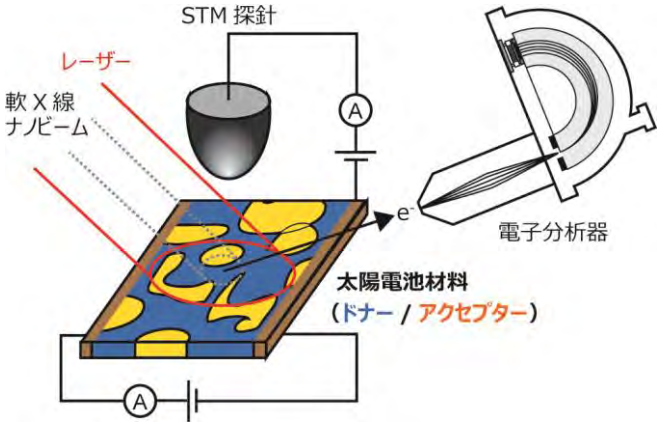


図　太陽エネルギー変換材料表面における時空間キャリアダイナミクス測定の概略

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

蓄積リング

・大電流孤立バンチを含む運転モード（バンチ幅　1-50 ps，バンチ電流　>10 mA）

ビームライン

・超高分解能軟 X 線ビームライン（100-1500 eV，E/ΔE=50,000@hv=500 eV）

・ナノビーム集光ミラー（10 nm）

・パルス切り出し軟 X 線チョッパー（周波数可変または高繰り返し用と低繰り返し用チョッパーの切替可能，1 kHz-1 MHz）

実験設備

・同期レーザーシステム（波長、周波数可変；UV~NIR，1 kHz-1 MHz）

・超高分解能軟 X 線光電子分光システム

・STM システム

7-6. 局在電子状態の原子分解能イメージングと特異励起状態の選択的創成

（1）背景

機能性材料において、結晶中のドーパントやヘテロ界面、結晶表面上のナノクラスタや単原子層など局所的な構造体が機能発現の重要な役割を担っている。こうした並進対称構造を持たない機能発現サイトの強力な解析手段が**ホログラフィー**や**トモグラフィー**といった**原子分解能イメージング法**である。光の波動性に基づくホログラムは、多次元情報を平面に記録する技術として、身の回りの様々な場面で活用されているが、電子の波動性を利用した光電子ホログラムには固体内の原子配列が記録される。**光電子ホログラフィー**は光電子回折模様から直接固体表面の原子立体配列を可視化する夢の手法として、原理的な研究が 1990 年代に爆発的に進んだ。2000 年以降は日本の独自の潮流が**光電子ホログラフィー**研究を牽引している。Daimon の表示型電子分析器を用いた原子立体写真法の発明や、Matsushita の最大エントロピー法を用いた新しい原子像再構成アルゴリズム SPEA-MEM の開発を受け、機能発現サイトの立体原子配列イメージングが初めて可能になった。また有機分子からの光電子角度分布をフーリエ変換することで分子軌道の実空間分布を再構成する**分子軌道トモグラフィー**が 2010 年代に急速に発展している。機能性分子の分子軌道に関する情報が視覚的に得られるという点で、極めて斬新かつ有意義である。この分野でも Kera ら日本のグループの寄与が大きく、複雑な表面吸着大型分子系に対して多重散乱理論を組み込んだ光電子放出強度の定量解析法の開発が進んでいる。

現在、光電子回折現象の精緻な理解が進み、散乱原子配列だけでなく、励起準位の原子軌道そのものを可視化できるようになり、サイト選択的な電子状態解析が実現している。新規光源計画での放射光技術の革新と計算機科学の飛躍を受け、これら**原子分解能イメージング法**を表面・薄膜の局所原子構造・電子状態の強力な実践的解析法として確立・展開するまさに適時である。

ドーパントや表面原子など、微量な元素のホログラムを測定するには、軟 X 線領域の高輝度な光源が必要である。SPring-8 では 1～2%のドーパントのホログラム測定が限界であるが、海外で実現されている 30 倍のフラックスを利用すると 0.1%程度のドーパントの測定が可能になる。より実デバイスに近い 0.01%のドープ量の原子配列の測定を照準に入れ、世界をリードするために、より明るい光源（2 桁以上の向上）が渇望される。さらに高輝度の KEK 放射光にてフラックスを落とさずにナノ集光が可能になれば、多結晶表面や不均一系の**走査光電子ホログラフィー顕微鏡**や分子配向単一ドメインからの**分子軌道イメージング**が実現する。例えば多結晶表面をテンプレートにナノクラスタ触媒や新規電子物性化合物を成長させ、個別に組成・構造・異方性・電子磁気状態の相関を解明することで今までの総平均的測定では埋もれていた機能性材料開発のヒントが得られる。<u>要するに従来の **STM・TEM** の同時測定で **3D** 原子分解能情報を得る以上の効果が期待できる。</u>

（2）KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光で実現できる高輝度光源を利用することで、**光電子ホログラフィー**による局所原子構造解析と電子状態解析を時空間分解的な測定へと広げ、多彩な物性発現機構の解明と特異励

起状態の選択的創成の研究を展開する。新光源には数 10 eV から数 keV 領域の軟X線マイクロ・ナノ集光ビームを想定し、内殻と価電子帯の光電子ホログラムを測定する。円・線偏光高速スイッチング（0.1 Hz~1 kHz）による円・線二色性測定を通じ、局所電子状態の原子軌道解析を行う。偏光後置鏡ピエゾ制御によるナノ集光ビーム２次元走査機構を導入し走査光電子ホログラフィー顕微鏡を実現する。原子分解能イメージング法の新展開として3つ掲げる。

I. 局所原子構造ダイナミクス解析：高輝度化によるナノ集光ビームの恩恵を活かし、走査型ホログラフィー顕微鏡を用いた活性・欠陥サイトのピンポイント原子構造イメージング法の確立する。新規機能性材料開発の場において役立つ標準ツールとして発展させる。光電子ホログラフィーの時分割測定と高速イメージングアルゴリズムを確立し原子配列・分子軌道のダイナミクス追跡の道を拓く。現在フラックスが測定時間（$1-10^2$ s）を律している。高フラックス光源では 1 MHz の delay line 検出器を導入し、結晶・融解・構造相転移の測定をサブミリ秒で追跡する。

II. 局所電子状態解析：Matsui は Auger 電子回折に XMCD を組み合わせ、原子層分解の磁気構造解析法を確立した。光電子ホログラフィーは構造情報にとどまらず、原子サイト別の電子分光研究や励起準位原子軌道の量子状態解析が可能になる他の顕微法にはない特色がある。分子軌道トモグラフィーでは分子軌道の量子性としての位相情報に加え、電子分光法を組み合わせその背後に潜む弱い電子系相互作用や強い電子格子相互作用の解明を狙う。

III. 局所分析から選択的励起へ：逆転の発想で光電子ホログラフィー・分光で特定した特異サイト・電子状態は同時に局所的特異励起状態の創成に繋がる。ホログラムの円二色性を用いると非磁性体の銅から軌道・スピン磁気量子数別の Auger 電子を取り出せる。例えばナノ構造体を光励起によりスピン偏極させることも可能で、特異な磁気構造や光触媒活性を制御・創成することが可能になる。ホログラム測定をポンプとする時分割測定の新しい励起状態科学が拓く。

実験装置には、高エネルギー分解能表示型電子分析器と温度制御試料マニピュレータを備える。標準的試料準備槽を設置することに加え、試料ホルダの共通化を行い、超高真空試料搬送システムを用い施設内外からの試料を受け入れるポートを準備する。バルクの情報が得られる蛍光Ｘ線ホログラフィーなど相乗効果が期待できる他の手法と組み合わせた研究を進める。例えば太陽電池・光触媒など、バルクと表面が協奏する機能解明に貢献する。

ナノ集光化による空間電荷効果は光電子分光のエネルギー分解能向上の阻害要因となるが、光電子ホログラフィーでは価数の異なるサイトからの光電子角度分布は周囲の原子配列が違えば光電子角度分布から分離できる利点がある。顕微マッピングで分布を特定後、長いバンチ長のモードや低フラックスで空間電荷効果を低減し高エネルギー分解能測定を行う回避案が有効である。

（3）必要とされるビームライン・実験設備

・光電子回折用実験ビームステーションと施設外からの超高真空試料搬送システム

・偏光高速スイッチング（0.1 Hz~1 kHz）円偏光・直線偏光

・数 10 eV ～ 数 keV の光エネルギー領域、数 μm から数 10 nm の集光ビーム
・後置鏡ピエゾ制御によるナノ集光ビーム２次元走査機構
・ビームラインサイエンティストと制御系サポートスタッフ

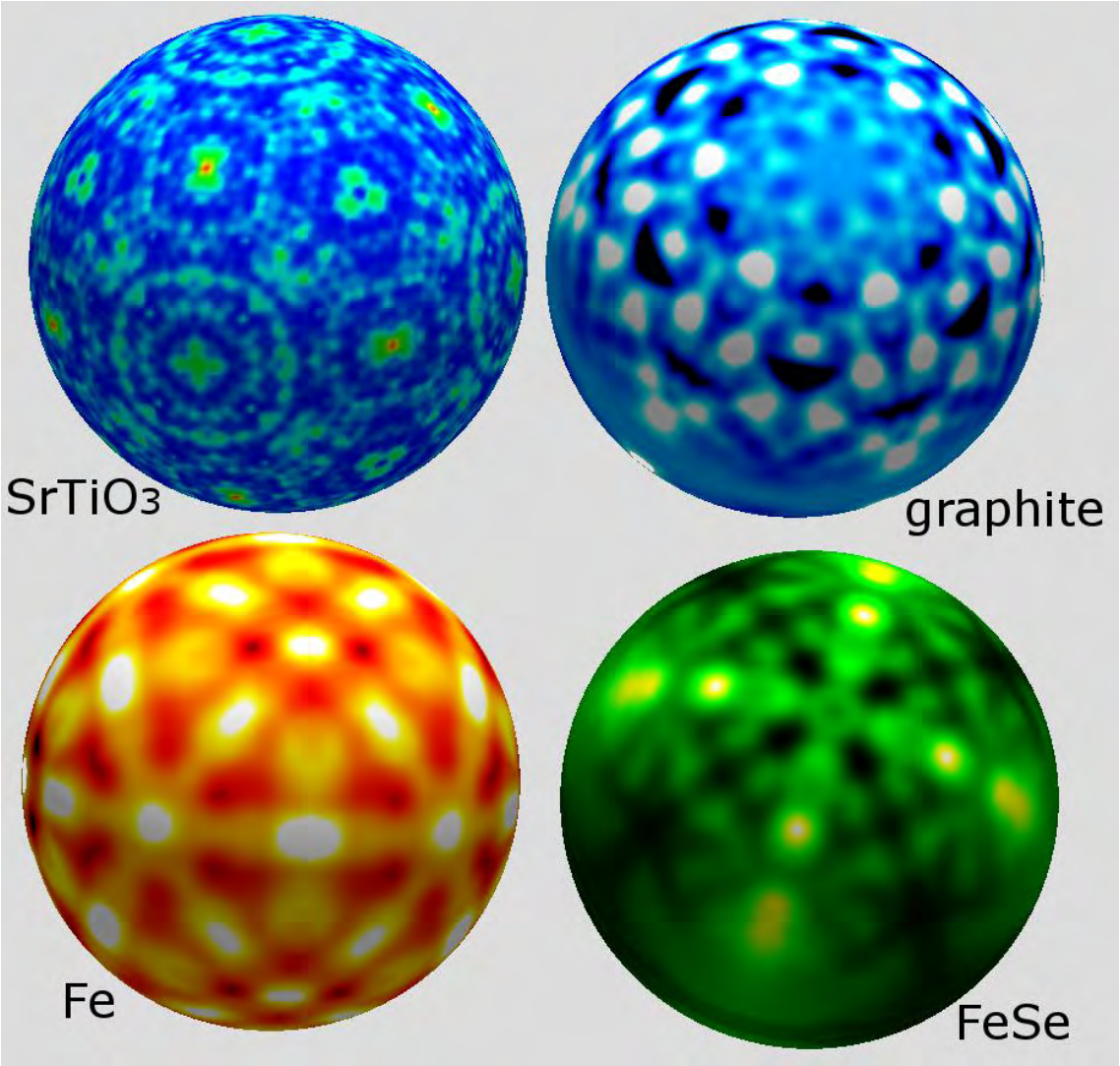


図１． 様々な結晶からの光電子ホログラム。光照射表面領域の原子配列が記録される。顕微・時分割・分光法と合わせ、機能性材料の局所原子構造・電子状態・ダイナミクスを追跡する。

7-7. 単原子シートの開拓とデバイス展開

(1) 背景

携帯電話やパソコンなど情報化社会を支えてきたシリコンなどの半導体デバイスの微細化による高性能化はまもなく理論的な限界を迎え、新規材料による置き換えが必要となっている。単原子層または単原子シート材料はデバイス素子微細化の究極的な形であり、昨今その合成とデバイス化が世界中で急速に進められている。単原子シートの代表的なものとして、グラフェン(C,半金属)、h-BN(絶縁体)、MoS_2(半導体)があり、これらは既に2次元シートトランジスター(FET)の絶縁層やゲート電極として使用されている。また黒リン単原子シート(P,半導体)、ボロン単原子シート(B,金属)などの新材料の合成も相次いでいる。今後もギャップ値の異なる半導体や電気特性の異なる金属などの機能性単原子シート材料の開発はますます進むと期待される。一方、シリセン(Si)やゲルマネン(Ge)などではスピントロニクスの展開が期待され、さらに WSe_2 などの金属カルコゲナイドの単原子層ではバレートロニクスなどの新しい概念で研究が進められている。

このように単原子シートは究極的な微細素子であるだけでなく、その多種多様な物質群の中から電荷・格子・スピン・軌道の協奏的効果により様々な機能性も有するものをオンデマンドで選択できる。そのため今後我々の社会を支えるデバイス材料になることは間違いない。半導体ロードマップを作製しているSIAによると2021年にはゲート長が5nmに達し、シリコンの微細化による性能向上は確実に終焉を迎えムーアの法則は破綻する。すなわち放射光を含む物質科学研究者にとって、単原子シートの研究は必須かつ急務である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

2-1 固体表面単原子層の探索と単原子シートの評価

これまで単原子シートの探索は結晶表面上での異原子吸着実験で主に行われてきた。昨今発見されてきた様々な表面超構造について、それぞれの単原子シート内の電荷(スピン)などを利用した将来的な機能性が検討されている（図１）。これらの原子構造や電子状態

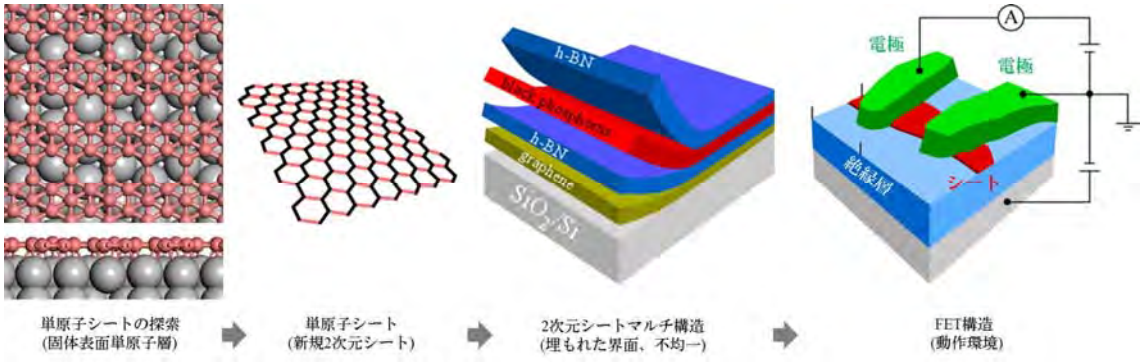


図１　新規単原子シートの開拓とデバイスへの応用展開の流れ

を正しく決定することは重要であり、KEK 放射光では特に内殻光電子分光や(スピン)角度分解光電子分光による化学組成や（スピン偏極)電子構造の決定が強く望まれる。

表面超構造の研究は放射光施設でこれまでも実施されてきたが、単原子シートの観点からでは新しい視点が必要となる。従来は mm～cm サイズの試料表面に均一な表面超構造を作成しなくてはならなかったが、デバイス素子としての単原子シートでは sub-μm サイズもあれば十分であり、また試料によっては大きな面積で実質的に作製できないものもある。そのため、これまで放射光実験で敬遠されてきたマルチドメインや微小ドメインの試料に対しても新たな単原子シート探索の対象としてその単一ドメインの電子状態解析が必要となり、KEK の新たな光源で達成されるナノビームによる分光実験が重要な役割を果たす。一方、PF 放射光ではこれまで表面研究に対して長い歴史があり、表面準備及び評価層の技術ノウハウが蓄積されている。そのため、最近ますます国際競争が激しさを増す単原子シートの研究において KEK 放射光は常にフロンティアを走ることができる。

固体表面上の単原子層は基板の影響を受けため、その原子構造の評価・決定も必須である。KEK 内の低速陽電子実験施設で実現した陽電子回折法は世界で最も高精度で表面原子構造を決定することができ、将来的に陽電子ビームを絞る技術が発展すれば，サブミクロンサイズの試料評価も可能になると期待される。このように、KEK 内でのマルチプローブ利用も KEK 放射光の大きな魅力である。

2-2 単原子シートのマルチ構造と動作環境下測定

単原子シートを実際にデバイスへ応用するには、それらをヘテロ接合させた FET 構造などを用意する必要がある。単原子層は他の層と接合すると物性を変える可能性があり、その評価を行わなければならない(図 2)。単原子シートの大きさは sub-μm からμm であり、ナノ集光が不可欠である。また埋もれたヘテロ接合での測定では軟 X 線光電子分光や吸収分光による元素選択性と長いプローブ長を活かした測定が必要であるが、十分な信号強度を得るためには高輝度な光源も必要である。そのため KEK 放射光で達成されるナノスポットかつ高輝度なビームだから本研究は実現できる。さらに KEK 放射光で初めて実現する（軟 X 線領域の）10nm スケールのナノビームであれば、単原子シート自身の微細化という、新たな技術展開も十分期待できる。

単原子シートがデバイスの動作環境下での実際の機能を調べることも今後の産業利用には重要である(図 1)。最近の高輝度放射光実験ではこのようなオペランド軟 X 線実験が実現しており、ゲート電圧下での電子状態の変化や光応答直後の非平衡状態の観測にも成功している。KEK 放射光により、これらの測定がさらに高分解能に実施されることが期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

3-1 光源

・偏光制御型光源(直線偏光、円偏光)

・10 eV~1000 eV 領域の広いエネルギー範囲で数 10 nm のナノ集光ビームを同一焦点位置で実現できるビームライン

3-2 測定装置

・(スピン)角度分解光電子分光や軟 X 線吸収分光のための電子状態測定装置

・放射光実験と同一試料における FET や光照射などの電位及び電気抵抗測定が可能なオペランド測定システム

・表面準備槽（電子回折、顕微鏡、試料交換）

7-8. スピン・バレートロニクスデバイスの実現に向けた新奇スピン偏極電子バンド構造解析

(1) 背景

電子の電荷の自由度を用いるエレクトロニクスは現在使用されているデバイスの根幹をなす技術であり、特にシリコンなどを用いる半導体エレクトロニクスは現代社会において必要不可欠なものである。これらのデバイスの高機能化・高速化・大容量化はデバイスの微細化により進んできたが、近年その限界が見えて来たことにより電子の他の自由度を利用することが試みられている。電子スピンの自由度を利用するスピントロニクスや、結晶の運動量空間中での電子バンド構造に着目したバレートロニクスはそのような新しい技術である。

スピントロニクスは、情報記録デバイスの発展に不可欠である磁気スピントロニクスと、論理演算デバイスの発展に寄与する半導体スピントロニクスに分けることができ、前者は磁気抵抗効果を用いたものがすでに実用化されている。一方、非磁性体中のスピン流を用いて低エネルギー消費化をも期待できる後者は、スピン電界効果トランジスタなどのデバイスが提案されているものの未だ実用化には至っていない。電流、つまり固体中の電子の運動がフェルミ準位近傍の電子バンド構造で決定されるのと同様、スピン流はスピン偏極電子バンド構造で決定される。非磁性体の電子バンドにおいて通常縮退しているスピンは、空間反転対称性の破れた系では縮退が解け、スピン偏極電子バンドが現れる。これは、非対称ポテンシャル中の自由電子バンドのスピン分裂を扱ったラシュバ効果や、強いスピン軌道相互作用によりバンド反転が生じているトポロジカル絶縁体のエッジ状態として知られている。これらスピン偏極電子バンド中のスピンの向きは、理想的には図 1(a)、(b)に示すように（xy 面が表面であるとしたとき）表面に平行で波数に対して垂直となる。しかし実際の系においては、原子構造の対称性や電子軌道に依存してそのスピンの向きや偏極度が大きく変わることが知られている。そのため、半導体スピントロニクスデバイスの実現に不可欠な高効率スピン流の生成には、k_x、k_y、E の三次元空間でのスピンの振る舞い、つまり三次元的なスピン偏極度（P_x、P_y、P_z）に関する知見は必須である。

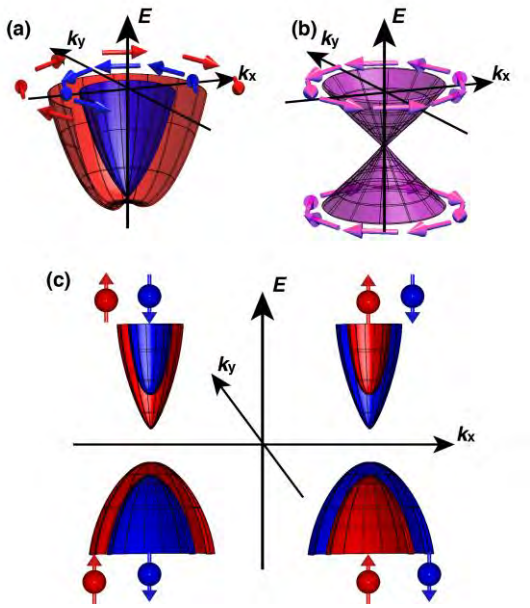


図 1　(a)ラシュバ効果と(b)トポロジカル絶縁体におけるスピン偏極電子バンド。(c)スピン偏極したバレーバンド。

バレートロニクスデバイスは、グラフェンなどのように伝導帯の極小と価電子帯の極大が同じ波数（ただし $k \neq 0$）に位置する物質を用いることによって作製可能となる。バレー（valley）、つまり伝導帯の極小もしくは価電子帯の極大、あるいはその両方が図 1(c)に示すようにスピン偏極している場合、スピンとバレーの 2 つの自由度を用いるスピン・バレートロニクスデバイスの展望が拓けると期待できる。例えばスピン流を考えた場合、電子スピンは同じ向きのスピンを有するバレーの方向しか散乱が許されないために後方散乱は抑制され、その結果スピン流効率が上がると期待できる。また、円偏光した光を照射して 1 つのバレーのみを励起することでスピン自由度を操作してバレー分極を制御したり、電場をかけることでバレーホール効果の発現も可能となる。

スピン・バレートロニクスデバイスに用いる物質には多くの候補がある。しかし、放射光施設で現在稼働しているスピン分解光電子分光システムでは，光スポットに比べ作製できる試料は小さいために、限られた試料でしかスピン偏極電子バンド構造が検証できていない。また、たとえビーム径を試料サイズに合わせて 100 nm 程度に集光したとしても、集光により輝度が 2 桁程度低くなるため、既存の放射光施設で測定を行おうとすると測定時間が大幅に長くなったり、S/N 比が大幅に悪くなるなどの弊害が出てくる。これが，この分野の材料研究が直面している課題である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

数 10 eV の真空紫外光から 1 keV 強の軟 X 線までの高輝度で偏光可変な光を利用すると、試料を構成する特定の元素の特定の軌道のスピン偏極電子バンドへの寄与に関する知見を、スピン・角度分解光電子分光法から得ることが原理的には可能となる。また、軟 X 線光を用いて特定の元素の光電子回折パターンを測定することによって、スピン偏極電子バンドに寄与する原子周りの三次元的な原子構造を知ることが可能となる。さらに、スピンの三次元情報（P_x、P_y、P_z）が得られる光電子アナライザーを用いれば、これまで異なる手法で調べられていた原子構造の対称性・電子軌道とスピンの相関に関する知見を同一試料より得ることが初めて可能となる。（微小試料の三次元原子構造は、KEK 放射光の高輝度リングを用いれば表面 X 線回折によっても求めることが可能である。）この結果は対称性とスピン偏極電子状態の相関という学術分野を確立するのみでなく、スピン・バレートロニクスの新しい可能性を探るスピン流創製・制御の学術基盤を切り拓くものとなる。

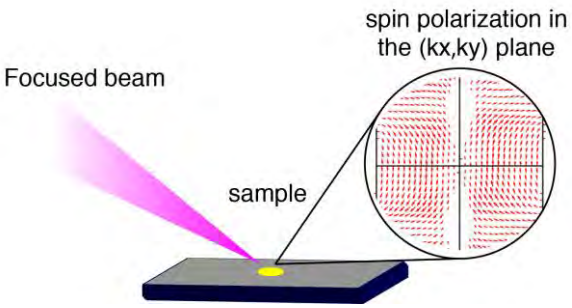


図 2　集光ビームを用いた微小試料のスピン・角度分解光電子分光の模式図。

このようなエレクトロニクスを超

えた学理を確立するためには、KEK 放射光の VUV アンジュレータビームラインで、数 10 eV の真空紫外光から 1 keV 強の軟 X 線までの高輝度で集光され，なおかつ偏光可変な光の利用が不可欠である。VUV 領域のエネルギー範囲で 50 nm 程度の集光ビームを同一焦点位置で実現出来れば、（大きな試料の作製が困難である）微小試料やμm オーダーのドメインを有する試料を測定することが可能となり、現状では測定ができないスピン・バレートロニクスデバイスの材料候補のスピン偏極電子バンドを決定することが可能となる（図 2）。さらに、大きなスピン軌道相互作用を有し、超伝導を発現する微小二次元薄膜試料で同様の測定を行えば、新奇二次元トポロジカル超伝導体の創製を探ることも可能となる。KEK 放射光は、数μm の簡易集光ビームで～10^{12} photons/sec、50 nm の集光ビームでも～10^{11} photons/sec と十分な光フラックスが得られ、微小試料のスピン偏極電子バンドの精密測定には理想的である。

実験設備に関しては、近年の高感度スピン検出器の開発によりスピン・角度分解光電子分光は短時間測定が可能となったのみでなく、それまで 100 meV 程度であったエネルギー分解能が He I α 共鳴線を用いて 10 meV 程度、真空紫外光レーザーで 2 meV 以下に至るまでとなった。しかし、これらの低エネルギー光を使った測定では，試料の回転なしでブリルアンゾーン全域のスピン情報をカバーすることができない。試料を回転させると光の入射角が変わり、偏光依存性による電子の軌道成分に関する知見を定量的に議論することが困難となる。この問題は VUV アンジュレータビームにより克服することができる。例えば、光電子の捕集角が 30°である場合、$h\nu$= 100 eV では $k_{x,y}$ < 1.3 Å^{-1} の範囲のフェルミ面上のスピン情報を得ることができ、ほとんどの物質の第一ブリルアンゾーンをカバーすることが可能となる。ここから得られる結果は、スピントロニクスデバイスおよびスピン・バレートロニクスデバイスの実現に向けた材料設計の大きな指針を与えるものである。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- 数 10 eV の真空紫外領域から 1 keV 強の軟 X 線領域まで高輝度で偏光可変（垂直・面内直線偏光、左右円偏光）
- VUV 領域で 50 nm の集光ビームを同一焦点位置で実現できるビームライン
- 光電子取り込み角が 30°の円錐で、スピンの偏極度が三次元で検出可能な高感度スピン検出器を備えたスピン・角度分解光電子分光装置を装備
- 試料の面内位置方向がナノメートルオーダーの精度で走査でき、試料とアナライザー間の距離はマイクロメートルオーダーで制御できるマニピュレーターを装備
- 基板への蒸着を行え、試料の評価ができる電子線回折装置を備えた試料準備用真空槽と直結

7-9. 3 次元空間を伝わるスピンのダイナミクスの観察と制御

(1) 背景

近年盛んに開発されているスピントロニクス技術の重要な応用の一つとして、スピンを利用して情報を高速に読み書きするデバイスがある。こうしたデバイスにおいてスピンを制御するには、現在のところ主に磁場が用いられているが、より高集積化、高速化を進めつつ、消費電力を抑えるために、光、電流、電界といったより扱いやすい外場によってスピンを制御する技術の開発が鋭意進められている。外場によって励起されたスピンは、時間的、空間的にダイナミックに変化していく。したがって、デバイスにおいてスピンを高速で制御するためには、空間を伝わるスピンのダイナミクスを観察し、その本質を理解することが必須である。

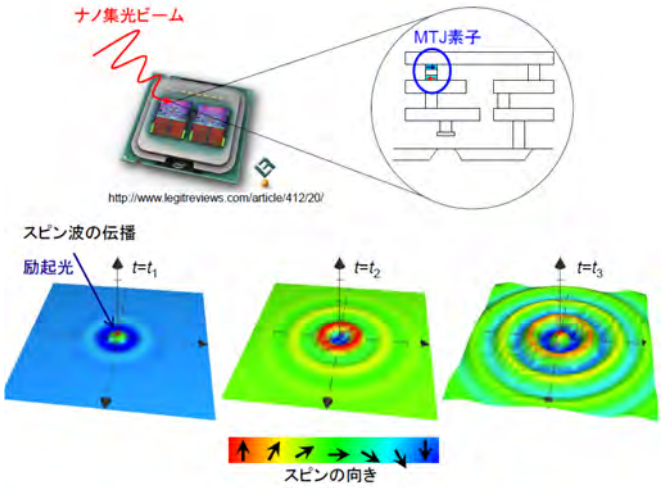


図 1 空間を伝播するスピンの模式図

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

スピンのダイナミクスは、個々のスピンだけに依存するわけではなく、隣り合った、あるいは少し離れたスピンの間や、スピンと電子軌道との間の相互作用が空間的、時間的に絡み合うことで決まっている。こうした相互作用は、一つの磁性体の中であっても、磁性元素の種類やサイトによって異なるし、（多くのデバイスがそうであるように）原子層レベルの薄膜・多層膜の場合には、界面と内部でも異なってくる。現在でも、光電子顕微鏡や走査型軟 X 線顕微鏡によって、2 次元面内での空間的なスピン分布が観測されているし、PF で開発された深さ分解 XMCD 法によって深さ方向のスピンの分布も観測されているが、3 次元的な空間分布は調べられていない。KEK 放射光においては、照射 X 線をナノビーム化して深さ分解 XMCD 法と組み合わせることによって、3 次元的な位置分解測定が可能になると期待される。しかも、ナノビームにおいても現状（ビームサイズは数 100 ミクロン）と遜色ないフラックスが得られると期待されるので、3 次元空間分布観察に、高繰り返しパルス軟 X 線を用いた時間分解測定を組み合わせることが可能である。このような 3 次元空間でのスピンのダイナミクスの観察によって、スピンが関わる物質中の複雑な相互作用の起源を明らかにし、スピンがどのように伝わっていくのかを理解することができる。このことは例えば、ナノスケールの磁性薄膜の中をスピンが伝播していく際に何が障害になっていて、どう

したらより正確、高速にスピンを制御できるのかを見極めることにつながり、スピントロニクスデバイスにおける高速化、高集積化に向けた材料設計に大きく寄与するものである。

なお最近、薄膜の磁性を観察する新しい手法として、直線偏光を用いた軟 X 線領域の共鳴 Kerr 効果が開発されている。Kerr 効果は、反射にともなう偏光面の回転や楕円率の変化から磁性に関する情報を得る手法なので、原理的には深さ分解分析へと発展させられる可能性も秘めており、上述の XMCD と相補的に利用することを検討したい。

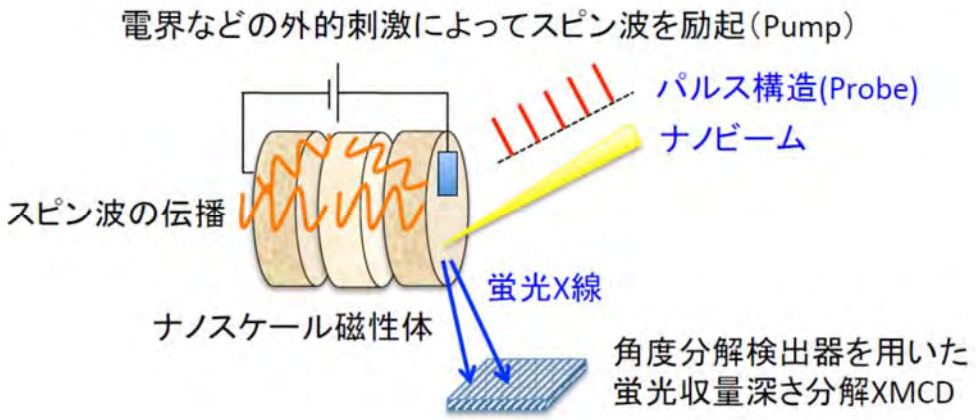


図 2 三次元位置および時間分解 XMCD 法によるスピン伝播の観察。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

本研究を実現するには、電子もしくは蛍光 X 線の出射角を分解して測定することで、様々な検出深度を持ったスペクトルを一度に得られる深さ分解 XMCD 法を、ナノビームおよびポンププローブによる時間分解測定と組み合わせたビームラインと実験装置が必要である。技術的な仕様は以下の通りである。

1. 250-2000 eV 程度のエネルギーにおいて、水平・垂直直線偏光および左右円偏光が利用できること。
2. スピンの 2 次元空間分布を直接観測するために、10 nm 程度に集光されていること。また、試料の精密な移動が可能なステージを備えていること。
3. 薄膜・多層膜からなる素子において、スピンの深さ方向への伝わり方も観察するため、nm 以下の深さ分解能を有すること。このためには角度分解（一括取り込み）型の電子および軟 X 線検出器が必要である。
4. 平均光子フラックスとして 10^{11} photons/s 程度が得られること。
5. GHz 領域で動作する素子におけるスピンのダイナミクスをターゲットとするため、放射光は 50 ps 以下程度の短パルスであること。なお、現象の繰り返し周期を放射光パルスの周期（通常は 500 MHz）の整数倍にすることで、放射光の全てのバンチを用いたポン

ププローブ測定が行える。

6. 500 MHz よりも繰り返しの遅い現象を観察するために、特定のパルスからのシグナルを選別できる検出器（1 ns 程度の分解能が必要となる）を有すること。もしくはセブラルバンチ運転のような、繰り返し周期を落とした運転モードが利用できること。
7. スピンの励起源（レーザー、電流、電界など）が放射光パルスに同期できること。

7-10. 時間分解 X 線磁気円二色性測定によるレーザー励起磁化反転機構の解明

（1）背景

これまでの 20 世紀の物質科学では、物質内の電子の自由度のうち電荷を用いるものが主流であった。これが半導体などのエレクトロニクスを生み出した。21 世紀に入り、電子の自由度のうちスピンを用いるスピントロニクスが盛んに研究されている。スピンは電荷と違い散逸が少ないことから、ロスの少ない輸送が物質内で実現し、省エネルギーに貢献することが大いに期待されている。スピントロニクスにおいて、強磁性体の薄膜は特に重要な要素物質である。薄膜においてはその形状異方性よりスピンが面内を向きやすいが、高密度メモリーのためにはスピンが面直方向を向きやすい垂直磁化膜が注目を集めている。実際には強磁性の代表的な物質である Fe と Pt の合金を作ることでこのような性質が実現されることが分かり、その発現機構の解明に向けた研究が精力的に行われている。室温から強磁性を示すうえに酸化などに強い安定な物質であることから、デバイスへの応用に直結した研究も行われている。

スピントロにクスにおいては最近、スピン制御の究極の姿である「レーザー励起磁化反転」が盛んに研究されている。デバイスにおいてその nm スケールの極小部分のみに磁場をかけることは難しいため、スピンの制御に磁場を使わずに光で行うことが求められるためである。この現象はフェリ磁性合金 GaFeCo などの垂直磁化膜で最初に発見されたことから、磁性元素を２つ以上含む垂直磁化膜であることとフェリ磁性であることの両方が必要ではないかと考えられた。しかし最近は、強磁性の FePt 薄膜や Co/Pt 超格子薄膜などでも同様の現象が観測され、磁性元素を２つ以上含む垂直磁化膜ではあるがフェリ磁性は不要と考えられ始めているが、レーザー励起磁化反転のメカニズムやその必要条件は依然未解明である。

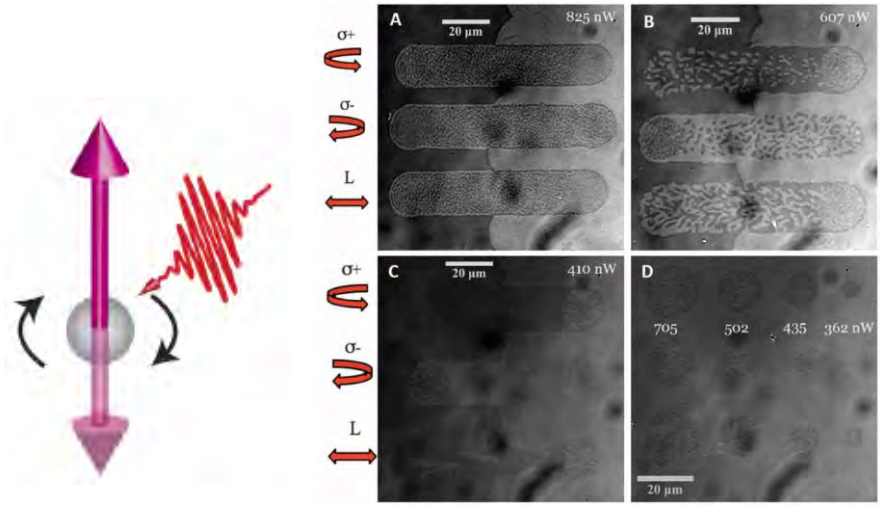


図１：レーザーによるスピンの反転と Co/Pt 超格子薄膜に対するカー顕微鏡像で見られた磁化反転 (C-H. Lambert *et al*., Science **345**, 1337 (2014))。

本提案では、レーザー励起磁化反転機構解明のため、時間分解 X 線磁気円二色性測定(XMCD)による解決を提案したい。上記のように混沌とした状況ではあるが、「磁性元素を２つ以上含む垂直磁化膜」であることは今でも必要条件と考えられており、磁性元素別のレーザーに対する応答、スピンダイナミクスの観測が不可欠と考えられる。フェリ磁性合金 GdFeCo 薄膜においては、3d 系の Fe と 4f 系の Gd でレーザーに対するスピンの応答速度が異なり、ピコ秒スケールの短い時間に生じる強磁性状態がメカニズムの鍵と提案された。上記の強磁性の FePt 薄膜や Co/Pt 超格子薄膜においても、3d 系の Fe, Co と 5d 系の Pt のスピン応答速度の違いが当然あると思われるが、この辺りは全くの未解明である。

現状の放射光では上記の問題解決に対して大きく２つの問題点がある。１つ目は時間分解能の問題である。シンクロトロン放射光(SR)は 50 ps 程度のパルス幅を持つため、SR による測定では時間分解能が 50 ps 程度となってしまうが、磁化反転はピコ秒のスケールの現象であるため、全く不十分である。X 線自由電子レーザー(XFEL)ではこの時間スケールに到達しているが、1 パルスの強さによる試料損傷の問題があり、またビームタイムも SR に比べ非常に限られている。そこで、SR で 1 ps 以下の X 線パルスを作ることが切実に求められる。もう１つは、上記の現象が 3d 系と 5d 系の合金でよく見られているものの、両方の元素の XMCD を一つのセットアップで測定することが不可能であることである。3d 系の XMCD は軟 X 線ビームライン、5d 系は硬Ｘ線ビームラインと別になっており、それぞれで時間分解測定を行うのはそもそも手間であるし、成功したとしても全く同一の励起レーザーの条件にはなっていないと考えられる。そこで、本問題解決には硬軟Ｘ線併用ビームラインが必要不可欠となる。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

前章で述べた通り、強磁性の FePt 薄膜や Co/Pt 超格子薄膜などの時間分解 XMCD 測定が急務であるが、２つの大きな問題が解決を阻んでいた。KEK 放射光では下記のように解決できると考えられる。

１つ目の時間分解能の問題は、ドイツ・ベルリンの BESSY II で行われているレーザースライシングによって可能と考えられる。電子バンチを切り出すことで SR においても 1 ps 以下の X 線パルスを作ることができる。例えば SPring-8 は電子エネルギーが 8 GeV と大きすぎて難しいが、KEK 放射光では 3 GeV のために可能な手法となる。

２つ目の硬・軟Ｘ線とビームラインが分かれている問題は、KEK 放射光で計画されている硬軟Ｘ線併用ビームラインでまさに解決できる。3d-4d-5d 系、K-L-M 端と幅広くカバーすることで、複数の磁性元素を持つ試料についてどのような磁性元素にも対応した測定が１つのビームライン、同一の励起レーザー条件で可能となる。このように 3d-4d-5d 系、K-L-M 端と幅広くカバーするような放射光ビームラインは世界に存在せず、また日本の SACLA や米国の XFEL のビームラインにも存在しないため、これらの合金系の研究にとって KEK 放射光が圧倒的な優位に立てると考えられる。

また、硬軟X線チョッパーの導入により、測定システムの簡易化を行い、実質的には静的な測定とダイナミクス測定が同様の測定セットアップで行えることが理想である。さらには、限られたビームタイムのみで磁化反転を見つけることは非効率であるため、ビームタイム以外でもレーザー照射下でのカー顕微鏡測定など行えるようなセットアップが必要である。十分に予備測定を行い、磁化反転に必要なレーザー条件（強度、偏光、スポットサイズなど）や試料条件（膜厚、基板など）を確立しておくことができるようになる。

上記の研究により、さらに 5d 系の Pt サイトを 4d 系の Pd に置換することで、スピン軌道相互作用の強さを変えた試料に対する測定も行うことができる。Pd 置換では原子番号が下がるため、スピン軌道相互作用は小さくなる。それでもなお磁化反転が起こればスピン軌道相互作用が不要ということになり、磁化反転できる物質の幅が大いに広がる。磁化反転の本質を突き止め、その本質を満たす安価で豊富に存在する元素からなる物質合成につなげることが，さらに大きな目標として挙げられる。その結果、電気を使わず光のみで制御可能なスピントロニクスの実現と，それを通した省エネ社会への道が開けるであろう。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・硬軟X線併用ビームライン＋レーザースライシング
・X 線磁気円二色性測定装置
・チタンサファイアレーザー
・硬軟X線チョッパー
・カー顕微鏡などの磁区観察装置

7-11. 表面・界面における格子歪が及ぼす電子・磁気状態の精密測定と操作

(1) 背景

半導体技術を駆使したエレクトロニクス、磁性体の多層構造を用いたスピントロニクスは、共に薄膜界面の原子配列の精密制御と共に進展してきた。界面を制するはデバイスを制す、と言っても過言でない。そのため、異種材料の界面接合を精密に制御し、その構造や物性の観測は極めて重要な位置づけとなる。しかし、異種物質の界面では、格子不整合により、界面にて歪(ひず)みを生じうる。スピントロニクス素子の中核をなすトンネル磁気抵抗素子では、強磁性体と絶縁体との異種材料の接合界面にて格子不整合による歪みが生じ、格子緩和に伴う欠陥生成による原子配列の乱れが抵抗比の低減を引き起こす。このようなマクロな磁気伝導物性は界面状態の変化で大きく変化する。しかし、界面状態の変化は電子状態にはわずかにしか影響を及ぼさないため、マクロ物性と電子構造の変化を関連づけることは現状では困難であり、界面の格子歪みに伴う電子状態変化を精密に計測できる手段が求められている。一方、この格子不整合から生じる格子歪みを積極的に利用した新規物性を接合界面にて発現させることも考えられ、異種材料の接合界面の歪みを利用した新材料設計の研究が期待される。

界面では空間対称性が破れているため、界面の 3d 遷移金属原子には結晶場中で凍結していた軌道角運動量が復活する。これにより、軌道角運動量の異方性を反映した界面磁気異方性が生じる。一方、界面接合で格子が歪むと、波動関数の混成効果の変調とそれに伴うバンド占有率の変化が引き起こされ、結果的に軌道角運動量が変調させられる。界面でのスピン軌道相互作用を介した歪みと軌道磁気モーメントの相関を調べて操作することは、ポストスピントロニクスの候補としての「スピンオービトロニクス」の学術分野およびデバイス開発に繋がる。界面の空間対称性の破れに伴うスピン軌道相互作用は Rashba 型相互作用として知られているが、歪みと電子状態の観点からの電子論の議論が将来必要になる。これにより、スピン軌道相互作用の操作による磁化反転を用いた新しい低消費電力動作の磁気メモリデバイスとして応用が期待される。

3d 遷移金属では一般に、軌道磁気モーメントはスピン磁気モーメントと比べて 1～2 桁小さい。これらを精密に計測する電子・磁気分光が望まれている。そのためには、歪みの変化に対応した電子状態、特にフェルミ準位近傍のバンド占有率を軌道選択的に測定できる電子分光が必要となる。また、磁気異方性の議論には、XMCD や XMLD を高精度に行う必要がある。磁気光学総和則に負うことなく物性を議論できる枠組みの構築が必要となっている。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

現状の放射光分光では、入射光のビームサイズが数十μm 径であるため、大きさが数マイクロメートル径のマルチドメイン構造を形成するような物質について精密な界面構造の

計測は難しい。KEK 放射光では数十 nm に絞られた高輝度光が利用できるので、薄膜界面の歪みを伴う電子状態の変化を詳細に追うことが可能になる。これにより、空間的なスピン分布、電子状態の変調を 2 次元イメージングにより捉えることも可能となるであろう。界面での原子波動関数の軌道対称性を明確にするためには、角度分解光電子分光の偏光依存性を精密に測定できるシステムを必要とする。

歪みの大きさに依存した電子軌道の占有率の変化を捉えることができれば、XMCD の磁気光学総和則を越えて、スピン・軌道磁気モーメントの精密な議論ができる。各軌道占有の寄与を総和することなく、軌道別の寄与を抽出することで、界面の歪みによってどの軌道の占有数が大きく変化するかを議論できるようになり、歪みと電子状態の相関に関する基礎物性が明確になる。これにより、XMCD 手法の進化が期待できる。そのためには、nm に集光されたビームによる XMCD 測定、X 線顕微鏡などの空間分布の観測、超高分解能スピン分解 ARPES 測定が必須となり、試料作製チャンバーと接続されたステーションが必要となる。歪みに伴うバンド構造の変化は数 meV の僅かなスケールであることから、これを上回る高分解能電子分光が必要となる。

スピン・軌道を分解できる新しい高精度な電子分光により、例えば大きな軌道角運動量を獲得するための界面材料設計が進み、スピンオービトロニクスの進展につながることが期待される。そして、外的に歪みを印加することによるフレキシブルデバイスなどの歪みが誘起する新材料の開発が可能となる。誘電体への電場印加による格子歪みと磁性が結合した真にマルチフェロイックな物質の歪みと磁性の相関に関する物性解明、焦電（ピエゾ）効果と電子状態の相関の解明、磁歪（じわい）材料のオペランド電子・磁気状態計測、力学的応力とスピン・電子物性の相関を開拓する新しい学術分野の創出が期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

本研究には、電子状態の微小な変化を精密に捉えられる高分解能電子分光が求められる。局所歪みによる変化を明確にするには、不均一性を捉えられる微小領域の計測が必要となり、XMCD, スピン軌道分解 ARPES, X 線顕微鏡などを試料作製チャンバーと接続したステーションを構築する必要がある。

技術的な仕様は以下の通りである。

- 低エネルギー側では、炭素 1s の内殻準位の計測ができるように、250 eV から光を使えるようになること。
- 1500 eV 程度までの軟 X 線のエネルギーにおいて、水平、垂直直線偏光、円偏光を利用できること。
- 局所歪みの計測のために、数 10 nm に絞られた軟 X 線であること。
- 10^{11} photon 程度が得られること。
- 試料作製チャンバーと接続できるよう広いスペースのあるエンドステーションであること。

- 軟 X 線を光源としたスピン軌道分解 ARPES にて、数 meV のエネルギー分解能で測定ができる。
- XMCD, X 線顕微鏡などがエンドステーションに設置できること。

7-12. 表面の局所原子・電子構造の時空間分解測定

(1) 背景

グラフェンの剥離製法の発見以来急速に研究が進められるシリセンやフォスフォレン等の原子層物質や、バルク電子状態の対称性によって表面電子状態の金属性やスピン偏極構造が規定されるトポロジカル絶縁体関連物質等、様々な２次元電子系が電子デバイスへの応用等を視野に盛んに研究されている。これらの表面・界面物質の電子状態および原子構造の研究において、これまで放射光を利用した実験的研究の果たしてきた役割は非常に大きい。例えば表面 X 線回折による複雑な表面原子構造の決定や、高分解能角度分解光電子分光(ARPES)による表面バンド構造の直接観測などは、これらの表面物性の探索において欠かすことのできない手法といえる。通常、こういった測定では広い面積(100 μm^2 オーダー)で均一な試料表面を対象とするが、近年ではさらなる微小領域への関心が産業・基礎科学両面から高まりつつある。産業分野では最新の半導体素子でのゲート長が 10 nm 程度に至るなど非常に微細化が進行しており、素子の性能評価や動作中の電子状態解明に際しては同程度（10 nm 程度）の空間分解能を持つ電子物性分析手法が不可欠である。一方、基礎科学分野においてもグラフェンナノリボンのエッジに現れるスピン偏極電子構造や、２次元トポロジカル絶縁体結晶端の１次元エッジ状態等、その観測には数 nm オーダーの空間分解能を要するような表面電子構造に注目が集まりつつある。このような要求を満足し得る実験手法・装置の確立は原子層物質をはじめとする次世代の半導体素子材料の今後の研究推進と産業応用に向けて不可欠の要素であり、本研究分野における喫緊の課題となっている。

原子分解能での実験を実現できる代表的な手法として、走査トンネル顕微鏡(STM)が広く用いられている。しかし、STM は得られた原子分解像の輝点について元素分析ができず、また輝点が必ずしも原子位置に対応しない等単独での解釈は困難である。表面原子構造に関する最終的な描像を得るためには理論計算との比較や、放射光との組み合わせにより元素検出性能を付与した専用ビームラインの利用等が不可欠である。つまり、現状では ARPES 等の広面積を平均化した情報を得る手法と原子１つ１つを分解する手法が独立しており、それらが融合されてはいない。

加えてこれまでの表面・界面電子系に関する研究は静的な（時間構造を持たない）基底状態に関するものが主であったが、近年ではスピン偏極表面状態を介したスピン流伝導や、光励起による相転移現象のドメイン形成・消滅過程の観察を目的とする時間分解測定の需要も高まっている。例えば、電子相関に由来する高温超伝導や巨大磁気抵抗などの新たな物性が出現する強相関電子系では、表面に現れる空間的に局在した超電導ドメイン構造等の特異な電子構造を空間的に分離し、かつ光励起後の電子状態やスピン偏極度の時間変化も含めて観測することで、低次元強相関電子の空間・時間方向（４次元方向）の振る舞いの全体像を明確に捕捉することができる。

以上の研究を行うために、我々は KEK 放射光を使った以下の実験計画を提案する。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

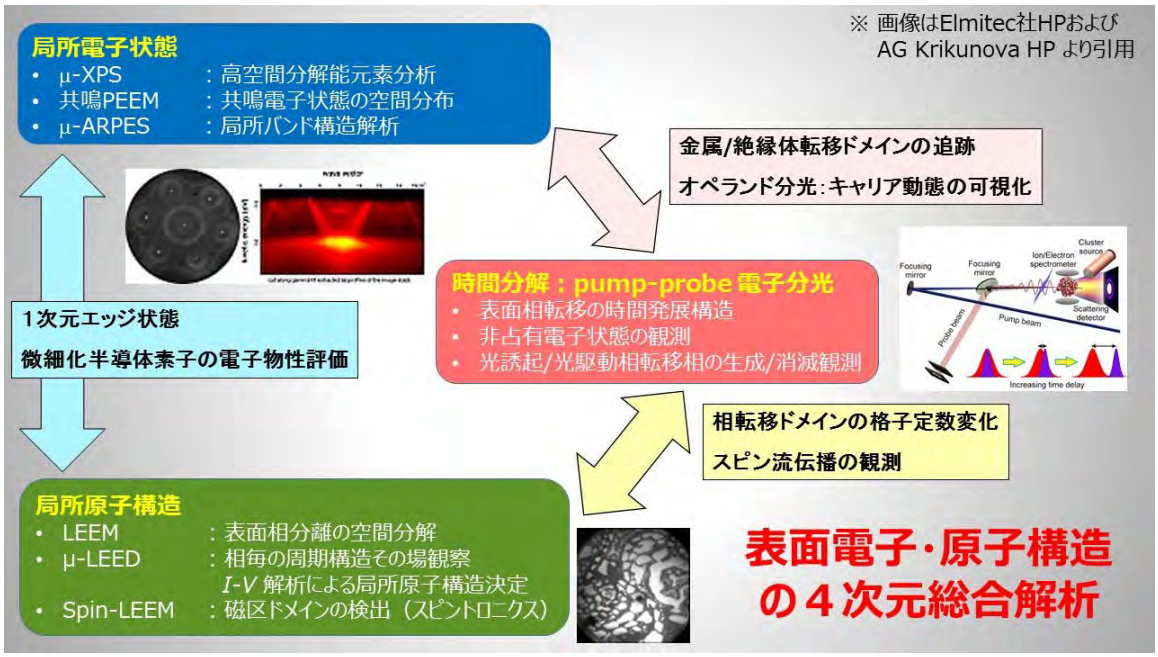
KEK 放射光で実現できる高輝度・低エミッタンス光源を利用し、光電子顕微鏡(PEEM)による局所電子状態解析と、同装置を流用した低速電子顕微鏡(LEEM)による局所原子構造解析を組み合わせた単一装置による同一試料の表面原子・電子構造の総合的な理解を実現する。さらに、パルスレーザーを励起光としたフォトカソード型電子銃から得られるパルス電子ビーム，あるいはパルスレーザーそのものを放射光バンチ（時間分解能数十 ps）と同期させることにより、電子/光励起・放射光プローブあるいはその逆手順による表面原子・電子構造の動的な測定を行う。これにより、電荷密度波の発生などの低次元系相転移現象の時間・空間分解追跡や電界効果トランジスタのゲート電圧印加後の局所電子状態の時間分解観測など、世界でも例のない独自の実験手法の確立に挑戦できる。各手法の具体的内容は以下の通りである。

1) 局所電子構造

KEK 放射光における高強度・微小スポット光源を活かした高空間分解能 XPS による元素分析と、特定元素/電子状態の共鳴端に励起光エネルギーを合わせた光電子回折(PED)による空間構造解析により、電子状態の空間分布を可視化する。また、例えば半導体にドープした不純物の共鳴端に励起光のエネルギーを合わせることで、その周辺に特定した原子構造、ひいては不純物準位と置換位置による電子物性への影響を単離して観察できる。これらの測定における光電子のエネルギー・角度分解測定には PEEM 装置の電子レンズおよび付設したエネルギー分析器を用いる。最終的な空間分解測定は PEEM 電子レンズにより達成し、光源のスポットサイズはそれよりもある程度大きなサイズに留めることでフレネルゾーンプレート等の集光素子による試料周辺空間の制約を緩め、幅広いエネルギー領域で高フラックスと微小領域測定を両立する。さらに、局所バンド構造（μ-ARPES）や、円偏光による二色性観察から得られる軌道角運動量偏極構造の空間分布等の観察も行い得る。特に後者は磁性体表面磁区構造の観察等の既知の応用例にとどまらず、原子ステップ端に現れる１次元エッジ状態の軌道偏極等、これまで観測できなかった物理現象の可視化による多くの新たな実験成果につながると期待できる。

2) 局所原子構造

主に LEEM を用いて表面原子構造について観察を行う。明/暗視野像のコントラストにより表面に複数のドメインが存在する場合の境界形状や各ドメインの面積等を可視化する。また、分離した各ドメインについて低速電子回折パターン(μ-LEED)を得ることにより、ドメイン毎の周期構造のその場観察を行う。さらに、μ-LEED パターンの動力学的解析による原子構造解析を行うことにより、ドメイン毎の原子構造を 1 pm オーダーという極めて高い精度で決定することができる。LEEM 用電子銃に関しては装置設置後に柔軟な換装が可能であるので、将来的に電子銃を KEK や名古屋大学で開発・改良が進められているフォトカソード型電子源に換装し、後述の時間分解測定に用いたい。



3） 時間分解測定

蓄積リングの電子バンチと同期した 100 fs 程度の超短パルスレーザーシステムの構築と、これを用いたフォトカソード型電子銃による超短パルス電子ビーム発生システムにより、放射光、フェムト秒レーザー、フェムト秒電子ビームのいずれかをポンプ、他どれかをプローブとした時間分解測定を実現する。フォトカソード型電子銃は負の電子親和力を持つカソード表面（酸化 Cs 修飾 GaAs 等）からの光電子を利用するものであり、励起光に円偏光を用いることでスピン偏極電子源とすることや、フェムト秒パルスを用いることで同じくフェムト秒オーダーの超短パルス電子源として動作させられる。これにより、例えば電子パルスにより励起されたプラズモンの伝播による表面電子構造の変化を放射光パルスによる PEEM 測定でプローブしたり、フェムト秒レーザー照射により電子温度を上げて一度融解させた表面電荷密度波が電子温度の冷却に伴って再形成される様子をパルス電子線をプローブとした LEEM 及びμ-LEED 測定で追跡するといった測定が可能になる。このような表面・界面における動的現象を複数の視点から、空間及び時間的に分解して測定できる世界でも唯一の実験装置の実現を目指す。

試料準備槽には UHV スーツケース機能（後述）を取り付け、超高真空を破ることなく表面試料をスピン分解 ARPES 等の他ビームラインやオフラインに設置した表面分析装置（振動除去の容易さから蓄積リング室内よりも安定した動作が期待できる STM や、化学状態解析では電子分光より詳細な情報が得られる顕微赤外分光装置等）に運搬することで、共通の表面試料を容易に測定できる体制を望む。

以上まとめると、本計画はナノメートルオーダーの空間分解能で静的な原子・電子構造、およびその状態が時々刻々とどのように変化するかをフェムト秒～ピコ秒オーダーの時間分解で観測するという３（空間）＋１（時間）次元解析を行うものである。このような実験は、微小空間に軟 X 線放射光を集光できる新第３世代放射光源なくして実現不可能であり、KEK 放射光の代表的な成果になると期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・数十 eV から 3 keV 程度までの幅広いエネルギー領域で高フラックスと微小領域への集光を両立したアンジュレータビームライン。

・エネルギーアナライザ付き低速電子顕微鏡（例えば Elmitec 製 SPELEEM）

・フェムト秒レーザーシステム

※ 時間分解測定用に、蓄積リングの電子バンチとの同期システムを構築する。

・フォトカソード型電子銃（上記レーザーシステムから分岐したパルス光を光源とする）

・UHV スーツケース

※ NEG とバッテリー型イオンポンプを組み合わせ、電源供給なしで一定時間超高真空を保てる設備。これを用いて超高真空を破ることなく複数の超高真空装置間で共通の表面試料を受け渡すことができる。

7-13. 時間分解コヒーレント散乱ビームラインの建設とダイナミクス研究

(1) 背景

自然現象を理解する上でその動的過程を捉えることが重要であるのは言うまでもない。これまでの放射光実験においても回折や分光などの時分割測定が実施され、物質の原子構造、電子状態、スピン配列の時間変化が明らかにされてきた。この流れは今後ますます大きくなることは確実であり，それゆえに KEK 放射光においても時間分解実験は不可欠となるであろう。

放射光で実施できる実験の時間スケールは、パルス幅限界のピコ秒から秒のオーダーと幅広い。放射光の時間分解実験は、これまではパルス放射光の輝度を大きくするために蓄積リング内の１つのバンチ当りの電荷量を大幅に増やすセベラルバンチモード運転時に実施されてきた。しかしこのような特殊な運転モードは加速器調整の負担が増え、また運転時間も限定的であるためダイナミクス研究のビームタイムは稀少であった。このような背景の中、国内外のビームラインサイエンティストの間では運転モードに依らずに時間分解実験が可能なビームラインの設計と要素技術開発が進められてきた。KEK 放射光では、マルチバンチモードであっても一つのバンチから発生するパルス放射光の輝度は十分に大きくなることが期待され、さらにコヒーレンス性など光源特性も従来の KEK－PF に比べて大幅に向上する。そこで、KEK 放射光の光源性能を活かした利用実験に、これら時分割測定技術を組み合わせることで、放射光実験の新たな展開を図る。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

ここでは、低エミッタンスリング KEK 放射光から発生した高輝度かつ高コヒーレント性の軟 X 線パルスを活かした時間分解実験を行うためのビームライン（時間分解コヒーレント散乱ビームライン）のデザインを提案する。

KEK 放射光で用意するアンジュレータ磁石列の周期数を数百にすると、その高輝度アンジュレータ光のエネルギー幅は十分狭くなるので擬似単色光として、分光器による強度ロスがないまま試料へ照射することができる（図１）。そして光信号の測定に高速検出器を用いることで、放射光パルスと同期したタイミング制御によりどのような運転モードでもピコ秒から時間分解実験を実施することができるようになる。ミリ秒～秒の時間スケールの律速段階で支配される遅いダイナミクスについても、放射光を連続光源として扱い、この軟 X 線チョッパーで光を切り出すことで、その時分割測定ができる。さらに軟 X 線チョッパーは、プローブ光以外の余分な放射光をカットできるため、放射光照射によるダメージから試料を守ることもできる。本ビームラインでは軟 X 線散乱、共鳴磁気光学効果、走査型 X 線顕微鏡などの時間分解実験が実施できる。

KEK 放射光の高コヒーレンス性を活用するには、図２のようにコヒーレント光切り出しスリットを加える。これにより、100%に近い空間コヒーレントの放射光を用意することがで

きるため、コヒーレント回折イメージング（CDI）や、さらに偏光制御をすることで磁気イメージングなどの時分割測定も可能となる。

軟 X 線放射光は電子状態を直視し、元素選択性もあるプローブである。生物、化学、物理学、そして工学の様々な分野の不均一試料に対して、時空間だけでなく、元素や電子特性（スピン、軌道）も同時に情報提供する。

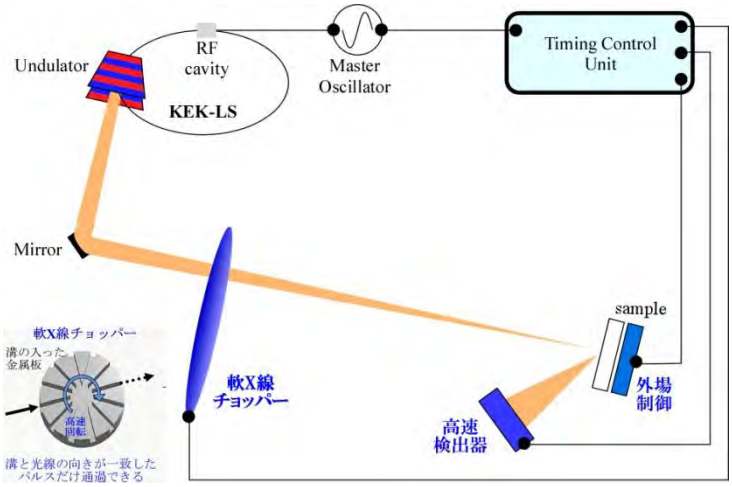


図１　時間分解実験ビームラインの設計案

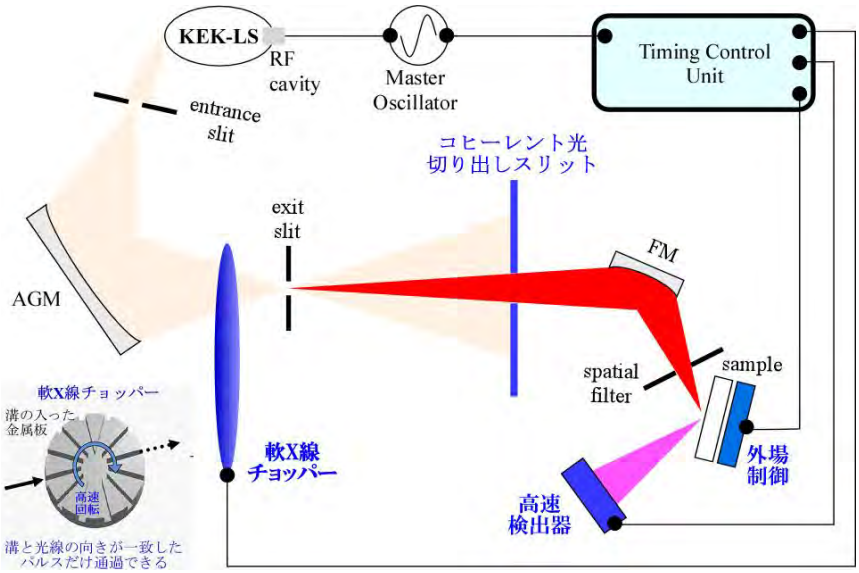


図２　時間分解コヒーレント散乱ビームラインの設計案

(3)　必要とされるビームライン・実験設備

3-1 光源

・偏光制御型光源(直線偏光、円偏光)

・ 200 eV~2000 eV 領域のエネルギー範囲

3-2 測定装置

・時間分解実験用要素技術：軟 X 線チョッパー、高速光検出器
・コヒーレント光切り出しスリット
・散乱実験装置（偏光解析、コヒーレントイメージング）

７．表面・界面科学

＊担当一覧

監修：小澤　健一（東京工業大学）

執筆分担：

まえがき　小澤　健一（東京工業大学）

7-1　若林　裕助（大阪大学）、白澤　徹郎（産業技術総合研究所）

7-2　魚崎　浩平（物質・材料研究機構）、長坂　将成（分子科学研究所）

7-3　Voegeli Wolfgan・荒川　悦雄（東京学芸大学）、矢野　陽子（近畿大学）、松下　正（KEK 物構研）

7-4　近藤　寛（慶應義塾大学）

7-5　山本　達（東京大学物性研究所）

7-6　松井　文彦（奈良先端科学技術大学院大学）

7-7　松田　巌（東京大学物性研究所）

7-8　坂本　一之（千葉大学）

7-9　雨宮　健太（KEK 物構研）

7-10　和達　大樹・松田　巌（東京大学物性研究所）

7-11　岡林　潤（東京大学）

7-12　大坪　嘉之・木村　真一・渡邊　浩（大阪大学）

7-13　松田　巌（東京大学物性研究所）

校閲協力：

足立　純一（KEK 物構研）、阿部　仁（KEK 物構研）、雨宮　健太（KEK 物構研）、小澤　健一（東京工業大学）、木下　豊彦（JASRI/SPring-8）、組頭　広志（KEK 物構研）、近藤　敏啓（お茶の水女子大学）、近藤　寛（慶應義塾大学）、齋藤　智彦（東京理科大学）、酒巻　真粧子（KEK 物構研）、手塚　泰久（弘前大学）、中尾　裕則（KEK 物構研）、間瀬　一彦（KEK 物構研）、若林　裕助（大阪大学）

8．原子・分子科学

原子・分子科学分野が研究対象にする有限量子多体系としての原子・分子・クラスターのダイナミックスを支配しているのはクーロン力であり，その関数形は周知の通りで，それらが従う微分方程式もディラック方程式として良く知られている．では，何を知るためにこの研究分野が今も存在し続けているのであろうか？ほぼ90年前にディラックが語った量子力学の展望「量子力学を応用するための実用的な近似方法を発展させ，過度の計算を行う事なしに，複雑な原子集合体の主だった性質を説明できるようになるのが望ましい」にその答えがあるのではなかろうか．量子力学の黎明期からその検証の場として発展し，その存在意義を示してきた原子・分子科学は，ディラックが示したこのゴールに向かって，今もミクロ世界の情報・知識を蓄積し続けている．特に，“実用的な近似方法”を展開していくためには粒子相関に関する情報が不可欠である．原子・分子系は，オージェ過程に代表される電子相関現象の宝庫であり，また，粒子相関による特異な協同現象を実験的に探ることが可能な，まさに格好の研究対象であると言える．

VUV/SX領域の光子と原子・分子の衝突過程は，いわゆる半衝突であり，衝突後は光子が存在しない．これは電子やイオンを使った衝突過程と一線を画す大きな特徴で，半衝突ゆえ衝突後の始状態は明確であり，その後の反応の追跡を容易にする．この大きな特徴は，少数多体系が研究対象であることと相まって，測定結果と理論計算の定量的で精緻な比較を可能にする．このように第一原理的なアプローチで有限量子多体系の電子構造およびダイナミックスを研究する基礎科学分野であるため，その知見は，凝縮系物理，天体物理，プラズマ物理，化学物理，地球物理など，広い分野における現象理解の基礎となる．

孤立した原子・分子・クラスターを研究対象とするため，実験は従来，気相標的に対してシングル・コリジョンが成立する条件で行われてきた．その意味では，KEK放射光で実現が期待される低エミッタンス性が直接有利に働く事例は少ないが，原子・分子との衝突点を空間的に小さくできることから，双極子遷移モーメントを実験的に決定できる完全実験に必要な，角度分解実験の精密化に寄与することが期待される．また，高輝度性を活かしたスポットサイズの縮小は，荷電粒子エネルギー分析器，発光分光器などのエネルギー分解能の向上につながる．これにより，高品質の分光データを高効率で得ることが可能となるので，系統的な研究の飛躍的な進展も期待できる．

一方，KEK放射光の低エミッタンス性は，これまで主としてスポットサイズの点から実現困難であった大強度レーザーや超短パルスレーザーと放射光との同期実験を可能とする．最近のレーザー技術と計測機器の発展にともない，原子・分子反応の時間発展をアト秒オーダーで追える可能性がある．この実現は，少数多体系のディラック方程式を実験的に解くに等しいと言え，原子・分子科学の研究者が長年追い求めていた夢，反応の実時間観測に手が届くところまで迫ることを意味する．その他にも，イオン蓄積リング，イオントラップと放射光ビームの合流実験に非常に有利に働くと予想される．放射光とこれらの実験技術との

組み合わせは，強レーザー場中の原子・分子，正負の原子・分子・クラスターイオン，多価イオンの基礎研究に対する絶好の場を提供する．特にサイズ選別したクラスターは，原子・分子と物質をつなぐプロトタイプとして，ディラックの考えた展望を実現するという意味で大きな波及効果が期待される．さらに，VUV/SX 領域の回折限界光による光渦の利用，あるいは，原子からの光電子をビーム整形し，物性研究のための高品質な電子ビームを発生させるといった放射光の新たな利用方法や，多電子励起過程を利用した新たな汎用化学分析手法の確立，量子もつれという量子力学の根幹に踏み込む研究についても新展開が大いに期待される．

8-1. サイズ選別した孤立クラスターに対する時分割 X 線吸収分光測定

(1) 背景

クラスターとは数個～数十個の原子からなる系で、原子・分子と微粒子の中間的なサイズ領域に位置付けられる。クラスターは構成原子数（サイズ）により物性が著しく変化することから興味を持たれるとともに、磁性や熱的特性など様々な物性の発現を理解するための物質の新たなプロトタイプとしても研究対象となっている。こうしたクラスターは化学反応性も特異なサイズ依存性を示すことが分かってきており、クラスターを利用して高性能の触媒を開発すべく、金属クラスターや金属酸化物クラスターの研究が進められている。

自動車排ガス浄化の助触媒として使われている酸化セリウム、光合成の酸素発生中心である酸化マンガンクラスターなどの金属酸化物は、触媒サイクルの中で金属原子が荷電状態を変化させることが知られている。金属の荷電状態を測定する手法として X 線吸収分光法は非常に有力で、バルク試料に対しては実触媒系を含めて広く研究がおこなわれてきた。

触媒の機能発現の機構を理解し、改良に向けた指針を得るためには、活性サイト近傍の電子状態を調べることが不可欠である。近年、触媒は高性能・高機能化を目指して担持微粒子のサイズの微小化が提案されており、微粒子径は 1nm～サブ nm すなわちクラスターのサイズ領域に近づいてきている。真空中に孤立したクラスターはこの触媒微粒子の中の活性サイトを切り出したモデル系として有効な研究対象であり、孤立クラスターに対する X 線吸収分光測定は活性サイト近傍の荷電状態など有益な知見を与える。

サイズ選別した孤立クラスターに対する X 線吸収分光は、試料の希薄さから測定が困難であった。しかし近年イオントラップ技術の発達などにより測定が可能になり、磁性や触媒に対する興味から実験が行われるようになった。このように最近発展してきているクラスターの X 線吸収分光測定であるが、現時点では安定状態にある静的なクラスターに対してのみ測定が可能で、時間と共に変化する動的状態での測定は実現していない。一方で触媒など化学反応過程について理解するためには、反応の進行に伴う変化（ダイナミクス）を調べる必要がある。

反応のダイナミクスを調べるためにはポンプ - プローブ法による時分割測定が有効である。ポンプ - プローブ測定は 2 光子過程であるため、ポンプ光となるレーザー光、プローブ光に用いるX線ともに試料位置での光子密度が大きい必要がある。特に吸収断面積の小さいX線領域では 10^{18} photons/cm^{2}· s 程度の光子密度が必要であり、従来の放射光では測定が不可能である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光は低エミッタンスであるためX線を集光することが可能であり、同じく集光した励起用レーザーと併用することで、従来の放射光ではできなかったポンプ - プローブ測定が可能になる。反応分子を吸着させたクラスターに励起用レーザー（ポンプ光）を照射

して反応をトリガーし、X 線照射（プローブ光）までの遅延時間を変えながら X 線吸収分光測定を行う。試料となるクラスターはサイズ選別してイオントラップに蓄積しておく。この測定により、反応中にクラスター中の金属原子の荷電状態や反応分子の吸着状態が変化していく様子を追跡できる。

光源の性能と測定の関係は以下のようになる。本測定ではプローブ光となる X 線パルスの強度が重要であるため、大強度シングルバンチモードもしくはそれに近いモードでの運転が必要である。このときの繰り返し周波数はおよそ 1MHz と考えられる。シングルバンチモードでも通常のマルチバンチモードと同程度のフラックスが得られると仮定した場合、10μm×10μm に集光すれば 10^{18} photons/cm^{2}· s の光子密度が得られ、測定が可能になると期待される。

X 線吸収分光により金属原子の荷電状態をプローブする場合、プローブ光のエネルギーが 0.1eV 程度の分解能を持つことが望ましいが、これは KEK 放射光では十分に達成できる。時間分解能は KEK 放射光のパルス幅から約 10ps であり、クラスターの構造変化を伴うような反応過程を観測することができる。

さらにポンプ - プローブ法による時分割 X 線吸収分光測定は様々な系への応用が可能な汎用的な測定法であり、荷電状態変化が重要となるような触媒系に限らず多くの系に対して成果が期待できる。また測定法としても X 線吸収分光を基盤とした発展が期待できる。例えば、円偏光した X 線と磁場中に設置したイオントラップを用いることで、時分割した X 線磁気円二色性（XMCD）測定などが想定される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・軟 X 線ビームライン

（大強度シングルバンチモードでの運転、アンジュレータ光源、焦点サイズ 10μm×10μm、焦点位置の高い安定性（時間に対して、エネルギー掃引に対して））

・クラスターX 線吸収測定装置

（クラスタービーム源、クラスターサイズ選別装置、イオントラップ）

・励起用レーザー

（UV~VIS、パルス幅~5ps、繰り返し周波数~1MHz）

8-2. 強いレーザー場中の原子・分子・クラスターの電子的構造とダイナミクスの解明

(1) 背景

大強度レーザー（パワー密度 ≥ TW/cm^{-2}）により、原子・分子・クラスター内の構成粒子（電子・原子核）間に働くクーロン力に匹敵するような電場を外部から与えることができる。その場の中では、ハミルトニアン中に光電場の寄与が含まれる**新奇な状態**が形成され、物質と光との相互作用について摂動論的な取り扱いが不可能となる。このように光の衣をまとった状態は**ドレスト状態**と呼ばれている。このような状態は、少数多体量子系の理解という観点から注目されるだけでなく、外部から分子の形状や電子状態を制御できる可能性があり応用面からも期待されている。

また、強レーザー場により気相分子の空間的配向の整列、あるいは、振動波束・回転波束を制御した化学種を準備することが可能である。そのような化学種に対する電子的分光実験では、振動・回転状態を選別した分光とは異なる観点でのダイナミクス研究が展開できる。

強いレーザー場中にある原子・分子・クラスターの研究では、その状態・挙動を調べるために用いられる（プローブ）光としてレーザー光が活発に用いられている。レーザー光では、深い価電子や内殻電子を励起・電離する波長を得ることは現在でも一般的でなく、それに加えて波長掃引性を得ることは困難である。そこで、波長掃引性が非常に高い放射光をプローブ光として用いる実験が望まれている。現存の PF リングにおいて、強レーザー場中にある原子・分子を放射光により調べる実験が試みられたが、放射光の輝度の不足とレーザー光源の繰り返し周期の低さのため実現できなかった。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光の低エミッタンス性を利用して、強いレーザー場中にある原子・分子・クラスターを対象とした **VUV・SX 分光実験を初めて実現できる**と期待される。

ここで提案している実験では、強レーザー場を作るレーザー光とプローブ光として用いる放射光の 2 種の光源を用いる。それら 2 種の光を空間的に重ね合わせ、時間的に同期させて実験を行うことが必須である。そのため、小さな集光スポットに得られる 1 パルスあたりの高い放射光強度が必要である。具体的には、低エミッタンス性を活用して放射光強度を失うことなく 10μm 径以下のスポットサイズを作り、放射光 1 パルスあたり 10^4 photons 以上を得ることにより、強いレーザー場中にある化学種の分光・ダイナミクス研究が可能になる。それにより、ドレスト状態における電子的構造の変化について、最外殻電子だけでなく内側の電子についても調べることが可能になる。また、分子・クラスターが内殻励起・電離後に多価イオンを形成して、複数の解離イオンを放出する現象を利用し、分子の構造変化に関する情報を得られると期待される。

ドレスト状態にある分子・クラスターは、別の電子状態が結合した状態として理解できる可能性がある。そこで、レーザー光によりある結合方向への解離性の電子状態を結合させることにより、特定の結合に対して“結合軟化”を引き起こすことができるかもしれない。そのような候補となる多原子分子のドレスト状態について、高輝度放射光を活用して系統的に調べることにより、分子・クラスターの光解離制御の 1 つ機構を示すことができると期待している。これにより、化学における究極の目標である化学反応の完全制御へ向けて、その道のりの 1 つである**半反応としての光解離制御を実証**することができる。さらに、将来的に極短パルス生成が KEK 放射光において可能になれば、振動・回転が制御された分子・クラスターについて、時間分解ダイナミクス実験が可能になる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・大電荷バンチ運転モード
・軟 X 線用パルスセレクター
・KB ミラー集光系
・高繰返し（1 kHz 以上）かつ大出力ナノ秒・ピコ秒パルスレーザー（mJ クラス）
・荷電粒子運動量画像計測システム
・極短パルス生成運転モード（Low α モード、あるいは、レーザースライシング）

8-3. 内殻二重空孔状態の精密分光による新しい化学分析法の創出

(1) 背景

分子の X 線光電子スペクトルには、分子を構成する個々の原子の内殻電子のイオン化に対応する光電子ピークが見られる。それらのピークエネルギーは，分子内のそれぞれの原子周辺の化学環境を反映したピークシフト（化学シフト）を示す。この化学シフトを物質表面の化学状態のプローブとして利用した ESCA（Electron Spectroscopy for Chemical Analysis）は、基礎物質科学から材料科学までの幅広い分野における標準的な化学分析手法の一つとなっている。しかしながら，化学シフトは対象とする物質の化学状態の違いに常に鋭敏であるわけではなく、例えば炭化水素分子の炭素 K 殻電子の化学シフトは炭素原子周りの結合次数の変化に対して鈍感であることが知られている。そのようなケースに対しては、通常の ESCA では化学結合に対する十分な情報が得られない。

最近、超高効率の多電子同時計測手法を利用することにより、分子の X 線イオン化において K 殻軌道から２つの電子が同時にイオン化される内殻二重イオン化過程が見いだされた。ここでは、分子内の特定の原子サイトからの K 殻電子２個のイオン化のみならず、異なる２つの原子サイトそれぞれからの K 殻電子のイオン化も観測された。後者の過程により生成する内殻二重空孔状態のエネルギーの化学シフトは、２つの空孔の間の価電子軌道の様子を強く反映する。そのため、多電子同時計測手法による内殻二重空孔状態の分光は、内殻空孔で指標された２つのサイト近傍の化学結合についての直接的な情報を与える新しい ESCA としての有用性が提唱されている。しかしながら、この内殻二重イオン化は、普通の K 殻からの１電子イオン化と比べて、断面積は５桁程も小さい。そのため、現状では内殻二重空孔状態の分光は極めて不十分なエネルギー分解能と精度を甘受するしかなく、内殻二重イオン化の基礎物理の理解についてさえ端緒に留まっている。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

高輝度な新光源の利用により，エネルギー分解能と同時計測レートを格段に向上させた内殻二重イオン化についての多電子同時計測が可能となる。多電子同時計測には、超高効率な電子同時計測を可能とする磁気ボトル型電子エネルギー分析器を用いる。磁気ボトル型電子エネルギー分析器では電子の運動エネルギーを飛行時間分析するが、内殻二重空孔状態を有効なエネルギー分解能で観測するためには、10 マイクロ秒程度の時間間隔をもった放射光パルスが必要となる。そのため、蓄積リングのシングルバンチ運転あるいはハイブリッド運転を利用し、その孤立バンチからの放射光パルスをパルスセレクターにより切り出して使用する。このパルスセレクターは現在の PF リングにおいて開発を進めているが、そのスループットと得られるパルス純度は現状の放射光の輝度によって制約を受けている。輝度の高い新光源のアンジュレータビームラインに現有のパルスセレクターを設置するだけでも、十分なバンチ純度の下で少なくとも数倍のスループットの向上が予想される。さ

らに KB ミラー集光系を組み合わせたパルスセレクターの開発を計画しており、これにより 2 桁以上のスループットの向上を目指す。

上記の実験セットアップを用いた多電子同時計測により、内殻二重イオン化ダイナミクスの理解と生成する内殻二重空孔状態の分光情報を高度に獲得することが可能となる。例えば、光エネルギーに対する内殻二重イオン化断面積やスペクトル構造の変化を観測し、１つの光子の吸収により２つの電子が放出されるという特異な内殻二重イオン化現象が引き起こされる仕組みを明らかにできる。また、高いエネルギー分解能のスペクトルの計測により、内殻二重空孔状態の安定性を決定づけるポテンシャルエネルギー曲面やそこでの分子振動の様子が理解できる。これらの実験データの獲得によって、内殻二重イオン化を描写するための理論的枠組みの発展も自ずと促進されるであろう。それらの内殻二重イオン化の基礎物理の理解の飛躍的発展に基づき、多電子同時計測手法による内殻二重空孔状態の分光をより広範な物質系への汎用化学分析手法として確立していくことが可能となる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- 可変偏光軟 X 線アンジュレータビームライン
- シングルバンチ運転やハイブリッド運転のような放射光の時間構造を利用可能な特殊なバンチフィリングの運転モード。ハイブリッド運転では軟 X 線用パルスセレクターとの併用利用
  - ※ ハイブリッド運転の場合は，シングルバンチ部分を大電荷バンチとする
  - ※ パスルセレクター利用の場合，縮小率切り替え可能な KB ミラー集光系が必要
- 持ち込み装置（飛行時間型電子エネルギー分析器，ビーム軸と垂直方向に長さ約 3m）を設置可能なフリーポートを有する実験ステーション

8-4. Cold Electron Collision 微分断面積測定実験

(1) 背景

近年、放射光を用いて原子を光電離させて生成した光電子を電子源として超低エネルギー電子ビームを生成する手法が開発され、従来の熱フィラメントを用いた手法の下限を遥かに下回る、超低エネルギー電子衝突実験が行われるようになってきた。このような超低エネルギーでの電子衝突では、電子－原子・分子間の長距離相互作用の漸近形が重要になってくるため、重粒子衝突における Cold Collision（冷い衝突）との対比から、“Cold Electron Collision（冷たい電子の衝突）”と呼ばれている。低エネルギーの電子の衝突・散乱過程では、電子の de Broglie 波長が長くなることに起因して、量子力学的効果による特有の現象が現れることが知られている。特に電子のエネルギーが室温を下回る、十数 meV 程度の超低エネルギーともなると、その de Broglie 波長は 100 Å 以上となり、数 Å 程度の大きさである原子・分子と比較して極めて長いものとなる。また、この様な超低エネルギー電子衝突では衝突時間が分子の振動周期に匹敵する程と極めて長くなり、分子振動との強い相互作用を誘起されることも期待される。このように、超低エネルギー電子衝突の研究は特異的な物理現象の発現が期待され大変興味深い。

放射光による光電子源を用いた電子ビーム生成法は、2000 年頃に北欧の小型放射光リングにおいて挿入光源を有する専用ビームラインが設けられたことにより、10 meV を下回る極めて超低エネルギーと 1 meV 以下という極めて高いエネルギー分解能を達成した。さらに、2010 年には放射光の特徴を生かした「しきい光電子源」が開発され、挿入光源に比べて放射光強度の小さな偏向電磁石ビームラインでも同等の性能を発揮できる様になってきている。これまでに、超低エネルギー電子ビームと透過減衰法を組み合わせて電子衝突全断面積測定が達成され、種々の分子について超低エネルギー領域での電子衝突全断面積の特異的な振る舞いが見出されている。これらの断面積の振舞は、例えば virtual state と呼ばれる、波動関数が物理的に妥当な境界条件を満たさない（現実には存在しない）偽の状態が、現実の電子散乱に影響を及ぼす結果である可能性が指摘されている。また、分子の振動の自由度と散乱電子が結合することにより短寿命の負イオンを生成する振動 Feshbach 共鳴なども提唱され、これら発現のメカニズムの解明が求められる。

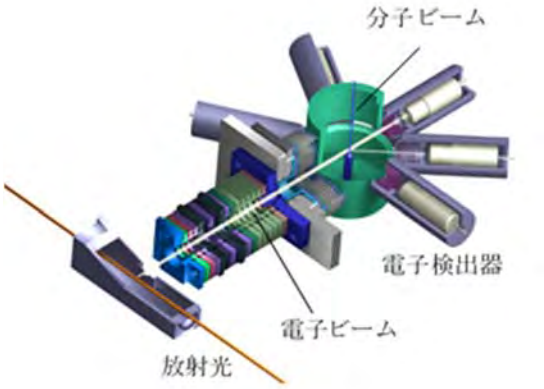


図１　放射光を用いた光電子源の概略図

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

光電子源を用いて電子ビームを生成する手法では、放射光の強度だけでなく放射光の

エネルギー分解能とスポットサイズが、生成する超低エネルギー電子ビームの品位を支配する。KEK 放射光で達成される極小エミッタンスの高輝度放射光を用いた光電子源であれば、これまでの 10^3 倍以上の大強度かつ極めてエミッタンスが小さい超低エネルギー電子ビームを生成可能である。このことは、Cold Electron Collision 実験を全く新しいフェーズに変える可能性を秘めている。すなわち、Cold Electron Collision により散乱された電子を直接観測することで衝突の詳細な情報を得ることができる、「電子衝突微分断面積」の測定である。これまでの Cold Electron Collision 実験は、比較的強度の小さい電子ビームでも実験が可能な透過減衰法による電子衝突全断面積測定のみ達成されていた。しかし、これまでの 10^3 倍程度の強度の超低エネルギー電子ビームが得られることになれば、Cold Electron Collision における電子衝突微分断面積の測定が可能となる。KEK 放射光を用いて Cold Electron Collision 実験における微分断面積測定が達成されれば、衝突過程ごとのを散乱電子の角度分布から、散乱電子波の情報を得ることができ、散乱状態の波動関数をはじめとする重要な情報を、はじめて得ることが可能となる。さらに、光電子生成のための放射光に円偏光を用いれば、スピン軌道相互作用の大きな原子の光電離によりスピン偏極電子を生成することが出来る。これと微分断面積測定とを組み合わせることで、Cold Electron Collision における電子スピンに関する知見を得ることも可能となる。なお、この実験技術は放射光による光電子源大強度高分解能偏極電子線ビームラインとして多くの分野への応用も期待できる。

KEK 放射光の極小エミッタンス・高輝度放射光で実現する Cold Electron Collision 微分断面積測定は、その特異な現象の探索とメカニズムの解明を通して、そして原子分子科学の発展に大きく寄与するだけでなく、量子力学に基づいた有限系における少数多体系の散乱問題に新しい展開が期待できる。また、ここで得られる超低エネルギー領域の衝突断面積は、電子衝突により引き起こされる種々の過程、プラズマ科学、大気科学、核融合科学、放射線科学などの広範な分野の基礎データとしても非常に重要である。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- 10 eV～100 eV の VUV～軟 X 線領域において直線および回転偏光が供給可能な可変偏光アンジュレータ・ビームライン。
- 10 μm 以下のスポットサイズが 20 cm 程度に亘って確保できる長焦点出射光学系。
- しきい光電子源を用いた超低エネルギー電子ビームを生成装置。
- 気体サンプルを取り扱えるシステム（希釈用窒素の供給設備や排気ダクト）。

8-5. 回折限界光源で探る光渦と原子分子の相互作用

（1）背景

光渦とは螺旋状波面を持ち軌道角運動量を運ぶ性質のある光である．可視から近赤外の波長域における光渦の生成はいくつかの手法が確立されている．例えばガウスモードのレーザー光に対して光学素子を用いた波面操作を施し，螺旋波面の光渦を得ることは比較的容易である．1990 年代以降，可視から近赤外域における光渦の研究は急速に進展し，その応用は微粒子操作，蛍光顕微鏡から量子情報まで多岐にわたる．一方，真空紫外から X 線領域では一般的に光学素子による波面制御は難しく，これまで光渦を用いた研究は殆ど行われていなかった．ところがごく最近，円偏光アンジュレータ放射の高調波は光渦の性質を持つことが見出された．これにより既存の放射光施設において真空紫外から X 線領域の光渦を得ることが可能と分かり，未踏領域が広がる短波長域の光渦の利用が俄かに大きな関心を集めつつある．しかしながら短波長域の光渦と物質の相互作用については，簡単な原子分子を対象とした理論研究がいくつか存在するものの，実験的検証に基づく理解は示されていないのが現状である．

光渦と原子の相互作用では，電子系への軌道角運動量移行によって多重極遷移が許容になると予測されている．しかしながら，多重極遷移が許容になるのは原子周辺での光電場の強度変化が大きい渦の中心付近の狭い空間領域に限られ，渦の中心から離れた領域では双極子遷移が支配的になると考えられている(図 1 参照)．この光渦と原子の特異な相互作用の観測はいまだ実現しておらず，今後，アンジュレータ放射による光渦利用を開拓する上でもまず解明すべき現象といえる．ただし電子遷移に対して光渦の効果が顕在化する空間領域は渦の中心から一波長程度と予想されており，光渦が引き起こす多重極遷移を検証するには波長スケールへ集光された高輝度光の利用が必須である．つまり光渦と原子分子の相互作用における特異な振る舞いは，通常，多重極遷移の寄与が無視できる VUV/SX 領域において回折限界光源が実現することで，初めて現実的な研究対象になりうる．

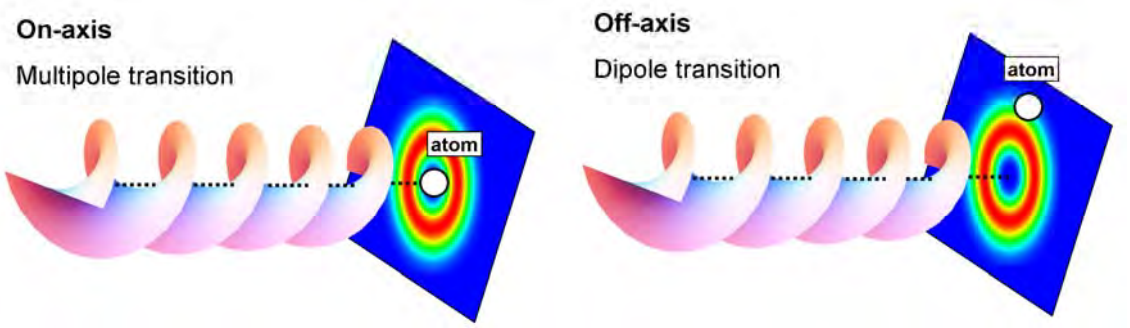


図 1：光渦と原子系の相互作用の概略.

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光の利用によって VUV/SX 領域では回折限界光が得られる．それらを用いれば光強度を大きく損なうことなく波長スケールへの集光が可能となる．このことにより光渦と物質との相互作用を特徴づける振る舞い「位相特異点近傍で許容となる多重極遷移」が現実的な観測対象になると期待される．本研究では要求される集光ビーム径(数十 nm~0.1 μm)と測定条件(吸収断面積，可視波長域の発光分光)を鑑み，VUV 領域の実験を提案する．

測定手法は気相原子分子を対象とした，吸収分光，発光分光，コインシデンス分光である．いずれの測定手法においても，光渦ビームの集光に従って多重極遷移が強調される傾向が見出されると期待される．また分子線やガスセルで提供される非局在化した原子集団を対象とした実験だけで無く，能動的な原子集団の位置制御も光渦の特異性を見出すためには有望であろう．例えばイオントラップや光学トラップによって捕捉された原子集団を使えば，相互作用の位置に応じて多重極遷移が強調される様子が可視化されうる．

現段階では円偏光アンジュレータによって生成される短波長域の光渦の利用は未知数である．しかしながら，可視から近赤外の波長域の光渦の利用が新規の光科学を創出しつつある現状を考えると，短波長域の光渦は近未来の光科学に大きなブレイクスルーをもたらすポテンシャルを持つことは間違いない．KEK 放射光の利用によって実現する光渦実験で得られる基礎的な知見は，原子物理学的な興味のみならず，短波長域の光渦利用を開拓するための基礎データとしても貢献が期待できる．

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- 円偏光 VUV アンジュレータビームライン
- 基本波および高調波(二次は必須)で 10~30 eV をカバー
- 波長スケール集光(集光径：一波長~数波長)
- 持ち込み装置を設置可能なフリーポートを有する実験ステーション

8-6. 2 光子角度・偏光相関測定による解離原子ペアのもつれ診断

(1) 背景

近年、量子情報分野で、もつれ粒子ペアに注目が集まっている。我々の常識では、全系は状態の定まった部分系の集合である。すなわち、全系の波動関数は、構成要素たる部分系の波動関数の積で表現されるはずである。ところが、全系の波動関数が、その部分系の波動関数の積で表現されないことがある。そのような状態をもつれ状態という。全系がもつれ状態にあると、我々の常識に反して、構成要素の部分系の状態が定まらない。このもつれ状態を巧妙に使うことにより、量子計算が可能となるので、多くの注目が集まっている。

さて原子分子科学分野においても、もつれは重要な役割を果たしているはずである。たとえば、二原子分子の解離によって生成する原子ペアは、もつれていると予想される (J. Phys. B, **40**, 617, 2007)。ただしこの予想では、分子の電子状態が保有する対称性が、原子ペアに転写され、もつれ原子ペアが生まれると考えている。果たしてこの予想通り、もつれ原子ペアが生まれるのか、それとも解離の途中で、対称性が破れて、もつれが破壊されてしまうのか、を解明することは、原子分子科学にとって重要な課題である。原子ペアのもつれを診断する方法の一つが、原子ペアの放出する光子ペアの角度・偏光相関パターン測定である。原子ペアのもつれが、光子ペアに転写され、それが光子ペアの角度・偏光相関パターンに現れる。現状では放射光強度の不足とビーム系が mm スケールであることが原因となり、角度分解能数 10 度での角度相関パターン測定が精一杯である（PF-20A 及び 28B での実験、Phys. Rev. A, **90**, 043405, 2014)。したがって 2 光子干渉特有の激しい振動パターンが観測できない。また多くの解離原子の共鳴線が真空紫外光の領域にあるが、高感度の偏光素子がないために、やはり放射光強度不足がたたって、偏光相関実験が不可能である。放射光強度不足と大きすぎるビーム径という二つのボトルネックを克服することにより、“角度・偏光相関測定” なる強力な原子ペアのもつれ診断法を手にすることが可能である。これにより、上記の重要な課題を研究できると期待される。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

本提案では、光子エネルギー10eV から 100eV、フラックス 約 10^{12} photon/s、エネルギー分解能 数 10meV、ビーム径 数μm の放射光を用いて、二原子分子を光解離させる。多くの場合、解離原子の共鳴線は真空紫外光の領域にある。適切なフィルターを用いて粗く分光して、時間分解検出する。複数の共鳴線が検出されることもあるが、励起準位の寿命の違いを利用すれば、それらを区別することができる。光子信号を同時計数して、2 光子ペアの角度・偏光相関パターンが測定される。実験装置の模式図を図 1 に示す。

ヤングの干渉実験に代表される 1 光子干渉においては、古典論と量子論の干渉パターンに差は出ない。ところが本提案で扱うのは、2 光子干渉である。この場合には、両者の干渉パターンに差が生じる。量子 2 光子干渉特有の激しく変動する角度相関パターンを観測す

るためには、ビームを数μm の大きさに絞った上で、角度分解能 1 度程度の計測が必要である。

KEK 放射光の特徴である、大強度性と放射光ビームの良好な収束性を生かせば、上記の条件を満足し、解離原子からの共鳴線を偏光分解したうえで、2 光子干渉特有の角度相関パターンを現実的な時間内に観測できる。角度分解能 数 10 度での角度相関パターン測定(偏光相関なし)が限界の現状と比較すれば、KEK 放射光を用いることにより、いかに解離原子ペアのもつれ診断の精度が上がるかが、わかるであろう。このような実験研究により、『(1)背景』で述べた予想の通り、もつれ原子ペアが生まれるのか、それとも解離の途中で、分子の対称性が破れて、もつれが破壊されてしまうのか、を解明できる。また直線偏光解離と円偏光解離でどのような差が現れるかも、興味深い。単バンチ運転を用いれば、さらに強力な原子ペアのもつれ診断法である、2 光子角度・偏光・時間相関測定も可能となる。

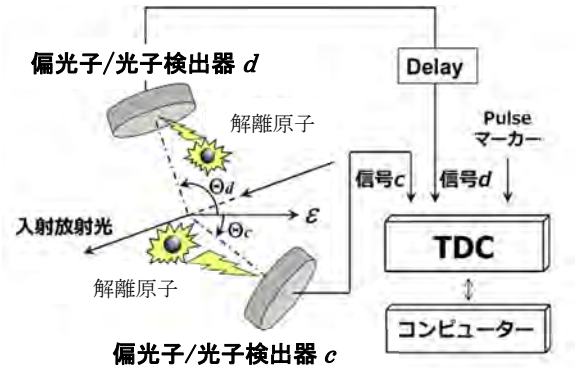


図 1. 2 光子角度・偏光相関測定装置の概要。ε:入射光の偏光ベクトル。TDC:時間－デジタル変換器。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

I. 以下のスペックを有するアンジュレータービームライン

a)光子エネルギー：10eV から 100eV

b)偏光性 : 直線偏光と円偏光が供給可能な可変偏光ビームライン(直線偏光の場合、縦方向と横方向だけでなく、偏光ベクトルの向きを任意に変えられればベター)

c)フラックス：上記エネルギー範囲で約 10^{12} photon/s

d)スポットサイズ：数μm

e)2 光子角度・偏光相関測定においては、通常のマルチバンチ運転で十分であるが、角度・偏光・時間相関測定においては、単バンチ運転が必要となる。

II. 2 光子角度・偏光相関測定システム

a)角度分解能：1 度

b)ガスノズルビーム発生装置つき

c)大容量真空排気システムつき

d)高分解能同時計数システムつき

８．原子・分子科学

＊担当一覧

監修：小田切　丈（上智大学）

執筆分担：

まえがき　副島　浩一（新潟大学）

8-1　早川　鉄一郎（コンポン研究所）、寺嵜　亨（九州大学）

8-2　足立　純一（KEK 物構研）

8-3　彦坂　泰正（富山大学）、金安　達夫（九州シンクロトロンセンター）、足立　純一（KEK 物構研）、小田切　丈（上智大学）

8-4　北島　昌史（東京工業大学）

8-5　金安　達夫（九州シンクロトロンセンター）、彦坂　泰正（富山大学）

8-6　穂坂　綱一・河内　宣之（東京工業大学）

校閲協力：

足立　純一（KEK 物構研）、阿部　仁（KEK 物構研）、雨宮　健太（KEK 物構研）、小田切　丈（上智大学）、金安　達夫（九州シンクロトロン光研究センター）、長嶋　泰之（東京理科大学）、彦坂　泰正（富山大学）、兵頭　俊夫（KEK 物構研）

9．極限物性科学

同じ物質でも、置かれた環境に応じて異なる状態をとる。例えば、常圧においてH_2Oは温度の上昇とともに固体（氷）から液体（水）、そして気体（水蒸気）へと状態を変化させる。これらの三態は、同じ物質が示す異なった相である。同じ固体でも原子の並び（構造）が異なれば別の相であり、H_2Oの固体の場合、広い圧力温度領域の探索の結果、現在までに、10種類以上の結晶相と2種類の非晶質相が発見されている。同じ物質の同じ構造でも性質（物性）が異なる場合には、別の相と考えることもある。また、複数の液体相を持つ物質も存在する。

熱力学的に安定な相とは、通常、与えられた圧力温度条件下で、ギブスの自由エネルギー$G=U+PV-TS$を最小にする相をいう。高圧下では体積を小さく、高温下ではエントロピーを大きくすることで自由エネルギーを最小化する。例えば、$P = 100$ GPaで$\Delta V = 16$ $Å^3atom^{-1}$であるならば、$P\Delta V = 10$ $eVatom^{-1}$となる。この数値からも、物質の構造や物性を支配する電子が圧力から極めて大きな影響を受けることは、容易に想像できるであろう。圧力と体積、温度とエントロピーの関係と同様に、磁場と磁気分極、電場と電気分極なども共役変数の関係にある。更に、最近では、共役の関係にない変数間の相互作用も注目を集めている。今後の放射光実験では、圧力や温度だけでなく、磁場や電場などへの応答も重要な研究対象となる。

KEK放射光の優れた光源性能は、極限物性科学の新しい扉を開くのに欠かせない。現在、圧力のフロンティアはTPa領域に向かっているが、圧力の上限の拡大とともに試料は微小化するため、そこで生起する現象をプローブするには、ナノビームが不可欠である。KEK放射光の低エミッタンス性能は、高分解能の3次元イメージングを可能にする。このことは、試料容器の存在という原理的な問題により、電子顕微鏡の利用が不可能な状況を大幅に改善し、サイエンスの展開に飛躍的な前進をもたらす。更に、KEK放射光の高コヒーレンス性能は、反応や流動に伴う元素・原子の移動・運動をリアルタイムに捉えることを可能にし、新しいサイエンスの展開を生じさせる。

これまでは、主に均質な物質の平衡状態を対象として回折測定に軸足を置いた研究が行われてきたが、KEK放射光では、そうした実験が高度化されるだけでなく、不均質な物質や非平衡状態が重要な研究対象となり、分光を含む各種複合測定が可能になるものと期待される。

本章では、KEK放射光の特長を活かした極限物性科学のサイエンスケースの具体例を紹介する。

注：地球や惑星の内部や天体衝突に起因する高圧高温の状態を対象とする研究も極限物性科学に含める。

9-1. 多重極限（高圧力・低温/高温・強磁場）環境下でのサブ nm 及び数十 ns 分解能を有する核共鳴散乱法を用いた電子・フォノン物性研究

（1）背景

巨大磁気抵抗効果や高温超伝導などの新奇な物性を示す電子相関の強い遷移金属化合物は、最も注目されている物性科学分野であるため、多くの実験及び理論的研究がおこなわれてきている。しかし、銅酸化物高温超伝導体の例からも分かるように、その新奇な物性の発現機構については十分な理解が得られていない。強相関電子系化合物の共通の特徴は、その相図が示すように複数の異なる特性を持つ状態（相）が競合していることにある。最近の実験結果や理論的考察は、電子相関の強い遷移金属化合物の定常状態が、ナノスケールで電子的、構造的な意味で空間的不均一な特性を持っていることを示唆している。この不均一性は、電荷、スピン、軌道および格子が関係した複数の相互作用・自由度の絡み合いと強く関係している。したがって、これらの新奇な物性の発現機構を解明する上では、この空間的に不均一な定常状態を定量的かつ多角的に理解することが重要となる。

電子相関の強い遷移金属化合物を理解する上では、多くの競合状態の存在する中でのナノスケールの電子的、構造的な空間的不均一性の創発やそれらの縺れを明らかにする必要がある。その場合、還元された方程式を離れて基底と成る状態どうしがどのように相互作用するかが重要となる。例えば、銅酸化物や鉄系化合物の高温超伝導系で観測されている自発的相分離現象と超伝導発現機構との関係を議論する上では、その系を構成する複数の相の物性を還元的手法で理解することを基盤として、それぞれの相が如何に相互作用するかを実験的に求めることが重要となる。そのためには、系を構成する相と相境界とを分離して、元素選択的な手法を用いてそれぞれの状態を調べる必要がある。相境界、特にその縁では十分な並進対称性が存在しないため局所プローブを用いた実験が必須となる。

現在、分光および回折測定に用いられている数十 keV 放射光のビームサイズは、光学系により数十μm 径程度まで集光されている。しかし、電子相関の強い遷移金属化合物系におけるナノスケールでの空間的不均一な状態を研究するためには、このビームサイズの空間分解のでは不十分であり、より高い空間分解能を有する新光源が必須である。さらに、これらの系は外部摂動変数に大きな応答を示すため、環境変数を自在に極限まで制御できる実験環境下での測定も必要である。

（2）KEK 放射光における新展開と期待される成果

高温超伝導体中の重要な化合物群の一つが鉄系高温超伝導体である。この系で観測されている自発的相分離状態での相の領域は数 μm 程度である。すなわち、10nm 程度のビームサイズを有する KEK 放射光の新 X 線光源は、電子相関の強い遷移金属化合物の空間的不均一な定常状態を観測するための分光学的手法の光源として最適である。多くの電子系を直接観測する分光法は、入射 X 線のエネルギーを走査し終状態を観測することで始状態の

知見を得ている。一方、メスバウアー共鳴吸収を基盤とする ^{57}Fe 核共鳴前方散乱法は、入射 X 線のエネルギーを走査すること（入射光学系を動かすこと）無く時間領域での測定を行う。また、超微細相互作用から電子状態の知見を得るため、電子系定常状態を直接反映する物理量が求められる。共鳴吸収の特徴と放射光の持つ高指向性と偏光特性を組み合わせることで、核位置の局所場である超微細相互作用の量子化軸を決定することで精密物質科学測定手法としての利用も可能となる。さらに、自発的相分離の創発において誘起される構造（組成）的空間不均一性には、原子拡散（格子振動）を直接観測することが必要となる。ns 時間分解能を有する核共鳴散乱法は、拡散（格子振動）による原子の運動をも直接追跡できる。すなわち、KEK 放射光の 10nm 程度の空間分解能を有する新 X 線光源と核共鳴散乱法を組み合わせることで、試料内の特定領域（相及び相境界）を選択的に測定することが可能となる(実験概念を図 1 に示す)。その結果、系を構成する複数の相の創発とその物性、それぞれの相が如何に相互作用するのかに関する知見を得ることができる。

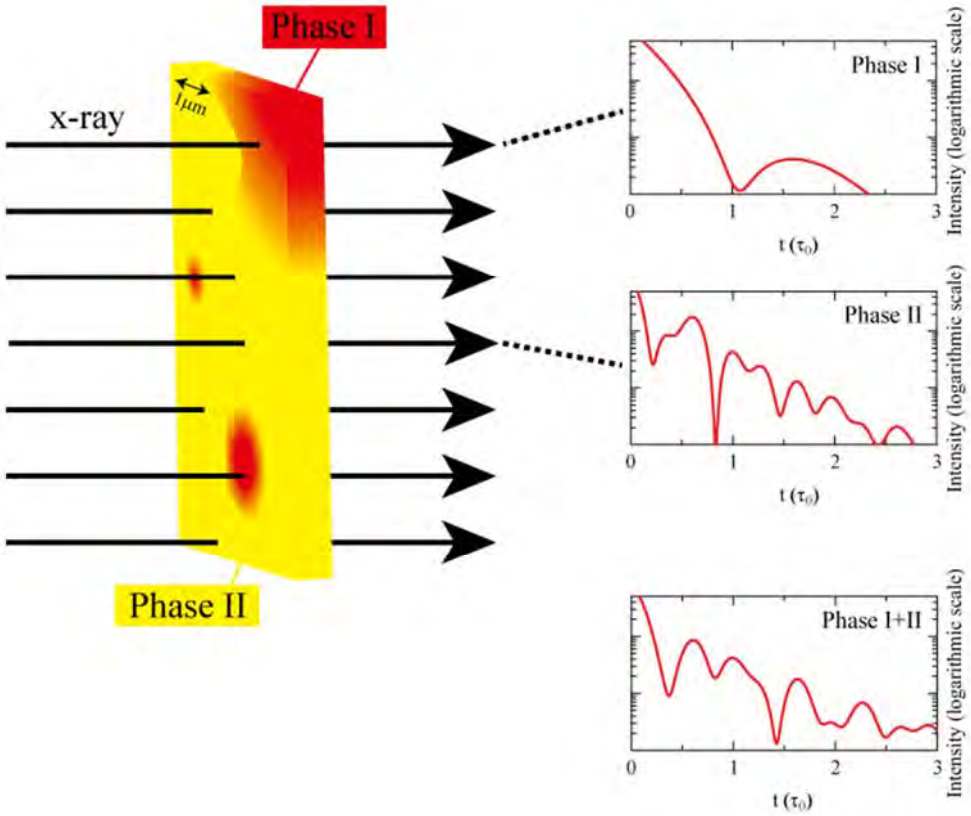


図 1：実験概念図

超高エネルギー分解能ナノビーム X 線光源を用いて自発的相分離を起こした試料の測定例。

それぞれの相の核共鳴前方散乱スペクトルが測定可能となる。さらにビームをスキャンすることにより試料内の相分布の様子や相境界情報も得ることが可能となる。

右下のスペクトル：現状の空間分解での測定結果

14.41keV の X 線を用いる ^{57}Fe 核共鳴散乱法は、試料周辺環境の制約が大きい多重極限環境下での元素選択的局所プローブ実験手法としても最適である。すなわち、環境変数の変化がそれぞれの相間の相互作用に与える影響を実験的に求めることも可能となる。その結果、電子相関の強い遷移金属化合物の空間的不均一な定常状態を初めて定量的に理解し、新奇な物性現象の発現機構に関する知見が得られる。

一方、材料科学に目を向けてみると、フェライトや *R*-Fe-B 系磁石材料においても鉄が主要元素である。これらの永久磁石としての高保磁力性能は主相単相では達成されず、制御された多相状態（材料）で初めて達成される。KEK 放射光の 10nm 程度の空間分解能を有する新 X 線光源と ^{57}Fe 核共鳴散乱法の組み合わせは、オペランド（多相材料、高温・磁場）環境下磁性材料内の領域を特定して観測することができる。これまで主相に埋もれていた相境界や副相における鉄原子の電子状態や鉄原子が寄与する格子振動の情報を直接得ることが可能となる。その結果、永久磁石など材料科学においても高保持力性能発現のための指針となる成果などを上げることが期待できる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・多重極限環境用実験ビームステーション

超伝導マグネット（10T 以上）及び試料冷却(1.5K 以下)装置　レーザー加熱装置

レーザー顕微分光装置（ルビー蛍光による圧力校正)、高圧ガス充填装置

・超高エネルギー分解能ビームライン

^{57}Fe(E_0=14.41keV) メスバウー遷移エネルギーで 1meV 程度のエネルギー分解

APD などの高効率（積層型）高時間分解を有する検出器

^{57}Fe(τ_0=141.1ns) 原子核励起状態寿命 τ_0 の 3 倍程度のバンチ間隔の蓄積リング運転

9-2. 衝撃圧縮下における不均一状態の観察

(1) 背景

放射光利用の高圧実験は、大型プレス装置（LVP）やダイヤモンドアンビルセル（DAC）を利用した静的圧縮を中心に発展してきた。一方、放射光利用に限定しなければ、静的圧縮と同様に動的圧縮も長い歴史を持つ。しかしながら、静的圧縮と動的圧縮では、同一試料に対して、大きく異なった現象が観察される場合も多く、両者の比較を重要視しない傾向が見られる。例えば、静的圧縮で観察される相転移系列が動的圧縮（の回収実験）で観察されない、あるいは逆に、静的圧縮で観察されない電気伝導度の上昇が動的圧縮では観察されるなどの報告がある。そうした静的圧縮と動的圧縮の違いを理解し、両者を融合することで真の高圧力科学として昇華させるためには、歪速度による現象の整理が重要と考えられる（静的圧縮：10^{-6}~10^{-1} sec^{-1}、動的圧縮：10^{6}~10^{9} sec^{-1}）。

PF では、AR-NW14A においてレーザー誘起衝撃圧縮とシングルショット X 線回折の組み合わせによる動的圧縮実験が世界に先駆けて行われ、現在も実験技術の高度化が進められている。また、世界的にも、XFEL の稼働後、動的圧縮実験は増加傾向にある。しかしながら、1980 年代の放射光利用の黎明期からの長い歴史を持つ静的圧縮実験のレベルには程遠いというのが現状である。動的圧縮現象の本質を理解するためには、速い歪速度で発生する欠陥・転位の生成メカニズムや、結晶粒界面のような不均一領域における現象を直接観測することが不可欠であるが、そうした不均一状態を対象とした研究は、分子動力学計算や回収実験による評価等に留まっている。

放射光と動的圧縮の組み合わせによる実験では、X 線 1 パルスに含まれるフォトン数、および、それが照射される面積が重要である。AR-NW14A での実験では、フォトン数は多いものの、照射領域がサブ mm（の二乗の面積）に広がっていることが、技術的に大きな制約になっている。また、レーザーと放射光のタイミングをレーザーのパルス幅（持続時間）に対して十分な精度で同期させて試料に照射するための高度な調整作業が必要であるが、後発の実験手法であるため、世界中のどの施設も静的圧縮実験のような専用ビームラインを持たず、ビームタイムの不足が深刻である。KEK 放射光の特長であるナノビーム、豊富なビームライン数と長時間運転は、動的圧縮実験に、質と量の両面において、飛躍的な転換をもたらすものと期待される。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光では、現在の動的圧縮実験において欠落している不均一領域の構造情報の取得が可能になると期待される。孤立バンチのカレントが数 mA あれば、1 粒子（単結晶）を対象としたシングルショット時間分解 X 線回折測定は十分可能である（図 1）。非結晶性の試料あるいは圧縮中に結晶性を失う試料に対しては、繰り返し周波数の高いレーザー（~0.1 Hz）により、動的圧縮のイベント数を増加させることで対応する。ナノビームは、フット

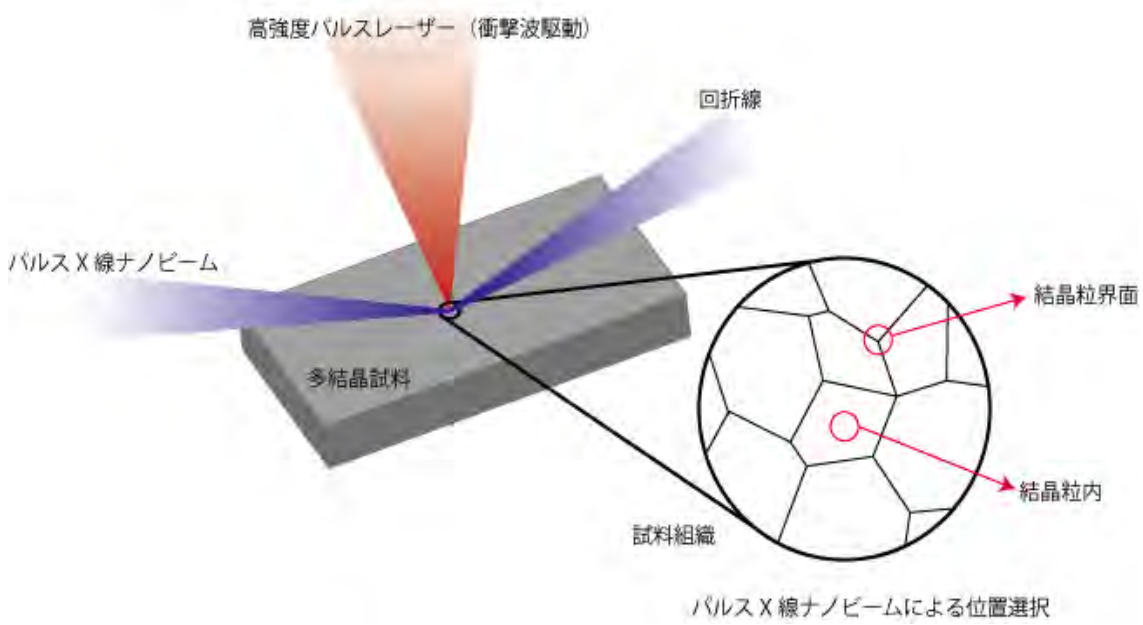


図 1　パルス X 線ナノビームを用いた衝撃圧縮された多結晶体の位置選択型時間分解 X 線回折

プリントの観点から反射型測定にも有利であるため、エネルギーの選択によりプローブ深さを可変とした測定も可能になる（図 1）。更に、X 線サイズの微小化に伴い、高強度パルスレーザーの照射面積を絞ることで、レーザー集光密度は飛躍的に上昇し、テーブルトップサイズの高強度パルスレーザー（~15 J/pulse）であっても TPa 領域の発生が可能になる。

高圧力科学の更なる発展のため、静的圧縮と動的圧縮の違いを理解し、両者を融合するための出発点は、動的圧縮に特徴的な（すなわち、閾値以上の高歪速度での圧縮でのみ起こる）弾塑性転移の過程を詳細に観察することであろう。ユゴニオ弾性限界を超えて塑性域に入ると、それまでの一軸的な圧縮から等方的な圧縮への変化し、物質は流体力学で記述できるような状態をとると考えられている。また、塑性域では、欠陥・転位の形成や発達が起こり、温度が上昇することで相転移や反応が駆動されると考えられている。しかしながら、流体力学で記述されるような状態を本当に物質がとっているのか、弾塑性転移過程では何か起こっているのか、直接的に観察しようという試みは極めて少ない。KEK 放射光では、直接的な観察が可能になると期待される。

動的圧縮は、高圧力科学のみならず、地球惑星科学や材料科学においても重要である（図 2）。地球惑星科学の重要な研究対象には、大小様々な天体の衝突や、衝突に起因するとされる月や大気の形成、恐竜の絶命、隕石中やクレーター周辺における高圧鉱物など、動的圧縮に関連する現象が少なくない。また、静的圧縮では困難な巨大惑星内部条件（TPa 領域の圧力）の実験の実現も期待される。材料科学では、各種のレーザープロセシングが研究対象となり、産業界でも、難切削物のアブレーション加工、金属のピーニング表面処理などに役

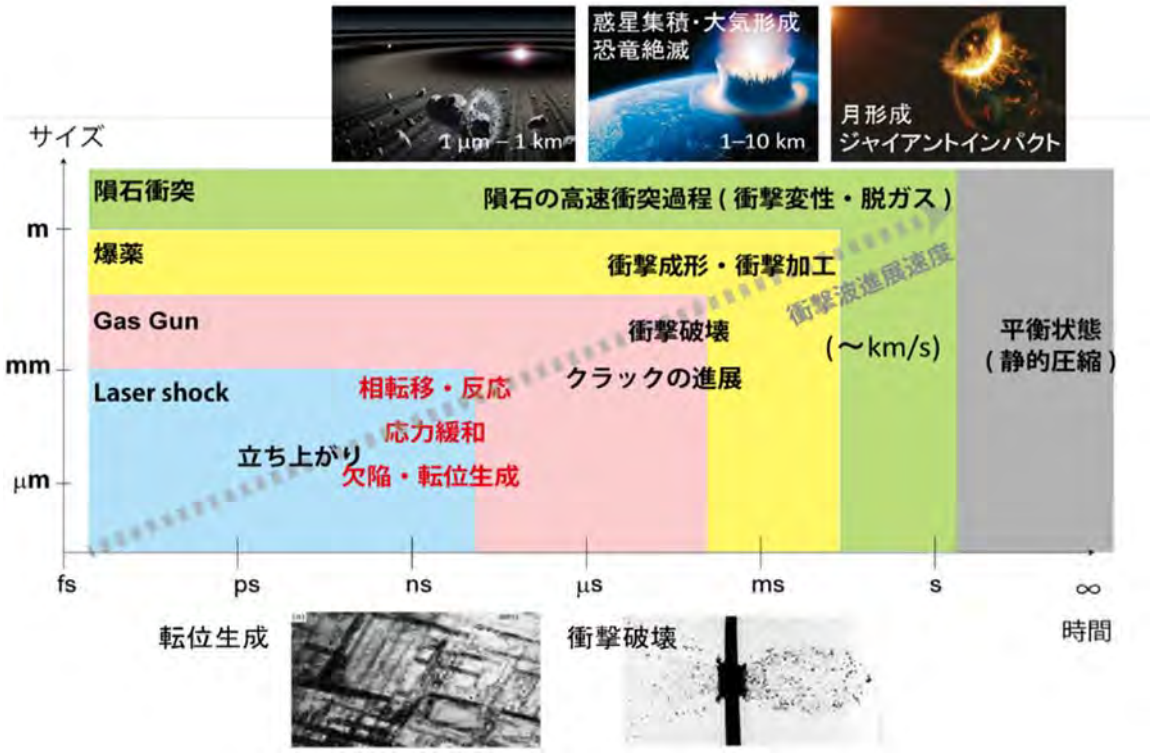


図 2　衝撃圧縮現象のタイムスケール

立てられている。衝撃破壊の理解は構造材料の開発においても重要である。放射光利用の動的圧縮実験からは、そうした研究において欠落している物質の微視的状態の時間変化の情報を得ることができる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

孤立バンチ運転、時分割 X 線回折システム、衝撃波発生装置（高出力パルスレーザー）、衝撃波面プロファイル計測装置

9-3. テラパスカル下での構造解析を目指したナノビーム利用と超高密度水素および水素化合物の超伝導状態の解明

(1) 背景

到達圧力領域の拡大に伴う発生領域の極小化という回避できない原理的問題を有する超高圧科学（静的圧縮）にとって、放射光科学は低エミッタンス化によって未踏領域へのアプローチを可能にしてくれるエスコートランナーである。近年の高圧力発生技術の向上や普及によりダイヤモンドアンビルセル（DAC）による技術的進歩は 100 万気圧(100 GPa)を超える領域へのアクセスを容易にし、様々な物質系において実験と理論計算の両面から新奇機能性材料の開発や物性探索に向けた研究が世界中で行われている。150 GPa の高圧下で発見された硫化水素の-70℃を超える超伝導はそういった実験と理論の協働で実現した例であると言える。そして、室温超伝導体としての可能性が期待される水素化物は軽元素から構成されることが予測されており、テラパスカル級の超高圧力の発生が必要となれば、高輝度の放射光 X 線ナノビームの使用が今後必要不可欠となる。

そもそも、単体水素は超高圧下で金属化し、さらに同時に室温超伝導体となることが理論的に予測され、その実現は超高圧科学の最も重要な対象のひとつとして長年研究されてきたが、未だ達成されていない。それは 400 GPa 以上という超高圧の発生とその超高圧力の条件下での極めて難しい測定が必要となるためである。しかし、水素単体でなくとも水素を多く含む水素化物であれば、より低い圧力で金属化が起こり、かつ高い超伝導転移温度（T_c）が発現することが期待された。そして多くの水素化物において高圧力下の研究がなされ、ついに 2014 年末、150 GPa の高圧下で硫化水素が-70℃（203 K）というこれまでで最高温度となる T_cを示すことが報告され、大きな衝撃を与えた。この高い超伝導の機構を解明し、更に高い T_cをもつ超伝導体を創成、または探索するためには、結晶構造の情報が大変重要となる。硫化水素（H_2S）は軽元素で構成されるうえ、超高圧力状態では試料サイズが直径 30 μm 以下となるため、高輝度・高エネルギーかつ、ミクロンオーダーの径の X 線が必要であった。そのため、大型放射光施設 SPring-8

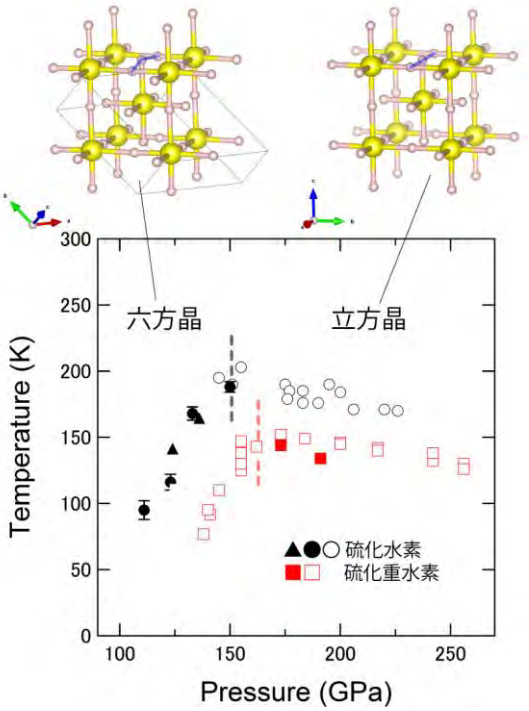


図１．硫化水素・重水素の超伝導転移温度 T_cの圧力依存性とその結晶構造．150 GPa 付近の T_cの圧力依存性の折れ曲がりは高温超伝導相 H_3S の構造相転移を示すと考えられる．

の高圧専用ビームライン BL10XU において、低温・高圧力下の X 線回折実験と電気抵抗測定の複合実験が行われた。その結果、低温で加圧された H_2S は分子解離を起こして高圧下で H_3S と単体の硫黄に分子解離し（$3H_2S \rightarrow 2H_3S + S$）、この H_3S が高温超伝導を示していることが明らかにされた。（図１）

一方、2 段式ダイヤモンドアンビルセル(double stage diamond anvil cell, dsDAC)の登場により静的高圧発生技術はテラパスカルへの門戸を開きつつある。しかし、現在 600 GPa 以上の圧力発生を報告している例では、半球状の多結晶ダイヤモンドを 2 段目のアンビルとして上下に組み合わせており、その圧力発生領域のサイズはすでにサブミクロンとなっているにもかかわらず、使用されている X 線ビームの集光サイズは数ミクロンサイズとなっている（ESRF ID09 で 5x5 μm^2, APS GSECARS (Sector 13)で~3x4 μm^2）。このような実験では、2 段目アンビル先端の数ミクロンの領域で数 100 GPa から数 10 GPa までの大きな圧力勾配が生じているはずであるが、プローブ自体が同等のサイズであるために圧力勾配の評価ができていない。日本においても SPring-8 BL10XU において、集束イオンビーム加工機で精密に作製されたマイクロアンビル（先端径 3 μm）と 2~3 μm に集光した X 線マイクロビームを組み合わせた実験が行われている（図 2）。ビームの半値幅は数ミクロンでも、実際には 1%程度の強度の X 線がある程度の広がりを持つ。上述のように dsDAC では大きな圧力勾配がついており、かつ試料体積も先端部ではナノオーダーなのに対し、周辺部はミクロンオーダーになる。結果として、マイクロビームを使用した場合でも、数 100 GPa から数 10 GPa までの異なる圧力状態にある試料からの回折線が同時に見えてしまい、結果の解釈が難しくなるという特有の問題を持っている。つまり、テラパスカル級のサイエンスにおいて、サブミクロンサイズのビームの活用がすでに切望されている。

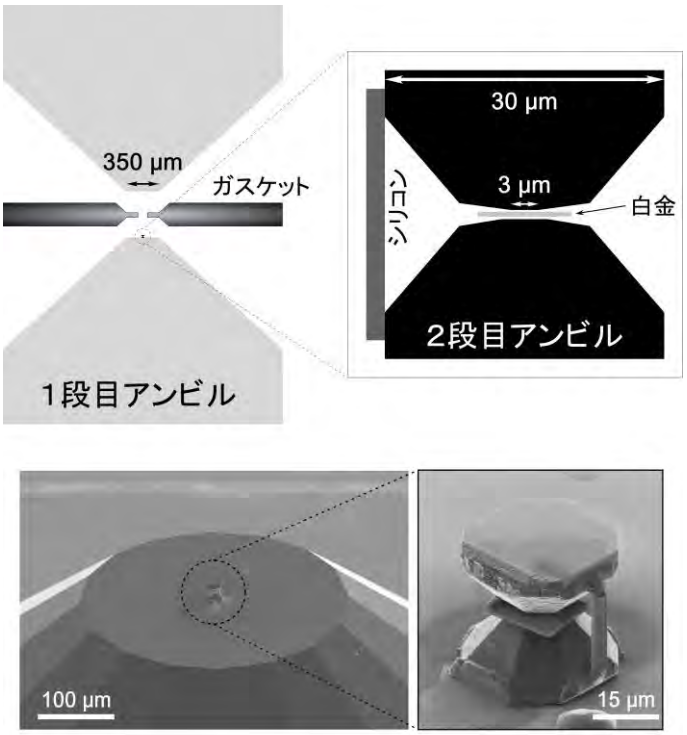


図２．（上段）１段目および２段目アンビルの模式図.（下段）１段目アンビル（左）と２段目マイクロアンビルの電子顕微鏡写真.

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光は究極の低エミッタンス光源としてその役割を担うことが約束されている。ナノビームが実現されることで圧力勾配の評価が可能となり、大きな圧力勾配を持つ試料の中心部分のみの情報を抜き出せるようになる。これにより初めて、テラパスカル領域での信頼性のあるデータが得られることになり、理論でしか予想されていなかった新規構造物質の実験的な発見など、超高圧力下の軽元素で構成される物質群の構造解明が大きく進展すると期待される。また圧力勾配の評価に加えて、精密な X 線吸収イメージングによる試料分布の評価ができれば dsDAC 自体の評価、すなわち 2 段目アンビルの形状や試料構成の最適化が可能になる。複数試料で実験をした場合にそれらの回折線が同じ圧力状態からのシグナルであることが技術的に保証されれば、テラパスカル領域での状態方程式の議論が可能となる。これにより地球惑星科学分野においては、地球の数倍程度の質量をもつスーパーアースのような系外惑星の内部構造・ダイナミクス・進化の議論が大きく進展するだろう。

背景でも述べたように、硫化水素の高圧下研究により明らかにされた特殊な加圧経路（低温での加圧）による分子解離を伴うような超伝導が発見され、今後も構造と伝導の複合同時測定により物性を多面的に評価することが求められる。そのためには、低エミッタンスの放射光ビームの生成だけでなく、広い温度圧力領域での伝導・光学測定をカバーするために、ビームライン内に各種の物性実験設備を配備し、これらの測定の同時性によるデータの信頼性向上が欠かせない。マテリアルズインフォマティクスの立場から、硫化水素の高温超伝導の解明にとどまらず、室温超伝導への開発指針を示す物質の発掘をテラパスカル領域でおこない、高圧力下に広がる物質開発の推進に新たな知見を与えることは極限物性に携わるものの責務である。

現在 dsDAC は一部の重い金属でのみで行われており汎用の技術にはなり得ていないが、この技術開発が進めば惑星科学・物性科学の両分野で大変に重要な現象である水素の金属化に対しても適用可能となると期待される。科学者の大きな目標のひとつである「室温超伝導体の実現」は人類に大きな飛躍をもたらす発明であり、近年国際的に劇的な競争となっている単体水素の金属化実現に向け、KEK 放射光は大きく貢献するはずである。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・数 10 keV 領域でのナノ集光 X 線ビーム
・低温下 DAC 駆動システム
・サブミクロンオーダーのステージ制御システム
・高感度・高速 X 線回折検出システム
・圧力決定・試料のスペクトル測定のためのラマン分光光学系
・レーザー加熱システム・冷凍機を含む広温度領域での XRD 測定系と電気抵抗測定の同時測定システム

9-4. 高圧下での多次元分解非弾性分光法による軽元素物質科学の新展開

(1) 背景

放射光源の高度化とダイヤモンドアンビルセルによる高圧力発生技術の進展により、極限状態での構造物性研究が展開されてきた。軽元素からなる物質（Low-Z 物質）については、100GPa 以上で多くの新奇な相転移が発見・予言されている。例えば、水素の金属化、リチウムのリエントラント金属相転移、酸素の金属化、ナトリウムの室温融解、氷の水素結合対称化、硫化水素の超高温超伝導などが挙げられる。近年の技術革新により X 線非弾性分光法も極限物性科学における有効なツールとなった。この手法の利用頻度は今後増大することが予測される。そのひとつである X 線ラマン散乱（XRS）は内殻電子による散乱で、軽元素について X 線吸収分光と類似の情報を硬 X 線により測定できるため、Low-Z 物質の電子状態解明に威力を発揮してきた。XRS は内殻の一電子による散乱であるため、散乱断面積は弾性散乱に比べ 1－3 桁も小さく、第三世代放射光源をもってしても 100GPa 以下の測定に限られている。場合によっては、この圧力条件での数十時間の露光をもってしても統計精度の良いデータが得られない。反応性に富み、高い流動性を持つ液体試料を取り扱う場合では、測定時間の問題は更に深刻である。現状における X 線非弾性分光測定は、光束により大きく制約されている。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

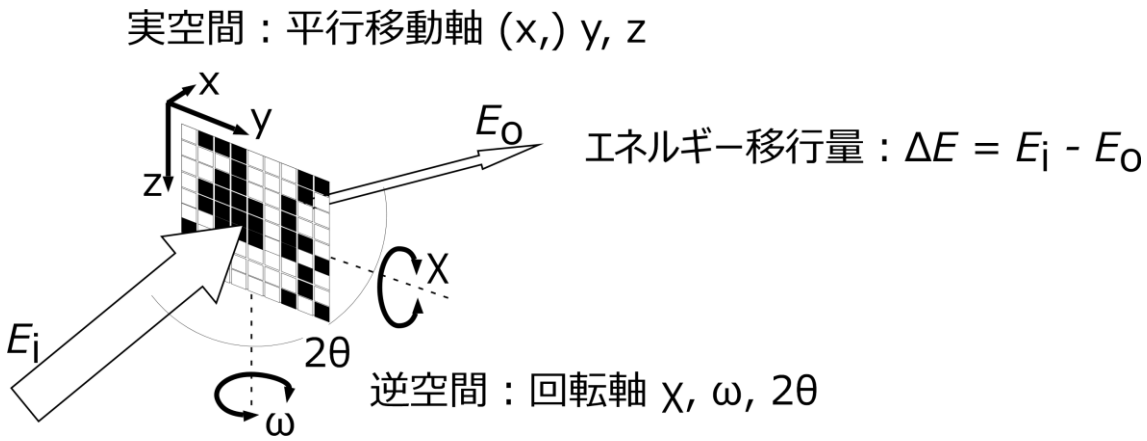
KEK 放射光からの光束を第三世代放射光と比較すると、10keV 程度の硬 X 線領域であれば、第三世代光源を上回るよう計画されている。X 線エネルギーが 10-15keV 程度の領域では、適切にデザインされた挿入光源により第三世代光源と同程度、あるいは数分の一程度の光束が得られるようだ。少なくとも 10keV 付近で光束・輝度ともに増加が期待されれば、これまでの測定上の問題が飛躍的に改善される。これまでの XRS 測定では、一般的に 10keV の X 線をベリリウムガスケット越しに照射・検出するが、第三世代放射光源で現実的な測定時間でシグナルを得るためには直径 0.1mm 以上の試料が必要であり、これが圧力上限を決めていた。KEK 放射光での高光束化・高輝度化により、さらに微小な試料を取り扱えるようになるため、圧力上限の拡張は確実である。100GPa 以上での測定も実現可能だろう。

KEK 放射光源の大きな特長である高輝度性を活かした新展開も考えられる。これまでは大きな試料に対して X 線を照射し、平均構造を仮定してスペクトル解析を行っていた。KEK 放射光から得られる微小ビームは試料の（組織・化学・熱力学的条件といった）空間的不均質構造を顕とするため、試料室内の軽元素マッピングへの展開が期待できる。つまりエネルギー＋実空間の 4 次元をパラメータとした取り扱いが、より重要になる。DAC 中の試料が円盤状をしていることから、2 次元分布を測定するためにはアンビル越しに X 線を照射することが望ましい。この場合、通常用いられる 3-4mm 厚のダイヤモンドでは 10keV の X 線の吸収が無視できなくなるが、アンビルに穴をあける等ビームパスを工夫することで対

応できるだろう。ただし、入射フォトン数やエネルギー分解能が同じであれば、より高いエネルギーの X 線を使用する方が良い。必要なエネルギー分解能は、0.1-1.0 eV 程度である。

X 線光束が大きくなれば、XRS スペクトルの広域微細構造が測定できるので、そこから EXAFS と同じ定量的構造情報を得られる。高圧下での常温液体ナトリウムや水素結合対称氷などの結合距離についての研究が期待できる。高温条件下での流体の局所構造変化も興味深い研究対象である。この測定に必要なエネルギー分解能は数 eV 程度で十分であるが、微細構造測定のために高い計数率が必要にある。

プラズモンの分散関係も同じ光学系で測定可能である。リチウムではプラズモン媒介による超伝導転移温度の上昇が理論的に提案されているが、高圧金属のプラズモン測定が可能になれば重要な実験データが取得できる。100GPa 以上で生じる金属水素・リチウムのリエントラント金属相・金属酸素についてのプラズモン測定も興味深い。分散曲線を求めるならば、特に単結晶を試料とする場合に、運動量空間を含めた 7 次元的な取扱いとなる。



（図）多次元分解非弾性散乱分光法の模式図。試料中の異なる空間（x,y,z）からの逆空間（χ,ω,2θ）におけるエネルギースペクトル（ΔE）を測定する。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

ビームライン

IXS 実験ステーション（~2 m 分光計ないしはサブ eV 分解検出器を備える） 挿入光源：10-14 keV 程度で第三世代放射光を超える高光束・高輝度光源。

単結晶試料の軸立てのためには短波長光（> 20 keV）が必要となるため、波長可変入射光が望ましい。その際のフォトン数は少なくても構わない。

実験設備

X 線集光サイズ可変光学系（0.1~100 マイクロメートル）、ガス駆動 DAC 加圧装置、2 次元 X 線検出器（分光および回折測定用）、精密 6 軸試料位置制御ステージ、レーザー加熱システム、冷凍機

測定準備及び試料評価ラボ

X 線回折装置（DAC 試料室中の数ミクロンあるいはそれ以下の結晶の結晶方位決定が可能であること）、顕微ラマン分光システム、マニピュレータ、高圧ガス充填装置、デュアルビーム収束イオンビーム加工観察装置（SEM-FIB）、分析電子顕微鏡（TEM-EELS、SEM-EBSD）、レーザー加工機

9-5. 超高圧試料中の重要元素とその化学状態の高分解能 3D イメージング

(1) 背景

地球深部は直接探査が困難で、観測手段が地震波など間接的なものに限られている。そのため地球内部物質科学において、地球深部の高圧高温極限環境を実験室に再現し、地球構成物質であるケイ酸塩(マントル)や金属鉄合金(コア)の様々な物性を直接調べることが第一級の研究手法となっている。

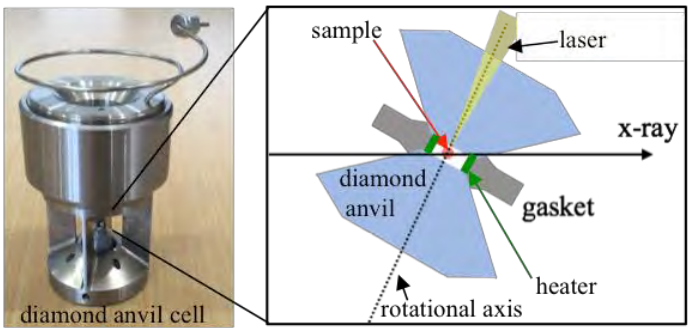


図. ダイヤモンドアンビルセル高圧発生装置。ラミノグラフィーを利用することで、硬い重金属ガスケットや抵抗加熱系をサンプル周囲に配置可能になり、地球コアの圧力温度まで 3D イメージングが可能になる。

現状、地球内部の全圧力温度環境(マントル、135 GPa, 4000 K まで、コア、360 GPa, 5500 K まで)を再現可能な装置はダイヤモンドアンビルセル(DAC)のみであり、X 線回折法をはじめとした様々な放射光実験と組み合わせることで魅力的なサイエンスが数多く展開されてきた。特に放射光を利用した X 線イメージングに関して、ラミノグラフィーを利用することで超高圧その場での 3D イメージングが"原理上"、地球内部の全圧力温度環境で可能になった。この手法は、X 線の吸収・発光・回折・散乱など様々な測定と組み合わせることで、組織・化学組成・電子状態のイメージングによる新しいサイエンスへの展開が期待できる。例えばマントル物質が融けると、DAC 内の圧力温度勾配に沿って液体と共存する固体が分離する。化学組成を目的としたイメージングを行うことによって、マントル物質の融解相関係がその場でわかり、初期地球において高温のマグマオーシャンがどのように冷却固化、化学分化をしていったのかが明らかとなる。従来の X 線回折法では DAC 内の圧力温度勾配の積分された(2D)情報のみが得られるため、このようなサイエンスには限界があった。高圧高温実験において 3D で情報を取得することが地球内部物質科学の大幅な発展につながる。

一方で、光源の輝度の問題から、現状展開できるサイエンスには制限がある。

1. 現状の放射光施設で到達可能な空間分解能は 100-200nm 程度であり、研究対象はサンプルが十分に厚い(>>1μm)、地球マントル圧力に限られる。第三世代放射光源の輝度では実現可能な拡大結像系の倍率に限度があり、地球中心核のような超高圧で極薄(厚み<1μm)のサンプルに対するイメージングには空間分解能が足りていない。

2. 現状では、鉄の K 吸収端(7.1 keV)を挟む 2 つのエネルギー(7, 8keV)を使用することで、鉄の組成分布や、鉱物種分布を 3D その場観察することが可能である。一方、一回の測定時間(40min)、X 線エネルギーを変えるための時間、そのためのセットアップにかかる時間・手間を考慮すると、より多数のエネルギーを用いたイメージングは現実的でない。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

高輝度の KEK 放射光を利用することによって、上の 2 つの課題が克服可能であるだけでなく、高いコヒーレンス、高エネルギー分解能により質的に一歩も二歩も進んだサイエンスが展開できるようになる。

1. 超高圧その場観察への拡張: 今まで地球マントル圧力に限られていた研究を、高輝度の KEK 放射光を利用するによって一気に地球全域にまで拡大することが可能である。実効的な空間解像度は回転ステージの軸ブレや再現性によって悪化することを考えると、10nm 程度(100 倍の拡大結像系)が必要となるが、X 線吸収イメージングでこのような高い空間解像度を達成するには高輝度の放射光が必要不可欠となる。例えばコアの融解相関係を調べることで、地球内核の形成・進化のサイエンスを進展できる。イメージングの高解像度化により、粒子サイズが小さい固相実験も視野に入る。以下に挙げるイメージング手法と組み合わせることによって、固体マントル、内核の化学構造に対する理解が格段に進むことが期待出来る。

2-1. XAFS イメージング: KEK 放射光による輝度向上、それによって期待できる測定時間の短縮によって、多数のエネルギーを用いた 3D イメージングが現実的となる。従来の特定元素吸収端を挟む 2 つのエネルギーだけでなく、より複数の吸収端近傍エネルギーを用いることによって、XAFS(XANES)的に価数や配位環境、結合様式に対しても 3D マッピングを行えることが期待できる。これによって地球マントル内部の酸化還元状態に対する理解が格段に進む。地質学的研究と組み合わせることで、46 億年を通じた地球内部の酸化還元環境の変遷を追うことができるようになる。

2-2. X 線コヒーレント回折イメージング: KEK 放射光の高いコヒーレンスを活かした X 線コヒーレント回折イメージングでは、透過型電子顕微鏡レベル(ナノスケール)の解像度で化学反応/相転移の生成物や組織の微細構造観察が可能になる。その際、異常散乱などを用いて元素の情報も同時に得られ、マントル鉱物中の鉄の不均化反応(金属鉄析出)や希土類元素の鉱物内局所濃集など、地球化学的に重要な元素の地球深部での挙動について知見を得られる。転位の高圧その場観察による物質の流動メカニズムの理解、それによる地震発生のメカニズム解明など、質的に新しく、社会的貢献の極めて大きいサイエンスの展開も期待できる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・6-10 keV で同一集光位置を持つ吸収、位相イメージング用ビームライン
・X 線回折(35 keV)のための測定システム
・高温実験のためのレーザー加熱光学系、抵抗加熱制御系の設置・遠隔操作システム
・ラミノグラフィー画像再構築のための解析用コンピューティング環境
・フレキシブルな使用が可能な広い実験ハッチ
・高温実験のための強力な極低振動の室温管理(空調)設備

9-6. 高温高圧下におけるメルトの相転移と粘性の変化

(1) 背景

地球や惑星のダイナミクスは、重力場中の物質移動に支配される。ある物質に注目した場合、周囲の物質との密度差が移動の推進力となり、粘性は抵抗力となる。したがって、固体に比べて著しく粘性の低い（＝流動性の高い）液体に関する知見が、火山活動やマントル対流、ダイナモ作用による磁場の生成・維持、更には、地球・惑星の進化などの理解において重要である。地球・惑星の内部に相当する広い温度圧力領域で、液体がどのように構造を変え、それにより密度や粘性を変えるか、これを解明する必要がある。

1980 年代の放射光利用の黎明期から現在に至るまで、結晶を対象とした高圧実験は広く実施されてきた。一方、2000 年代以降、液体やガラスなど、並進対称性を持たない物質（非晶質）を対象とした実験も増加傾向にあり、SPring-8 では、単元素として初めて、リンに液体－液体の一次相転移があることが発見されて注目を集めた。PF でも、ケイ酸塩メルト（マグマ）の構造や粘性についての先駆的な測定や SiO_2 ガラスの 100 GPa 領域までの構造測定が実施されている（図 1）。しかしながら、液体の実験では、反応性の高い試料を高

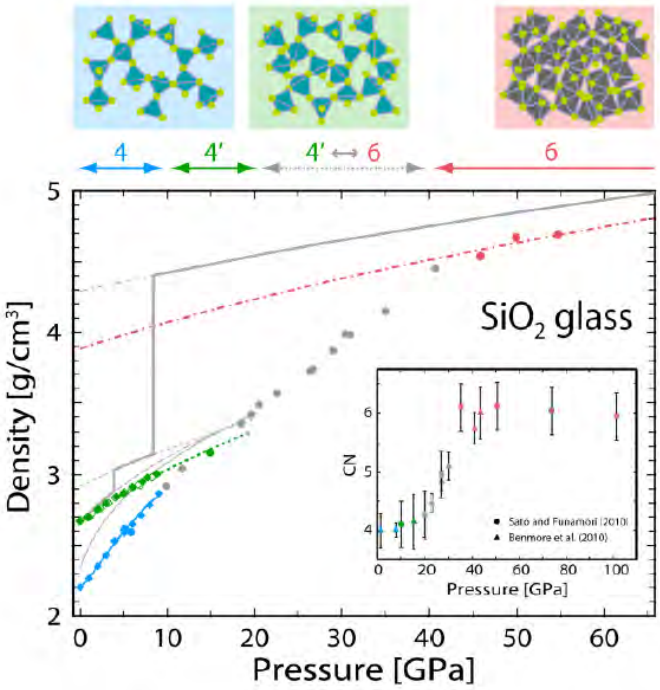


図 1　SiO_2 ガラスの密度の圧力変化と Si 原子周囲の酸素の配位数の圧力変化。非晶質も結晶と同様に、温度圧力条件によって大きく構造と物性を変える。構造と密度については、ガラスはメルトの良いアナログ物質であるが、粘性については、メルトを対象とした直接的な測定が必須であり、KEK 放射光における新しい測定法の開発が待望される。

温高圧下に長時間にわたって保持することが困難であることから、圧力の上限が低く、また、利用可能な測定手法も限定される。非晶質の理解、特に、液体に関する理解は、結晶に比べて大きく遅れている。

（2）KEK 放射光における新展開と期待される成果

PF BL-18C（高圧 UG 運営ステーション）では、ガラスの相転移に関する知見を得ることなどを目的に、数年前から、ダイヤモンドアンビルセル利用の高圧下その場小角 X 線散乱測定が実施されている。最近、研究成果が挙がり始めており、SiO_2 ガラスの相転移の過程で、平均数 Å の不均質（ドメイン）構造を捉えることに成功している。高コヒーレンスを特長とする KEK 放射光の光源性能であれば、コヒーレント X 線回折イメージング（CDI）により、平均化される前の数 Å の不均質を捉えることも不可能ではない。化学組成によっては、より大きなスケールの不均質を持つ可能性もあるので、CDI が有効になる可能性も高まる。そうした測定に成功すれば、ガラスの相転移、ひいてはメルトの相転移に関する理解が、大きく前進するものと期待される。

ガラスの構造の平均化される前の不均質を捉えることが可能になれば、メルトの粘性測定も視野に入る。適切な元素（マーカー）をドープすることで不均質を人工的に作ることも可能であろう。そのようにして準備した試料に対して、温度圧力条件を変化させながら、X 線光子相関分光（XPCS）法で不均質を反映するスペックル散乱の強度の揺らぎを測定すれば、粘性の圧力温度依存性の情報が得られるものと期待される。高圧下その場粘性測定は、従来、大型プレス装置利用の落球法で実施されており、圧力の上限は 10-20 GPa にとどまっている。KEK 放射光の高コヒーレンスにより、ダイヤモンドアンビルセル利用の XPCS 法での測定が可能になれば、圧力の上限が 100 GPa 領域まで拡大されるとともに、従来の結果のクロスチェックにもなる。前述の通り、地球や惑星のダイナミクスの理解には、メルトの粘性の情報が不可欠であり、地球惑星科学への極めて大きな貢献になる。

（3）必要とされるビームライン・実験設備

X 線領域での CDI や XPCS の測定が可能なビームライン、フレキシブルな使用が可能な広い実験ハッチ、ダイヤモンドアンビルセル周辺機器一式

9-7. X 線光子相関分光（XPCS）法で見る高圧下の相転移近傍における異常拡散

（1）背景

高圧下の拡散現象には、非晶質（7-6 節参照）のみならず結晶固体においても未知の世界が広がっている。特に、相転移近傍では、拡散が通常抑制される高圧下にも拘わらず、昇温を要さずに著しい拡散が生じることがある。希土類２水素化物は加圧により希土類１水素化物（低水素濃度相）と３水素化物（高水素濃度相）に相分離を起こすが、10 万気圧を超える高圧下にも拘わらずマクロなスケールでの水素の移動が室温で起こる（図１）。また、巨大歪場では 2 種類の金属を溶融させることなく混合させるだけで、原子拡散が生じて合金化することが最近明らかとなった。(K. Oh-ishi *et al*, Acta Mater., **61**, 3482, 2013) このような現象において、原子拡散が生じたことは結果として理解されるが、拡散現象そのものの観測がなされていないために、そのメカニズムは謎に包まれている。

原子拡散に限らず、相転移界面の拡散も興味深い対象である。これまで高圧下の相転移は、主に静的な結晶構造観察によって理解が構築されてきた。現状では相転移界面の拡散の計測は一般に困難であるが、これが可能となれば、既知の圧力誘起 1 次相転移全般を２相間の移行というダイナミクスの観点から捉えなおすことができる。例えば、長年の課題である鉄の圧力誘起構造・磁気 1 次相転移機構の解明（２つの競合する変位モードの主従関係の解明）にも有効である。

材料科学分野においては、高圧合成における反応の進行や結晶性の制御などに拡散の情報は極めて有効である。また、地球科学分野においても、相転移や相分離で形成された地球内部層境界について、物質移動や弾性などの性質を理解するうえで、高圧下の相転移近傍の異常拡散は新しい視点を与えるものである。

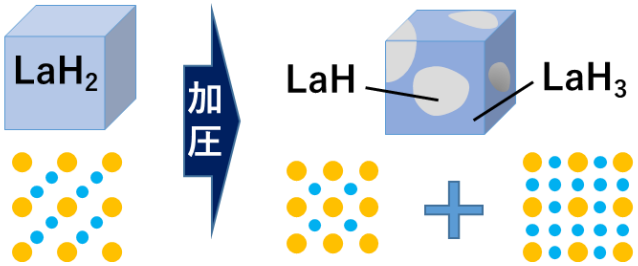


図 1.　希土類（ランタン）２水素化物では、12 万気圧もの高圧下で水素のマクロな移動を伴う相分離が室温において発生する。(A. Machida *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 205501, 2012)

（2）KEK 放射光における新展開と期待される成果

高圧下での相転移や相分離における、原子拡散および相転移界面拡散の観察は、7-6 節で

も紹介されたX線光子相関分光（XPCS）法が有効である。XPCS法はスペックル散乱の時間相関・発展を通じて拡散現象が観察できる手法であるが、非接触測定のため高圧のように圧力セル内の試料にも適用できる。従来の放射光源ではコヒーレントフラックス不足のため、高圧下でスペックル散乱の時間相関を取るまでの測定ができなかった。しかし、KEK放射光では、コヒーレントフラックスが格段に増加するうえに、高圧実験で用いる微小試料に対してフラックスを損なうことなくビームを集光して照射することができる。更に、ナノレベルに集光してX線照射領域を小さくすることにより位置分解能を向上させ、実効的に拡散に起因するコントラストを強調させることもできる。その結果、kHz領域に迫る速さの現象の測定をも可能とするものと期待される。

ダイヤモンドアンビルセルを用いた高圧下のXPCS測定では、小角散乱とブラッグ回折とを使い分けて利用する。小角散乱XPCS測定では密度コントラストを持つ２成分間の拡散の観察ができる。希土類水素化物の圧力誘起相分離では、低水素濃度相と高水素濃度相で金属格子の密度コントラストがつくため、金属格子を介して水素のマクロな移動を観察することができる。一方、ブラッグ回折を利用した場合は、界面拡散に敏感な測定が可能となる。密度コントラストよりも微細な変化を捉えるものであり、相転移の前駆現象の観察などにも適用できるものと期待される。鉄の圧力誘起相転移については、関与する２つの変形モードに起因する界面拡散の観察から、これらの変形モードが発達する様子を解明できるものと期待される。また、ダイヤモンドアンビルセルの利用によって、静水圧下の測定のみならず、対向するアンビルで直接試料を挟み込むことにより巨大歪場中の計測も実施できる。

高圧下の拡散現象、特に相転移近傍の異常拡散の研究は、基礎科学分野だけでなく、高圧合成といった材料科学分野に加え、地球内部層境界における物質移動といった地球科学分野に、従来にはないダイナミクスの視点を与え、高圧科学全般に新展開をもたらすものと期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

X線領域でXPCS測定が可能なビームライン、小角散乱および高角散乱が取得可能なセットアップ、小角散乱およびブラッグ回折に対してXPCS測定を可能とする時分割2次元検出器、ダイヤモンドアンビルセル周辺機器一式

9-8. 高精細 XAFS イメージングによる フルイドーケイ酸塩間の元素分配の高圧下その場観察

(1) 背景

天然の岩石中に含まれる元素の量は、地球誕生後のマグマオーシャンと核の分化（マグマ⇔鉄）、地殻の形成（鉱物⇔マグマ）といった分配の歴史を積分した値である。地球化学分野では、天然試料の元素分析と物質間の分配係数の情報を組み合わせて、岩石およびマグマの成因や地球の進化に関する知見を得ようと、多くの研究が行われてきた。特に、プレート沈み込み帯では、海洋プレートから供給されたフルイド（水）によってマグマが生成され、やがて地表に噴出して火山を形成すると考えられている（図 1）。地下深部におけるフルイドと鉱物、マグマの間の元素分配は、沈み込み帯における元素循環に極めて大きな役割を果たしている。これまで、高圧下における分配係数の測定は、急冷回収実験によるものに限られていた。しかし、フルイドーケイ酸塩（マグマ・鉱物）系の測定は、回収時にフルイドが揮発してしまうため、高圧下その場測定が必須である。

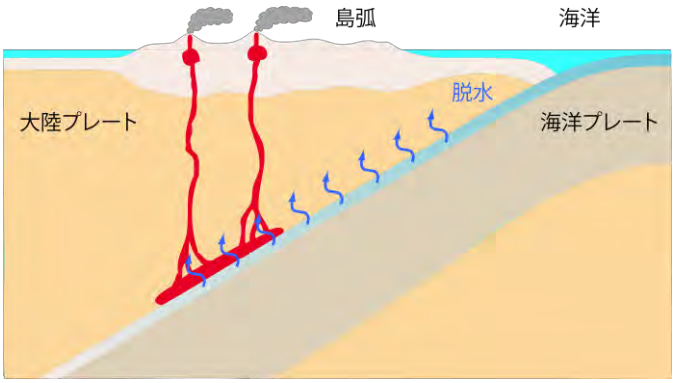


図 1 プレート沈み込み帯の模式図。

大型プレス（LVP、Large Volume Press）は、高圧装置としては大容量である、mm^3 オーダーの試料空間を持ち、時間的・空間的に安定な高温高圧状態を維持することができる。その特長を活かして、これまでにも、放射光を用いたフルイドーマグマの共存状態の高圧下その場観察の例が報告されている。しかし、大型プレスを用いた実験では、試料周りに圧力媒体や超硬アンビルがあるため、検出器や光学系を試料直近に置くことが難しい。したがって、ビーム発散がイメージングの解像度に大きく影響する。現状の放射光の発散・輝度では、試料中の元素の分配挙動を検知するのに、解像度・感度ともに十分でない。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光のアンジュレータを光源とするビームラインにおいては、20keV 程度のエネルギー領域まで、極めて低エミッタンス（高輝度）のビームを利用することができる。元々のビームサイズが小さく、スリットで成形する必要がないため、試料に当たるフラックスは現状に比べて格段に増えるものと期待される。このビームと大型プレスを組み合わせて、高精細かつ高感度の XAFS イメージングを行うことができれば、世界でも例のないフルイドーケイ酸塩間の元素分配および化学状態（価数・配位構造）の高圧下その場観察

が可能となる。分配係数は元素の化学状態に大きく影響されるため、両者を同時に捉えることは、分配挙動の圧力変化を本質的に理解するために極めて重要である。これらが実現すれば、沈み込み帯地下深部におけるフルイドーケイ酸塩系の理解が格段に深まり、火山の形成ひいては日本列島（島弧）誕生のメカニズム解明に向けて大きく前進するだろう。

島弧の火山活動研究において重要な元素である Rb, Sr, Y（吸収端 15-17keV）は主なターゲットとなるが、これらの天然における含有量は数十 ppm－数百 ppm と少ない。微量元素を検出するために、ビームラインは、マイクロビームを用いた走査型蛍光 XAFS イメージングも可能であることが望ましい（図 2）。また、XAFS イメージングだけでなく、これまで大型プレスで利用実績の高かった回折や通常の吸収イメージングについても、複合的に実施可能であることが重要である。特に、回折測定は、試料の構造や状態の確認のために必須である。さらに、マイクロビームを単色 X 線回折に利用すれば、固相の粒径分布の変化を元素分配と併せて測定することができる。

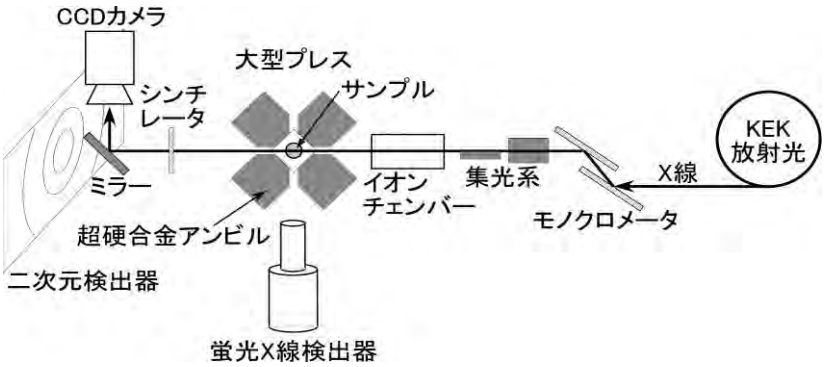


図 2 KEK 放射光における大型プレスビームラインのイメージ。

KEK 放射光の低エミッタンスビームを活かした XAFS イメージングの高解像度化が進めば、粒界・界面における元素の化学状態のその場観察も夢ではない。例えば、マグマは、比較的低圧領域で、SiO_4 四面体が構成する中距離構造（ネットワーク）が変化することが知られており、鉱物⇔マグマ界面における元素の振る舞いに大きな影響を与えると予想される。XAFS イメージング技術の高度化は、高圧下における元素分配の素過程に関する研究に飛躍的な発展をもたらすだろう。このほか、水平方向に広い開口を持つ対向型高圧装置（Paris-Edinburgh セルなど）を XAFS イメージングと組み合わせることで、CT スキャンによる高圧下その場 3D 元素マッピングといった発展的研究も期待できる。

アンジュレータ光の場合には、20keV を超えるエネルギー領域に吸収端を持つ元素（希土類元素など）を対象とした測定は難しい。20keV 領域まででも十分な成果が期待できるが、仮に、マルチポールウィグラーや超伝導ウィグラーのビームラインを光源に用いることができれば、さらに対象元素を拡大できるものと考えられる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・10keV 領域に高い輝度を持つ単色 X 線

・100μm－1mm オーダーのサイズのビームによる全視野型 2 次元空間分解 XAFS イメー

ジングシステムとマイクロビームによる走査型2次元空間分解蛍光XAFSイメージングシステムを切り替え可能なビームライン

・X 線回折および通常の吸収イメージングが XAFS イメージングと同時あるいは短時間で切り替えて利用できる測定システム

・大型プレスを設置可能な広い実験ハッチ

・試料準備のための作業室

9-9. 高圧変形その場観察による固体物質の応力場・配向性測定とレオロジーの理解

(1) 背景

高圧力下における多成分・多相系物質の動的挙動は、その物質を構成する結晶そのものの性質(対称性、原子位置、組成)だけでなく、各結晶の形状や大きさ・各結晶相の空間分布・方位分布などの複合的な要素に支配される複雑な現象である。例えば、地球深部物質の流動や変形に関する現象(レオロジー)は地球のダイナミクスを理解するうえで極めて重要であるが、机上の計算だけでこのような複雑現象を再現することは現状では不可能であり、実際の応力環境再現と放射光その場観察を組み合わせた実験的研究がほぼ唯一の選択肢となっている。

大容量マルチアンビル装置(Large Volume Press, 以下 LVP)は、比較的大きな積を長時間かつ安定的に高温高圧状態に維持できる装置であり、多成分・多相系物質に対する拡散・相転移・流動・破壊といった動的過程の再現実験に大きな威力を発揮する。2010 年前後から PF-AR や SPring-8 では LVP に一軸圧縮機構を組み込んだ D-DIA 装置(図 1)が稼働しており、高圧下における変形挙動のその場 X 線観察が行われてきた。現状の D-DIA 実験では、単色 X 線による回折パターン（デバイリング）を取得し、格子歪や格子選択配向を抽出する解析が主に行われている(図 2)。ただし、輝度が不足しており長時間の露出が必要であること、入射 X 線が太く空間分解能が低いこと、入射 X 線の単色性・平行性が低くデバイリングが重なってしまい(特に多相系の場合)解析が困難であること、などの理由から試料全体の平均的な性質の情報しか得られていない。そのため、高輝度・高フラックスの X 線源が待望されている。

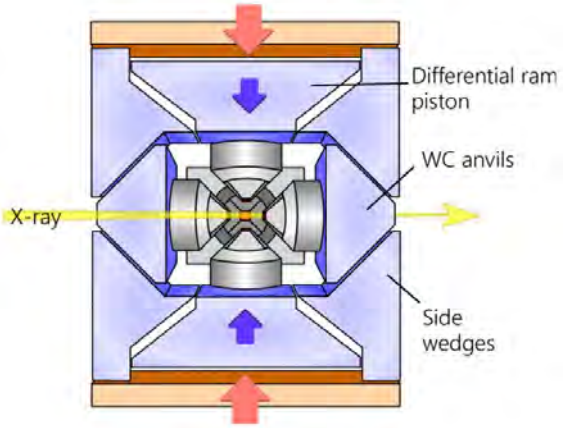


図 1. D-DIA 型高圧変形装置の模式図。装置中央部に配置した試料を六方向から圧縮し高圧力をかけた状態（赤矢印）で、上下からの更なる圧縮（青矢印）を加えることで試料を流動変形させる。装置の隙間から放射光 X 線を照射し（黄色矢印）、回折測定、透過像撮影により試料の応力・歪などが計測できる。

また、ダイヤモンドアンビルセル(Diamond Anvil Cell, 以下 DAC)は、試料室は極めて小さいものの 100 万気圧を超える超高圧力を容易に発生できる装置として広く普及している。DAC は一軸圧縮によって圧力を発生するため、本質的に非等方的な格子歪や選択配向を伴う実験である。これまでの研究では、DAC の試料室内をいかに静水圧性に近づけるかについて策が凝らされてきたが、理想的な圧媒体

は見つかっていない。逆の観点から言えば、DAC 内の応力環境・試料状態(配向性や粒子サイズ・分布など)を明らかにすることは、LVP ではカバーできない超高圧下のレオロジー研究につながる可能性がある。ただし、現状では輝度やビーム径の問題から、DAC をレオロジー研究に応用した例はほとんどない。

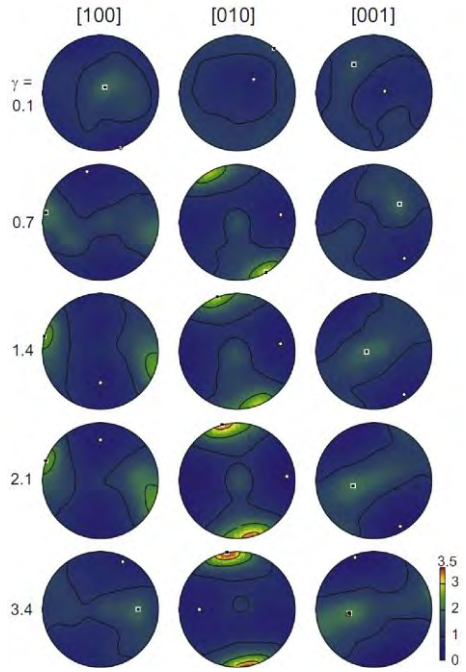


図 2. D-DIA によるせん断変形中の多結晶カンラン石試料の方位密度分布(Ohuchi et al. 2015, PEPI, 243, 1-21 を改変)。カラースケールは均質な方位分布に比する倍率を表す。γ(せん断歪み)の増加とともに格子選択配向が卓越していく様子が分かる。このように、これまでに変形中の試料全体の格子選択配向の測定が可能となっているが、多結晶を構成する個別の粒子の方位は測定することはできていない。KEK 放射光による粒子ごとの測定の実現が待望される。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

これまでの D-DIA を用いた高圧変形その場観察では、試料全体の平均的な情報しか得ることができなかったが、KEK 放射光の高輝度マイクロビームによって上記の問題は解消し、情報量は飛躍的に増加する。サブミクロンサイズのビームによるスキャンと適切なモデル計算と組み合わせることによって微小領域（究極的には構成粒子単位）の結晶方位・格子歪み解析が可能になれば、変形中の応力分布、粒子回転、粒成長、粒界でのすべりなどの今まで知ることのできなかったミクロな情報をその場で得ることが期待される。これらの情報は変流動形のメカニズムの正確な理解のために不可欠なものであり、今まで回収試料のみから間接的に議論されていた高圧下での変形メカニズムの理解は飛躍的に進展する。このような展開を行うにあたり、新光源の性能を最大限に活かすための D-DIA 変形実験システムの大幅な改良を予定する。現状では、比較的高エネルギーの X 線を利用して分厚いアンビルを透過させているが、低エネルギーで高輝度化する新光源に合わせてアンビルをコンパクト化し、吸収効果の軽減を試みる。また、X 線パスの He ガス置換、X 線入射/出射/圧縮軸方向の幾何学的再配置や、開口角の最適化、複合測定への適合化などが必要と考えられる。

ダイヤモンドアンビルセルを用いた応力場・選択配向解析も、KEK 放射光のメリットを大きく享受する。サブマイクロメートルサイズの X 線を結晶一粒に照射して単結晶回折の

情報を引き出すことが可能になれば、DAC の大きな開口角を活かしてセルを揺動させることで、応力環境下での格子歪をダイレクトにとらえることが出来る。また、高輝度化と高速二次元検出器によってサブ秒単位の時分割測定が出来るようになれば、従来では不可能であった高温高圧下の高速なダイナミクス(例えば核形成頻度・結晶成長速度の温度圧力依存性や、歪条件下での相転移カイネティクス)を追跡することが可能となるだろう。新光源の得意領域(<10keV)に合わせてダイヤモンドの小型化やくり抜き加工、あるいはガスケット材の軽元素(Be など)化などが技術的な課題となる。

新しい高圧変形システムは R&D 的な要素は多いものの、高輝度・マイクロビーム X 線の恩恵を大きく享受する挑戦的な実験である。この研究によって得られる成果は、地球内部物質のレオロジーの理解から地震発生機構の解明、あるいは新規複合材料の開発といった様々な応用につながることが予想される。

（3）必要とされるビームライン・実験設備

・高エネルギー(>40keV)単色光源（ウイグラー）
・10keV 程度の単色光源(アンジュレーター)
・D-DIA 型一軸圧縮変形装置
・DAC 用ステージと X 線集光光学系
・高速二次元検出器

9-10. 超高圧下における結晶構造と電子密度分布の解明：単結晶 X 線回折法によるアプローチ

(1) 背景

地球や地球外惑星の内部に関する様々な研究(相平衡や各種物性測定など)に対応するために，高圧力発生に関する技術は進化・発展を続けてきた．現在では，マルチアンビルプレス(MA)でも 100 GPa 領域での測定が可能となりつつあり，ダイアモンドアンビルセル(DAC)に至っては，400-500 GPa の圧力領域に到達し，地球惑星科学的には地球中心圧力を，また物質材料科学的には水素の金属化予想圧力を捉えた状況にある。テラパスカル（TPa）領域を見据えた技術開発も進められており，極限状態における物質の未知なる状態解析の重要性・必要性が増してきている。しかしながら，そのような極限状態は極微小空間でのみ達成(100 GPa で数 10μm 角)されるため，その場観察による物質の状態の精査には，高輝度な放射光光源の活用が必要不可欠である。DAC による高圧実験は，分光学的測定や X 線回折実験等との組み合わせの相性がよく，地球深部における相関係の解明や含水素鉱物中の水素結合の対称化の観察といった魅力溢れるサイエンスが展開されてきた。到達可能圧力が増加することにより，更なる発展の可能性を秘めている。その可能性の一つに極限状態における物質の結晶構造や電子分布の状態の解明を挙げることができる。例えば，単元素の Li, Na, Ca などは超高圧高温条件下で incommensurate 構造等の変調構造をとることが示され，極限状態においては単純な最密充填構造をとるとは限らない。また，電子−電子の相互作用の影響が著しく増加する超高圧力での電子状態の解明に関しては，実験的にまだまだ未踏な領域も多く，物質材料科学や物性物理学において新しい知見の宝庫となる可能性を秘めている。地球惑星科学的には超高圧力下における含水素鉱物中の水素位置の解明は，解決すべき重要なテーマの一つであり，現時点では，極限環境下では中性子法による測定よりも，放射光 X 線による解明の方が現実的である。

結晶構造解析に関連した放射光 X 線回折実験では，以下のような現状と問題点を挙げることができる。高圧力下その場結晶構造解析では，諸々の理由から粉末法による測定が主流であり，圧力誘起相転移などの観察，比較的シンプルな構造を持つ物質のリートベルト解析による結晶構造解析などで重用されている。一方で，新相の構造決定，対称性の低い構造精密化や，変調構造(commensurate 構造や incommensurate 構造)の解析に対しては限界がある。特に，変調構造を示唆する衛星反射の強度は主反射に対して著しく弱いため，粉末プロファイルには反映され難く，また衛星反射の出現位置も重要な情報となるがそれらの情報が欠けることとなる。また，結晶内の電子密度分布はマキシマムエントロピー法(MEM)により解析されているが，重畳反射の取り扱い等において，様々な改善・改良のもとで進められているのが現状である。

単結晶法は，こうした粉末法の弱点を克服できるだけでなく，ナノビームの登場により，微細粒の試料を単結晶試料として解析できることが期待されることから，KEK 放射光におけるサイエンスにおいて非常に重要な役割を果たすと考えられる。高圧下その場単結晶

X 線回折実験は，４軸回折計を用いて行われてきたため，DAC そのものへの制約や実験光学系の複雑さが災いし，非常に限られた研究グループでのみ行われてきた。しかしながら，２次元検出器の登場により，従来あった実験光学系に関する不利がかなり解消されたことから，状況が変わりつつあり，今後の発展が多いに期待される。DAC の幾何学的制約に伴う測定可能領域の少なさへの対応は残された課題のひとつである。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

1.ナノビームを用いた極微小領域試料に対する結晶構造解析

高輝度ナノビームは，単結晶法において多くの恩恵をもたらすことが期待され，その一つが，前述の問題点への対応である。ナノビームを同種試料マルチクリスタル法と組み合わせることにより，高圧力下その場単結晶法の泣き所の一つである逆格子空間情報の極度に不足する問題に対して活路を与える。すなわち，方位差を利用した測定領域の拡大である．近年は，FIB などの試料加工技術も発展しており，試料サイズの制御まで行えば，あたかも常温常圧下における測定のように単結晶による結晶構造解析が可能となる。情報量の増加は，結晶中の電子密度分布の詳細な観察や構造中の水素位置決定を可能とする。また，組成差の有る試料や DAC 内で合成した共存する異種の極微小試料への測定などに適用すれば，これまで未解明であった問題に対して新しい見解が得られる。このとき，同時に化学組成の測定や価数に対する情報を測定できれば，より詳細な議論に繋がり，魅力的な展開が期待できる。また，変調構造に関しては，２次元検出器による画像から観察・解析が可能である。

2.異常分散効果の活用，組成分析・X 線吸収分光法との組み合わせによる極微小結晶評価

吸収分光法は，回折実験の光学系へ組み込むことが比較的容易であり，XANES や EXAFS との併用により価数評価等が期待できる。特に，単結晶法による測定では，結晶方位を任意に選択できるという利点を活用することが重要である。佐々木・奥部(東工大)で行われた吸収端，X 線偏光子ならびに特定の回折線を利用した磁性特性の構造的解明や杉山研(東北大)等で行われている各元素の吸収端近傍波長を利用した特定元素の位置や状態の解明のような測定が超高圧下に適用できれば，サイエンスの幅が大きく広がる。

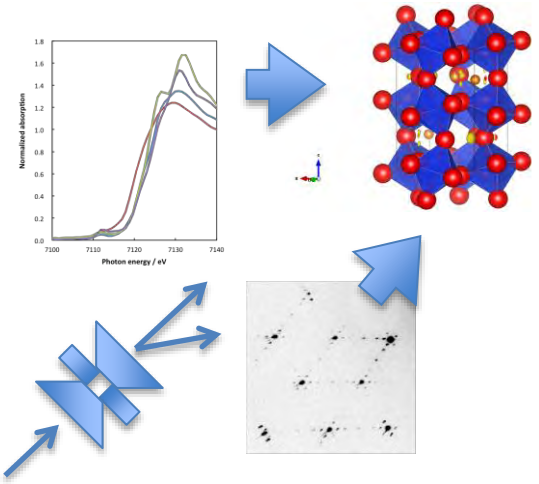


図１　測定イメージ図．分光データと単結晶 X 線回折二次元データの組み合わせから構造の詳細（原子位置・電子密度分布等）を解明

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

実験設備：5 - 40 keV 程度のエネルギー領域を自由に使える分光システム。集光系．X 線二次元検出器，イオンチャンバー，ピラタス検出器等。検出器側の切り替え(入れ替え)が容易な光学系。多軸回折計，X 線偏光子，組成分析装置等。上記設備を設置可能な空間と安定に運用するための環境設備（除震・空調等)。

9-11. 高輝度ナノ集光ビームによる高圧下の X 線吸収と円二色性測定の新展開

（1）背景

高圧力は「原子間距離が縮まって電子の波動関数の重なりが増した状態において，物質がどのような結晶構造と電子状態を取るか?」という物質科学の根源的な疑問に答えることができる外場である。その時，価数や結合状態，吸収原子周りの配位子や配位数に敏感な X 線吸収分光は，高圧力下の電子状態と局所構造を同時に捉えることができる強力な手段となり得る。さらに，放射光の偏光特性を活かすことで，元素選択的な「偏り」に関する情報を得ることができる。例えば，左右円偏光に対する X 線吸収係数の差分として定義される磁気円二色性(XMCD)では電子軌道における強磁性的な分極が検出可能であり，自然円二色性(XNCD)では物質の空間反転対称性の有無や結晶点群を推定することができる。

円二色性に必要な高い円偏光度をもつ左右の円偏光は，X 線領域においてはダイヤモンド移相子またはヘリカルアンジュレーターによって生成できるようになった。また，圧力下の X 線吸収測定に有効な技術として，低エミッタンス光源では Kirkpatrick-Baez (KB)ミラーによってサブミクロンから数ミクロンのサイズに集光できるようになった。さらに，高硬度のナノ多結晶ダイヤモンドアンビルを利用することで，100 GPa 以上の高圧を容易に発生できるだけなく，グリッチの発生しない高品質の円二色性スペクトルが得られている。

ただ，マルチメガバール（数 100 GPa）での X 線吸収測定となると，現状では，まだ簡単ではなく，この圧力領域で残された圧力下磁性の課題も多い。そのうちの一つに，強磁性 Co や Ni の磁気秩序の問題が挙げられる。この問題は，強磁性と結晶構造・3d 軌道の占有数との相関を議論するうえで重要である。図 1 に示すように Co は 100 GPa 以上で hcp から fcc への構造相転移に伴い強磁性秩序を失うと予測されているが，XMCD(=磁気秩序)が完全に消失するか否かは未だ定かではない（R. Torchio et al, PRB 94, 024429 (2016), N. Ishimatsu et al., PRB **83**, (2011) 180409(R)）。また，Ni は 200 GPa までの XMCD の測定例があるが（R. Torchio et al, PRL 107, 237202, 2011），その消失は 500 GPa を超えると予測されている。実際，200 GPa の XMCD 強度は室温の強度と比べて半分程度でしかない。Ni の磁気転移に到達するには，500 GPa 以上の安定した高圧発生とともに，ミクロン以下の集光 X 線の形成と X 線計測に対するさらなる技術革新が望まれている。

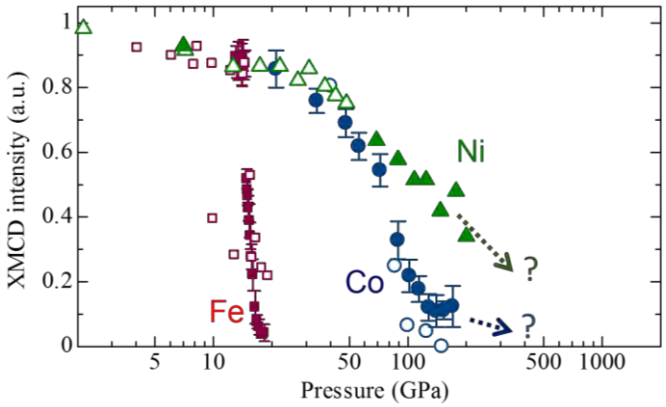


図 1　Fe，Co，Ni の K 吸収端 XMCD の圧力変化。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光の最大の特長は，低エミッタンスと高コヒーレンスといえる。KEK 放射光で高コヒーレント・ナノビームを生成し，このビームをマルチメガバール(数 100 GPa)から TPa 領域の X 線吸収分光測定に活用できる。

現在，500 GPa から TPa 領域の圧力発生が，2 段式アンビルによる静的圧力発生と，レーザー衝撃圧縮の動的圧力発生の 2 つの方式で試みられている。円二色性の微弱なシグナル(例えば，K吸収端の XMCD は規格化された吸収量に対して 10^{-3}~10^{-4} オーダー)を精度よく観察するためには，ワンショットの動的圧縮より 2 段式アンビルによる静的圧力発生が適している。また，断熱圧縮となるレーザー衝撃圧縮は，試料の温度上昇が避けられず温度に敏感な磁性研究には向かない。一方で，2 段式アンビルを用いて 500 GPa 以上の圧力を発生させるためには，試料サイズは 1 μm に満たないため，KEK 放射光の高輝度ナノビームが必要不可欠である。前述した 500 GPa 以上で予測される強磁性 Ni の磁気秩序の消失は，このナノビームを用いた XMCD 測定のみで検出が可能であろう。

さらに，高輝度ナノビームや高コヒーレントフラックス光は、元素選択的な局所構造や磁気ドメインイメージングなどを可能とする。高輝度ナノビームでは，数 10 nm の空間分解能が限界と考えられるが，KEK 放射光の高コヒーレントフラックス光では，コヒーレント回折イメージング(CDI)やタイコグラフィーによって，数 nm 以下の空間分解能で数μm オーダーの広視野画像の取得が可能となる。両手法と X 線吸収・XMCD を組み合わせることで，物質内の空間的な電子状態や磁気状態の分布(階層構造)の観察が可能となり，例えば Co や Fe のように圧力誘起で一次の構造相転移と磁気相転移が同時に起こる場合，X 線吸収による電子状態や局所構造マッピングと XMCD による磁気マッピングを同時(同条件)で行うことができる。これにより，異なる相への移行過程の局所歪や磁気エネルギー(エントロピー)に関する議論が可能となり，様々な相転移の理解が進むことが期待される。

TPa 領域に入ると強磁性相はなくなり，物質の電子状態は常圧の電子状態とは全く異なることが予想できる。物質が高密度状態となると，価電子帯の電子だけでなく，内殻電子さえも隣接原子の内殻電子と混成する。その結果，原子がカチオン，原子から離れた一部の電子がアニオンとして原子間に配列する electride に類似した電子状態の再構成が起こる。この代表例として可視光に対し透明な高密度ナトリウムが挙げられるが（Yanming Ma et al., Nature 458, 182-185, 2009），TPa 領域ではアルミニウムも同種の構造が予測されている（C.J. Pickard and R.J. Needs, Nature Mat. 9, 624–627, 2010）。X 線吸収分光はこのような極限状態の構造と電子状態を同時にプローブする強力な手段となり得る。特に内殻から価電子帯への励起の X 線吸収スペクトルが electride の電子状態でどのようなプロファイルを与えるかは興味深い。さらに極限状態で発生した未知の物質に対して，XNCD 測定は結晶構造の対称性に対する情報を明瞭な形で与えるだろう。

これらのサイエンスの展開には，1 μm 以下の高圧測定用試料のサンプリング，微小な試料からの微弱なスペクトルの検出，ナノオーダーの集光 X 線を狙った試料位置に安定して

照射する方法，試料位置のハンドリング，などの技術開発を並行して進める必要がある。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- 高圧 XAFS 用実験ビームステーション（フラックス 10^{12} photons/s 以上@ 3~12 keV，入射光エネルギー分解能 $\Delta E/E < 10^{-4}$
- 円偏光生成素子（ダイヤモンド X 線移相子，円偏光度 0.9 以上 @ 3~12 keV）
- 高次光除去 兼 集光ミラー（高次光含有率 10^{-6} 以下，ビームサイズ 100 nm 以下，ワーキングディスタンス 500 mm 以上）
- コヒーレント X 線回折用二次元検出器（フォトンカウンティング型，空間分解能 50 μm 以下，視野 □50 mm 以上）
- 圧力測定用機器： X 線回折測定用二次元検出器（空間分解能 50 μm 以下，視野 □20 mm 以上），ルビー蛍光顕微圧力測定装置
- 複合極限環境発生装置（磁場 >5 T，温度 2~600 K，圧力 ~1 TPa）
- 実体顕微鏡，放電加工装置（ガスケット作製）

９．極限物性科学

＊担当一覧

監修：遊佐　斉（物質・材料研究機構）

執筆分担：

まえがき　遊佐　斉（物質・材料研究機構）、船守　展正（KEK 物構研）

9-1　小林　寿夫・池田　修悟（兵庫県立大学）

9-2　一柳　光平・野澤　俊介・船守　展正（KEK 物構研）

9-3　榮永　茉利（大阪大学）、境　毅（愛媛大学）

9-4　福井　宏之（兵庫県立大学）、中島　陽一（理化学研究所）

9-5　野村　龍一（愛媛大学）、福井　宏之（兵庫県立大学）

9-6　船守　展正（KEK 物構研）

9-7　綿貫　徹・大和田　謙二（量子科学技術研究開発機構）

9-8　若林　大佑（KEK 物構研）、鈴木　昭夫（東北大学）

9-9　瀬戸　雄介（神戸大学）、西原　遊（愛媛大学）

9-10　栗林　貴弘（東北大学）

9-11　石松　直樹（広島大学）、河村　直己（高輝度光科学研究センター）

校閲協力：

奥部　真樹（東北大学）、小林　寿夫（兵庫県立大学）、高橋　嘉夫（東京大学）、
船守　展正（KEK 物構研）、山口　博隆（産業技術総合研究所）、
遊佐　斉（物質・材料研究機構）、若林　裕助（大阪大学）

１０．地球惑星・環境科学

我々人類の暮らす地球は、様々な物理現象、化学現象、生命活動が互いに関連しあう複雑なシステムを形成している。この複雑なシステムの過去を学び、現在を知り、そして、未来を予測することは、知的好奇心を満たし、日常生活上の要求に答え、さらに、永く人類が生存するための手掛かりを与える。

地球惑星科学は、主として、46 億年におよぶ太陽系の歴史を紐解き、天体としての地球や惑星の進化を解明することを目的とした夢と浪漫にあふれる研究分野である。地球や惑星において生起する様々な自然現象、例えば、太陽活動に起因する磁気嵐、大気や海洋の流動と波動、地震や火山などの固体地球の活動の解明も重要な課題であり、研究成果は、天気予報や自然災害に関わる各種情報・警報などとして社会に還元されている。一方、環境科学は、地球と人類の関係性に重点を置き、環境汚染や地球温暖化など、人類が現実に直面する地球規模の問題の解決を目指す研究分野である。数十万年前に誕生した我々人類は火（＝エネルギー）を操り、特に 18 世紀の産業革命以降、地球惑星科学が対象とする自然現象に影響を与えるまでに活動を拡大している。したがって、地球惑星科学と環境科学に明確な境界はなく、そのどちらにおいても、地球や惑星をシステムとして理解することが本質的である。

地球惑星・環境科学の研究には、様々なアプローチがあるが、システムの各要素における素過程あるいは要素間の相互作用について、それらの要素を構成する物質のミクロな分析からマクロな情報を引き出すことは極めて重要である。しかしながら、地球惑星・環境科学の分野における放射光利用は、これまで、分野の規模に比べて限定的であった。KEK 放射光では、ハードとソフトの両面での最先端化が計画されていることから、当該分野の利用は急速に増加するものと見込まれる。

KEK 放射光は、地球や惑星、生命を構成する主要元素の吸収端のある軟 X 線~10keV 領域に強みを持ち、高空間分解能や高エネルギー分解能の測定、極微量元素の検出を可能にする。本章では、それらの KEK 放射光の特長を活かした地球惑星・環境科学のサイエンスケースの具体例を紹介する。

10-1. X 線顕微測定による太陽系の物質進化過程の解明

(1) 背景

「太陽系（惑星系）の成り立ち」の解明は惑星科学における第一級のテーマである。近年の惑星科学の発展は、物質科学的研究に負うところが大きく、特に今世紀になってから各種の地球外天体からのサンプルリターンが成功し、彗星・小惑星の塵が直接得られたことや、南極隕石や砂漠隕石、宇宙塵の中にこれまでは未知であったタイプの試料が数多く見つかるようになり、惑星物質の進化過程の道筋が徐々に明らかになってきた。サンプルリターン探査では、NASA の「スターダスト」探査によって 2006 年に 81P/Wild 2 彗星塵が、JAXA の「はやぶさ」探査によって 2010 年に小惑星イトカワ塵が得られた。これらの試料に対して、最先端の物質科学的手法を用いた研究を展開することで、未知の惑星科学的知見が多数得られてきた。その中でも放射光を用いた分析は、非破壊分析でありながら多様な情報が得られることから、物質科学的な惑星科学を開拓する上での「主役」となっている。

このような放射光惑星科学は、手法的な違いもあるが、ここでは硬X線を用いた無機分析を主とした惑星物質科学と、軟X線を用いた有機分析を主とした惑星物質科学の大きく 2 つに分けて、それぞれの現状と今後の課題について個々に述べる。

(1-1) 硬X線を用いた惑星無機物質科学

鉱物学的・無機化学的な分析をする分野では、サンプルリターン試料や、隕石や宇宙塵などの地球外物質に対して、主に硬 X 線を用いたX線回折や分光分析などが威力を発揮してきた。KEK-PF でも 1～数 100 μm のビームサイズを用いた分析により、これまでに多くの成果が挙げられて来ている。数 100 μm のビームサイズは、これらの試料のバルク試料分析的な役割を果たしている一方で、1 μm のビームサイズでは微小領域のX線回折分析が実施されてきた。実際、サンプルリターン試料も宇宙塵・隕石も、多くの場合、不均質なサブミクロンサイズの鉱物・非晶質物質の集合体となっている場合が多く、局所的な情報を正しく得るためにはサブミクロンのビームを必要としている。特に、今後 5～10 年で、JAXA の炭素質 C 型小惑星サンプルリターン探査「はやぶさ 2」と NASA の炭素質 B 型小惑星サンプルリターン探査「OSIRIS-REx」により、有機物や水を豊富に含んでいるとされる始原的な小惑星からのサンプルリターンが実現しようとしている。これらの試料は、我々がこれまでに知っている地球外物質以上に、構成物質が物質的・空間的に不均質であり、無機物と有機物の複雑な混合物となっている可能性が高い。また、さらにその先の探査では、火星の衛星からのサンプルリターンも計画されており、その物質は D 型小惑星的な物質に小量の火星物質が混合している可能性が指摘されている。これらの帰還試料は、この先 10～20 年の惑星物質科学の展開を考える上では、最重要な分析対象である。現状の KEK-PF の分析設備では、サブミクロン領域の分析を実施することができず、nm オーダーでの物質科学的キャラクタリゼーション（X線回折・分光）が可能になることが強く望まれる。

(1-2) 軟Ｘ線を用いた惑星有機物質科学

従来の太陽系形成論において、宇宙の元素存在度が高い H、C、O、N、S、P からなる有機化合物は主要な太陽系始原物質でありながら、あまり考慮されていなかった。この理由はおそらく、天文観測のみでは揮発性低分子しか観測できず、複雑な組成を持つ高分子を同定するのが技術的に難しいためと考えられる。しかし最近では、化学分析技術の発展により地球外物質中の有機物と鉱物の組成と分布をサブミクロンスケールで「可視化」できるようになり、初期太陽系における「有機物・鉱物・氷（水）の相互作用」が惑星形成を担った重要性が実証されつつあると共に、太陽系の起源と進化を詳細に描写できるようになってきた。上述の「はやぶさ 2」や「OSIRIS-REx」に加え、ISS 上宇宙塵捕獲実験「たんぽぽ」においても、このアプローチは帰還試料分析の中核を担い、従来の隕石学では見出せなかった太陽系始原物質進化を世界で初めて解明する重要な機会になると期待される。

例えば、炭素質コンドライト隕石や、Wild 2 彗星塵に含まれる有機ナノグロビュールは、TEM、nanoSIMS、走査型透過 X 線顕微鏡（STXM）による測定を複合することによって、星間分子雲または原始惑星系円盤外縁などの極低温環境における光化学反応で生成した初生有機物の痕跡であるとの考え方が有力である（e.g., K. Nakamura-Messenger et al., Science 314, 1439-1442, 2006）。一方で、有機ナノグロビュールには形状・組成共に多様性があり、その起源や形成過程について十分に理解されていないところもある。幾つかの有機ナノグロビュールには厚さ数 nm の薄い皮膜層を幾つか含むもの（e.g., K. Nakamura et al., Int. Jour. Astrobiol. 1, 179-189, 2002; H. Yabuta et al., Lunar Planet. Sci. 44, #2335, 2013）や、鉱物微粒子を内包するものが TEM で観察されている。TEM で観察できるこのようなナノ領域の化学状態分析は、現状の顕微分光の空間分解能（最高で数 10 nm）では及ばない。

また、彗星を起源とする惑星間塵や南極微隕石中には、アモルファスケイ酸塩の一種である GEMS（Glass with Embedded Metal and Sulfides）が含まれる。GEMS の起源については分子雲か円盤かで決着がついていないが、少なくとも母天体で水質変成を著しく経験した隕石（小惑星）には GEMS は見られない（アモルファスケイ酸塩は水質作用で含水ケイ酸塩に変化するため）。つまり、GEMS を含む地球外物質には小天体上の水質変成が起こる前の物質が保存されていることが確実であり、原始惑星系円盤から小天体形成に至る物質進化を明らかにできる。多くの惑星間塵や南極微隕石で GEMS と有機物の共存状態が観察されているため、GEMS の起源を決定できれば有機物の起源にも制約を与えられることが期待され、ナノスケールの組織観察とその化学状態を詳細に解明する必要がある。

（2）KEK 放射光における新展開と期待される成果

（1）で述べたように、「スターダスト」以来の帰還試料分析による惑星科学は、「はやぶさ」探査でさらに進展し、今や「日本のお家芸」になりつつある。特に、放射光分析はその試料の分析法として主役の位置にあると言える。この分野が、一般の関心を引き付け、多くの若者に夢を与え、明日の科学を先導する役目を担うのだとすれば、KEK 放射光で展開する科学の中でもこの分野が果たす役割は大きいだろう。新光源で nm オーダーでの顕微分光やコヒーレントＸ線回折イ

メージングなどが可能になると、上記で示した新しい帰還試料の分析を中心として、これまでにない空間分解能で地球外物質を構成する成分のキャラクタリゼーションを非破壊で行うことが可能となり、これまで以上に惑星物質の形成過程について詳細な情報が得られることになる。

このうち、(1-1)で述べた硬X線による無機分析では、nm オーダーの空間分解能での X 線回折、蛍光 X 線分析、XAFS 分析を KEK 放射光で実現することで、地球外物質が持つ基本的な物質科学的情報（化学組成、結晶構造など）を明らかにし、これらの物質の形成過程に、これまで以上に迫ることが可能である。このことは、「原始太陽系星雲の誕生から微惑星の形成」、「原始惑星の誕生から地球を含む惑星の誕生とその後の進化」について、これまでの帰還試料や隕石・宇宙塵試料の分析では明らかにできなかった情報を与えると期待される。一部の分析は、SEM および TEM で相補的に実施できるが、放射光を用いて非破壊で実施することが帰還試料では特に重要である。また、電子顕微鏡試料作成の際の試料ロスやコンタミネーションを避けることができる。特にエネルギー可変の結像型 X 線 CT による 3D 顕微化学種イメージング（透過配置）や、大強度 X 線を利用した走査型 3D 顕微イメージング（蛍光配置）を利用することで、非破壊条件でイメージングと XAFS 分析が利用できれば、さらにサンプルリターン試料への優位性が高まる。また、XAFS 分析は無機物（鉱物）の酸化還元状態を推測する上で重要であり、Fe、Cr、V などの遷移元素の状態分析を行うことで、これらの試料の形成環境についての重要な情報が得られる。特に火星衛星試料に火星本体の物質が混ざっている場合は、その試料の酸化還元状態を知ることは、火星マントルや地殻の酸化還元状態にリンクする可能性があり、各種の火星隕石の分析結果と合わせて火星の内部進化史についての情報を提供し得る。

一方、(1-2)で述べた有機物を主とした研究では、主に軟 X 線領域の STXM を高度化して利用する。KEK 放射光で実現が期待される高い空間分解能は、(1-2)で述べた有機ナノグロビュールなどのナノ構造体の界面や包有物の化学組成の解明に必須である。また広い波長領域の放射光を利用した STXM による無機物・有機物の同時化学マッピングは、有機物と鉱物の共存状態の解明、有機金属錯体のキャラクタリゼーション（e.g., 有機硫黄化合物、シアノ錯体、シュウ酸塩）、惑星型希ガスの炭素キャリア（Phase-Q）の同定、プレソーラー粒子の細分類（含有微量元素種別、結晶状態別）などを可能にするだろう。今後は、クライオ技術の開発も、X 線ダメージを受けやすい有機物や流体包有物の分析に必須である。さらに 20−30 年後を見据えた場合、揮発性物質（氷、ガス）に富む彗星などの地球外物質のサンプルリターンに向け、試料調製〜導入〜顕微鏡部までのクライオチャンバーを開発することが求められる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・X線回折実験 BL：エネルギー範囲：5~30 keV 程度、最小ビーム径 5 nm
・XRF-XAFS 用 BL：広いエネルギー範囲（軽元素から重元素まで）、最小ビーム径 5 nm
・局所 XANES 分析が可能な 3D 顕微化学種イメージング用 BL：蛍光配置分析も可能に
・STXM 実験 BL：空間分解能 5 nm、波長範囲 200〜2000 eV、エネルギー分解能 0.01 eV
・その他の必要な実験設備： ウルトラミクロトーム、SEM-EDX、FIB-SEM（スローリーク、ドライ真空系）、STXM-TEM 対応試料ホルダ、光学顕微鏡、クリーンブース、真空デシケータ

10-2. 4 次元 X 線イメージングによる火山噴火素過程の解明

（1）背景

火山噴火の爆発性は，マグマに含まれる揮発性成分量に支配される．ただし，地殻内部から地表へとマグマが上昇，噴出する過程において揮発性成分は外部へと「脱ガス」するため，初期の揮発性成分量だけでなく，マグマ上昇中の脱ガスの効率が噴火の爆発性を制御すると考えられている（図１）．脱ガスのメカニズムを解明し，その効率を定量化することは，火山学の主要課題である「噴火の爆発性や様式の多様性の原因解明」へつながるため，これらの問題については古くから研究が進められてきた（例えば Eichelberger et al., 1986 Nature; Gonnermann and Manga, 2003 Nature）．現在支持されている脱ガスメカニズムは以下のようなものである（図 1）．一つ目は，マグマ中に形成された気泡同士が連結することで気泡ネットワークが形成され，そのネットワーク内を浸透流としてガスが移動するという考えである．もう一つは流動するマグマ中で脆性破壊が起こり，破壊領域をガスが浸透流として移動し脱ガスするという考えである．どちらのモデルも火山噴出物の組織観察や化学組成分析の結果から提案されているが，実際のマグマ中でどのようなタイプの脱ガスが起こるのか，またそれは噴火様式を左右するほど効率的であるのか，十分に検証されているとは言えない．

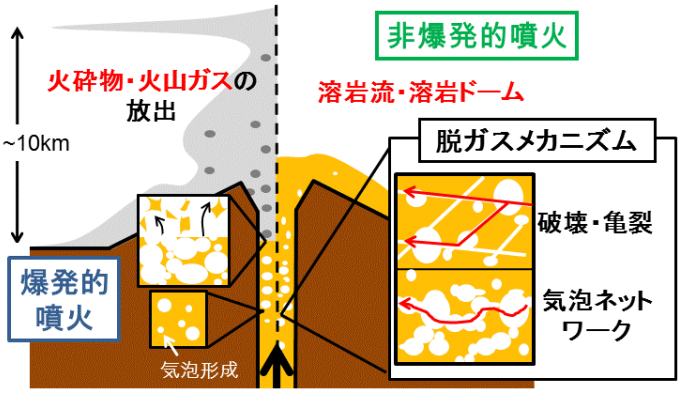


図1. 火山噴火と脱ガスの概念図

このような背景のもと，実験室内でマグマの発泡や流動を再現する研究が進められている．一つ目の考えである気泡ネットワークを利用した浸透流脱ガスについては，発泡と流動を再現した後にマグマを急冷回収し分析する研究が進められた（例えば Westrich and Eichelberger, 1994 Bull Volcano; Okumura et al., 2006 GRL）．その後，SPring-8 の X 線イメージングラインに高温変形試験機を設置し，マグマの発泡と流動を高温高圧下で 3 次元観察する研究が始まった(Okumura et al., 2013 EPSL)．これらの研究では 1 回の 3 次元観察（X 線 CT）に約 90 秒を要し，最近ではマグマの発泡過程を数秒程度の時間スケールで観察した研究も報告されている（例えば Pistone et al., 2015 Geology）．

二つ目の考えであるマグマの脆性破壊については，二つの観点から研究を進める必要がある．一つ目は，破壊によって形成される通路を利用した脱ガス効率の定量化である．これまでの研究では，破壊と圧密を組み合わせた実験を行った後，急冷回収した試料のガス浸透率が測定されている．しかし，マグマの破壊とその後の圧密は比較的高速な現象であり，今

後，破壊と圧密を高温高圧下で直接観察することが期待されている．さらに，粘弾性体であるマグマが破壊するメカニズムの理解が必要である．高温のマグマが破壊することは，変形試験とアコースティック・エミッション（AE）測定を組み合わせた実験など（例えば Tuffen et al., 2008 Nature）によって確認されている．一方で，破壊には珪酸塩メルトの微視的構造変化が関係していると予想されるが，この領域の研究はほとんど進められていない．

（2）KEK 放射光における新展開と期待される成果

以上のように，マグマの発泡，気泡の連結，破壊といった動的な現象を直接観察することが，火山学的に重要な問題を解決するために必要とされている．このような観察を行うための強力な方法の一つが，X 線 CT を用いた 3 次元微細構造観察に時間軸を加えた 4 次元 X 線イメージングである．現在のところ，マグマに対する 4 次元 X 線イメージングの速度については，SLS の TOMCAT が秀でている一方で（例えば数秒程度の時間スケールで 3 次元観察可能），変形試験機などと組み合わせた実験では SPring-8 の実験システムが勝っている状況である．これらに対して，KEK 放射光ではウィグラーを光源とするビームラインを利用することで 20 keV 程度において高い光束を得ることが可能であり，4 次元 X 線イメージングの高速化が期待される．さらにアンジュレーターを光源とするビームラインを利用すれば，低エミッタンスな X 線を得ることができ、高空間分解能 4 次元 X 線イメージングを行える可能性がでてくる．このような高速・高空間分解能の 4 次元 X 線イメージングをうまく組み合わせることで，気泡ネットワークの形成，破壊による脱ガス通路の形成という，脱ガスが開始する様子をその場で観察することができる．そして，高空間分解能 3 次元観察と流体シミュレーションを組み合わせれば，発泡から脱ガスを経て緻密化していく過程における，ガス浸透率の変化を直接定量化することも可能となる．さらに 4 次元 X 線イメージングに X 線回折実験を組み合わせることで，珪酸塩メルトの微視的構造の観点からマグマ破壊のメカニズムを解明できる可能性がある．このように高速化された高空間分解能 4 次元 X 線イメージングは，直接見ることができない噴火時のマグマの挙動の理解，そして火山噴火の爆発性や様式の原因解明へ大きく貢献するだろう．

（3）必要とされるビームライン・実験設備

・20 keV 付近に高い光束を持つ X 線イメージングライン
・小型の電気炉等を設置できるスペース
・回転ステージ、撮影タイミング等の同期システム
・必要に応じて回折用のイメージングプレート

10-3. 鉱物表面／流体界面の構造・物性から読み解く地球表層のダイナミクス

(1) 背景

鉱物科学・地球惑星物質学は、地球を含む惑星の過去・現在を解明することで、人類の知的財産を積み上げる基礎科学であるとともに、未来を予測し、地球表層環境分野においては環境・資源・災害という人類が抱える問題を解決するために必須の科学でもある。

地震・火山活動は、プレート境界に国土を持つ日本では避けることのできない自然現象である。地震・火山活動において“水”の存在は物理的・化学的に岩石の融点・破壊強度・摩擦強度を低下させる。こういった背景の下、地球惑星物質学における重要な課題として、地殻中の水の分布を捉える、岩石－水相互作用を定量的に理解する、ことが挙げられる。水の分布は観測・実験・シミュレーションの複合的なアプローチが必要であり、実験からは岩石中の水の連結度などの存在形態を知ることが重要である。岩石―水相互作用の理解のためには、結晶表面の構造・構成元素を知ることで鉱物表面の親水性・疎水性を解明する必要がある。

これら自然現象の理解に加えて、鉱物表面への有害元素、石油構成分子、生体分子の吸着・脱離は、地殻浅部から大気圏で重要となり、環境浄化、CO_2貯留、石油の回収率増進、バイオミネラリゼーション等の応用へ直接つながる。また鉱物そのものを機能性材料として活用する試みが、粘土鉱物学を中心に実施されている。

上記の研究課題を考えると、我々の生活と最も関連の深い地球表層では、「鉱物表面と流体の界面」が基礎から応用全てに関連した研究対象であることがわかる。鉱物の中でも分子の吸着・脱離において最も影響の高い鉱物の一つは、雲母・粘土鉱物や炭酸塩鉱物である。これらの鉱物は断層の強度低下や地滑りの原因ともなることから、環境・資源・災害の全てにかかわる重要な鉱物である。雲母・粘土鉱物は１層が１nm の厚みをもつ層状構造を呈し、炭酸塩鉱物はへき開面が発達しているものが多いため比表面積が高く、また地球表層環境において普遍的に存在する。流体としては地球表層の主成分である水-CO_2-有機分子が第一の研究対象となる。主としてこれらの鉱物表面／流体界面の構造・元素分布・流体の連結度等を定量的に探索できる技術が求められている。

<u>現状の問題点</u>

[鉱物表面／流体界面の電子密度分布の測定]　固液界面の電子密度分布は、X 線 CTR（crystal truncation rod）法で 0.1 nm 以下の分解能で求めることができる。しかしながら、詳細な構造を得るための広範囲の CTR 散乱プロファイルを得るためには、１プロファイルの測定に数時間以上の時間がかかるため、X 線のダメージによる影響や結晶成長の動的変化を捉えるのが難しい等の問題点がある。結晶表面の成長過程、親水性、疎水性の理解に向けては元素分析が必要であるが、地球惑星科学へのX線定在波法等の応用は限られている。

[岩石中の流体分布]　これまで岩石―流体の複合系では、μm スケールの理解に留まってい

る。これはX線CT法の空間分解能の限界とともに、nmスケールの流体の連結が重要視されていなかったことが背景にある。しかしながら岩石の電気伝導度測定による最新の研究によれば、岩石中の水はnmスケールの隙間で連結している可能性が指摘され、nmスケールの空間分解能を持つ計測技術が必要となってきた。

(2) KEK放射光における新展開と期待される成果

[鉱物表面／流体界面の電子密度分布・元素分析]

結晶成長は結晶表面／流体界面で起こり、特にバイオミネラリゼーションでは結晶表面に取り込まれる元素を制御することによって、生物が結晶成長を巧みに制御している可能性がある。そのメカニズムを解明するためには、結晶表面において元素分布を0.1 nm以下の分解能で知ることが必要となる。KEK放射光では、X線CTR散乱法と定在波法を使って、鉱物表面における元素分布の高速測定が期待される。いずれの測定法もKEK放射光の高コヒーレンス性を生かせる方法であり、KEK放射光での測定が有効と期待している。CTR散乱の強度は、コヒーレンス長の2乗に比例する（Robinson, 1986）。またX線の試料による吸収はエネルギーの3乗に反比例して小さくなるため、できるだけ10 keVオーダーのX線で測定することでX線による試料のダメージを小さくする必要がある。KEK放射光では、10 keVでもSPring-8と同等のフォトンフラックスを持ち、その上で高いコヒーレンスを持つことから、CTR散乱法を用いた固液界面の電子密度分布計測に極めて有効であると期待される。またKEK放射光の高コヒーレンスを利用して、X線定在波法を積極的に活用し、鉱物表面における元素分布の測定が今後進展すると期待される。本測定からは、石油の回収率増進に向けた鉱物表面での石油分子の吸着構造の解明・バイオミネラリゼーションのメカニズム解明に向けて、吸着構造を直接測定できる唯一の手法を提供することになる（図１）。

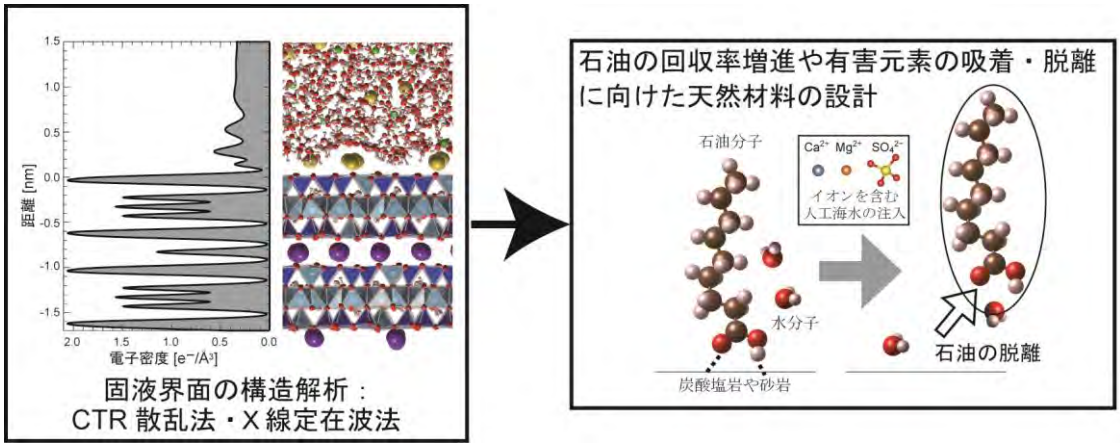


図１　固液界面の構造解析が拓く地球表層環境科学

[岩石中の流体分布・機能性粘土材料の形態観察]

これまで上部地殻の高電気伝導度領域を解釈するためには、海水程度の塩濃度を持つ塩水が存在しかつ高い連結度を持つ必要であったが、その高い連結性の実態が分かっていない。岩石の電気伝導度測定による最新の研究によれば、岩石中の水は nm スケールの隙間で連結している可能性が指摘されている。岩石中で水がどのように連結するかをナノメートルスケールで観察できれば、地殻の地震発生領域における高電気伝導度異常の定量的な解釈につながり、流体と地震発生の関連についても理解が進むと期待される。岩石中における 10 nm オーダーの流体分布の観察には、X 線の高コヒーレンスを利用した X 線タイコグラフィー技術が有用である。もし KEK 放射光でこれらの測定が可能となれば、地球惑星物質学において重要な課題である「岩石―水相互作用」の定量的な理解が進むだけに限らず、石油の回収率増進・CO_2 の地下貯留・機能性粘土材料の形態制御といった応用面でのユーザー拡大が見込まれる（図２）。また雲母・粘土鉱物から機能性材料を作製し、その形状観察をする際にも、1 nm の層状構造を持つこれらの鉱物の微細観察にも X 線タイコグラフィー技術が有効である。

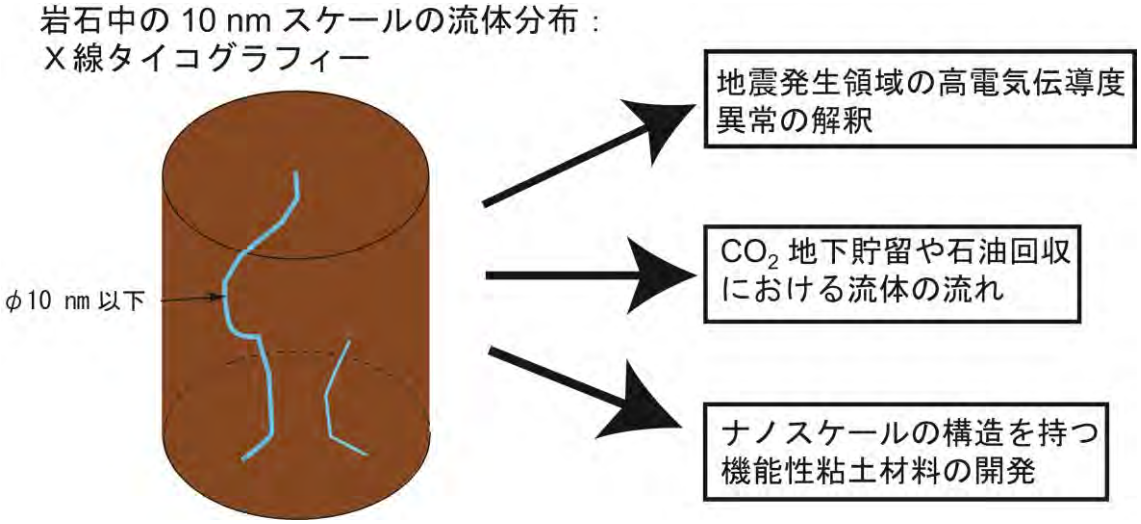


図２　岩石中における 10 nm オーダーの流体分布の観察

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・X 線 CT、タイコグラフィー用実験ビームライン

・X 線 CTR 散乱、定在波用実験ビームライン

10-4. 地球内部・表層環境進化史の精密理解のための多元素状態分析

(1)　背景

現在の地球環境は、地球史 46 億年を通して変動してきた地球内部のダイナミクスや隕石などの地球外物質の衝突、地球表層での生命活動とその進化など、地球内外の様々な因子の相互作用の産物である。地球に存在する岩石や堆積物、生体システム等に刻まれた過去の痕跡を定量的に復元することは、地球・生命の進化の実態と、それらを突き動かしてきた宇宙・地球の構造や原理を明らかにすることにつながる。近年の地球惑星科学における大きな流れの一つに質量分析技術の飛躍的な発展が挙げられ、地球や宇宙から採取された様々な天然試料に含まれる微量元素の濃度や同位体比が次々と明らかにされつつある。今後もこれまで測られてこなかった様々な元素に焦点が当てられることで、過去の環境変動および生命の進化史がより精密に描写されていくであろう。一方で、広大かつ長大な時空間スケールの中で得られる天然試料のもつ不均一な情報を扱う上で、放射光分析の重要性も増しつつある。特に、XAFS によって得られる元素の化学状態は、直接的あるいは間接的に試料が存在した場の酸化還元状態や pH などの化学環境の情報を与えるだけでなく、質量分析によって得られる元素濃度や同位体比の変動原理を物理化学に基づいて系統的・発展的に理解する上で決定的に重要である。しかしながら、質量分析と比較した場合、放射光分析は感度が低く、天然試料に対して実際に測定可能な元素には限りがあるという原理的な問題があるため、必ずしも地球惑星科学研究からの要望に応えられていない。KEK 放射光に関する“大強度”、“微小領域”などのキーワードは、この点において大きな進展をもたらすと期待している。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

2-1. 蛍光分光 XAFS 法による過去の鉱床試料に刻まれた海洋環境の変動史の解明

酸素に満ち溢れた現在の酸化的海洋では、マンガン酸化物鉱床が深海底に大規模に沈殿しているのに対し、現在に至るまでの酸素濃度の上昇に伴って、過去の海洋では鉄酸化物鉱床や硫化物鉱床などが産出頻度を大きく変えつつも時代を通して生成されてきた。これらの鉱床試料は、変動する海洋環境の中で産出され続けてきた元素の濃集物であり、ここに含まれる様々な元素の濃度や同位体比は、当時の海水の化学情報を保持している。もしここで、鉱床試料中に含まれる複数の微量元素について濃集メカニズムが明らかにできれば、試料中の濃度や同位体比の変動要因が

図 1　地質試料に含まれる元素濃度と同位体比の意味を化学反応に基づいて精密に理解する

明らかになり、当時の海水の化学情報を複合的に明らかにすることができる。しかしながら、鉱床試料中の微量元素分析とはすなわち、鉄やマンガンなどの主成分元素および、1000 ppm～数%にまで多量に濃集している妨害元素を伴う 1 ppm 程度あるいはそれ以下の微量元素を対象にすることに他ならず、分析化学的に大きな困難を伴うことを意味する。ここで KEK 放射光によって得られる微小かつ大強度の X 線により可能になるナノビーム蛍光分光 XAFS 法が威力を発揮すると期待される。バルクの平均濃度としては一見測定不可能な低濃度を示す試料も、その不均一性に着目すれば、検出可能な濃集部位を見出せる可能性がある。そこで、目的元素の濃集部位を空間的に選別した上で、検出器の前に配置した分光結晶によって高いエネルギー分解能で目的元素のみを選択的に検出する。この高感度 XAFS 法を実現できれば、これまで手の出せなかった微量元素の状態分析が可能になり、地球環境・生命システムの進化史と密接にかかわる過去の海洋像の描写に明確な化学的根拠を与えることができる。

2-2.　軟 X 線ナノビームを用いた地球内部の酸化還元状態の変遷史の解明

地球内部のマントルの酸化還元状態は、プレートテクトニクスに伴う火山活動などを通して、表層大気や海洋の酸化還元状態および物質循環に大きな影響を与える。マントルの酸化還元状態の見積もりには、マントルの部分溶融に伴う結晶分化において早期に晶出するかんらん石やクロムスピネルに取り込まれた微量なマグマ（メルト包有物）を対象とし、その中に多量に含まれる鉄の 2 価/3 価比に基づいて酸化還元状態を見積もるのが主流である。しかし、鉄が価数を変えるためには非常に大きな酸素分圧の変化が必要となるため、実際に高精度で鉄の価数を測定しても、マグマ中の酸素分圧の正確な見積もりは困難な場合が多い。一方、微量に含まれる硫黄やバナジウムなどは狭い範囲の酸素雰囲気で急激に価数比が変化すると考えられるため、それらを測定することでマントルの酸化還元状態を正確に見積もれる可能性が高い。これらの元素を対象に、特に大気中での減衰の激しい軟 X 線領域において、微小領域の XAFS 測定を行えるビームラインは世界的にも決して多くなく、もし、鉱物中にわずかに含まれる微小なメルト包有物中の硫黄などの軽元素について高感度分析ができれば、現在まで論争が絶えないマントルの酸化還元状態に関する直接的な証拠を得られる可能性がある。さらには様々な年代や地域の火山岩に適用することで、地球史を通じたマントルの進化の研究に発展していくことも期待できる。

(3)　必要とされるビームライン・実験設備

- 大強度微小 X 線を利用した蛍光分光 XAFS システム、
- 4 keV 以下の大強度軟 X 線ナノビームを利用した蛍光 X 線マッピング、XAFS システム

10-5. 資源探査・開発に向けた極微量元素の化学状態観察と循環過程の解明

(1) 背景

「持続可能な発展」という言葉は、1980 年に国際自然保護連合と国連環境計画により提案された言葉で、現在では今後人類が発展していく上での重要な規範や拠りどころになっている。この言葉が持つ意味は様々であるが、地球と人類の関係でいえば、「地球システムを破壊しない程度の地球に対する人間の負荷の維持」の他に、「人類活動に必要な地球資源の持続可能な利用」という意味がある。地球が持つ有限な資源には、大きく分けて化石燃料資源と金属資源がある。このうち後者では、レアメタルという稀少だが先端産業に不可欠な元素が重要な役割を果たし、その結果生み出される効率的な最先端工業製品自体が持続可能な社会の実現に不可欠になっている。一方で、レアメタルは地球上に少量かつ偏在しているため、その確保やコストの低い開発手法やリサイクル手法の開発は、今後の重要な研究課題である。これらにおいては、元素の濃集機構の解明や微生物を用いたリサイクル法の開発などが具体的な研究課題として挙げられ、KEK 放射光を用いた原子・分子レベルからの解析が重要な役割を果たす。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

2-1. 蛍光分光 XAFS を用いた極微量元素の化学種解明に基づくレアメタル濃集過程の解明

地球環境科学における XAFS 分析の特徴は、多元素混合系である地球惑星科学物質に対して、他元素の干渉が少ない条件で目的元素の化学種解析が可能な点である。こうした測定は、多くの場合エネルギー分散型の検出器を用いた蛍光 XAFS 分析により実施されるが、地球環境試料中の微量元素の検出下限は、共存元素由来のX線によるバックグランド信号により支配されている。このバックグランドを低下させるには、分光結晶により目的とする元素の蛍光 X 線を選択的に検出器に導く蛍光分光 XAFS の適用が有効である（図１）。しかし、この手法の適用には、試料に対して回折条件を満たす狭い領域に多数の光子を照射する必要があり、大強度で微小な X 線が利用できる KEK 放射光の利用が有効である。

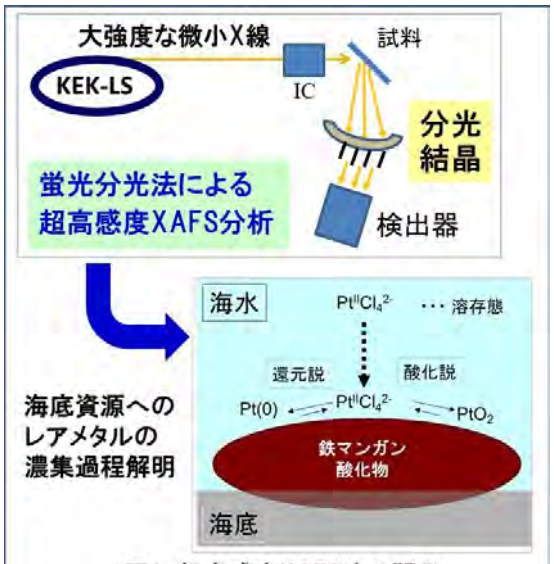


図1. 超高感度XAFS法の開発による資源科学の新展開

具体的な応用例として、内閣府が主導する戦略的イノベーション創造プログラム「次世代海洋資源調査技術」で対象となっている海洋資源への適用が考えられる。海洋立国を目指す日本

としては、広大な海底に存在する海底資源の有効利用は、喫緊の課題である。レアメタルの中でも稀少資源である白金元素は、濃集した鉱石でさえその濃度は 1 ppm 前後である。このうち様々な産業で利用されている白金の枯渇が懸念されており、その代替資源として海底のマンガンクラストが注目されている。マンガンクラストには、地殻存在度に比べて 100 倍以上の濃度で白金が濃集しているが、その濃集メカニズムには酸化説と還元説の両方があり、未だにその実態は不明である（図１）。このメカニズムを解明する上で、微量白金の蛍光分光 XAFS 測定（価数決定など）が必須である。こうした濃集メカニズムの解明は、地球表層での白金の濃集メカニズムを明らかにし、そのことを基盤にして白金が濃集している場所の探索が効率的に行えるようになると期待される。

一方、これらマンガンクラストは、nm オーダーの微小な鉄酸化物やマンガン酸化物の粒子の凝集物である。そのため、上記のような化学プロセスを、個々の物質ごとに詳しくみるためには、必然的に nm ビームが必要になる。その場合にも、微量元素を調べる上で妨害になる主成分元素の信号は除去する必要があるので、蛍光分光システムの利用が有効であり、nm オーダーの X 線を用いた蛍光分光 XRF マッピング・XAFS 法の利用が期待される。

このような nm ビームを用いた蛍光分光 XAFS は、ビーム径が小さく大強度な KEK 放射光の特徴を活かした超高感度な XAFS 法である。この手法の実現により、(i) XAFS の検出下限が 1 桁以上低下すれば、地球環境科学試料への応用範囲は著しく増加するし、(ii)さらに nm オーダーの高感度なマッピング技術が可能になれば、様々な分野で大きなブレークスルーをもたらすであろう。

2-2. 微生物を用いた資源抽出法や資源リサイクル法の開発

人為的に微生物を用いることで、化学反応の反応速度を高める手法が、多くの分野で応用されている。例えば、環境に優しい高効率なバイオリーチングは、微生物を利用して難溶性の鉱物から金属を溶出回収する技術であり、低コスト・省エネルギー型の金属回収技術として大きな注目を浴びている(Lee et al., 2010 など)。バクテリアによる硫化鉱物リーチングの場合、溶解速度は無菌状態の約 50 万倍にも達することが報告されており、微生物は難溶性鉱物を効率よく利用する多様な戦略を持っている。しかし、直接分析の困難さなどから、微生物による鉱物溶解メカニズムには未解明な点が多い。つまり、溶解反応は微小領域である微生物－鉱物付着面で起きており、従来のバルク分析だけでは鉱物溶解メカニズムを詳細に解明できない。本研究では、nm オーダーの空間分解能を持つ Nano-STXM を利用し、微生物－鉱物付着面（必要な空間分解能：100 nm 以下）で有機物種と金属化学種を直接決定することで、微生物による鉱物溶解戦略を分子レベルで調べる (Mitsunobu et al., 2016)。微生物による鉱物溶解機構を解明できれば、代謝経路の最適化や機能強化微生物の開発へ繋がり、バイオリーチング性能の飛躍的な向上が期待される。

一方、微生物そのものへの金属の取り込みも、分離回収技術としては重要である。金属イオンの細胞内部への取り込みを司る輸送体タンパク質は、細胞壁・細胞膜中に存在し、特定の元素に対する選択性を持っている。そのため、微生物などの細胞膜中に存在する金属イオ

ンの化学状態を調べると共に、そこに存在する有機物の官能基組成を調べることは、微生物による金属イオンの取り込み過程を理解する第一歩となる。細胞壁は 10～250 nm の厚みを持ち、そこに含まれる金属イオンとタンパク質の相互作用を調べるためには、nm オーダーの空間分解能を持つ STXM や、さらに空間分解能の高い ptychography の利用が必須である。その結果、特定の金属イオンが微生物に濃集されるメカニズムを明らかにできる。さらに細胞壁・細胞膜の 3 次元での XANES 分析から、化学種の 3D マッピングが行えれば、細胞壁・細胞膜が金属イオンを空間的にどのようにして取り込むかを明らかにでき、興味深い。こうした基礎的知見に基づき、どのような元素の回収にどのような微生物（あるいはタンパク質）を用いればよいかを調べることは、微生物を用いた資源リサイクル法を開発する上での基礎的知見となるだろう。

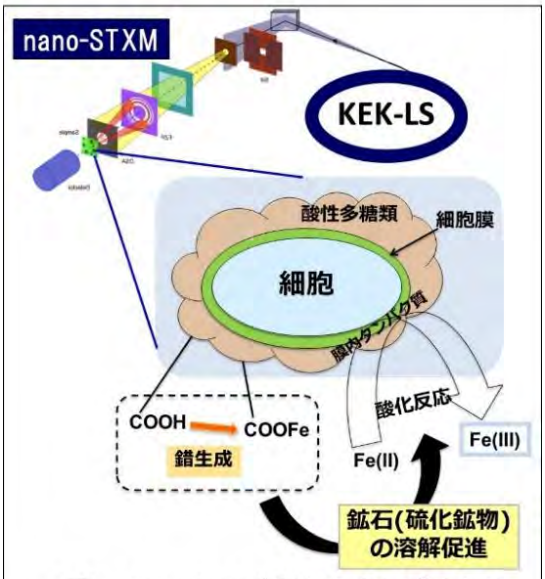


図2. Nano-STXMを用いたシングルセル分析を用いた資源リサイクル研究.

応用分野として、海底資源の 1 つである海底硫化鉄試料からレアメタル（銅などを高濃度に含む）を低コストで抽出する製錬技術の開発や、ネオジム磁石などの強力な磁石からのレアアースのリサイクル技術の開発などが期待できる。これらの開発やリサイクルでは、製錬コストの低減が採算性向上の鍵とされており、微生物を利用した低コスト型レアメタル製錬技術の開発が期待される。

その他、この分野での放射光利用技術としては、Nano-STXM を用いた堆積物中の炭素の化学種解析による石油・石炭の生成過程の解明などが考えられ、KEK 放射光は様々な資源の探索とリサイクル技術の高度化に貢献する。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- 大強度微小 X 線を利用した蛍光分光 XAFS ビームライン
- nm オーダーで微量分析の蛍光マッピングが可能な nm 蛍光分光 XRF-XAFS
- nm の空間分解能を持つ STXM や、さらに高空間分解能を持つ ptychography
- STXM を用いた 3D chemical mapping

10-6. 気候変動の機構解明と将来予測への貢献

(1) 背景

人類の活動は地球の気候に影響を与える程度にまで増加し，それが自らの生活にまで影響を与えるに至っている。こうした気候変動や環境汚染などの問題の多くは，地球が築いてきた物質循環システムに，人類が無視できないレベルの物質を消費・放出することによって引き起こされている。その根本には原子・分子レベルの相互作用が内在し，その相互作用の解明が問題の本質的な理解や正しい将来予測につながる。地球環境物質は多元素混合系であるため，一般的な分析法で的確な情報を得ることは困難であったが，放射光分析は元素選択性や超高感度といった特長から，地球環境物質を原子・分子レベルから扱うことを可能にした。こうした革新的技術を大気圏―水圏―土壌・岩石圏のあらゆる地球環境物質に適用し，地球環境における全元素の原子・分子レベルの振る舞いを明らかにすることは，人類が抱える気候変動や環境汚染など，グルーバルな問題の根本的な解決に貢献する。したがって，地球環境科学の諸問題への応用は，KEK 放射光が果たすべき必須の役割である。ここでは，エアロゾルと気候変動の問題について述べる。

大気中には主に人為的な燃焼由来の多様な有機物からなるエアロゾル（炭素質エアロゾル）があり，それらは黒色炭素からカルボン酸までの様々な酸化状態を示し，大気中で徐々に酸化を受けることで，最終的には二酸化炭素となる。このうち黒色炭素は赤外光を吸収して温暖化をもたらすのに対し，カルボン酸などは水に親和性があるため雲凝結核となって雲の生成を促進することで地球を寒冷化する（間接的冷却効果）。また，無機物からなるエアロゾルの主成分である硫酸塩や海塩粒子も吸湿性があり，間接的冷却効果で地球を冷やすと考えられている。しかしながら，現在の放射光分析では，空間分解能が不足しており，エアロゾルの表面の状態を正確に評価することができない。このため，エアロゾルの大気中での質的変化には未解明な点が多く残されている。例えば，(i) 黒色炭素表面の大気中での酸化（カルボン酸生成）は，雨による黒色炭素の除去効果を増加させると共に間接的冷却効果を増加させ，寒冷化により強く寄与する，(ii) 海塩粒子や硫酸エアロゾル表面に生成すると考えられている疎水性有機物被膜は，これらの粒子が元々持つ冷却効果を減少させ温暖化へ寄与する，などの様々な過程が予想されている（図 1）。これらの素過程の解明のためには，大気中の炭素質エアロゾルのスペシエーション（化学種同定）による地球温暖化・寒冷化（＝気候変動）の精密評価が不可欠であり，そのことは「気候変動に関する政府間パネル（IPCC）」の第 5 次報告書（2013）でも強調されている。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光の特長である軟Ｘ線領域の高輝度光は，エアロゾルをはじめとする軽元素が重要な役割を果たす地球環境物質に対して，高空間分解能での化学種解析を可能にする。エアロゾル表面でおきる化学反応の評価には個別粒子の分析が不可欠である。特に，炭素質エ

アロゾルは粒径が 100 nm 以下のものが多く，その分析には炭素の化学種同定が可能な高分解能軟Ｘ線顕微鏡（nano-STXM）を開発することが必須である。この手法を用いれば，黒色炭素，カルボン酸，脂肪族炭素，炭酸塩などを区別し，10 nm 以下のオーダーで炭素の化学種分布を知ることができる。また，黒色炭素の表面酸化や，海塩粒子などの表面の有機物被膜の分析が可能になる。これら素過程の解明は，現状では誤差の大きい気候変動へのエアロゾルの影響を定量的に評価することを可能にする。

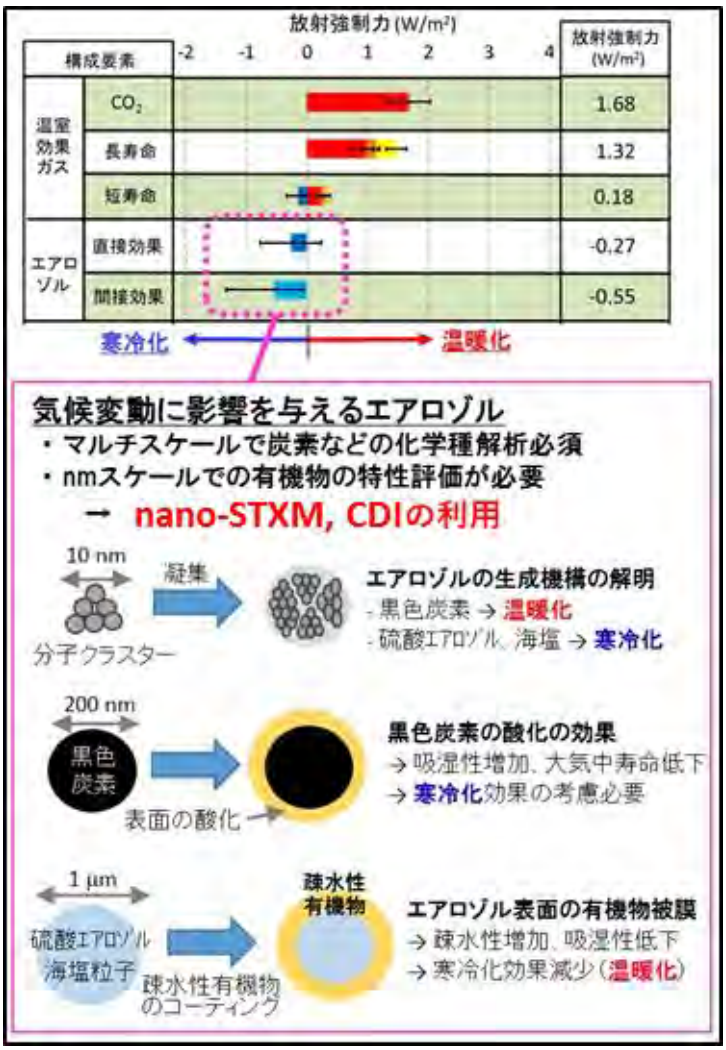


図１　nano-STXM や CDI によるエアロゾル中のナノスケールの有機物分析と気候変動の将来予測。

更に，KEK 放射光の特長である高コヒーレンスを活かしたコヒーレントＸ線回折イメージング（CDI）を応用すれば，更に高い空間分解能での化学種解析も可能になり，分子クラスターから黒色炭素エアロゾルが生成する過程（図 1）の解明への道も切り拓かれる。また，エアロゾルの個別粒子の分析結果を統計的に意味のあるものとするには，１試料当たり 100 個以上の多数の試料を分析する必要があり，ここでも KEK 放射光が持つハイスループットという長所が重要となる。

以上のように，本研究分野への応用は，KEK 放射光の特長（炭素 K 端などの軟Ｘ線領域と nm 空間分解能に特長を有する）を最大限に活かしたものであり，今後の発展が大いに見込まれる。

(3) 必要なビームライン・実験設備

軟Ｘ線領域において高空間分解能のＸ線吸収スペクトルが取得可能な nano-STXM や CDI の装置。

10-7. 高空間分解 X 線顕微鏡による環境微生物学の新展開

（1）背景

地球上には多くの微生物が生息しており、自然界において炭素、窒素、鉄などの元素（物質）循環の一翼を担っている。枯死した植物、動物の遺骸や排泄物は、微生物によって分解され、新たに利用可能な二酸化炭素、水をはじめ様々な化合物が生み出され再循環される。また、全球レベルの炭素循環において重要とされる海洋地殻の風化反応においても、微生物による生物的風化作用「Bio-catalysis」が大きな役割を果たしている。

微生物がエネルギー獲得に利用する主な反応は、電子授受をともなう酸化還元反応である。動物は例外なく有機物（電子供与体）を酸素（電子受容体）で酸化してエネルギーを得ているが、微生物のエネルギー獲得様式は圧倒的に多様であり、多くの物質を利用することができる。環境中に存在する微生物が、どのような物質を電子供与体、電子受容体として利用することができるのか（エネルギー獲得機構、機能）、どの微生物種によってその反応がおこなわれるのか（種の特定）、そしてどの程度の速度で反応が進行するか（反応速度）という複合的課題の解決が、環境微生物学の至上命題の一つである。また環境微生物が物質循環に果たす役割の大きさゆえに、地球科学分野においてもこれらの課題は重要テーマとして認識されている。しかしながら、環境微生物のエネルギー獲得機構や機能には不明な点が多い。もちろんこれまでの研究によって、主要な微生物種、エネルギー獲得機構に関する知見は蓄積されつつあるが、依然として未解明な点が多い。

未解明な点が多い最大の理由は、環境微生物の大半（99%以上とも言われる）が、難培養性であるという一点に尽きる。環境から単離培養した微生物によりその機能や生理活性を調べる従来の解析法は、強力かつ直接的な手法ではあるが、培養成功率の低さが大きな障壁となり環境微生物全体を把握できない。この問題を考慮すると、環境微生物学の飛躍的な前進のためには、“培養に依存しない（cultivation-independent な）” 新しい分析法の開発が必要不可欠といわれている。

（2）KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光の特徴である軟 X 線領域の高輝度光は、軽元素（炭素、窒素、酸素）から成る有機物およびその集合体である生体試料に対して、化学種解析に基づいてエネルギー獲得機構、生理活性を解明することができる。また、金属元素のような重元素であっても L 吸収端や M 吸収端を利用することで、軟 X 線分光により化学種決定が期待できる。また微生物を対象とする場合、高い空間分解能が求められる。微生物（バクテリア、アーキア）の細胞サイズは数μm 程度であるため、多種多様な微生物を環境試料から選別して機能解析をおこなうには、シングルセル（1 細胞）分析が可能な 10 nm 程度の空間分解能が必要である。また、微生物細胞は立体構造であるため、3D で NEXAFS マッピングを得ることで、エネルギー獲得機構を局在機構も含め詳細に調べられる可能性が高まる。新 KEK 放射光源は高輝

度であり高速測定が可能となるため、トモグラフィーなど測定次元を増やした顕微分析が期待できる。一方、高輝度な X 線を利用する場合、（特に生体試料の場合）X 線による損傷が問題となることが多く、クライオスタット等でその影響を最小限にする機構も必要となるだろう。これらの条件を考慮すると、新たな KEK 放射光では、ナノレベルの空間分解を有し、化学種の 2D および 3D マッピングが可能な X 線顕微鏡（nano-STXM）の開発を強く期待する。

この手法を用いることで、種々の微生物や物質が入り混じった環境試料であっても単一細胞ごとに微生物のエネルギー獲得機構、機能を知ることができる。X 線顕微鏡だけでなく、遺伝子選択的に微生物を染め分けられる蛍光染色法（FISH 法など）を組み合わせれば、反応を進める微生物種の特定まで可能である。STXM は cultivation-independent かつ高い元素選択性を有する手法であるため、様々な微生物や金属代謝系へ応用できる。したがって、難培養性か培養性かにかかわらず、あらゆる環境微生物の機能やエネルギー獲得機構の解明に適用できる。例えば、微生物による海洋地殻の風化作用に関する研究について、これまで不可能であった細胞内、細胞膜近傍、鉱物（岩石）表面、の三相で生体分子（有機物）、無機物の化学種決定が可能となり、エネルギー獲得機構をその場分析から調べられる（図 1）。

また、極限環境における微生物機能にも応用が期待できる。例えば、海底下の微生物圏は活性（菌数）が低いことなどから、その解析が地球上で困難な生態系といわれる。シングルセル分析が可能な nano-STXM を適用し、海底下堆積物におけるメタン、亜酸化窒素ガスなど温室効果ガス生成微生物のエネルギー獲得機構や種の特定を明らかにすることができれば、地球規模の炭素循環に果たす環境微生物の役割の解明、さらに生命進化や極限環境への適応能力の解明といった環境微生物学、地球科学に重要な研究展開が期待できる。

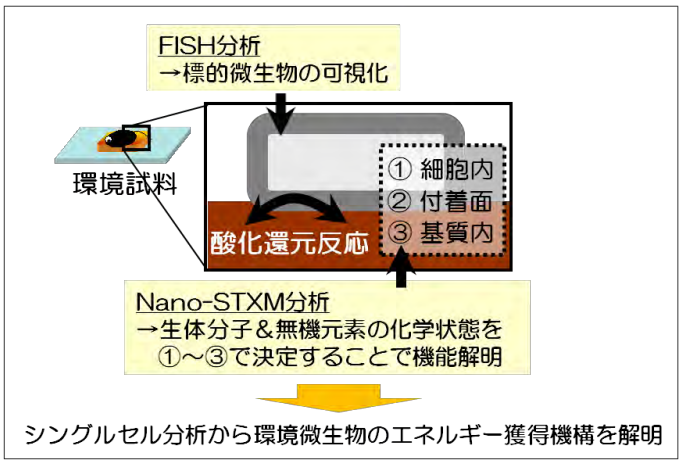


図 1. ナノレベル空間分解 X 線顕微鏡による環境微生物学の新展開

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

軟 X 線領域において高空間分解能の NEXAFS および 3D マッピングが取得可能な X 線顕微鏡装置。

10-8. 植物を利用した環境浄化や資源回収

(1) 背景

ある種の植物は，一般の植物では枯死してしまうようなカドミウムやヒ素，鉛など有害元素濃度が高い環境でも生育でき，かつ体内に数千 ppm という高濃度の重金属を蓄積する。これら重金属蓄積植物は，ファイトレメディエーション（植物による環境浄化技術）への応用が期待されている。植物を用いる環境保全・浄化技術は，省エネルギーで高い経済性をもち，環境適合性にすぐれた特性を有するが，一方では，汚染浄化の速度・効率が低いという問題がある。植物の持つ浄化機能を最大限発現させ，より効率の良い浄化を実現するためには，植物が有害元素を吸収・移行・蓄積するメカニズムの理解が重要である。

植物のような複雑な組織をもつ生物試料を非破壊で分析するプローブとして，放射光 X 線マイクロビームは大きな優位性をもつ。放射光マイクロビーム蛍光 X 線イメージング（μ-XRF イメージング）を適用すると，有害元素が特定の組織や細胞において高濃度（濃度は数千 ppm レベル）に蓄積される様子を可視化することができる（図 1）。また X 線吸収微細構造(XAFS)解析を適用すると，植物に吸収された有害元素の化学形態の変化を追跡することが可能になる。

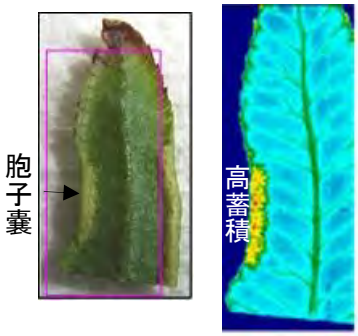


図 1 モエジマシダの葉におけるヒ素の分布

葉の辺縁部の胞子嚢周辺にヒ素は蓄積されていた。

現在，東欧では，重金属汚染土壌が深刻な問題になっており，欧州の第三世代放射光施設 ESRF を中心とする研究グループでも，放射光 X 線マイクロビームを重金属蓄積植物へ応用する動きが，年々活発化しており，世界的に重要な問題となっている。

植物の根から取り込まれた有害元素は，茎から葉へと移行する。植物体内に取り込まれた Cd や Pb など有害な重金属が無毒化される際には，一般的には植物体内で生産されるポリペプチドであるファイトケラチン（(γ-Glu-Cys)n-Gly, n = 2～11）のような化合物のシステイン基と結合しているといわれている。また有害な重金属は植物特有の細胞内小器官の液胞内に隔離されていると考えられている。液胞にこれらの重金属を蓄積するためには，細胞膜や液胞膜を通過しなければならず，膜タンパク質の働きが重要である。細胞内には小さな細胞内小器官が集まっており，有害な重金属を蓄積する細胞はまさにバイオナノテクノロジーの集約と位置づけられる。

このような細胞内のオルガネラを非破壊で分析するためには，ナノメートルオーダーでの顕微分光のシステムが不可欠となる。また極微少量の物質を対象とするため，高輝度な光源が望まれる。KEK 放射光の光源性能と最新のビームライン建設技術により実現される，ナノメートルオーダーの高い空間分解能をもつ顕微分光システムに対する期待は大きい。

走査型顕微システムの場合，データの取り込みが計測の律速になるケースがあることから，データ処理速度の向上も必要である。

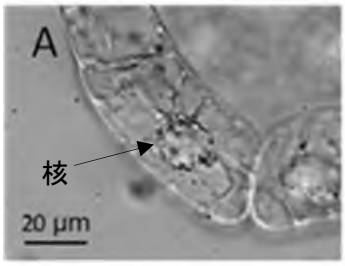


図 2 タバコ培養細胞 BY-2
細胞内のオルガネラである液胞に，無毒化した化学形態の Cd を蓄積する。

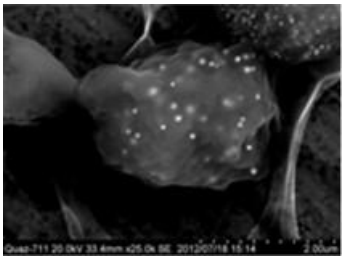


図 3 単細胞藻類の SEM 像
塩化金酸溶液を添加すると，細胞内に金ナノ粒子が生成される。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

植物などの生体は，細胞から組織・器官レベルまで高次に発達した構造をもつ不均一な試料である。ナノメートルオーダーという高い空間分解能をもつ顕微分光システムは，今までバルクでしか評価できなかった，生体における特異的・局所的な化学反応を詳細に解明する革新的な分析ツールとなるであろう。植物細胞は含水率が 90%程度であり、分布や化学状態の知見を得るには、生きた状態を保持して計測することが重要である。

KEK 放射光では，標準的な X 線光学系にて数十 μm φ 程度の高輝度のセミミクロビームの利用が可能である。さらに高コヒーレンスを活かした ptychotomography の手法を導入することより，ビームサイズよりも小さな空間分解能数 nm での測定が可能となり，元素の種類・量とその化学状態，さらには結晶性・配向性等の“階層構造（三次元ヘテロ構造）”を三次元で観察する新たな手法 (Ptychotomography XAFS-CT) が可能になる。こうした手法により，複雑な化学工場である細胞（図 2, 3）をはじめ，それらが形成する組織内で進行する様々な反応を，XAFS，X 線回折など，1 つの試料に対して複合的な明らかにできることが期待できる。特に，細胞を加工や染色せずに生きた状態（に近い状態）で三次元観察することにより，細胞を反応の場とする様々な化学反応，すなわち生体鉱物形成や光合成反応，バイオ燃料生成等のリアルタイムの観察が実現すると，大きなインパクトが期待できる。

このような多次元のデータを組み合わせて自在に解析することが期待されるが，そのための解析システムの専門家の配置や整備が不可欠であることはいうまでもない。

一方，生物学の分野では，重金属蓄積植物と一般の植物との違いを，遺伝子から解明しようとする分子生物学的アプローチが行なわれている。ある種の植物だけが有害な重金属に耐性・高蓄積性をもつということは，その種がもつ遺伝子に鍵があるはずである。このような分子生物学的アプローチと，実際に複雑な反応場をもつ生体での機能発現と結びつける新しいサイエンスが求められている。

KEK 放射光で実現する顕微分光システムや軟 X 線を用いた主要元素の XAFS 分析システム，さらに元素＋化学状態＋結晶性の情報を，nm～μm のマルチスケールで，同視野，in situ (in vivo)，経時変化の観察が可能な技術を，重金属の輸送・蓄積に関連する遺伝

子を過剰発現した植物や野生型あるいは遺伝子欠損した植物へ適用すると，特定の部位で発現する遺伝子やタンパク質の機能と，放射光先端計測で得られた元素分布や化学形態の情報関連させることができ，新しいサイエンスの展開が期待される。

植物のもつ機能は環境浄化だけでなく，資源回収（ファイトマイニング）にも有用であることが示されている。KEK 放射光がもたらす新しいサイエンスは，持続可能な社会実現への解を提供することも期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

A. ビームライン

ナノメートルオーダーの複合顕微分光システム（XRF, XAFS, XRD）

B. データ処理系

データの高速転送，多次元データ解析システム，画像化ソフト

C. 試料調製ラボ

クライオミクロトーム，デジタルマイクロスコープ，SEM，蛍光顕微鏡

10-9. 放射光 XRF-XAFS を用いた生体組織中微量金属元素の分布と化学状態評価および微量金属の生体影響の解明

（1）背景

人体は H, C, N, O, P, Ca など主要 10 元素で全体の 99.4%を占めるが、生命活動の維持には Fe や Zn をはじめとする多くの微量金属元素が関与している。ヒトや動物への必須性が判明しているのは Fe, Zn, Mn, Cu, Se, I, Mo, Cr, Co, Sr, Pb, Sn, Ni, As, V などで、これ以外の金属元素についても役割が未知なだけで必須な可能性がある。例えば Zn は Fe に次いで多く含有され、多種の酵素活性に関与するため、欠乏により種々の機能不全が発生する。逆に金属元素の過剰や通常とは異なる経路での体内への取り込みが生体に害をもたらすこともあり、金属アレルギーや重金属による急性・慢性毒性が知られている。また Pt 製剤（抗がん剤）や Li 製剤（躁病治療薬）のように金属化合物は薬剤としても用いられる。これら微量金属元素は生体の機能や病態に深く関与しており、その体内での挙動を調べることは金属元素の為害性評価や病態解明、予防のためのマーカー解明に大きな意味を持つ。しかしながら生体内の微量金属元素の分布は不均一であり、場所による状態も変化している。また多くの生体試料は稀少なものが多く、非破壊分析が望まれる。特にヒトを対象とする場合、採取試料の多くは病理診断用にパラフィン薄切標本として供されており、この標本を用いることで、試料を追加採取して患者への無用な侵襲が避けられること、病理組織像と同じ視野で元素（状態）分布情報が得られ両者の相関が知り得ること、など多くの利点がある。但し、厚さ数～数十 μm の薄切標本中の微量元素分布を計測するには、極めて高い検出感度が必要となる。放射光蛍光 X 線分析と XAFS 分析の併用は、上記の高感度，非破壊，微小領域分析，状態分析を可能にする唯一とも言える手法であり、生物試料の評価に不可欠と考えられる。下記にその有効性の一例を紹介する。

(1-1) 口腔粘膜中に局在する歯科用金属からの微量溶出元素の検出

軟組織中の微量金属元素分析例として口腔粘膜疾患を示す。金属修復物からの溶出金属イオンの影響が示唆されながら、溶出金属の直接的影響が明らかでなかった口腔扁平苔癬様疾患の粘膜をこの手法により分析し、複数症例の病変粘膜内部で歯科用合金元素の局在が検出（図 1 の例では Fe と Ni、濃度は最大で数百 ppm レベルと推定される）され、同疾患への歯科用合金の直接的関与が初めて明らかにされた。加えて XAFS 分析により、組織中の局在金属元素の化学状態が明らかになり、口腔内金属の溶出過程の解明に寄与することが示された。本手法は疾患の原因金属修復物の特定や歯科用金属材料の口腔内での安全性評価に応用が可能である。

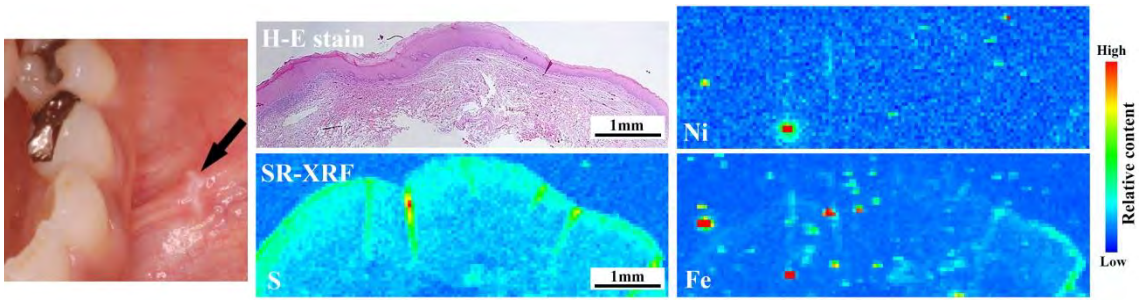


図 1　口腔扁平苔癬様疾患粘膜の臨床像（左）と SR-XRF による組織内微量元素分布像
（Sugiyama T., Uo M., Wada T.et al., Sci Rep, 5:10672, 1-12, 2015）

(2-1) 薬剤関連顎骨壊死と骨中微量金属元素の関係評価

ビスフォスフォネート(BP)は骨粗鬆症や高 Ca 血症の治療薬として用いられているが、その投与患者の顎骨に壊死が起こる症状（薬剤関連顎骨壊死(MRONJ)）では発症機序が未だ不明であり、BP 投与患者の外科処置に障害となっている。筆者らは MRONJ の壊死骨において、正常骨に比べ極めて高濃度の Cu や Zn, Ni などの金属元素が局所的に（最大で 1000 ppm を超える濃度で）蓄積していることを初めて明らかにした（図 2）。また局在する Cu の XAFS 解析により、壊死骨中 Cu が BP と複合体を形成して蓄積している可能性を示唆した。

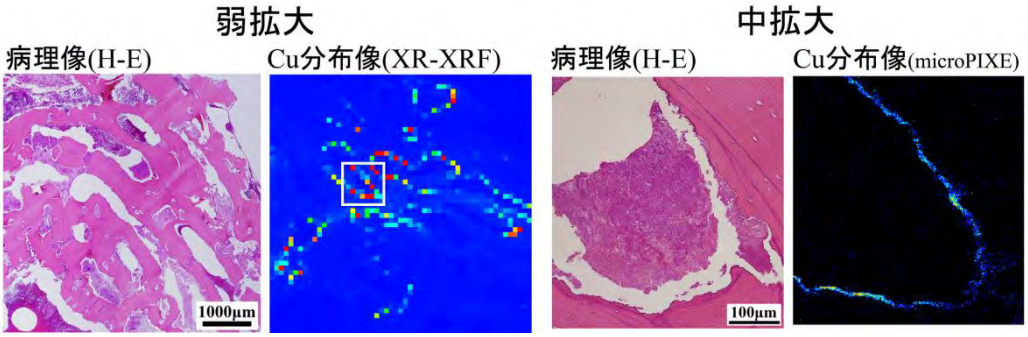


図 2　BRONJ 腐骨標本の病理像と元素分布像（左:弱拡大，右:中拡大）
（Sugiyama T., Uo M., Mizoguchi T., Wada T. et al., Bone Rep, 3, 40-47, 2015）

(3-1) 歯科用チタンインプラント周囲組織の Ti の XAFS による状態分析

歯科用（および整形外科用）インプラント材料には骨結合性のあるチタンが用いられているが、周囲組織中にチタンの局在が見られることがあるため、チタンの溶出の有無について詳細に調査する必要がある。そこで歯科用インプラントに接触した口腔粘膜中の Ti の状態を XAFS により調査した結果が図 3 である。多くの場合には組織中の Ti は金属状態でありインプラント埋入手術時に発生した摩耗粉と推定されたが、一部試料では TiO_2 (anatase または rutile)であることが明確であった。埋入されたインプラントは金属チタン製であり、陽極酸化などの表面処理層を持たないことから、チタンが生体内で微量溶出（濃度は組織平均で数～数十 ppm レベル）し、周囲組織中に酸化物として局在したものと考えられた。

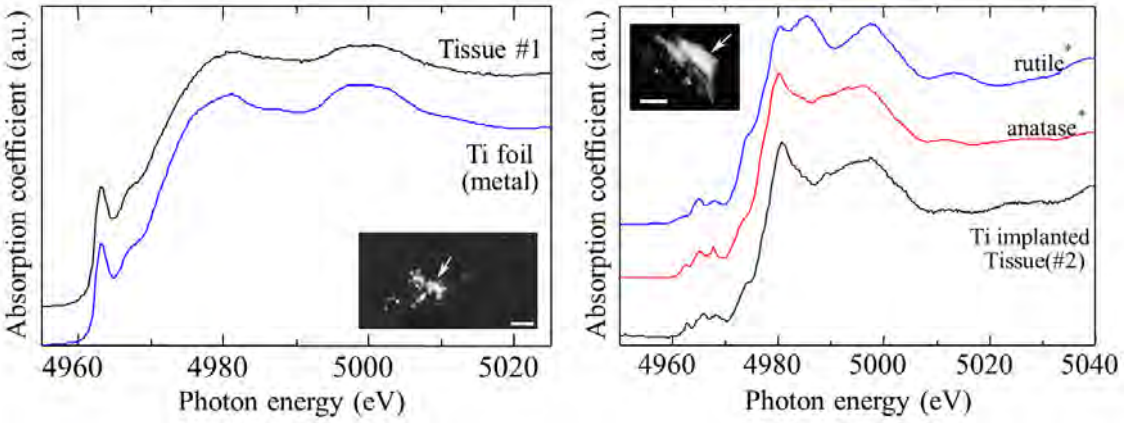


図 3　チタンインプラント周囲組織中の Ti の XANES スペクトル

（Uo M., Asakura K. et al., Dent Mater J, 26, 268-273, 2007）

但し、組織中の金属 Ti や酸化チタンは安定な状態で局在しており、他への拡散がないことから、インプラントの成否には無関係である。

（2）KEK 放射光における新展開と期待される成果

申請者らが開発した本手法は貴重な組織標本を非損傷で、元素分布と化学状態情報を同時に取得し、組織学的情報と対比して検討でき、各種疾患におけるこれまでの病理学的検討を更に元素情報の点から拡張し、疾患の発症機序解明、予防や診断の元素マーカー確立、医療用材料の安全性評価に繋げられる点で有益な手法と考えられる。現状では SR-XRF による組織全体の元素分布測定および Cr 以上の金属元素の XAFS 測定を BL-4A で、Ti, Ca などの XAFS 測定は BL-9A, 12C で、ミクロンレベルの高分解能元素分布測定は放射線医学総合研究所のマイクロ PIXE を併用して行っているが、高効率で位置精度の高い測定のためには、これらが 1 サイトで行えることが望ましい。

KEK 放射光では、標準的な X 線光学系にて数十μmϕ程度の高輝度のセミミクロビームの利用が可能である。さらに高コヒーレンスを活かした ptychotomography の手法を導入することよりビームサイズよりも小さな空間分解能数 nm での測定が可能となり、元素の種類・量とその化学状態さらには結晶性・配向性等の“階層構造(三次元ヘテロ構造)”を三次元で観察する新たな手法(Ptychotomography XAFS-CT)が可能になる。生物試料中の微量元素は不均一で、塊状の標本では現行法では試料を数十μmt の複数の切片に薄切して、全試料を二次元元素マッピングする必要があるが、三次元計測が可能になれば、大型の標本内の局在微量元素の分布や、その部位による化学種の存在形態を、組織～細胞の様々なレベルで高効率で観察可能となり、その結果、生体内の微量金属元素の動態解析や種々の金属原因による疾患の発症機序解明、金属を含む薬剤の作用機序解明や金属・セラミックスなどの医療材料の安全性評価と設計指針構築などの分野で大きなインパクトが期待できる。

（3）必要とされるビームライン・実験設備

本手法に必要な放射光源として、以下が挙げられる。

・数十μmφ程度のセミミクロサイズからサブミクロンまで可変なビームサイズで、蛍光 X 線マッピングと蛍光 XAFS 測定の双方が可能であること。（数 mm～十数 mm 程度と大型で元素分布が不均一な生物組織中の元素分布をセミミクロビームで全体検索し、元素局在部をサブミクロンサイズで細胞単位での元素分布や状態評価が可能であることが必要。さらに数十 nm までの集光が可能であれば、細胞内での微量元素動態まで明らかにできる）。

・4 keV (Ca, Ti) から最大 25 keV 程度までのエネルギーの X 線が発生でき、低エネルギー側では高次光除去が可能であること。（歯科用合金は Ag, Pd, In, Sn などを多く含んでおり、これらの元素を K 線で分析できるためには 20～25 keV の励起エネルギーが不可欠（L 線では組織中や大気層の吸収が妨害する）。また Ti も歯科・医科で広く使われており、これらの XAFS 測定では高次光除去が必須である。現状では BL-4A で元素分布を特定した後に BL-9A か 12C で XAFS 測定する必要があり、位置再現が困難である）

・フラックスについては全エネルギー域にわたって、10^{10} photons/sec 程度あることが望ましい。（現行の BL-4A が 10^{9} photons/sec 程度で、極微量元素の場合には測定時間がやや長くなる（5~6 時間/試料程度）ことから、これを 1/10 程度に短縮して測定効率を高められることが望まれる）

・複数試料を自動でマッピングすることが可能であること。

・生物試料の分析は不定期に発生するため、年間複数回の分析機会が与えられるだけのビームタイムの余裕があること。

10-10. 福島環境回復を目指した放射光研究

(1) 背景

2011 年 3 月の福島における原発事故は重大な社会問題であるばかりでなく、原子力における様々な課題を顕在化し、放射線と社会のあるべき姿についても議論を喚起した。事故後 5 年が経過した今も問題解決の道筋は不透明の部分が多い。福島の環境回復には、多くの分野の科学的知見を集結する必要があり、その中には放射光科学が貢献できる余地が多く残されている。

解決すべき最重要課題の一つに、環境中に放出された放射性同位体による環境汚染問題がある。帰還困難区域では現在でも数 μSv/h を超える場所が多く存在しているが、そのほとんどが土壌中の放射性 Cs によるものであり、環境回復には除染、および大量の汚染土壌の減容化が必要不可欠である。粘土質土壌に強く固定された Cs の除染法として、土壌をアルカリ塩などで処理することにより Cs を排出させ、生成した鉱物を工業的に再利用する「Cs フリー鉱化法」が提唱されているが、実用化には、より低温低圧条件での反応など、低コストの条件での処理法を確立する必要がある。粘土鉱物は Si, Al, Mg, Fe, K, Na, O といった主要元素以外にも Ca, Li,Cs, Cl, F など様々な元素を含み、さらに添加するアルカリ塩由来の元素なども鉱物生成に影響することから、多元系の複雑な化学反応が放射光による観測の対象になる。

図 1．Cs フリー鉱化法の概念図

さらに今後大きな課題となってくるのは、福島第一原発の廃炉及び廃棄物処理の問題である。福島第一原発（1F）サイトにおいて出現する様々な物質の化学状態を明らかにすることで、廃炉工程の遂行、効率化、安全確保に貢献できる。2020 年代には燃料デブリの取り出しが開始することが予想されるため、PF の次の世代の放射光による分析が是非とも必要である。同時に、原子炉構造部材など（鉄骨、コンクリート、作業現場放置物、スラッジなど）や原子炉圧力容器鋼材などの分析も求められる。原子炉構造物の材料や燃料は長期間にわたり中性子やガンマ線に曝され、その組織や物性が変化するが、これらの照射損傷はその生成過程から必然的に不均一構造を持つため、平均的な構造解析ではメカニズムの理解が不可能である。様々な性状の放射性物質の保管・処理を安全に実施するためにはその状態を明らかにすることが必要不可欠である。また、これらの知見は、今後再稼動する原子炉の安全性確保のためにも重要である。

種々の問題の背景となっているのは放射線リスクであり、様々な問題解決の社会的コストを考える上でも放射線が生体に及ぼす影響を明らかにすることが必要である。バイスタンダー効果やゲノム不安定性など、空間的にも時間的にもエネルギー付与事象から離れたところで起こる現象が生物に影響を与えることは現在ではよく知られているが、まだリスク評価には適用されていないのが現状であり、メカニズムの解明が待たれている。

(2) KEK放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光は、主要元素の吸収端のある軟 X 線~10keV 領域に強みを持ち、高空間分解能や高エネルギー分解能の測定、極微量元素の検出を可能にする。福島第一原発事故で環境に放出された Cs は、物質量としては非常に微量であり（例えば Cs-137 の場合、廃棄物を焼却・埋立処分することのできる基準値 8000 Bq/kg は数 ng/kg = 10^{-3} ppb のオーダーに相当する）。このような極微量原子は特異的な挙動を示すと考えられているが、現在の放射光では観測不可能である。(1)であげた Cs フリー鉱化法においては、Cs が粘土鉱物から排出される際の生成物は複数成分が混在したものとなることから、構造変化は空間的に不均一な反応過程によって起こっていることが示唆されている。nm レベルの集光ビームによる Nano-XAFS を用いた局所構造解析は不均一な化学反応をその場観察するのに有効である。Cs 濃度に依存した生成物の組成・構造の違いを調べることで微視的な Cs 除去メカニズムを明らかし、より効率的な土壌除染法の開発に繋がることが期待できる。

これらの分析技術は、原子炉構造材料の物性研究においても有効である。放射線照射によって生じるミクロ組織レベルの照射脆化の分析には、これまで透過型電子顕微鏡、3 次元アトムプローブ、陽電子消滅測定などが適用されてきた。しかし、これらの方法は、試料形状の制約や、特定の元素の情報しか得られないという欠点があった。これらの欠点を補う分析法として、軽元素からアクチノイド、ランタノイドに至るほぼすべての元素周辺の局所原子配列や化学結合状態、電子状態を非破壊で評価することができる XAFS、XPS 法が注目されている。さらに、KEK 放射光によって nm レベルの分析が可能になれば、これまでの分析法を凌駕する手法となりうる。

放射線生物作用のメカニズム解明には、個々の細胞、または細胞の一部を狙って照射でき、その後の生物作用を追跡観測できるマイクロビーム細胞照射装置を用いる。エネルギー付与の領域を限定するには、二次電子の飛程が短い 5 keV 前後の比較的低エネルギーの X 線が望ましく、KEK 放射光のカバーするエネルギー領域に適合している。また、輝度が現在の PF から３～４桁上がることにより、α線や重粒子線などの高 LET 放射線のエネルギー付与のパターンを模擬することが可能になる。また、個々の細胞に起こる微小な放射線効果を検出するには、高感度な分析法である RI トレーサーの使用が望ましい。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・RI・核燃料の持ち込み、測定可能なビームライン
・蛍光 XAFS による微量元素分析
・クイックスキャン XAFS（透過法、蛍光法）：Fe、U、Zr などの元素の化学状態観察
・Nano- STXM
・イメージング XAFS、3D-XAFS：位置分解能を利用した観察
・マイクロビーム細胞照射装置
　・細胞培養実験が可能な実験室（ビームラインに併設）

10-11. 次期光源における食品科学
～ナノビームを用いた極低濃度元素の化学状態、局所構造分析～

(1) 背景

日本を含む先進国では高齢化社会を迎え、健康寿命を延ばすことが大きな課題の 1 つである。一方、発展途上国では急激な人口増加と工業化が進み、食糧問題や栄養失調、環境汚染も懸念される。汚染防止に加え、汚染された農産物や畜産物、海産物の摂取を防止する対策も必要である。従って、健康な生活のための積極的な栄養の摂取、有害物の摂取防止のための食品の安全・安心の確保、という大きな 2 つの課題に解決策を提示する必要がある。例えば高齢化社会では骨粗鬆症対策が喫緊の課題であり、成長期の充分な骨量の獲得が重要である。骨の形成には Ca が必須であり、可食部 100 g 当たり 100 mg 以上の Ca を含む食品として牛乳、ホウレン草など（C. M. Weaver, et al., *Am. J. Clin. Nutr.* **59**, 1238S, 1994）が挙げられる。Ca の人体吸収率は、牛乳 27.6%、ホウレン草 5.1%と報告（R. P. Heaney, et al., *Am. J. Clin. Nutr.* **47**, 707, 1988; R. P. Heaney, et al., *Am. J. Clin. Nutr.* **50**, 830, 1989）がある。高含有量でも吸収率が低い食品もあり、吸収率の考慮が欠かせない。吸収率は Ca の化学状態・化合物に依存すると考えられる。Ca 含有量が同じであっても、難容性 Ca 化合物なのか、消化器程度の酸性下で溶解する Ca 化合物なのか、によって吸収率は大きく異なる。骨粗鬆症対策として Ca 摂取を考える際、Ca 吸収率の高い食品・低い食品に特徴的な Ca の化学状態・化合物を解明することが必要である。食品中の Ca の化学状態・化合物の分析には、直接非破壊分析可能な XAFS や XRF が適している。

ホウレン草の Ca の低い吸収率は難溶性のシュウ酸 Ca のためと予想されたが、直接的な証拠は長い間示されて来なかった。最近、ホウレン草の Ca の化学状態を XAFS により直接非破壊分析を行い、ホウレン草の Ca がシュウ酸 Ca であることが初めて直接定量的に示された（H. Abe, *Chem. Lett.* **43**, 1841, 2014）。人体による吸収のし易さという観点から種々の食品中の Ca の化学状態・化合物を XAFS や XRF を用いて分析することは、高齢化社会の骨粗鬆症対策に直結する。また、これにより、より効率的に Ca が摂取可能な機能性補助食品が開発されれば、先進国だけでなく、発展途上国における栄養不足の子供達の発育に貢献できる。

また、海産物等の種々の有害金属の問題が広く知られている。部位ごとの金属の分布相関等の報告があるものの、非常に低濃度なものもあり、その化学状態までは分析できていないのが現状である。同じ元素であっても、化学状態によってその毒性は大きく異なることから、化学状態分析は食の安心、安全には必須である。

このように、健康に生きるための積極的な栄養の摂取、有害物を摂取しないための食品の安全・安心の確保、という大きな 2 つの課題に解決策を提示する研究を KEK 放射光では推進すべきである。この研究は、先進国のみならず、発展途上国にも大きな恩恵をもたらすも

のであり、日本が世界の科学的あるいは政策的リーダーとして果たすべき役割の 1 つである。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

食品科学に XAFS による元素選択的な非破壊化学状態分析を応用し、「放射光食品科学」という新たな学術領域を開拓する。

上記のように、現時点で、ホウレン草中の Ca が難容性のシュウ酸 Ca であり、そのために人体吸収率が低いことが示せた。これは、ホウレン草中の Ca がシュウ酸 Ca というほぼ単一の化合物で存在していたために可能であった分析である。しかしながら、農産物、より広く植物中の金属元素が必ずしも単一の化学状態、化合物で存在しているとは限らない。また、同じ化合物であっても、その形態が同一とは限らない。いくつかの植物中のシュウ酸 Ca の SEM 像を見ても、その形態は様々である。モエジマシダの As の研究（A. Hokura, et al., *J. Anal. At. Spcetrom.* **21**, 321, 2006; N. Kitajima, et al., *Chem. Lett.* **37**, 32, 2008）でも、根から葉に行くに従って化学状態が変化していることが報告されている。従って、XAFS/XRF によるミリメートルレベルの全体としての分析を前提として、各部分への分布状況、各部分における化学状態、化合物の分析が必要である。各部分の分析にはマイクロメーターサイズのビームでの分析が適している。さらに、上記の例に沿って言えば、シュウ酸 Ca がどこでどのように生成されるのかを調べるには、細胞内を充分な空間分解能で調べる必要があり、ナノメートルサイズのビーム（ナノビーム）が必須である。すなわち、階層構造を持つ植物について、含有する元素の化学状態、化合物の動向を理解するには、nm – μm – mm という幅広い領域にわたるビームの活用が必須である。各々の階層を、それぞれに適したサイズのビームで観察し、それらを繋げて総合的に研究を進める。これにより、例えば、水和イオンの状態で取り込まれた元素が、マクロな結晶になるまでの植物内でのダイナミックな変化を観察し、理解することが可能となる。特に、ナノビームを用いた単一細胞分析は、本稿の「放射光食品科学」に留まらず、環境生物学など様々な分野で必要とされ、大きな波及効果が見込める。このような共通の分析手法という観点から、分野横断的な連携体制を構築することで、更なる新分野開拓にも繋がると期待される。　また、実際の摂取を考慮し、調理過程における *in situ* 実験も必須である。このようにして植物中での元素の挙動を理解することが、その元素の摂取、人体への吸収のし易さを考察する上での出発点となる情報となる。

次に、海産物の有害金属の問題として、マグロの水銀の問題を例に考える。マグロでは、水銀濃度がその身の脂質量と負の相関があるという報告がある（S. Balshaw, et al., *Food Chem.* **111**, 616, 2008）。すなわち、水銀含有量が赤身ほど多く、大トロほど少ない、ということである。このような相関を調べることはできても、非常に低濃度であることから、その化学状態と微視的な分布の様子までは分析できていない。KEK 放射光では、光源性能の向上や更なる検出器開発、検出技術開発によって、現状では分析できないような極微量元素

の化学状態分析、ナノメートルレベルでの化学種の分布観察が可能になると期待する。現状で分析できる範囲では、“低濃度”となっているが、さらに細かく見て行けば、実は不均一に濃淡がある可能性がある。その濃縮領域を検出できれば、水銀の化学状態、化合物、分布の様子まで分析できると期待される。上記のマグロの水銀の報告から考えると、水銀が脂質でない何かに選択的に濃縮している可能性が考えられるが、その存在形態はよく分かっていない。ナノビームを用いてマッピングすることにより、選択的に親和性のある物質が解明できると期待される。同時に、その化学状態、化合物も分析可能と思われ、安全性の議論が可能になると期待される。0.1 ppm を切るようなレベルでこのような研究が可能になれば、食品科学の飛躍的発展が期待でき、食の安心・安全の大幅な向上が見込める。

このように、現状では分析できていない食品中の人体にとって有益な元素、あるいは有害な元素について、ナノビームを用いることで、その化学状態や化合物の分析が可能となる。また、nm – μm – mm という幅広いスケールのビームを用いて、植物中の元素の挙動を理解することが可能となる。その結果、有益な元素の例として Ca で言えば、高齢化社会における骨粗鬆症対策に貢献できると期待される。また、食品中の有害と思われる元素については、その有害性を考察することで、食の安全・安心の確保に貢献できると期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- nm – μm – mm 領域にわたるビームが利用可能な XAFS/XRF 実験環境
- XAFS/XRF と相補的な複合実験環境。IR, UV-vis, SEM などを相補的に用いて複合的な測定が可能な環境。
- 充実した調理環境。食品科学を推進するために必要な調理器具および加熱装置等。一般的な食品科学との比較、連携が欠かせないため、食品科学分野で広く用いられる測定装置等。
- 調理環境を再現した *in situ*, *operando* XAFS/XRF 等の測定環境。温度、雰囲気の制御。

１０．地球惑星・環境科学

＊担当一覧

監修：高橋　嘉夫（東京大学）

執筆分担：

まえがき　船守　展正（KEK 物構研）

10-1　三河内　岳（東京大学）、薮田　ひかる（大阪大学）

10-2　奥村　聡・中村　美千彦（東北大学）

10-3　佐久間　博（物質・材料研究機構）

10-4　柏原　輝彦（海洋研究開発機構）

10-5　高橋　嘉夫（東京大学）

10-6　高橋　嘉夫（東京大学）

10-7　光延　聖（愛媛大学）

10-8　保倉　明子（東京電機大学）

10-9　宇尾　基弘（東京医科歯科大学）

10-10　下山　巖（日本原子力研究開発機構）、宇佐美　徳子（KEK 物構研）

10-11　阿部　仁（KEK 物構研）

校閲協力：

阿部　仁（KEK 物構研）、宇佐美　徳子（KEK 物構研）、奥部　真樹（東北大学）、
木村　正雄（KEK 物構研）、高橋　嘉夫（東京大学）、武市　泰男（KEK 物構研）、
田渕　雅夫（名古屋大学）、船守　展正（KEK 物構研）、宮脇　律郎（国立科学博物館）、
薮田　ひかる（大阪大学）

１１．X線光学

X 線は、その発見の由来である「高い物質透過能力」と、のちに発見された「結晶による回折現象」をもって、物質の原子構造を知る強力なプローブであり続けている。完全に近い結晶中での X 線のふるまいは動力学的回折理論として体系づけられ、シリコンの無転位結晶実現を契機に活発な研究が進められ、理論・実験の両面で進歩を遂げてきた。第二世代光源である PF では高輝度な X 線が実現し、第三世代光源では硬 X 線でも位相制御やコヒーレンスの利用が可能となってきた。KEK 放射光では小さいエミッタンスにより、さらに精密な X 線光学研究が可能になると期待される。

X 線光学分野では、KEK 放射光で実現すると期待される光学素子、X 線散乱現象を利用した測定手法に関する提案を収録している。具体的には、１）KEK 放射光の X 線性能を評価するとともに、新しい光学素子の開発環境についての提案、２）これまで実証実験にとどまっていた原理・光学素子が KEK 放射光によって実用化が期待される提案、３）KEK 放射光で可能となる微小サイズの高輝度 X 線を利用した高分解能（ナノスケール）物質評価解析実験についての提案、４）高分解能な局所観察だけでなく、広視野の観察から関心領域のピンポイント観察をシームレスにつなぐ、非破壊観察が可能な X 線の特性を活かした実験についての提案、５）KEK 放射光の性能を活かした新規な光学素子の提案、などである。これらは、サイエンスケースの各分野で期待される研究にも応用される技術を含んでいると思われる。

なお、KEK 放射光を支える共通技術としての光学素子であるミラー、ゾーンプレート、屈折レンズなどについては、「ビームライン技術」の章で取り扱われる。

11-1. 先端的Ｘ線波面計測

(1) 背景

よりエミッタンスの小さいＸ線源の開発は、そのまま空間的コヒーレンスの高いＸ線の利用を可能とし、これは、ナノ集光ビームの生成、あるいは、スペックルや位相コントラストの生成と利用などに基づくより高度な計測技術の礎となる。しかしながら、ビームラインを伝播するコヒーレンスの評価技術の充実も必須であり、これを担うＸ線光学技術の進化は必要不可欠と言える。Ｘ線波面の計測・制御において高い技術を有している施設でなければ、最先端の低エミッタンスリングを有していても、それを使いこなす十分なポテンシャルを備えているとは言い難い。

光源から試料（および検出器）までコヒーレントＸ線を導く際に係わるＸ線光学素子として、Ｘ線ミラー、Ｘ線多層膜、Ｘ線回折格子、単結晶、Ｘ線窓などがあるが、その形状精度に依存してＸ線波面が乱れ（すなわちコヒーレンスが劣化し）、要求精度は厳しくなる一方である。多くの場合で外部の専門家や企業に要求精度を投げて製作を依頼し、それを導入する場合が多い。しかし、世界屈指のシンクロトロン放射光施設であれば、それを取り囲んで光学素子の開発を担当する技術コンポジットが存在し、シンクロトロン放射光施設内にその評価が随時行える専用ビームラインがあってしかるべきである。

ここでは、ビームラインを伝播するＸ線の複素振幅を計測するための技術として透過格子を用いる技術について述べる。特に、ナノ集光評価（あるいは集光素子評価）やナノスコピック位相イメージングのために必要な格子スペックとその実施形態について提案する。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

Ｘ線の最先端集光技術は、そのスポットサイズが 10nm を下回るようになり、今後は 1nm 級の集光を目指す時代となる。これにより、走査型Ｘ線顕微鏡による分子配列を実空間で可視化することもスコープとして謳えるようになり、物質科学や生命科学に有用なプローブになることに疑いはない。ただし、その集光スポットの評価には、古くから行われてきたナイフエッジスキャンによる直接計測が難しい時代になっている。これに代わり、Ｘ線透過格子と Talbot 効果を用いた集光点下流位置における波面計測結果から集光サイズを計測する技術が多くのシンクロトロン放射光施設で適用されるようになっている。

ただし、比較的簡便な方法による波面計測であるといえども、究極的な集光サイズの絶対計測には、リソグラフィ技術に基づく人工的なＸ線透過格子のパターン精度が十分とは言えなくなってくると見込まれる。試算すると、周期が 1～2μm の位相格子を用いる前提で、0.01%の誤差で格子周期の均一性が保証されていることと、図１a の光学系に基づき、拡大投影された Talbot 条件下の自己像が十分に解像できることが必要である。このためのＸ線格子の開発と光学構成を軟Ｘ線から硬Ｘ線の領域に渡って確立し、高精度波面計測システムの提供が施設の共通ツールとして整備される。

同様の光学系をＸ線顕微鏡光学系に融合させた顕微位相イメージングが図１b の構成で可能である。ナノスケールの構造観察においては、どのようなものでもＸ線吸収による強度減衰は僅かとなり、位相物体として考える必要がある。すなわち、位相コントラスト顕微鏡の活用は必至となる。広く使われている Zernike 位相コントラストＸ線顕微鏡は定量性に乏しいという欠点を有しているが、図１b の構成による顕微位相イメージングではこの欠点を克服しており、自然に三次元観察（ナノトモグラフィ）への適用と、定量的画像解析の信頼性も確保できる。空間分解能は原理的にベースとなるＸ線顕微鏡のそれに依存し、新光源で開発される full-fieldＸ線顕微鏡にアタッチメントとして追加し、位相イメージングモードを付加する使い方ができる。実験は、画像検出器で単純に結像画像を記録するのではなく、たとえば縞走査法に基づく複数画像をコンピュータ処理して画像再構成する実施形態となる。その際の画像再構成アルゴリズムの開発が現在進められているが、ハード・ソフトの開発が、KEK 放射光の開発と同期し、世界的にみても新奇性のある高感度三次元Ｘ線顕微鏡が実現する。

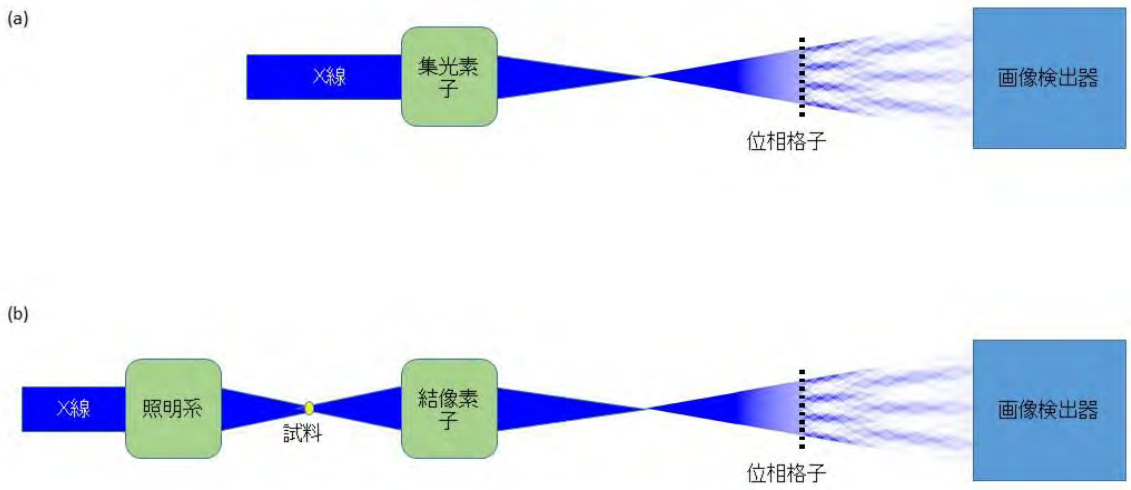


図１　位相格子を用いた波面計測の構成。(a)集光サイズ計測（すなわち、集光素子評価）への応用。(b)Ｘ線顕微位相イメージングへの適用。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・光学評価ビームライン

ここで記述した内容は、波面評価が必要な各ビームラインに実装可能であるべきであり、ナノ位相イメージングについても、full-field 顕微鏡ステーションに融合可能なものである。

ただし、Ｘ線透過格子に限らず、共通性のある光学素子の評価、新規アイディアに基づく光学系のテスト、あるいは、開発性のあるＸ線画像検出器のテストなども目的に含め、施設のインフラのひとつとして光学評価ビームラインがあった方がよい。外国の複数の施設にはこのような仕組みがある。しかしながら、これは施設自ら、あるいは、施設を取り囲む技術コンポジットとの共同で、光学素子や画像検出器などを開発する体制がある場合

に特に意味がある。日本では、一部を除いて購入に頼る傾向が強く、外国施設に比べて優位に立てない側面となっている。KEK 放射光計画では、放射光施設だけではなくそれを取り囲むテクノロジーの集積を考えて策定するのが望ましい。

11-2. 先端的X線結晶光学素子

(1) 背景

X線光学は主に結晶光学・幾何光学・波動光学という三つの理論体系を基礎としており、それに基づいて様々な先端的X線光学素子・光学系の開発が行われている（Fig. 1)。第二世代の放射光施設である Photon Factory（PF）は、過去約三十年のあいだ、この分野で世界をリードする優れた成果を挙げてきた。例えば、PF で開発された X 線透過型移相子は直線偏光を円偏光に変換するために世界各地の放射光施設で利用されている（平野 *et al.*, 放射光 **4**, 159 (1991)）。また、数々の位相イメージングの中でも最高の感度を誇る、X 線干渉計による CT 撮像法は PF で初めて開発に成功したものであり（A. Momose *et al.*, Nature Medicine **2**, 473, 1996）、その後も他の追随を許さない優れた成果を輩出している。この他にも、エネルギー分散型スペクトロメーター（T. Matsushita *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **20**, 2223, 1981）や核共鳴散乱実験用超高分解能分光器等、PF 発の光学素子・光学系は数多い。これらの先端的 X 線光学素子・光学系により、PF はこれまで放射光科学の新たなフロンティアを切り拓いてきた。次期光源においても、引き続きこの分野を牽引する役割を PF は期待されている。

通常、X線光学の研究を行うには、高輝度光源が必要になる。例えば、光源の輝度が一桁向上すると、得られるフラックスを保ったまま、分光素子・光学系のエネルギー分解能を一桁改善することが可能になる。これは、ビームの集光・拡大・平行化・偏光制御・パルス制御・波面制御等を行う場合についてもほぼ同様である。したがって、現在計画されている KEK 放射光により、X線光学研究の更なる高度化が可能になるものと期待される。

KEK 放射光で拓かれるX線光学研究は多岐にわたるが (図 1)、ここではその中の一例として、X線多波回折を利用した新しい結晶光学素子の可能性について述べる。

図 1　X 線光学研究

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光の大きな特徴の一つは、同規模の放射光施設と比べて、電子ビームのエミッタンスが小さくなることである。これは、光源からの光の平行性が、垂直・水平両方向とも従来の光源より向上することを意味する。この特徴を活かすことにより、例えば、X線多波回折を利用した新しい結晶光学素子の研究・開発が可能になる。

X線多波回折とは、結晶で二つ以上の回折波が同時に生じる現象のことである。一般的に、X線多波回折研究には、高い平行性を持つX線ビームが必要になる。従来の PF をはじめとする放射光施設では、ビームの水平方向の発散が大きかったため、X線多波回折研究はほとんど行われてこなかった。また、多波回折を利用したX線光学素子開発についても、そのほとんどは原理検証実験の域を超えるものではなく、実用化にはほど遠い。しかし、KEK 放射光ではビームの平行性が垂直・水平両方向とも格段に向上するため、本格的なX線多波回折研究が初めて可能になる。さらに、X線多波回折を利用した新しい光学素子の実用化も夢ではなくなる。

X線多波回折を利用した結晶光学素子の代表例の一つとしては、X線検光子が挙げられる（図 2）。従来の検光子は結晶における 45°のブラッグ反射を利用しているため、利用可能な波長が限られていた。それに対して、多波回折を利用するX線検光子にはこのような制約はなく、任意の波長で偏光を完全に決定することができる（K. Hirano *et al.*, J. Phys.: Conf. Ser. **425**, 052030, 2013）。これをX線磁気回折・散乱に応用すれば、例えば従来よりも多くの元素に関して吸収端近傍でスピン角運動量と軌道角運動量とを分離することが可能になる。これにより、放射光を用いた磁性材料の研究の更なる発展が期待される。

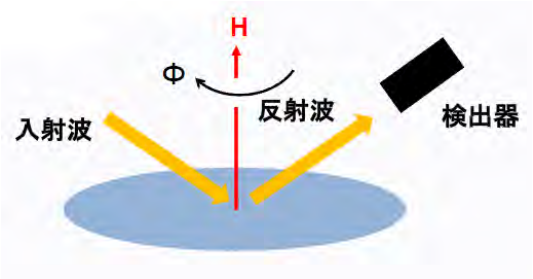


図 2　X線多波回折を利用した光学素子の例：X線検光子

X線多波回折を利用した結晶光学素子の二番目の例として、X線干渉計が挙げられる。すでに原理検証実験が幾つか行われているが、汎用化には至っていない（A. Yoneyama *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **41**, L161, 2002）。KEK 放射光ではビームの平行性が向上し、X線干渉計のスループットや視野が大きくなるため、新しいX線位相イメージングへの展開も可能になるものと期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

i. 数 keV～数十 keV の硬X線領域で高輝度の単色･平行ビームが得られるビームライン。光源としては 10^{20}（phs/sec/mrad^2/mm^2/0.1%b.w.）程度の輝度を持つアンジュレーターが望ましい。

ii. 水平多軸精密X線回折計。各回転軸には、全周回転が可能な粗動回転機構と、±3°程度の領域を 1/100 秒程度の精度で回転できる微小回転機構が必要。

iii. X線フォトンカウンティング二次元検出器（例えば Pilatus）等のX線計測システム一式

iv. 試料の準備や各種物性測定等を行うための付帯設備

11-3.リング型 X 線干渉計と X 線の蓄積

(1) 背景

可視光領域において干渉計は、測長（距離の計測）や形状検査など身近なところから重力波の検出など最先端計測に至る幅広い分野で利用されている。しかし、X 線領域では放射光といえども多くはインコヒーレントな光であり、更に光学素子として単結晶による X 線回折しか利用できないという制限から、ワンパスの X 線干渉計しか実現されていない。もし、リング型の X 線干渉計を実現することができれば、上記測定や検査、及び最先端計測の大幅な感度向上に加えて、現在は蓄積リングのパラメータによって決まっているパルス放射光を任意のタイミングで任意の長さのX線を発生することが可能になる。これにより、時分割測定の適用範囲が飛躍的に広がると考えられる。また、ポンプ＆プローブ法との併用により、より広い範囲で系のダイナミクスの計測に適用できると期待される。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光では同規模の放射光源と比べて輝度が向上するため、X線多波回折を利用した結晶光学素子・光学系の性能が向上する。そこでこの特徴を活かして、同時反射（多波回折）を利用したリング型の X 線干渉計を構築し、X 線のストレージとして利用する。そして、X 線取り出し口から任意のタイミングで任意の長さの X 線を取り出すようにする。上記を実現するリング型 X 線干渉計の模式図を図 1 に示す。本干渉計は複数個（図 1 は 4 個）の単結晶光学素子（反射鏡）で構成されていて、X 線がリング内を周回できるように各結晶の角度をブラッグ角に調整する。また、入射と取り出し（出射）結晶では、多波回折を満たすような回折面（例えば Si(220)と Si(202)など）を利用する。これにより図 2 のように入射結晶では 2 波を 1 波に結合し、出射結晶では 1 波を 2 波に分離するよることができる。この際、出射結晶は通常は多波回折が生じないようにチルト角度をずらしておき、出射の時だけ角度を合わせるようにすれば、任意のタイミング及び長さで X 線のオンオフ

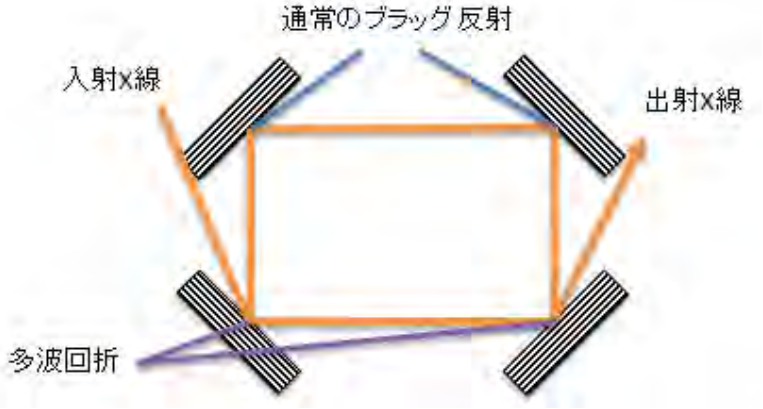


図 1　リング型 X 線干渉計の模式図。複数個の単結晶光学素子によりリングを形成する。

図 2　多波回折を利用したビームの結合（入射）と分割（出射）

を行うことができる。なお、シリコン等の単結晶を利用し、X 線の入射角を 1/100 秒以下の精度で制御し、各光学素子における反射率を 99%以上確保することができれば、Q 値は 10000 以上、即ち入射 X 線の 10000 倍以上の X 線を蓄積することできる。

以上から、例えば光路内にごく微量な試料を設置するだけで、10000 倍以上の蛍光 X 線や回折 X 線強度が得られ、検出下限の大幅な向上が期待できる。また、ポンプ&プローブ法と組み合わせることで、放射光リングのクロック（通常は 2 ns=500 MHz）の制限を受けない任意のタイミングでの計測が可能になるので、ms～ns の非常に広い時間スケールで同法が利用できると期待される。

また、図 3 は 2 結晶を利用した同種の干渉計である。この場合、可視光のファブリーペロー干渉計と同様に機能し、干渉計内には定在波が存在することになる。したがって、出射される X 線の時間コヒーレンスが飛躍的に向上することになるので、X 線フーリエ分光などこれまでにない計測手法が可能になり、XAFS の高精度化や非弾性散乱への適用などが期待される。また、可視光領域と同様に結晶の反射裏面を利用した測長器としても利用可能で、この場合は X 線の波長の 1/100 以下の精度、即ち pm オーダーで測長が可能になると考えられる。

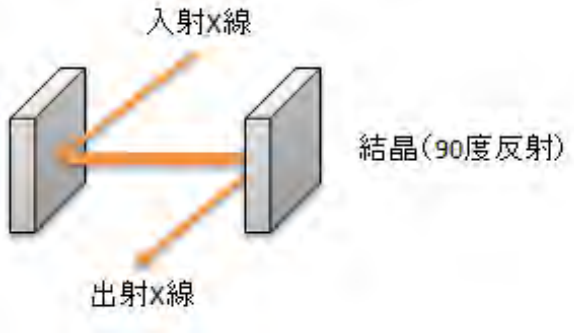


図 3　X 線ファブリーペロー干渉計の模式図

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・精密 X 線光学用実験ビームステーション（標準か高エネルギー用 ID）

・超精密ゴニオメータ（4 台）

・アクティブ除振機構付き光学定盤

・温度安定（揺らぎ＜0.01 度）ハッチ

11-4. マルチコントラスト・マルチスケールの関心領域X線イメージング

(1) 背景

レントゲンによるX線の発見以来、X線は物質内部を非破壊で観察するために広く利用されてきた。放射光施設においても、光源・光学素子・検出器の飛躍的進歩に伴って、X線イメージング研究はますます盛んになりつつある。第二世代の放射光施設である Photon Factory（PF）においても、各種のX線イメージングの研究が精力的に行われてきた。例えば、X線干渉計を利用した位相型X線 CT は PF で初めて開発され（A. Momose *et al.*, Nature Medicine **2**, 473, 1996）、その後も他の追随を許さない優れた成果を輩出している。この他にも、X線トモシンセシス（D. Shimao *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **46**, L608, 2007：A. Maksimenko *et al.*, Appl. Phys. Lett. **91**, 234108, 2007）、X線位相ラミノグラフィー（K. Hirano *et al.*, J. Synchrotron Rad *in press*）、X線暗視野法（安藤 *et al.*, 応用物理 **74**, 446, 2005）、X線偏光顕微鏡（K. Hirano, J. Appl. Phys. **79**, 3365, 1996）等、PF はこの分野で独自の貢献を果たしてきた。

放射光X線イメージングには様々な手法が存在するが、大別すると小視野・高空間分解能のX線顕微鏡と大視野・低空間分解能の非X線顕微鏡の二つに分けられる。一般的に、X線顕微鏡の空間分解能は数 nm～数百 nm 程度であり、他方、非X線顕微鏡の空間分解能は数百 nm～数 mm 程度である。KEK 放射光では同規模の放射光施設と比べて輝度が高くなるため、X線顕微鏡研究に大いに適している。しかし、生体や工業材料等の大きな試料を非破壊観察したいという学問的・社会的ニーズは今後も強まることが予想されるため、KEK 放射光でもこれらのニーズに柔軟に対応するべく非X線顕微鏡のイメージング研究を積極的に推進する必要がある。

放射光を用いた従来の大視野・低分解能X線イメージングには、観察倍率を自由に調整

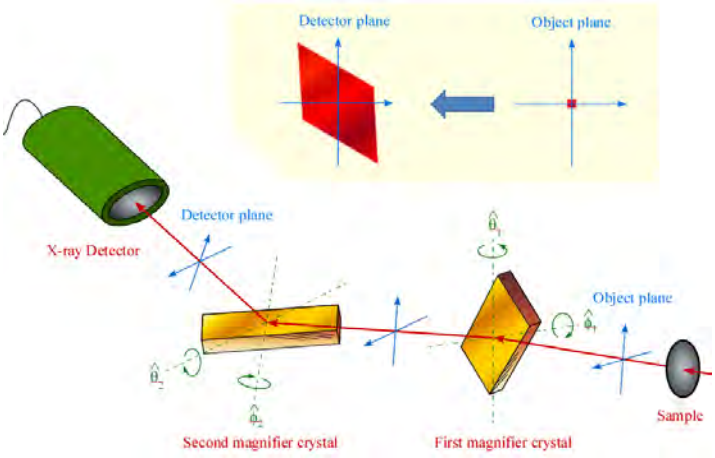


図 1 X線ズーミング光学系の一例

するのが困難という問題があった。そこで、この問題を解決するために、最近、PF でX線ズーミング光学系（図 1）の開発が行われている（K. Hirano *et al.* J. Synchrotron Rad. **22**, 956, 2015）。この光学系は二個の非対称結晶を KB 配置で組み合わせたものであり、各結晶の方位角により倍率を自由に制御できる。現在、PF で実現可能な空間分解能の範囲は数μm～サブ mm 程度（倍率は数十倍～数分の一）だが、KEK 放射光では 100 nm～サブ mm 程度（倍率は数百倍～数十分の一）にまで広がることが見込まれる。この性能向上により、階層構造を持つ試料をマルチスケールで *in situ* 観察する新たな可能性が拓かれる。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

X線ズーミング光学系の第一の特徴は、低倍率で試料内の関心領域を特定し、その後、関心領域を高倍率で観察するという一連の過程を *in situ* でシームレスに素早く行えることである。第二に、吸収・屈折・位相・超小角散乱像等、マルチコントラストでの試料像の取得も可能である。第三に、Pilatus のような直接変換型X線検出器と組み合わせて利用することができるため、これにより光学システムの更なる高感度化・高速化・広ダイナミックレンジ化を図ることができる。

X線ズーミング光学系の性能は光源の輝度が高くなるほど向上する。例えば、KEK 放射光では空間分解能が現状よりも一桁以上向上することが見込まれる他、in-situ 測定の高速化等も期待される。高輝度放射光とズーミング光学系により、新たなX線イメージングの可能性が拓かれる（図 2）。

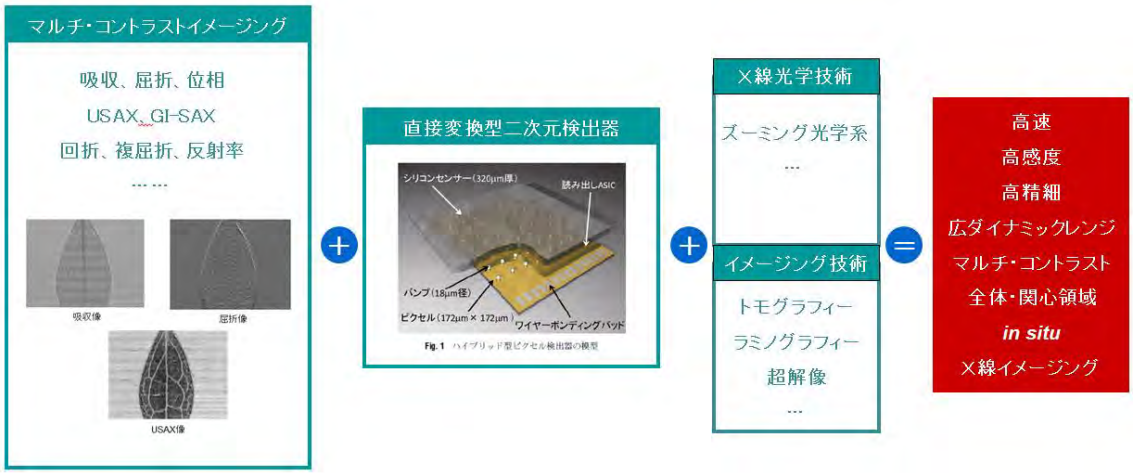


図 2 高輝度放射光とズーミング光学系が拓く新たなX線イメージングの可能性

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

i. 数 keV～数十 keV の硬X線領域で高輝度の単色・平行ビームが得られるビームライン。光源としては 10^{20}（phs/sec/mrad^2/mm^2/0.1%b.w.）程度の輝度を持つアンジュレーターが望ましい。

ii. 多軸の精密Ｘ線回折計。

iii. Ｘ線フォトンカウンティング二次元検出器（例えば Pilatus）等のＸ線計測システム一式

iv. 試料の準備や各種物性測定等を行うための付帯設備

v. 画像処理用高性能ワークステーション、データストレージ、超高速・ブロードバンドネットワーク　一式

11-5. X 線反射率法を用いた先端的光学素子・測定法の開発

(1) 背景

Ｘ線反射率法は、薄膜・多層膜の解析の有力な手法の１つである。特に深さ方向のわずかな構造の違いにも敏感であり、透過電子顕微鏡による断面写真と本質的に等価な情報を非破壊的かつ定量的に得ることができる。今日の薄膜化されているデバイスの多くは保護層で被覆され、あるいは深さ方向に積層構造を持つ多層膜を作りこむことにより機能を実現していることから、応用面からの期待感も強い。比較的大面積(mm^2～cm^2)の平均情報を取得する技術としてはよく確立されており、放射光ビームラインや実験室系のＸ線装置を用いてルーチン的な測定が行われている。それにとどまらず、面内に不均一な薄膜・多層膜や、ナノ・ミクロ構造がパターニングされた試料を対象とするために、微小ビームによる解析や、画像としてイメージングする技術、さらには迅速な測定により、薄膜・多層膜の埋もれた構造の変化過程を追跡する手法が重要と考えられる。そのような本格的な展開のためには、高輝度な新光源の実現と利用が必須であり、さらに先端的な光学素子・測定法の開発への取り組みが欠かせない。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

1980 年代前期に始まる偏向電磁石光源を主体とする第２世代放射光源、1990 年代中期に始まるアンジュレータ光源を多く備えた第３世代放射光源、その後の小規模でありなら低エミッタンスを実現している新第３世代放射光源の一貫する流れは低エミッタンス・高輝度の一言に代表させることができる。その利をいかに賢く取り入れ、これまで困難であった測定を可能にするかという点は常に重要であり、それは今後の新光源においてますます強く認識される必要がある。他方、最近では、光源の飛躍的な発展に加え、集光光学系の技術の進歩もあいまって、試料に照射する総光子数が当初の想定を超えるほどにもなった。このため、Ｘ線による計測の利点の１つであった非破壊性が目に見えて損なわれるケースも出てきている。これからの新光源の利用に際しては、これまでよりも多くの総光子数が利用可能である利点を生かしながら、実際に試料が単位時間当たり単位面積あたりに受ける光子数が限度を超えることなく、従来は容易には得られなかった情報（例えば、検出器の素子サイズに制約されない高解像度の画像、位相シフトに着眼した時間または空間的なコントラスト等）を含む高品位なデータを確実に得るためには、光学素子や検出器の開発と工夫が重要である。

Ｘ線反射率の微小領域分析・イメージングについては、大きく２つの方法が考えられる。第１は、注目するナノ・ミクロ構造の大きさに対応したビームサイズのナノビームを用いる方法、第２は、それよりも大きなビームサイズを使用しながら、空間分解能のある検出器と必要に応じて光学素子を採用することによって、その視野全体をある空間分解能で画像化する方法である。Ｘ線反射率は、単色Ｘ線を用いて $\theta/2\theta$ 角度走査を行う方法と、試

料を固定しながら低エネルギーからかなりの高エネルギーまでの非常に広い範囲の白色X線の反射スペクトルを取得する方法のいずれかで測定できる。そのどちらにも、それぞれ利点があり、微小領域分析・イメージングの方法との組み合わせで、理論的には４通りの組み合わせが考えられる。それらの技術により、現状 mm^2～cm^2 の視野全体を統計的に評価していたものを、μm^2 以下の視野を任意に選んで、不均一さと一言で呼ぶ個々の特徴や差異を定量的に評価できるようになることを期待している。

材料科学的な環境パラメータの制御に対応する薄膜・多層膜の構造変化、もしくはいっさいの制御がない状態でのあるがままの時時刻刻の変化の解明をめざす研究は、新光源の登場により一層加速されると期待される。X線反射率を短時間でリアルタイム計測する技術、ポンプ・プローブ法で計測する技術、さらにはX線光子相関分光法を併用する技術など、これまで先駆的な研究例の報告にとどまっていたものが、今後、本格的に発展し、新たな分野を開拓することが望まれる。もちろん、取り扱う現象や試料をより深く理解するためには、X線反射率の周辺だけでなく、さらに多様なX線技術を併用することは重要である。現状、まったく時間変化を無視し静的なものと扱うか、高々秒～分レベルのスケールで薄膜・多層膜の構造が全体としてどう推移するかという点でしか取り扱えなかったものが、μ秒オーダーもしくはそれ以下といった短い時間スケールへの拡張、更にけた違いの短い時間分解能で変化の初期過程の検討、時間情報と場所・空間情報の両方が入った動画的なX線反射率のイメージングなどが実現することを期待している。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・X線反射イメージングダイナミクスビームライン

床、壁などの除振、安定性

バンチスライス、タイミング信号

ミラー集光

11-6. 半導体素子等のナノスケールひずみ・欠陥解析

(1) 背景

半導体集積回路の基本素子である金属―絶縁膜―半導体電界効果トランジスタ（MOSFET）の技術開発は，「スケーリング（比例縮小）則」を基本原理として素子の微細化を進め，超大規模集積回路（ULSI）の高性能化と高集積化を同時に達成してきた．しかし，微細化が進み素子サイズがナノメートル領域に入ると，ゲート絶縁膜のリーク電流の増加による消費電力の増大などの様々な問題が生じ，単純な微細化ではデバイスサイズの縮小に見合った性能向上が困難になってきた．そのため近年では，メタルゲート電極/高誘電率ゲート絶縁膜や歪チャネルの導入などによりトランジスタの高性能化が進められている（図 1）．今後さらにトランジスタの性能向上を続けていくため，新材料・新構造の導入などの延命技術も種々提案されているが，この 10 年以内には，様々な揺らぎ／ばらつきの顕在化による精度・性能限界，集積度の増加による発熱量・消費電力量の限界などによって，微細加工の限界以前に CMOS の集積化と高性能化が困難になることが確実である．したがって，これまでの CMOS 技術の延命では達成困難な超高集積度，高性能・高機能性を追求し，実現するためには，デバイス中の各パーツの結晶構造や応力分布を解析し，最適な構造にすることが必要不可欠である．

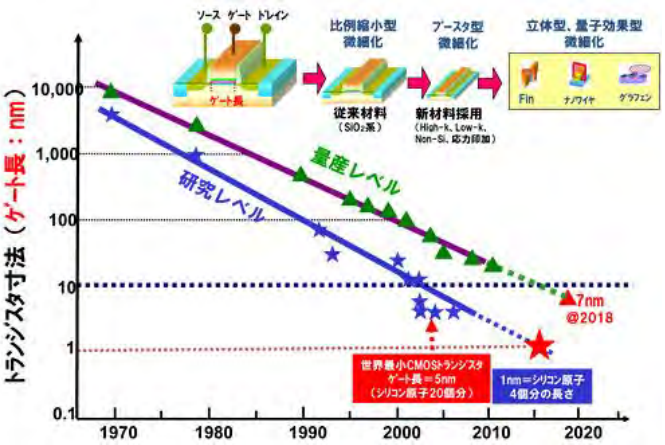


図 1　トランジスタ微細化の動向（提供；EIDEC）．NanotechJapan Bulletin Vol. 4, No. 6, 2011 より引用．

現状，10 nm 程度の空間分解能のある測定法は，電子顕微鏡，走査型プローブ顕微鏡，3 次元アトムプローブ等があるが，非破壊で，かつ，デバイス中に埋もれ各パーツのひずみや欠陥構造を測定する手段はない．一方，第三世代放射光を使用したナノビーム回折法が海外を含め複数の放射光施設で利用可能な状況になっているが，空間分解能は 100 nm 程度に留まっており，現状の最先端デバイスの測定には空間分解能が足りていない状況である．

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光を利用することにより，現在の放射光では不可能な以下の測定が実現すると考えられる．

1．単色ナノビーム回折によるナノスケールひずみ測定

KEK放射光の超直線ID UL20N250の光源を利用する場合, 10keVの放射光に対し27 × 26 nm^{2}の集光で10^{12}のフラックスが得られると試算されている．更に，光学系を工夫すれば 10 ×10nm^{2}で10^{10}程度のフラックスが得られれば，その集光ビームを入射光とし回折実験を行えば，空間分解能 10 nm のひずみマッピングが可能となると期待できる．この場合の課題は，どのようにデバイス中の各パーツの場所を特定するかにある．したがって，走査型蛍光X線顕微鏡と組み合わせた装置構成が必須と思われる．高速に蛍光X線マッピングをし，測定箇所を同定し局所回折測定によりひずみを測定することが必要となる．

更に，10 nm 集光では，集光X線はフル・コヒーレントであると思われる．したがって，ブラッグ・コヒーレント回折やブラッグ・タイコグラフィを適用すれば数 nm 程度の空間分解能でひずみを決定できる可能性がある．

２．白色 or ピンク・ナノビームによるナノ・ラウエマッピング

KEK 放射光でテーパー化機構を持ったアンジュレータかアンジュレータ・ギャップの高速スキャンが実現すればナノ・ラウエマッピングが実現可能と思われる．これは，走査電子顕微鏡（SEM）による結晶解析の手法として発展している後方散乱電子回折（Electron BackScatter Diffraction:EBSD）対応する手法で，結晶方位や結晶系を数 10 nm 程度の空間分解能で測定する技術である．EBSD は電子線を使うので試料表面の情報しか得られないが，10 keV 程度までの白色放射光が使用可能であれば，半導体デバイス中の埋もれた各パーツからの信号を得ることが出来るためインパクトは大きいと思われる．また，ラウエ斑点のエネルギーを検出器等で同定できれば，多結晶体でのひずみマッピングが実現し，１．で示した単色ナノビーム回折と相補的な測定が可能となると期待できる．

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

A. ビームライン

・テーパー化機能付きアンジュレーター

・白色取り出し可能なモノクロメーター

・単色 10 nm 集光時のフラックス：>10^{10} photons/sec

・恒温実験ハッチ：＜±0.1℃/day

B. 実験設備

・ナノ・ポジショニング機構付き精密回折計

・集光素子および調整機構（KB ミラー，FZP）

・硬X線用高速 2 次元検出器およびデーター処理システム（大面積用と高空間分解能用）

・多素子蛍光X線検出器

・試料観察用長焦点高倍率ズーム機能付き光学顕微鏡

11-7. ピンポイントX線トポグラフィ

(1) 背景

X 線トポグラフィは X 線の回折現象を利用して単結晶中の格子欠陥の空間分布や格子ひずみを画像化する技術である。結晶の歪みによる X 線回折強度コントラストから単結晶中の転位、積層欠陥、析出、偏析、分域などの欠陥を直接観察するために広く使われてきた。放射光の利用は像の分解能と迅速性において格段な進歩をもたらし、PF においても、白色高速 X 線トポグラフィカメラによる熱的あるいは機械的環境下での融解、欠陥、相転移などの動的観察で成果を上げた。また、単色 X 線の利用では、非対称反射によって平行化した平面波、あるいは超平面波 X 線を得ることによって、非常に歪み感度の高いトポグラフィが実現し、シリコンや化合物半導体に求められていた高精度な評価に活用された。近年はパワー半導体において、シリコンに代わる新材料の研究が盛んになっており、SiC、GaN、ダイヤモンドなどのワイドギャップ半導体を中心に、その結晶成長や素子プロセスなどの研究に X 線トポグラフィが有力な評価手法として活用されている。

一方、個々の欠陥の精密な解析には透過型電子顕微鏡（TEM）が強力な手段であり、X 線トポグラフィと TEM は空間スケールにおいて相補的に使用されている。しかし、TEM は薄片試料を用意しなければならないため、X 線の評価領域を広げて、欠陥の広域観察から個々のピンポイント精密解析をシームレスに実現することは、利便性、迅速性、情報量の増大において非常に有効である。ここでは、高輝度な KEK 放射光で得られる「明るい」X 線による高分解能なモニターを利用した、欠陥ピンポイント解析システムを提案する。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

一般の X 線トポグラフィでは、幅の広い X 線を照射し、広い面積からの回折強度コントラストを取得する。しかし、欠陥ごとに詳細な解析をするためには、回折条件等を個別に調整しなければならない。これには、高分解能で迅速な回折像のモニターが必要である。CCD などの撮像素子によるモニターでは、画素サイズがミクロンオーダーの X 線カメラでは分解能が不足しており、レンズで像拡大（レンズカップリング）することによる実効画素サイズがサブミクロンのカメラでは、画素あたりの光量が不足するため、長い撮影時間が必要である。KEK 放射光の高輝度な X 線では、試料位置での面積あたりのフォトン数が 3 ケタ程度増加することが見込まれ、これによって高速のモニターが可能になると期待される。一例としては、実効画素サイズ 0.54 ミクロンの X 線カメラで 30 秒を要した撮影が 50msec 程度で可能になる。試料の高速走査による広域観察から評価対象の欠陥を見つけ出し、角度などの観察条件を最適化し、記録する。TEM に委ねている解析の例としては、転位の原子面のずれを示すバーガースベクトルの決定がある。混合転位の成分を分離する場合では、X 線でもウィークビーム法によって高分解能な像を観察することによって可能になる。これによって、「見えたもの」ではなく「観たいもの」を最適条件で解析するのが本シ

ステムの目的である。

原子像レベルの解析は TEM に委ねるとしても、欠陥ごとに回折条件を最適化して高分解能像を取得することによって得られる情報量は多い。また、解析レベルにおいて X 線での評価領域が広がることは、利便性において大きな効果があることは言うまでもない。パワー半導体素子の不良原因として転位や積層欠陥があるが、評価用素子(TEG)による不良解析と欠陥形態の相関を調べる場合、統計的な信頼度を得るためには十分大きな標本数が必要である。これも、本手法の有効性が期待される一例であり、産業利用にも資することが期待される。温度・機械的作用などの環境下あるいは素子動作時などのその場観察／オペランド観察にも応用可能であり、高分解能な時間変化観察が期待される。また、コヒーレント成分を利用して X 線タイコグラフィなどのコヒーレント X 線回折によって、さらなる高分解能解析が可能になると期待される。

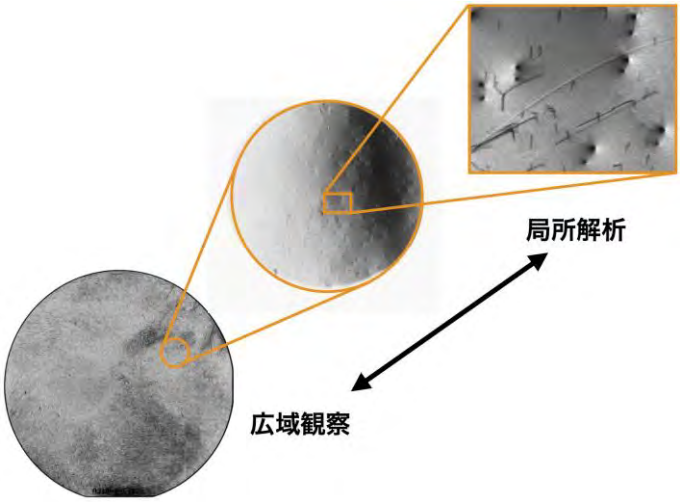


図１　X 線トポグラフィによる観察スケールの異なる欠陥評価の例

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- 標準的アンジュレータビームライン
- 多軸精密回折計と試料ステージの走査連動機構
- レンズカップリング高分解能 X 線カメラ

１１．X 線光学

＊担当一覧

監修：山口　博隆（産業技術総合研究所）

執筆分担：（ただし、公開を希望されない方を除く）

まえがき　山口　博隆（産業技術総合研究所）

11-1　百生　敦（東北大学）

11-2　平野　馨一（KEK 物構研）

11-3　米山　明男（日立製作所）

11-4　平野　馨一（KEK 物構研）

11-5　桜井　健次（物質・材料研究機構）

11-7　山口　博隆（産業技術総合研究所）

校閲協力：

奥部　真樹（東北大学）、河田　洋（KEK 物構研）、佐賀山　基（KEK 物構研）、
高野　秀和（東北大学）、武市　泰男（KEK 物構研）、平野　馨一（KEK 物構研）、
山口　博隆（産業技術総合研究所）、米山　明男（日立製作所）

６．産業利用

１．はじめに

放射光は大強度、単色性、及び高い平行性を有した理想的なＸ線源であり、これまでも PF や SPring-8 をはじめとする放射光施設で様々な産業利用が展開されている。KEK 放射光の高輝度光により初めて実現される各種の極限計測は、当然のことながら産業利用においてもこれまでの性能をはるかに凌駕する非常に魅力的な解析・分析ツールになり得る。たとえば、空間分解能 10 nm のＸ線顕微鏡による金属や有機材料など各種高機能材料の形態、組成、結晶及び化学状態の局所分析、半導体デバイスや電池などプロダクツ内部のバンド構造や界面の状態、ソフトマテリアルやバイオメディカルにおける試薬や薬に対する分子・細胞レベルでの反応など、これまで不可能であった分析・評価が可能になると考えられる。これにより、新規高機能材料の実現、不良の低減、製品寿命の延長など各産業界が抱えている問題の解決が可能なり、持続可能な低炭素社会の実現に向けて幅広い分野で貢献できると期待される。

産業利用では多くの場合に、単一組成の純粋な系ではなく、物性の異なる複数の物質がナノからミリオーダで混在した不均質な系における振る舞いが問題となる。このため「ナノの現場」で発生している現象を、動作したままの状態（オペランド）で、広範囲な空間スケール（マルチ空間スケール）で、かつ様々な時間スパン（マルチ時間スケール）で、多種多様な物性（マルチファンクショナル）を計測・解析し、その機能を活用していく必要がある。従って、「木を見て、森を見ず」ではなく「木も見て、森も見る」、nm オーダーの極限計測から cm を超える大視野の計測が、そして、fs の時分割測定から数日に及ぶ耐久性試験など広大な時間スケールの計測が不可欠であり、その実現が産業利用におけるキーになると考えられる。このような計測系には高輝度かつ高安定な放射光が不可欠であり、これまでの PF リング運転のノウハウが活かされた高輝度・高安定な KEK 放射光により初めて実現可能になると期待される。

本章では産業利用という観点から、KEK 放射光の特徴を活用することによって初めて可能になる利用について、放射光を利用されている民間企業の研究者を中心に執筆して頂いた。ただし、産業利用と一言で言っても、測定対象は金属や磁石などの材料から食品やバイオメディカルまで非常に多岐にわたるために、本章だけですべての分野を網羅することは難しく、近年利用が進んでいる分野に主に限定されてしまっている。一方、KEK 放射光ならではの新たな産業利用が幅広く展開され、これまで利用のなかった分野での放射光利用による日本発の「ものづくり」の発展が期待されている。

2. 産業界における創薬と新しい放射光施設の必要性

(1) 背景

現在の低分子創薬において、タンパク質と化合物の複合体結晶構造をもとにした化合物設計、いわゆる Structure Based Drug Design（SBDD）は、創薬の加速化のために欠かすことができない基盤的な技術である（図）。創薬に取り組む製薬会社は、SBDD に必須な X 線回折実験を行うため、放射光が一般的に利用可能になった 1990 年代初頭から長年にわたり放射光施設を利用してきた。近年においては、創薬ターゲットのタンパク質に結合する分子量 200 前後の小さい化合物（フラグメント）を探索する Fragment Based Drug Discovery（FBDD）においても、ヒット化合物との複合体構造からリード化合物を設計するなど結晶構造解析が活用されている（図）。また、この１０年ほどの間に、創薬ターゲットとして重要な GPCR などの膜タンパク質の構造解析手法が発展したことで、膜タンパク質でも SBDD を行う機運が高まっている。

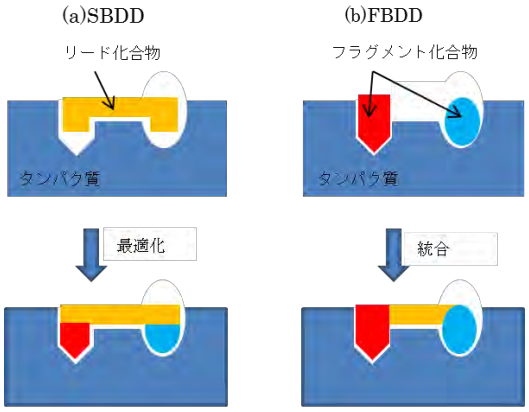


図　SBDDとFBDDの概念図

表　2015年　世界の医薬品売上トップ10

順位	製品名	薬効等	売上高（百万ドル）
1	ハーボニー	劇症C型肝炎	18,144
2	ヒュミラ	関節リウマチ/乾癬	14,950
3	ランタス	糖尿病	11,458
4	エンブレル	関節リウマチ	9,471
5	クレストール	高脂血症	8,608
6	レミケード	関節リウマチ/クローン病	8,195
7	セレタイド	喘息	7,996
8	ソホスブビル	C型肝炎	6,578
9	マブセラ	がん/関節リウマチ	6,298
10	アバスチン	がん	6,183

黄：抗体医薬品
青：低分子医薬品

出典：IMS Health

さらに、1990 年代から抗体医薬に取り組む製薬企業が増え、抗体医薬は売上高トップ 10 の半数以上を占めるようになってきている（表）。抗体医薬はターゲットとなるタンパク質を抗原として作用するために、特異性が高く副作用が少ないことから、今後の医療を変革する新しい医薬品として大きな期待が寄せられている。抗原に対する抗体結合能の改善には主に生物工学的手法が用いられてきたが、エピトープマッピング（抗原の抗体認識部位の同定）や抗体抗原相互作用の構造生物学的な解明に、X 線結晶構造解析、溶液散乱など構造生物学的手法は今後増々重要となることが予想される。

構造生物学が創薬のための基盤的技術として注目されるにつれて、適用分野の拡大のみならず他分野の研究者が新たな視点から構造解析に取り組むケースが増えることが予想される。しかし、日本の製薬会社は欧米のメガファーマと比較し規模が小さく、一社当たり一人から数人の構造生物学研究者が細々と取り組んでいるケースが多いため、各社単独ではそれら最新技術の導入が難しいことが課題である。また、民間企業においては、人事異動などによって他分野の研究者が新たに構造解析研究に取り組まなければならない場面も

想定される。そこで、KEK 放射光が最新のタンパク質解析技術を導入するための基礎的なプラットフォームを提供し、我が国における構造生物学研究の拠点として機能すれば、製薬業界やアカデミックにおけるタンパク質の構造解析に対する潜在的な需要を引き出し、我が国の構造生物学研究のより一層の活性化に繋がることが期待される。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

これまでに述べた背景から、KEK 放射光は以下の点において創薬研究の加速化に資すると期待される。

１）SBDD や FBDD では多数の同形結晶の回折データセットを取得することから、結晶のセンタリング、測定条件の決定、測定、解析などを自動化することで構造解析の効率化が図られる。自動化にあたっては、一度に 100 個以上の結晶が処理できるようなスケールが望ましい。２）結晶サンプルの交換速度および測定の高速化によって、1 時間に 50 データセット程度の測定・データ処理が可能になれば、数百～1000 個程度のフラグメントスクリーニングを構造解析で実施できるようになる。これまで表面プラズモン共鳴(SPR)や核磁気共鳴(NMR)によって行ってきた FBDD のスクリーニングを構造解析に包含することが可能となり、リード化合物創出の迅速化に繋がる。３）高輝度かつビーム径が数μm の細いビームとラスタースキャン機能を備えた微小結晶用ビームラインの整備により、これまでボトルネックの一つとなっていた膜タンパク質の結晶取得から構造解析までの期間が短縮され、創薬ターゲットの約 30%を占める膜タンパク質における SBDD の実現に繋がる。４）新規ユーザーへのサポートの充実（もしくは、依頼測定精度の充実）により、X 線結晶構造解析をはじめ、溶液散乱を用いた構造生物学的な手法の抗体エピトープマッピングなど抗体医薬分野での利用拡大が期待される。

KEK 放射光が、世界でも類を見ない先進的な機能と、企業研究者にとっても利用しやすいユーザーフレンドリーなインターフェースを有し、我々が対価を支払ってでも利用するだけの価値がある構造生物学拠点として発展することを期待する。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- 高速自動測定が可能なタンパク質結晶用ビームライン。
- 微小結晶用ビームライン。
- 溶液散乱用ビームライン。

3. X 線位相イメージングによる高機能性材料の非破壊 3 次元観察

(1)　背景

X 線イメージング法は、X 線の高い透過能を利用した非破壊観察法として医療診断から製品の検査まで様々な分野で幅広く利用されている。しかし、X 線が被写体を透過した際の強度変化を可視化しているために、吸収の少ない軽元素で主に構成されたポリマー等の有機材料や生体の軟部組織、及び微細な半導体デバイスなどは観察が難しいという問題があった。さらに、軽元素と金属など吸収が大きく異なる元素から構成された複合材料も、非常に広いダイナミックレンジが必要となるために、同時に両者を高精細に可視化することは難しかった。

(2)　KEK 放射光における新展開と期待される成果

上記の課題解決には位相イメージング法がきわめて有用である。位相イメージング法は X 線が被写体を透過した際に生じた位相の変化（位相シフト）を可視化する撮像法であり、従来の吸収を利用したイメージング法（吸収法）に比べて以下の特徴がある。

① 感度が極めて高い（軽元素に対する感度は 3 桁以上高い）（図 1）
② エネルギー依存性が低い（高エネルギーX 線でも位相シフトは大きい）（図 2）
③ 吸収と組み合わせることで組成元素に関する情報（平均的な原子番号）も得られる。（Z イメージング法）

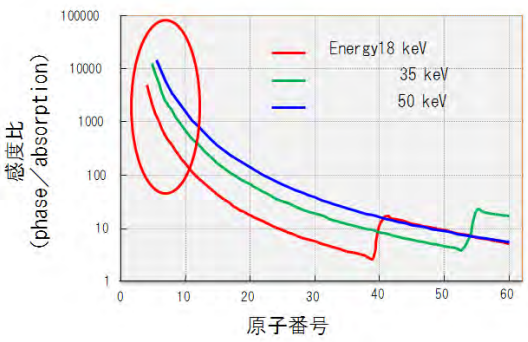


図 1　位相と吸収イメージング法の感度比

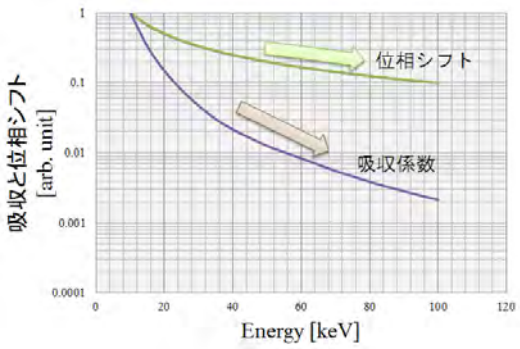


図 2 位相と吸収のエネルギー依存性

以上の特徴を利用することによって、これまで観察が難しかった有機材料、半導体デバイス、生体軟部組織、及び複合材料を高精細かつ短時間で観察することが可能になる。特に KEK 放射光の高輝度かつコヒーレントな放射光を利用することによって、CT と組み合わせた非破壊の 3 次元観察に加えて、オペランド（その場観察）など動的

な観察もミクロン以下の高空間分解能で可能となり、産業利用において重要な材料生成プロセスの最適化、プロダクツ（例えばリチウムイオン電池など）内部で生じている機能や機構の詳細な確認と評価、劣化の定量解析なども可能になると期待される。さらに、Z イメージング法の利用によって、従来の電子密度の変化に加えて元素の変化（酸化など）も短時間で観察が可能になることから、金属材料の劣化プロセス等をより詳細に解明できると考えられる。

(3)　必要なビームライン及び設備

上記のイメージングを実現するためには、下記の仕様を満たしたビームライン及び設備が必要となる。

ビームライン光学系

①	エネルギー範囲	10～120 keV
②	エネルギー純度	$E/\Delta E<1\times10^{-4}$
③	ビームサイズ	2 cm 角以上
④	X 線強度（光子束密度）	$>1\times10^{10}$ 個/秒/mm^2
⑤	ビーム発散方向	縦方向

（CT の回転軸が鉛直方向になり、不定形試料の観察が可能になる。）

計測設備

①	高精細 X 線画像検出器	空間分解能 10 μm 以下
		観察視野 5 cm 以上
		転送レート　100 フレーム/秒
②	高精度ステージ系	平行 3 軸＋芯精度 1 μm 以下の回転ステージ
③	位相検出用システム	結晶 X 線干渉計と位置決め機構
		タルボ干渉計と位置決め機構
		屈折コントラスト用結晶と位置決め機構

4. 蓄電池動作中の界面・電解質挙動のオペランド高精細観察

(1) 背景

高効率な電力貯蔵方法である蓄電池（充放電を繰り返し行うことができる二次電池）は、エネルギーシステムの高効率化や新エネルギーの導入を進める上で必要不可欠である。なかでも、リチウムイオン二次電池（LIB）は、携帯電話・ノートパソコン等のポータブル機器だけでなく、ハイブリッド自動車や電気自動車、自然エネルギー貯蔵などの新たな用途が期待されており、エネルギー環境問題解決のためのキーデバイスである。そのためには、LIB のさらなる高エネルギー密度化・高出力化・長寿命化が課題であり、電池内で起こる反応を十分理解して、改善策を練る必要がある。LIB は、正極から負極（あるいは負極から正極）の電極間を、電解質を介してリチウムイオンが移動することで電極反応が進行する。電池内部では、ナノオーダーの電極活物質／電解質界面におけるリチウムイオンの溶媒和・脱溶媒和と電荷移動、サブマイクロオーダーの一次粒子で構成される活物質粒子バルクへのリチウムイオンの挿入・脱離反応、サブミリオーダーの厚さでシート状に形成される活物質粒子・導電助材・バインダー（結着剤）からなる合剤電極における反応分布といったように、様々な空間的な階層構造が存在する（図 1）。さらに時間スケールにおいても、ミリ秒程度で生じるイオン移動や界面層生成と、年レベルで進行する副次反応に起因する劣化過程といった時間的な階層構造が存在する。これらの空間的・時間的な階層構造が複雑に関連した反応過程が、電池の耐久性・出力特性・安定性等の特性に大きな影響を及ぼす。しかし、電池は密封されており、内部の可視化が容易でないため、この電池反応の階層構造が電池特性に与える影響は明らかにされていない。これらを解明するためには、電池の反応が起こる“その場”を“マルチスケール”で観察できる新しい解析技術の確立が必要である。

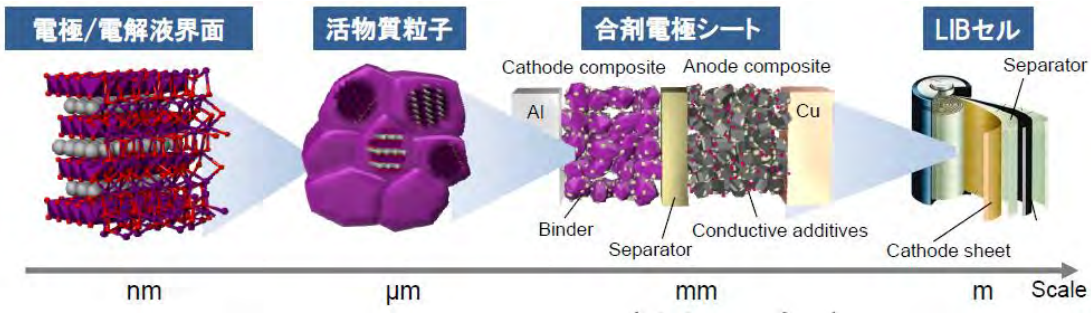


図 1　LIB の空間的な階層構造の模式図

シンクロトロン放射光は、高強度かつ透過能が高い（大気中で測定ができる）、ビームの絞りや検出器の工夫によりミリ～ナノ程度までの空間分解能を実現できる、エネルギーが可変のため解析手法としてのバリエーションが広い、等の特徴から、密閉された LIB の非

破壊その場評価に非常に有効である。最近では、放射光を用いた X 線吸収分光（XAS）や X 線回折（XRD）による LIB その場計測技術が確立され、活物質粒子レベルの動的挙動や合材電極内での反応不均一性といった“電極”内の詳細が少しずつ明らかになってきた。また、LIB の出力特性・寿命を左右する“電極／電解質界面”反応も、平滑な薄膜モデル電極を用いて、全反射蛍光 XAS／微小角 XRD 等の表面敏感なセットアップを適用することで、その描像が少しずつ捉えられるようになってきた。

一方、LIB の車載用途への適用には、安全性の確保と出力特性（高速充放電特性）の向上が必要不可欠であり、いずれも“電解質”が鍵になる。現行 LIB の電解質は、可燃性の有機電解液のため、不測の事態においては発熱・発火の危険性を抱えており、難燃性・不燃性電解質の開発が進められている。また、電解質中でのリチウムイオンの移動速度は、LIB の出力特性に大きな影響を与えるが、有機電解液中でのイオンの伝導度・輸率は水溶液系に比べて大幅に低い。このことから、充放電中の電解液内では、リチウムイオンを始めとした各種イオンの濃度勾配が生じることが予想され、この濃度分極による抵抗上昇は出力特性低下の大きな要因になりうる。そのため、充放電中の電解液内の動的挙動（イオン濃度分布、溶媒和構造など）をその場可視化できる計測法の確立が求められている。しかしながら、電解液は、軽元素のイオン種からなるため吸収が小さく、また周期構造を有さないため回折での検出も困難であり、従来の放射光その場計測技術が適用できず、その動的挙動の詳細はブラックボックスであった。（図２）

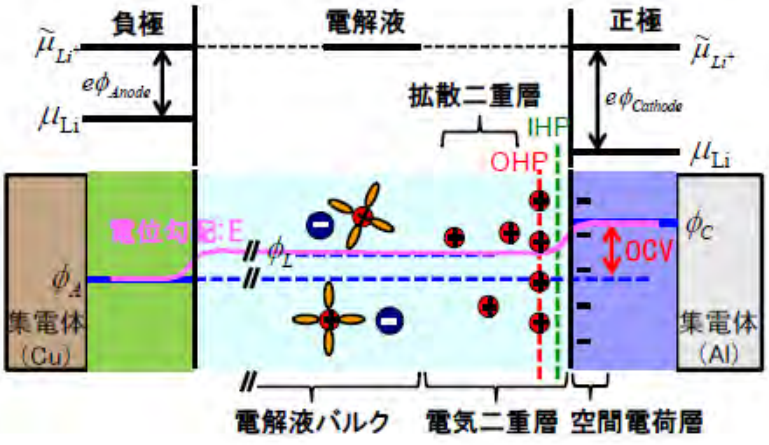


図２　LIB の電解液および電極界面の静的な予想描像。電池動作中の動的挙動は未解明。

我々は、X 線位相イメージング法の高感度特性に着目し、最も高感度な X 線干渉法（結晶 X 線干渉計）を用いたオペランドでの電解液挙動の可視化に取り組んできた。これまでにセル構造の工夫やエネルギー最適化等により、LIB 充放電に伴う電解液内のイオン動的挙動（濃度勾配）を、高い時間分解能（秒オーダー）で捉えることに成功している。しかし、本法は密度のダイナミックレンジが狭く、また、空間分解能も 30 ミクロンであるため

に、イオンの溶媒和構造や電極界面近傍での観察は十分にできないという問題があった。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

X 線干渉計は図 3 に示す構成をしており、入射 X 線はラウエケースの X 線回折により分割・反射・結合され、2 本の干渉ビームを形成する。この際、物体波がサンプルで屈折されるとアナライザー結晶上で本来とは異なる位置（dx）の参照波と重ね合わされることになり、もしコヒーレンス長が dx より短ければ干渉 Visibility の低下や消失が生じてしまう。屈折角は密度の空間微分量に比例した量であることから、干渉縞が消失しない程度の密度差のサンプルしか観察することができなかった。

KEK 放射光ではエミッタンスの向上により、空間コヒーレンス長が従来の 10 ミクロンから 100 ミクロン以上に向上することが期待される。このため、dx が多少大きくても、即ちサンプルによる屈折が大きくても干渉は確保され、高い Visibility が維持されたままになると考えられる。この結果、同イメージング法のダイナミックレンジが大幅に広がると期待される。また、X 線強度の向上により、これまでは光量不足により利用が難しかった高精細な X 線画像検出器（画素サイズ＜数ミクロン）でも実用的な時間で利用できるようになる。

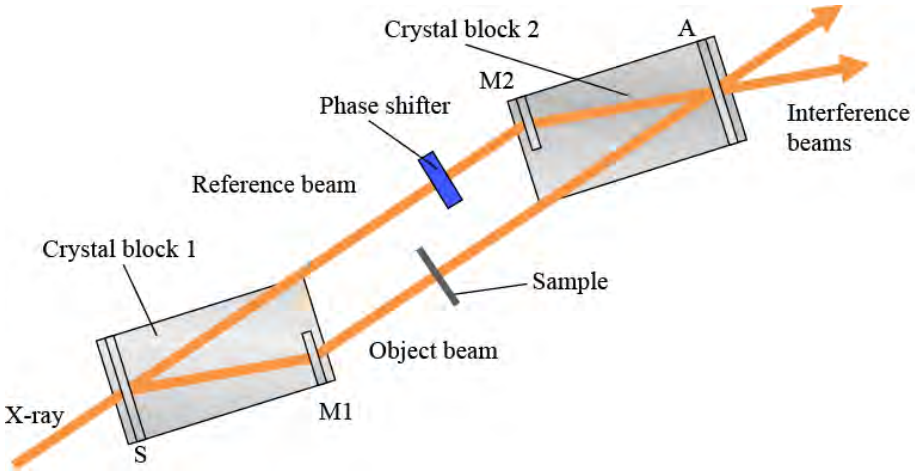


図 3　X 線干渉計の模式図

蓄電池解析において KEK 放射光に期待することは、現状では時間・空間分解能が不十分な“界面”および“電解質”領域での動的反応挙動のオペランド観察である。現状の“界面”観察は、平滑な試料表面かつ表面敏感な計測法が両立した特殊条件でしか実現できていない。KEK 放射光では、コヒーレントフラックスが現状より桁で向上するため、複雑なモロフォロジーからなる合剤電極の界面描像をサブミクロンスケールでオペランド観察できる可能性がある。産業利用の観点から、特殊な試料形状・計測法でなくとも、実電池で用いられる合剤電極のままで、活物質粒子界面近傍の化学的・構造的変化をオペランドで捉えられれば、実用化に向けた合成プロセス・電極構造の最適化に大いに役立つと考えら

れる。また、LIB に限らず、“電解質”は蓄電池を構成する基本要素であるが、電気エネルギーの生成・蓄積を直接担うわけではないため、その材料設計に原理的な指針がなく、LIB 商業化当時の濃度・混合比のまま大きな変更がなされてこなかった。近年になって、電解液の高濃度化という極めてシンプルな手段による出力特性の向上が報告され、電解質設計に大きな注目が集まっている。新光源による電解質の動的挙動の高精細可視化が実現すれば、電解質設計による LIB の高出力化・高安全化に大きく貢献できると考えられる。また、本法は LIB に限らず、他の蓄電池やキャパシターにも適用できるため、電気化学デバイス分野の新たなサイエンス展開にも大きな寄与が期待できる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・イメージング用実験ビームステーション（MPW）
・エネルギー　15～35 keV
・視野　20 x50 mm 以上
・フラックス　$1x10^{10}$ cps /mm 以上。超精密ゴニオメータ（4 台）
・縦偏光が望ましい。

5. ガスハイドレートおよび氷の微細構造の可視化

(1) 背景

メタンハイドレートは、世界各地の海底下や永久凍土などに存在している。日本は、世界に先駆けてのメタンハイドレートの海洋算出試験に成功し、新たな天然ガス資源として期待がもたれている。さらに、液化天然ガスなどに代わる新たな天然ガスの輸送・貯蔵技術として、メタンハイドレートのペレット製造技術の開発なども進んでいる。他にも、メタンの代わりに二酸化炭素を包接する二酸化炭素ハイドレートでは、工業排ガス中の二酸化炭素の分離貯留、農業用ビニールハウス内の植物への二酸化炭素施用への利用も検討されている。また、ガスの代わりに第四級アンモニウム塩を包接するセミクラスレートハイドレートは、新たな空調システムや未利用排熱の畜冷熱媒体として、実用化に向けた研究が進められている。(「非在来型天然ガスのすべて」日本エネルギー学会、日本工業出版㈱、2014)

ガスハイドレートは、氷と同様に水分子で形成される骨格（ホスト）構造中に、メタンや二酸化炭素などをゲスト分子として包接するホスト・ゲスト包接化合物の一種である。水とゲスト分子のみで構成され、環境に優しく、その外見から氷と区別することは難しい。MRI（核磁気共鳴画像法）では、ガスハイドレートと氷との識別はできない。また、ガスハイドレートの密度は氷・水に非常に近く、X 線吸収コントラストによる X 線 Computed Tomography(CT)でのガスハイドレートと氷・水の識別は困難である。さまざまなガスハイドレートの産業利用が提案され、ガスハイドレート技術を実用化するうえで重要な、ガスハイドレート安定性評価のための可視化技術が求められていた。

位相コントラスト X 線 CT 法により、氷や水と共存するガスハイドレートの可視化が初めて可能となった。位相コントラスト法は X 線が物質を透過する際に生じる位相シフトを利用し、吸収コントラスト法よりも水素、炭素、酸素等の軽元素で構成される低密度な物質に対し、高い密度分解能での測定が可能な手法である。これまでに、高エネルギー加速器研究機構の放射光(BL-14C)を用い、X 線の位相コントラストを測定する方法として、X 線干渉法、屈折コントラスト法を用いた温度可変環境下（-85～+95℃）での測定技術を確立した。この測定技術を用いたペレットの経時変化の観察の結果、ガスハイドレートを用いたメタンや天然ガスの貯蔵・輸送技術の実用化させるうえで必須条件である大気圧の-20℃の温度下で、3 ケ月以上も天然ガスハイドレートペレットを保存可能でることを明らかにした。（H. Mimachi et al., *Energy Fuels*, 29, 4827, 2015）

今後、従来のマクロ（数 mm～数 10μm）レベルにおける現象の理解から、ミクロ（数 10μm～数 10nm）レベルの挙動観察を可能にする計測技術の確立により、表面氷膜やガスハイドレートと氷の界面構造の情報、結晶粒界の情報といった、より詳細な非破壊観察が求められている。ミクロスケールの現象を理解することは、より安定なガスハイドレートペレットの製造法の確立に向け重要な課題である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

これまでのガスハイドレートの位相コントラストＸ線 CT 測定から、ガスハイドレートペレット表面の数 10μｍ 程度の氷膜の形成がガスハイドレートを安定に貯蔵するうえで重要であること、また、ペレット内部の数μm 以下の空隙の存在も安定性に影響することが示されている。

KEK 放射光における新たな展開として、これまでのＸ線干渉法、屈折コントラスト法の更なる高空間分解能化を図ることは当然ながら、低エミッタンスの高輝度光源の利点を活かし、他の位相コントラストＸ線 CT 測定による高空間分解能測定が可能となる。これにより、従来のＸ線干渉計を用いた非常に高い密度分解能での測定（空間分解能：数 10μｍ）と、高い空間分解能（数 10nm～数μｍ）測定とを併用したマルチスケール測定が期待される。ガスハイドレートと氷等の界面の詳細な評価や、内部構造の不均一性などの局所情報の取得が可能となれば（図１）、ガスハイドレートの生成・分解機構解明、さらには、分解制御や貯蔵を行うための重要な知見が得られる。

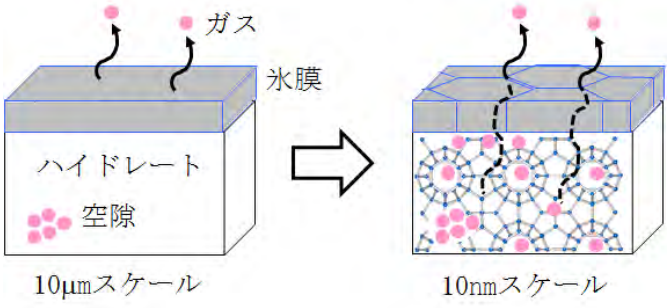


図１表面を氷で覆われたガスハイドレートの模式図

また、このような高い空間分解能での位相コントラストＸ線 CT 測定は、天然堆積物中のメタンハイドレートの非破壊観察への応用も期待でき、堆積物の空隙レベルでの新たな測定技術は、日本のみならず、中国、韓国、インド等、世界各国に資源利用が期待されている天然ガスハイドレートの、資源量評価に貢献する世界唯一の装置となりうる。

最後に、「水」は非常に身近な存在であり、もっともありふれた物質の一つである。しかし、微細構造中に存在する水や氷を、非破壊で三次元的に可視化することは未だ容易ではない。日常生活にも欠かせない冷凍食品やアイスクリームなど、微細構造の中に存在する氷は、その品質に大きくかかわるものである。また、コンクリート構造物への水の浸透に伴うコンクリートの劣化も、コンクリート微細構造中における水の挙動を理解することが重要である。ここで述べてきたガスハイドレートの測定手法は、サブμm サイズの細孔中の水の凍結融解現象などの可視化を実現する技術であり、冷凍食品の更なる品質向上や、コンクリート構造物の耐久性向上など、水の凍結融解が問題となるような様々な産業にも貢献しうるものである。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

Ｘ線イメージング用ビームライン（縦型ウィグラー・二結晶分離型Ｘ線干渉計）
縦型回転 CT

6. 産業利用に着目したＸ線トポグラフィへの期待

（1）背景

現代の便利な生活を支える科学技術として半導体エレクトロニクスは欠かせないであろう。そのカギとなる材料はシリコン（Si）単結晶である。信頼性の高いデバイスを作成するには無転位の Si 単結晶が切望されていたが、1958 年にネッキングと言われる成長方法が Dash によって見いだされた。これによって Si 単結晶の無転位成長が実現され、大きなブレイクスルーを果たした。無転位は実現されたが、依然として結晶成長時に入る微小欠陥と不純物濃度変動は残存しており、これらがデバイス製造プロセスを経ることによって転位として現れ、これがデバイスへの悪影響を及ぼすことが多数発生した。これらの撲滅を目指して長年にわたり精力的に研究がなされており、多くの部分で解決している。品質・信頼性向上が実現できると、産業としては低コスト化が重要なテーマとなる。デバイス製造のコスト低下およびスループット向上には、基板の大口径化がきわめて重要な手段である。1960 年代初頭は口径 20mm であったものが、今や無転位で口径 300mm の大型 Si 基板が市場の主流であり、さらに口径 450mm もの大きさのものの開発がなされている。

Ｘ線トポグラフィは単結晶中の結晶欠陥を可視化する技術であり、上記のような Si 単結晶成長やデバイス製造プロセス開発において不可欠な評価手段である（川戸清爾、日本結晶学会誌 第 54 巻,第 1 号, p2-11, 2012）。結晶欠陥を観察する技術として透過型電子顕微鏡があるが、半導体単結晶のような低密度な欠陥の観察は追跡が困難である。それに対してＸ線トポグラフィでは広視野・非破壊で評価できる特徴があり、低密度な欠陥を評価するには最適な手法である。従来は実験室 X 線を用いての評価であったが、放射光の利用によってその①大強度②X 線エネルギー選択性③高平行性などの利点によって詳細かつ迅速な評価が可能になった。特に実験室では困難であった平面波トポグラフィや高エネルギーX 線の利用による高感度格子歪み観察が可能となり、微小欠陥の評価が可能となった。

1990 年代まで、Ｘ線トポグラフィのメインの観察対象は Si であった。次世代半導体の実用化、特にパワーデバイス向けとして Si よりも優れた物性を持つ窒化ガリウム（GaN）や炭化ケイ素(SiC)の高品質化が長年研究されていた。Si から SiC や GaN で置き換えたパワーデバイスを用いることができるようになれば、物性値から予測できる低損失化、機器の省スペース化・軽量化が可能になり、これまでよりも環境負荷低減が実現できる。しかし欠陥密度が多くトポグラフィでは評価不能であった。そんな中、2000 年代にトポグラフィでも評価可能なレベルの高品質な SiC 単結晶が作製可能となるブレイクスルーがあった(D. Nakamura et al, Nature, vol.430, 26,p1009-1012,2004)。それを契機に、SiC 単結晶のＸ線トポグラフィ観察が世界的に盛んに行われるようになった。GaN については、光デバイスでは転位が高密度で存在していても発光するため結晶の高品質化はそこまで重要ではないとも考えられる。しかし、パワーデバイスではやはり転位などが信頼性低下の影響を及ぼすため、高品質化が求められている。SiC と同様に、近年 GaN 基板でもトポグラフィで観

察可能なレベルの高品質な基板が現れ、今後トポグラフィによる研究が活発になると考えられる。

これまでは半導体の結晶性評価のための X 線トポグラフィについて述べてきたが、X 線トポグラフィの観察対象は半導体に限らず転位密度が 10^5/cm^2 以下の単結晶である。これまで、VTR 磁気ヘッド材料の開発、圧電素子に用いられる強誘電体のドメイン構造、タンパク質単結晶などが観察されており、それぞれの機能発現についての理解が進んでいる。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

今後、SiC や GaN のパワーデバイス開発は、Si と同じプロセスを経ると考えられる。つまり、基板の更なる高品質化、各結晶欠陥のデバイスへの悪影響の調査及び低減方法の検討、コスト低減・スループット向上に向けた基板の大口径化である。

それを X 線トポグラフィが支える技術として成立するには以下のことが要求される。

① 微細な欠陥を検出する精度（高歪感度）
② 基板大口径化をカバー（大面積）
③ スループット向上（迅速・お手軽感）
④ 高空間分解能かつ大面積の二次元検出器
⑤ 白色 X 線と単色 X 線

① 微細な欠陥を検出する精度（高歪感度）

SiC や GaN で問題になる転位の中には貫通刃状転位がある。この転位周りの歪みは 30 μrad 程度である。これを通常の Berg-Berrett 配置トポグラフィで評価を行うには、X 線にそれと同等もしくはそれより高い平行性が必要となる。そのためには、光源サイズが小さく、エミッタンスがある程度小さな光源から発生した X 線を二結晶分光器で単色化した X 線が適している(10keV での Darwin 幅は、分光器 Si111 の場合 26μrad、Si311 の場合は 11μrad)。単色性は後述するが極端に高い必要はなく⊿E/E～10^{-4}程度が上記転位を検出できかつ大きな面積でトポグラフを観察が可能になる。またフラックスについては、平面波トポグラフィを行うには単一もしくは複数の非対称反射で X 線を平面波化するため、強度減衰が生じる。そのためフラックスは 10^{10}photons/s 以上が必要になる。スラックスが低い場合、測定時間が長くなり後述のスループットに問題があり、さらに時間的揺らぎが感動低下を招いてしまう。

② 基板大口径化をカバー（大面積）

前述のように、SiC や GaN 基板も大口径化が進んでいる。現状でも SiC は 6 インチもの大きさが市販されている。基板全体の評価を行うと考えると、Berg-Barrett 配置のすれすれ入射条件を用いる場合でも、基板と同等の幅の X 線面積が必要である。具体的には、6 インチ SiC 基板（4 度オフ）の評価をワンショットで 11-28 反射で行うには、3mm×150mm の X 線面積が必要である（8.53keV, 入射角 1°）。それよりも小さな面積の X 線を用いてスキャンする考え方もあるが、たいていの場合基板に結晶格子面の反りがあるため一度に

全面を観察することが難しいことが多い。大きなビームを用いる場合は、パラメータは入射角の 1 軸となるが、小さなビームを用いた場合は入射角とスキャン並進軸の 2 軸（もしくは 3 軸）となり、測定時間が大幅に長くなる。後述するが、産業界が求める X 線トポグラフィ技術としては、X 線面積の小ささは大問題となる。非対称反射を用いてビームサイズの拡大を行う方法もあり①にとっては良い方法であるが、X 線の平行性が向上して回折条件が厳しくなりすぎて観察エリアが狭くなってしまうという弊害が必ずある。そのため標準的な二結晶分光器で単色化された⊿E/E～10^{-4} 程度で 10^{10}photons/s 以上のフラックスを持つの大面積の X 線が適切である。

将来的には SiC も 8 インチ、もしくはそれ以上になると予想でき、X 線トポグラフィの産業利用にとってはビームサイズの大面積化が重要である。現状でも SPring-8 BL20B2 では 20mm×300mm の単色 X 線が得られ、口径 300mm の Si 基板の評価がワンショットで行えるユニークなビームラインである(S. Kawado et al, J. Synchrotron Rad., 9, 166-168, 2002)。SAGA-LS BL09 でも産業界のニーズに応え 6 インチの基板が測定できるようなビームサイズ拡大の改造が行われている。

③ スループット向上（迅速・お手軽感）

前述①で述べたように、SiC や GaN で注目している転位をラボで測定するのは困難である。放射光での測定が必須となると、1 回のビームタイムでどれだけの基板を測定できるか、スループットが産業利用にとっては重要となってくる。②で述べたビームサイズの大きさがそのスループットの一つのパラメータと考えられる。また、X 線トポグラフィ実験は他測定方法に比べて自動化が難しい。完全自動化は困難であるが、ある程度の自動化が産業界にとっては大いに歓迎されることである。

④ 高空間分解能かつ大面積の二次元検出器

現状では X 線トポグラフィの空間分解能は記録媒体に依存するところが多い。X 線トポグラフィで観察したい欠陥像は数ミクロン程度とかなり小さいことが多い。これを 6 インチ基板全面で評価したいというニーズである。現在、世の中のイメージセンサの発展があり、様々なデジタルの二次元検出器が存在する。サブミクロンの空間分解能を持つものから、数十センチ角の大面積をもつものまでさまざま存在する。しかし、X 線トポグラフィでは高分解能かつ大面積の二次元検出器が必要となる。デジタルの検出器では、高分解能もしくは大面積という状況で、両方を同時に満足することは困難である。そのような高分解能かつ大面積の評価を行う場合、現在でも X 線フィルムや原子核乾板などのアナログ検出器を用いている。アナログ検出器を用いなければならない点が、③の弊害ともなっている。リアルタイムで観察できる高分解能かつ大面積のデジタル検出器が開発されれば、効率的な実験が可能になると考えられる。

⑤ 白色 X 線と単色 X 線

これまでは単色 X 線を想定した内容であり、転位像を細かく高精度で評価可能である。転

位構造を決定するために行われるトポ-トモグラフィ観察を行うには、白色 X 線の利用が有効である(S. Kawado et al, J. Phys.D:Appl. Phys. 38, A17-A22, 2005)。

（3）必要とされるビームライン・実験設備

・X 線トポグラフィ用実験ビームステーション 1（大面積単色 X 線）
　ビームサイズ 150mm（幅、6 インチ対応を想定）以上。単色性⊿E/E～10^{-4}、
　フラックス 10^{10}photons/s 以上
・X 線トポグラフィ用実験ビームステーション 2（白色 X 線）
・高分解能かつ大面積デジタル二次元検出器
・写真現像環境

7. Ⅲ-Ⅴ族窒化物光半導体デバイスにおける 10nm 領域の光物性解明に向けた高空間分解・高時間分解 X 線複合評価

(1)　背景

Ⅲ-Ⅴ族窒化物半導体の中で InGaN 系半導体を中心とする材料は，LED（Light Emitting Diode）や LD（Laser Diode），太陽電池などのオプティカルデバイスのキーマテリアルとなっている。特に，LED 光源について言えば，照明やバックライトを始めとする，環境に優しいグリーンデバイスとして世の中に充分浸透しており，化石燃料の節約と温暖化ガスの削減に大きく貢献している。これは，1993 年に青色 LED が実用化されて以降，世界中で精力的な研究が進められ，急速なスピードで発光効率の向上，高出力化が実現してきた事に依存する。しかしながら現在においても尚，温度特性（ジャンクション温度が上昇した際の効率低下）や，ドループ現象（高電流注入時の効率低下）などの課題が残されており，それらを解決した光デバイスを実現する事が強く望まれている。

LED は，電子（electron）と正孔（hall）が発光層に注入され結合する事により発光するが，前述した光デバイスを実現するためには，発光層として用いられる InGaN 層の成長状態を詳細に把握する事が重要であり，その状態のわずかな差が，光物性に非常に sensitive に影響を及ぼしている。

従来発光層の評価には，TEM（Transmission Electron Microscopy）や，SIMS（Secondary Ion Mass Spectrometry）などが広く用いられて来た。TEM は，断面構造を高分解能で観察する事が可能であり，発光層の膜厚や組成，結晶欠陥の様子などについても評価する事ができる非常に有力なツールである。しかしながら試料作製に手間がかかる，奥行き方向の情報が得られない，破壊測定である，等の問題がある。一方 SIMS の場合は，深さ方向の分布評価を専門とし，非常に高感度で不純物や軽元素の濃度勾配を評価する事が可能であるが，こちらも破壊測定である事，また面内の 2 次元分布の評価には難しい解釈を伴う，などの問題が内在している。

そこで我々は，発光層である InGaN 層の面内 2 次元の成長状態を直接的に，かつ，視覚的に確認する事を目的とし，放射光マイクロビーム X 線による In の蛍光マッピング測定を実施した経験を有する。また ex-situ の PL（Photo Luminescence）測定により，InGaN 層からの発光波長特性を取得し，マイクロビーム蛍光 X 線マッピングの結果と併せて評価する事で，新たな知見が得られる可能性を検証した（図１）。

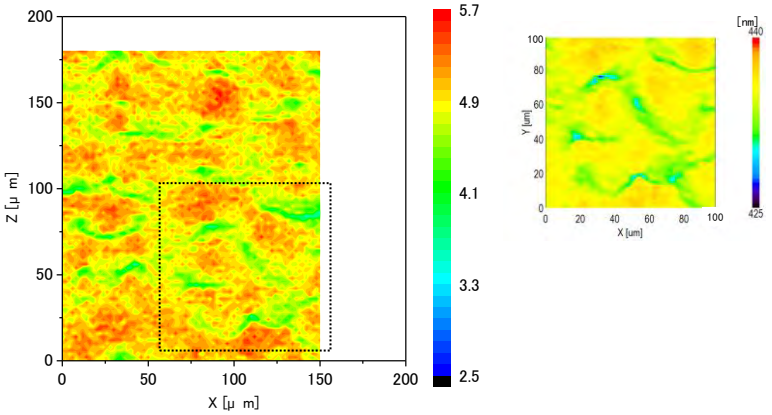


図１　放射光マイクロビーム X 線を用いた In_L 線の蛍光 X 線マッピング（左），同図内点線で囲まれた領域における ex-situ PL 波長マッピング（右）結果

この様に，放射光マイクロビーム X 線を用いた In_L 線の蛍光 X 線マッピングと同一領域における PL による波長マッピング結果を併せて評価する事により, マイクロ～サブマイクロ領域における成長状態と光学特性との相関関係を得る事が可能になった。しかしながら，一方，光学評価の分野に関しては，既に SNOM（Scanning Near-field Optical Microscopy）-PL などの手法を用いる事により，nm 領域における評価が可能となっており，nm レベルにおけるキャリア拡散ダイナミクスなどの光物性について，幾つか明らかにされてきている。そこで，X 線評価に関しても，その同レベル領域における，同位置箇所測定が望まれ，それを実現する事で nm 領域における成長状態と光学特性の相関関係を明らかにする事が期待される。

（2） KEK 放射光における新展開と期待される成果

本研究が目指すターゲットに関して，最も重要視されるのが微小領域を測定できる事であり，集光ビームのサイズである。前述の様に nm レベルの領域について評価可能になる事が必要であり，そのためには KEK 放射光における 10nm プローブが必須となる。10nm の微小プローブを用い，試料を 2 次元走査する事で，まずは InGaN 発光層の In 蛍光マップを 2 次元で取得する事が可能となる。この時, In_K 線の蛍光 X 線エネルギーは 24.21keV 程度であるが，入射 X 線の散乱の影響などを考慮し 40-50keV 程度のエネルギー範囲において，10nm 集光ビームが実現できる事が望ましい。In_L 線の蛍光 X 線エネルギー（3.29keV）を利用する場合，或いは他の軽元素をモニターしてマッピングを実施する事も考えられ，必要に応じて大気中の Ar の影響を最小限にするため雰囲気を He に置換する事が可能なチャンバーを有する事が望まれる（表 1)。

表1. Fluorescence X-ray energy of related elements.

In_Kα1	24.21 keV
Ga_Kα1	9.25 keV
In_Lα1	3.29 keV
Ar_Kα1	2.96 keV

また，InGaN 発光層は膜厚が薄く，波長に依って組成が 10～20%程度となる試料が多くなる事から，微量の蛍光 X 線を測定できる事が必要である。このため大口径の検出器や多素子の検出器の導入が望まれる。

次のステップの発展系としては, 以下の事が期待される。従来の研究では FIB（Focused Ion Beam）によるマーキングを試料に施す事で，オフラインで測定した ex-situ 光学特性と同一箇所の蛍光 X 線マップの結果を比較するに留まっている。KEK 放射光に於いては同位置で in-situ の PL 測定が可能となるような SNOM システムの搭載が期待される。と同時に種々の in-situ ステージを準備する事で，LED への通電，加熱，冷却，等々の状態を作り出し，Pump-Probe 測定システムにより，各状態における高空間分解能蛍光 X 線マッピング分析と

in-situ の PL 測定が時間分解で実現できる事となる。

更に，多軸 X 線回折系を同時搭載したシステムが構築できれば，結晶状態や欠陥，各結晶ドメインなどとの相関についても併せて取得可能である。

これらが実現すると，Ⅲ-Ⅴ族窒化物光半導体デバイスにおける，数 10nm レベル領域の光物性解明，発光機構解明に向けた，高空間分解，且つ高時間分解の X 線による複合評価（蛍光 X 線強度マップ，X 線回折歪みマップ，XAFS 評価等）を高精度で行う事が可能となる事が期待される。

(3)　必要とされるビームライン・実験設備

・ビームライン

集光サイズ　10～50 nm

フラックス　～ 10^{11} photons/s

エネルギー範囲　～ 50 keV

分光器のエネルギー分解能，エネルギー掃引（スピード）

・実験設備

高精度ゴニオステージと多軸高速回折計

二次元検出器

大口径 SDD 検出器，多素子検出器

He 置換が可能なチャンバー

時分割 SNOM-PL／蛍光 X 線同期システム

8. 電極中のナノスケール多次元不均一状態観察の新展開

(1) 背景

自動車産業において、電池はキーテクノロジーであり、特にリチウムイオン電池の利用によって、様々な課題が解決されつつある。リチウムイオン電池の静的構造解析に関してはラボ系装置、放射光施設、中性子施設などで積極的に行われてきており、多くの課題を解決してきた。このように静的平均構造に関しては数多くの研究がなされてきたが、未だに動的界面反応機構解明に関しては分からないことが多く、課題を残している。また、実際のリチウムイオン電池は電極内で電極面内方向、深さ方向で様々な粒子表面、粒子内において不均一反応が起こっていることが想定されている。現状、時空間分解能（秒、μm オーダー）で測定が可能であるが、各粒子内、界面を時分解で議論するには更に高い時空間分解能が必要である。また、リチウムイオン電池を構成している材料の物性を議論する場合、現状のエネルギー分解能（eV オーダー）では不充分であることは明確である。更にリチウムイオン電池は軽元素から重元素まで多岐にわたる元素によって構成され、特に酸素は電池の安全性に深く関わっている。また、これらの元素はサブ%オーダーの添加材、コート材として用いられ電池特性に大きく影響を与えることはよく知られている。しかし、軽元素から重元素、またこれらの微量元素に関して大型施設を用いても十分に議論されていない。

我々は電池の Operando 測定を行うことで動的に不均一な電極中の組成、価数、電子状態を電極面内方向、深さ方向μs、nm オーダーで観察する。また、リチウムイオン電池を構成する軽元素から重元素、またそれらの微量添加材を統合的に検討する。最終的にはこれらの動的な結果から電池特性（高容量、出力、耐久性、安全性）と不均一な電極内の粒子内、界面、表面状態、フェルミ準位近傍の電子構造、局所的な Li イオン拡散係数、酸素挙動を考察し、電池特性改善の指針を方向づける。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光は高輝度なナノ集光 X 線を用いることで空間分解能 10nm 以下、時間分解能μs オーダー、またエネルギー分解能 10meV 以下であることから上記の課題は解決可能である。

具体的には、高コヒーレント X 線フラックスにより、コヒーレント X 線回折イメージング（CDI）が可能となる。CDI による ptychography によって、空間分解能が実際のスポットサイズより更に小さく数 nm となり、リチウムイオン電池の電池性能を大きく左右する電極内の正極、負極界面に形成される相関固体電解質（SEI）の構造解析が可能となる。また、粒子内における単一ドメインを選択的に調べることが可能であり、例えば粒子中心と粒子表面付近の構造の違いを議論することが可能となる。

XAFS は電池反応解明に成果をあげており、KEK 放射光でも重要な技術となる。高空間分解能 10nm で 3 次元 CT＋XAFS 測定することで、3 次元での化学状態の観察ができる。

正極材料と導電助材の分布、正極材料内での各元素の分布などを考察できる。更に高コヒーレント X 線を活かした ptychography を併用することで、分解能 10nm 以下を議論することが可能となる。これらの測定をμs レベルの時分解能で測定できれば、粒子内、粒子表面での間接的に Li イオン拡散挙動が考察できる。また粒子内の単一ドメイン毎の複数遷移金属の価数分布が評価できる。

軽元素、特に安全性に深く関わっている酸素脱離反応に関しては、Operando 軟 X 線分光測定が有効となる。次期 KEK 放射光では、高輝度なナノ X 線集光によって電極内のマッピングが可能となる。また、電解液中の硫黄を含む添加剤などを議論するにも役立つと期待される。

リチウムイオン電池では Li イオンの挙動観察が重要になるが、現状、X 線で直接 Li を観察する方法は改善されつつあるが、未だに困難である。そこで中性子の併用が効果的である。例えば中性子ブラッグエッジイメージングの CT 観察によって、3 次元の Li イオンマッピングを行うことができる。しかし、中性子は集光が難しく、現状の空間分解能は 50μm 程度である。残念ながら中性子は局所的な不均一性、界面反応を議論できる空間分解能ではない。そこで XAFS-CT、CDI- ptychography を併用することによって遷移金属、酸素の情報から Li イオン状態を間接的に想定することが可能である。

最終的には KEK 放射光、中性子で得られた情報を元に、粒子内、粒子表面での Li イオン拡散、界面反応モデル、結晶構造モデルを想定し、第一原理動力学計算を「京」などのスーパーコンピュータを用いて Li イオンの挿入脱離反応を計算し、現状の電池性能のボトルネックを明確にし、材料開発、電池設計にフィードバックする。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- 10nm~数μm で集光可能なビームライン
- 高コヒーレント X 線（軟～硬 X 線）を有するビームライン
- コヒーレント X 線回折イメージ用実験ビームステーション
- XAFS-CT（軟～硬 X 線）用実験ビームステーション
  （基本コヒーレント X 線回折イメージと共用ステーション）
- 大型高分解能 2 次元検出器
- nm レベルでの 3 次元走査ステージ
- 10meV 分解能を有する分光器
- 電気化学特性評価、反応環境下測定実験ビームステーション
- 3 次元 CT データ、時分解データ等大容量データ解析装置

9. マイクロおよびナノビーム測定による外部因子印加時の製品の状態変化解析

(1) 背景

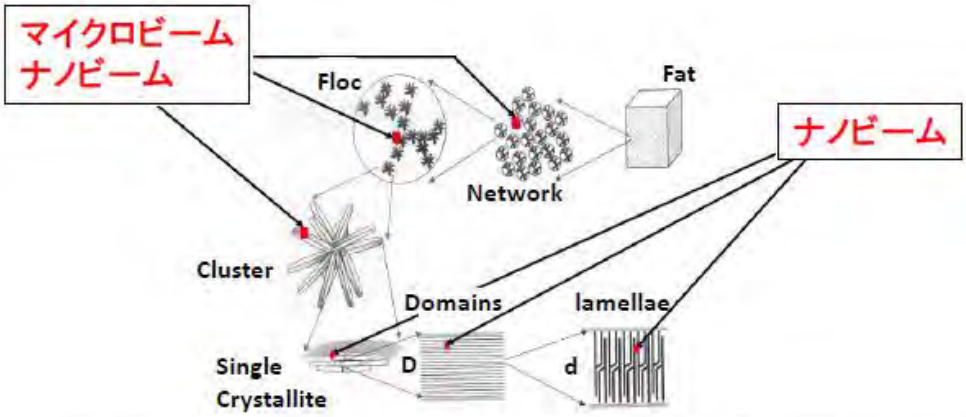
現代社会では、大量の物質を生産し消費している。この時の生産時のキーワードとしては、「省エネ」「エコ」「安価」「安心・安全」などであるが、このような状況下で、物質科学研究として、大きく二つのことが行われている。一つは、物質そのものの構造や物性・反応などの研究を行う基礎研究である。もう一つは、必要とされる性能を引き出すための品質の改良などを、他の物質との組み合わせや物質そのものの特性を生かすように、加熱・加圧・せん断応力印加・磁気印加など、物質にさまざまな加工を施して物質の特性を引き出す応用研究である。産業利用においては、この応用研究が盛んに行われているが、近年、応用する前に物質そのものの物性や分子構造などを解明する基礎研究の試みも盛んに行われるようになっている。

このように、基礎・応用さまざまな手法を用いることにより、試料をよりリアルに、現実的に捉えることが可能であり、現実における物質や製品の状態を把握することができれば、将来的な高品質の製品開発につながると考えられる。またその波及効果として、応用研究が盛んになれば基礎研究も今までよりも充実することが期待される。

こうした現状において、放射光の果たす役割は極めて大きく、これまでも基礎・応用両面で多岐にわたる研究が行われている。しかし、放射光源は強くても、ユーザーに必要とされるビームラインが提供されていない（ユーザーフレンドリーでない状況）。たとえば、Photon Factory においては、物質の局所構造を探る X 線回折測定用のマイクロビーム光源が提供されておらず（かつて BL-4A にて不十分ながら提供されていたが、XAFS のみの運用となり、代わりの光源が保障されていない）、SPring-8 に頼らざるを得ない。またナノメートルレベルでの表面構造の解析のための微小角入射による小角散乱（GI-SAXS）の光源 BL-15A2 においても、ユーザーの要望に対して十分にビームタイムが提供されているとは言い難い。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

上記の問題は、ユーザーからの要望が多岐にわたって数多く存在し、ビームライン担当者が、これまでのように対症療法的に対応しようと試みても、施設の持っている本来の許容量には限界があることに起因する（1982 年の稼働以来、すでに 35 年近くが経過した施設なので止むを得ない）。KEK 放射光においては、マイクロビームあるいはナノビームを充実させ、ナノレベル・分子レベルにおける物質の構造変化や物性変化の解明、および物質の加工段階での現象のナノスケールでの解明が飛躍的に進展することを期待する。とくに放射光ナノビームの利用を主とする専用ビームラインは、未だ国内外になく、実現すれば世界初の快挙となり、放射光ナノビームを用いた相応の成果を上げることができれば評



N. Acevedo and A. G. Marangoni, *Crystal Growth & Design.* **10**, 3327-3333(2010).
の図を改変.

図１　油脂の階層構造

判となり、国内外から放射光ナノビームを用いたさまざまな研究プロジェクトが持ち込まれることは間違いない。

たとえば食品においては、チョコレートやバターのような油脂結晶は、それぞれ構成する物質の階層構造が知られている（図 1)。これらの階層構造のそれぞれの各階層に、図１に示すように、マイクロビームやナノビームを照射することにより、各階層の詳細な構造を解明することが可能となる。

油脂の階層構造のより詳細な構造を知ることにより、たとえば以下に示す、さまざまな産業利用に活用することが期待される。

（１）　水中に油滴が浮遊していたり、その逆に油中に水滴が浮遊しているいわゆるエマルション状態は、広く食品に応用され、ミルク・マヨネーズ・バター・マーガリン・アイスクリームなどがその代表例である。図１との関連では、エマルションの中の一つの油滴が図 1 中の Fat に対応する。また、近年の健康志向の拡がりに乗じて、さまざまなサプリメントが市販されている。これらは、ナノサイズのカプセル中に、ポリフェノールやカテキンなどの抗酸化剤やコエンザイム Q10 などの難溶性で胃酸などに弱い成分を封入し、体内に導入・吸収されることを目指して開発研究が行われており、すでに一部の商品は市販されている。また、エマルションに類似したソリッド・リピッド・ナノパーティクル（ＳＬＮ）と呼ばれている、新しいドラッグデリバリーシステムの研究・開発が旺盛に行われている。

これらサプリメントやＳＬＮの水滴・油滴の直径は、20～100 ナノメートルのため、マイクロビームでは解析が不可能で、どうしてもナノビーム、それも 50 ナノメートル以下、理想的には、数ナノメートルのビームサイズが要求される。

（２）　マーガリン類の固体脂成分のつくる油脂結晶ネットワーク構造は、従来、電子顕微鏡観察により評価され、油脂結晶ネットワーク構造の緻密さが、マーガリンのスムーズな広がり・伸びに大きく影響すると考えられてきた。この緻密さは、見た目で

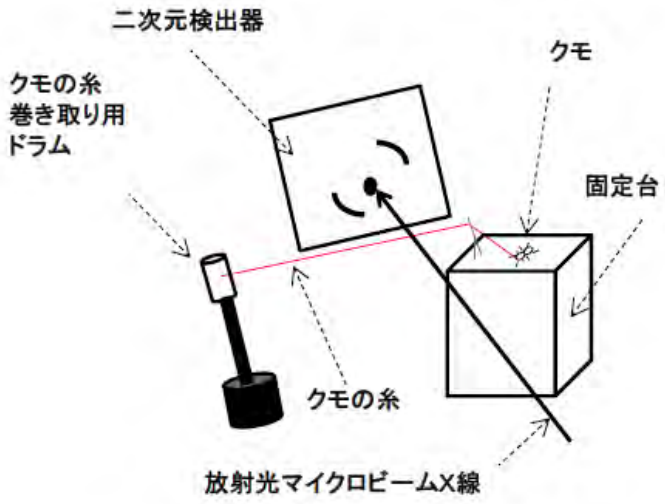
評価されるのみであったが、この油脂結晶ネットワーク構造の局所構造解析を行うことにより、油脂結晶の結晶化度や分布を定量的に評価することが可能となり、より的確なマーガリンの品質評価が可能となる。このようなマーガリン類の固体脂ネットワークを構成する網（油脂結晶で構成されている）のサイズは、100 ナノメートル程度であり、ナノビームを用いなければ解析は不可能である。

また、産業利用とは、いささか趣旨が異なるが、特許戦争に関してもナノビームは極めて有効な役割を果たすことが期待される。すなわち、現在、特許を取得している製薬メーカーのつくる医薬品と、ゼネリック製薬メーカーのつくる医薬品との間で、双方の医薬品の品質・類似性をめぐっての特許侵害の有無を争う、いわゆる特許戦争が頻発している。この争議では、対象となる医薬品の品質評価が、勝敗を決する最大の争点となり、より詳細な分析が求められ、時には X 線回折測定の一つの回折ピークの評価が争点の鍵となり、厳密な測定と評価が求められることもあり得る。この点で、ナノビームによる X 線局所構造分析および局所 XAFS 評価は、効率的に評価を下す強力なツールとなり、裁判に向けられる多大な労力の削減につながる。

さらに、光源が提供されるとともに、物質の加工における状態変化を捉えるための周辺機器の設置が必要である。具体的には、たとえば、加熱・冷却装置、せん断応力印加装置、高圧印加装置、流れ（フロー）印加装置、などの整備が不十分であり、現状ではすべて使用する各ユーザーに任されている。すなわち、放射光ユーザーは測定したい試料とともに試料周りの装置を持参し（あるいは前もって送り）、各自のビームタイム期間中にそれらをセットし、テスト後に初めて測定を行っている。また、物質そのものの構造や物性を測定する基礎研究においては、X 線のみならず、熱測定や FT-IR、粘弾性測定装置、表面張力測定など他の測定との組み合わせ（同時測定）も、より質の高い確実な知見を得るうえで極めて重要であるが、このような同時測定が可能なように常設されているビームラインは現状では見当たらない。希望するユーザーが、例えば、DSC と X 線回折測定の同時測定や顕微鏡観察と X 線回折との同時測定を各自のビームタイム期間中に調整して測定を行っているのみである。

したがって、新しい KEK 放射光では、せん断応力印加時や射出形成時の物質の状態などのそれぞれの時間変化に伴う局所での状態変化をナノビームにより測定する。

図 2 は、クモの糸の射出時からの構造形成の様子を測定したマイクロビーム時分割 X 線回折測定の様子を示した模式図である。図 2 中のクモの糸巻き取り用ドラムの回転数を調節することにより、クモから射出された糸の初期からの時間経過が測定可能である。図 2 のような射出形成装置のみならずせん断応力印加装置、高圧印加装置や流れ印加装置、さらには加熱/冷却印加装置をビームラインに常設することにより、物質の製造現場での状態変化をよりリアルに測定することが可能となる。とくにビームラインに常設されれば、測定で KEK 放射光に出向く前の装置の開発や持参の手間を省くことができる。



C. Riekel and F. Vollath, *Int'l. J. Biol. Macromol.* **29**(3), 203-210 (2001).
の図を改変.

図 2　射出させた蜘蛛の糸の放射光マイクロビーム X 線回折測定

また、実験で放射光施設に出向いた後も、ビームタイム時に装置をセットする手間を省くことができ、貴重なビームタイムの実験準備のロスを最小限にとどめることが可能となり、効率的な測定に大いに寄与すると期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・ナノおよびマイクロビーム X 線回折用実験ステーション（小角/広角同時測定）
・微小角入射による小角散乱（GI-SAXS）実験ステーション
・DSC、顕微鏡観察、FT-IR、ラマン散乱、粘弾性測定、表面張力との同時測定実験ステーション
・小角および広角 X 線回折同時測定実験ステーション
・上記の同時測定ステーションに、下記の実験設備を組み入れる。
射出形成・せん断応力印加・高圧印加・流れ印加装置・加熱/冷却印加の実験設備

10. 金属材料のミクロ組織平均物性の予測による材料設計

(1) 背景

金属中の添加元素の役割（固溶、析出、偏析）の把握や、微細な組織（母相の形状や析出、偏析、転位構造）と材料特性の相関、及び発現の把握は金属材料の高機能化に不可欠な情報である。例えば、金属中の添加元素は鉄鋼ならば重量分率で ppm オーダーの添加量から強度などの特性へ大きな影響を及ぼす。しかし現状では、金属中の Si, Mg, O, N, C, B, H などの微量添加元素の状態分析や、鉄鋼中の不均一組織の構造解析（例えば、多結晶で分散する鉄の格子定数分布）などは既存の計測手法を用いても、強度や空間分解能が足りないため測定困難である。不均一なミクロ組織が材料物性に与える影響を深く考察できるようになれば、高付加価値な金属材料開発の発展が期待できる。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光の高輝度光を利用した軟 X 線 XAFS、軽元素の異常分散を利用した軟 X 線回折・SAXS、状態選別 XAFS（RIXS）、マイクロ組織の回折イメージングなどにより、上記測定が可能になると期待される。鉄鋼中のマトリックス固溶状態と粒界に偏析（＜10nm 層）した軽元素の状態分析へのイメージング＋XAFS 適応や、Al 合金中に微量に析出（数 nm）する Mg や Si 化合物への A-SAXS 適応が考えられる。

また、CDR サイエンスケースでも複数記載があるが、膨大なデータの解析技術（機械学習・ビックデータ処理）には大いに期待したい。特殊な専用装置開発は結構であるが、産業利用するためには特殊技術の産業界への宣伝活用や結果が出るためにサポートも欠かせない。官学からの産業側へのアプローチにも期待したい。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・アンジュレータ光源の軟 X 線回折・小角：1keV～5keV
・アンジュレータ光源軟 X 線マイクロ XAFS：B 以降
・マイクロ回折 3D イメージング（格子定数～ひずみの空間分布解析）
・高速データ解析施設とソフト開発

11. 産業利用の観点から見た磁性材料の放射光利用における期待と課題

(1) 背景

磁性材料、特に、永久磁石材料では、保磁力支配要因の解明が重要な課題の一つである。この問題にアプローチするためには、数 nm 程度の薄い粒界相の磁性から、複数の結晶粒が関与する数～数十μm の磁化反転挙動までを、組織と関連付けながら理解していく必要がある。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光計画では硬 X 線と軟 X 線の各特徴を使い分け、局所的な磁性や磁化反転過程を構成元素と関連付けながら系統的に実験して結果が議論できるような計測システムになることを期待している。また、測定中に温度を変えたり外部磁場を付与できるなど外部の環境を制御できることも、放射光の強みであると考えている。

もう一つの大きな期待は、多相のサンプルから優れた物性を有する新しい相（化合物）を発見できる手法の確立につながる技術がで構築されることである。多くのサンプルを評価する必要があることから、ハイスループット計測技術が重要となる（それでもマシンタイムが限られていることは課題となる場合が少なからずあるだろうが)。その一方で、例えば透過光を用いる場合には試料厚さに制約が生じる、といった放射光特有の課題もあり、これらの問題が個々の民間企業が期待するアウトプットを出すうえでどの程度問題になるのかを的確に把握しておく必要がある。なお、ハード面の整備のみに意識が行きがちだが、産業界に広く活用される場合には、実験およびデータ解析のサポート体制、ならびに（事前の諸手続きを含め）できるだけ企業に実験以外での時間を取らせない仕組み作りが重要であることを強調しておきたい。これらは産業界からみて革新的な技術が提供されることと同程度に重要である場合が多いと考える。

いずれにせよ、個々の企業の所在地から離れていない場所に放射光施設がありアクセスしやすいこと、運転休止期間を調節することで、国内のどこかで実験が可能な状況になっていること、など（特に後者）は、我が国の民間企業が放射光を製品開発など実用化に近いフェーズで積極的に活用する場合に重要になると考える。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

集光光学系で 10nm ビーム、及び同程度の空間分解能。

ダイヤモンド等の位相子により左右円偏光スイッチングが可能。

超伝導磁石(10T 以上)と組み合わせた実験。

ハイスループット測定が可能。（試料交換の自動化、測定の省人化など）

産業利用

＊担当一覧

監修：米山　明男（株式会社日立製作所）

執筆分担：（ただし、公開を希望されない方を除く）

1　米山　明男（株式会社日立製作所）

2　宮口　郁子（田辺三菱製薬株式会社）

3　米山　明男（株式会社日立製作所）

4　高松　大郊・米山　明男（株式会社日立製作所）

5　竹谷　敏（産業技術総合研究所）

6　山口　聡（株式会社豊田中央研究所）

7　榊　篤史・川村　朋晃（日亜化学工業株式会社）

8　伊藤　孝憲・今井　英人（日産アーク株式会社）

9　上野　聡（広島大学）

７．光源加速器

１．KEK 放射光計画の光源加速器の概要

KEK 放射光計画の要となる光源リングはエネルギー3 GeV の電子蓄積リングである。現在世界で稼働しているどの電子蓄積リングをも凌駕する低エミッタンスであることを最大の特徴とする。低エミッタンス化は最新の工夫を凝らした Multi-Bend Achromat (MBA) ラティスによって実現されており，蓄積リングの周長は約 570 m と中規模第三世代リングと同等の大きさを維持しつつ自然エミッタンスは 0.13 nm rad と，従来の第 3 世代リングを一桁凌ぐ性能である。蓄積電流値は 500 mA を可能とするが，バンチ内散乱の効果で実効的なエミッタンスは 0.31 nm rad まで増大すると見積もられる。この世界最高の低エミッタンスを活用して，真空紫外から 10 keV 程度の硬Ｘ線までの波長領域で世界最高輝度のアンジュレータ光源を実現することができる。

比較のために世界で稼働中の第三世代放射光源，主な新光源計画の周長とエミッタンスを図 1.1 にプロットした。縦軸はエミッタンス，横軸は E^2/C^3 (E :エネルギー，C :周長)である。ラティスの形式が同類の場合，エミッタンスは E^2/C^3 にほぼ比例する傾向を示す。1990 年代半ばから 2000 世界年代にかけて世界各地に数多く建設された第三世代リングは，その多くが Double Bend Achromat (DBA)ラティス（小型リングに一部 Triple-Bend Achromat もあり）によって数 nm rad の低エミッタンスを実現したリングであり，この図では右上方の集団としてプロットされる。2014 年から 2015 年にかけて最新の第三世代リングとして完成した台湾の TPS ，米国 BNL の NSLS-II も DBA ラティスを採用しており，NSLS-II は周長約 800 m まで大型化し，ダンピングウィグラーによる強力な放射減衰効果を併用することで sub nm 領域の低エミッタンスを実現している。

スウェーデンの MAX-IV は 2015 年に建設を完了し立上げを行っている 3GeV リングであるが，世界で初めて MBA ラティスによって sub nm の低エミッタンスを実現した。ブラジルで建設中の SIRIUS，東北放射光計画 SLiT-J もそれぞれ MBA ラティスを採用している。

KEK 放射光計画では，ESRF のアップグレード計画で立案された Hybrid Multi Bend Acromat (HMBA) ラティスを基本とし，1 セルあたり 7 つの偏向電磁石で構成されていたラティスを，セルの中心の偏向電磁石を二つに分割して計 8 つとし，短い直線部を挿入する改造を加えたものである。新たに挿入した 1 m 級の直線部には十分な輝度と光束を発生する短周期アンジュレータを設置してビームラインを展開することが計画されている。

HMBA ラティスでは，もはや純粋な一様磁場の偏向電磁石ではなく，2 種類の Longitudinal Gradient Bend と 2 種類の機能結合型ベンド（四極電磁石と偏向電磁石の複合磁場）を配し，またエネルギー分散関数のバンプ，六極電磁石の配置の工夫によって極低エミッタンスと十分なダイナミックアパーチャを両立させている。

この HMBA ラティスを駆使して周長 570 m という，英国 Diamond や台湾 TPS などといった従来の第三世代リングと同等の大きさで，世界最高の低エミッタンスの実現を可能としている。つくば市の KEK キャンパスを想定したとき，周長 570 m の蓄積リングを光源と

する放射光実験施設であれば既存の建物や加速器に干渉することなく，キャンパス内に新規建設することも可能となる規模である。

20 セルの HMBA ラティスの各セルに 1 か所ずつある 5m 級の長直線部と 1 m 級の短直線部を用いて挿入光源ビームラインを，また最大の偏向磁場を持つ機能結合型ベンドを利用して臨界波長 4 keV の偏向電磁石ビームラインが計画されている。電子ビームの入射に利用するセルと高周波加速空洞を設置する長直線部を除いて，挿入光源ビームラインが 38 本~39 本，偏向電磁石ビームラインが 20 本の合計 58 本~59 本の放射光ビームラインが建設可能である。

挿入光源の章に記してある通り，真空紫外から 10 keV 程度の波長範囲で世界最高輝度のアンジュレータ光を発生できる。また特別に短周期の X 線アンジュレータを想定すると 5 keV 付近で最高輝度 10^{22} photons/s/mrad^2/mm^2/0.1%b.w. を達成することも可能となる。

エミッタンス 0.13 nm rad (or 0.31 nm rad)は，いわゆる回折限界波長 ($\lambda = 4\pi\varepsilon$)は 0.78 keV (or 0.32 keV)となる。実際にこの回折限界波長付近では非常にコヒーレント比の高い放射光が得られる。たとえば 1 keV の光のコヒーレント比は，長直線部の 5 m 級アンジュレータ光源を想定しとき約 25% (or 12%)に達する。コヒーレント比は PF リングを 2 ~ 3 桁以上上回るだけでなく，現在の SPring-8 の標準型アンジュレータビームラインをも全波長領域で一桁上回る。

HMBA ラティスを応用した KEK 放射光の光源リングのもう一つの特徴として低消費電力であることがあげられる。偏向電磁石による放射損失は約 0.3 MeV (150 kW at 500 mA)であり，2.5-GeV PF リングの約 0.4 MeV (180 kW at 450 mA) よりも小さい。低エミッタンス化によって高輝度光を発生するアンジュレータ光源の放射損失は PF リングのアンジュレータよりも増大し，もちろんアンジュレータの数も大幅に増加するのでリング全体にフルにアンジュレータが設置された場合の最大の放射損失は約 0.7 MeV (350 kW at 500 mA) 程度と想定される。蓄積エネルギー，周長共に大きくなっているが，放射損失の増加はこの程度に抑えられ，高周波加速システムの消費電力は PF リングの 2 倍未満で済む計算となる。次に消費電力の大きい電磁石システムについても，低エミッタンス化に伴い磁極の間隔やボア径を小さくできる効果で電磁石の電流値が抑えられ，PF リングと同等の消費電力で運転可能と見積もられる。入射器や建物の空調，冷却水，機械設備の消費電力を合計すると約 6 MW となり，入射器と PF リングを運転しているときとほぼ同等の消費電力である。現在放射光施設では PF リングと 6.5 GeV の PF-AR の 2 つの蓄積リングを運用しており，総合の消費電力は約 11 MW を越えている。PF リングと PF-AR の代替として KEK 放射光を運転する場合，現在に比べて大幅な消費電力の低減が見込まれ，年間運転時間の大幅増加も可能となると予測される。

現在世界では様々な低エミッタンス放射光源計画が発表されており，中には 0.1 nm rad をさらに下回る計画も散見される。ただしこの中にはダイナミックアパーチャが充分ではなく一部の蓄積ビームをけり出して，ブースターで用意した入射ビーム列と入れ換えるスワ

ップ入射を必要とする計画もある。KEK 放射光は，HMBA ラティスによって従来通りの積み上げ入射が可能なダイナミックアパーチャを確保しており，現行の入射器 LINAC から供給される電子ビームのエミッタンスを 100%受け入れられる可能性もある。ただし新規に放射光施設を建設する場合，LINAC の改造や長距離のビーム輸送路の新設が必要になる。低エネルギーの小型 LINAC とブースターリングを組み合わせた専用入射器の建設も予算的には十分視野に入るので検討を進める。建設予算，建設スケジュール，運転経費，運転時間の確保など様々な要因を総合的に判断して，入射システムの選択を行いたい。

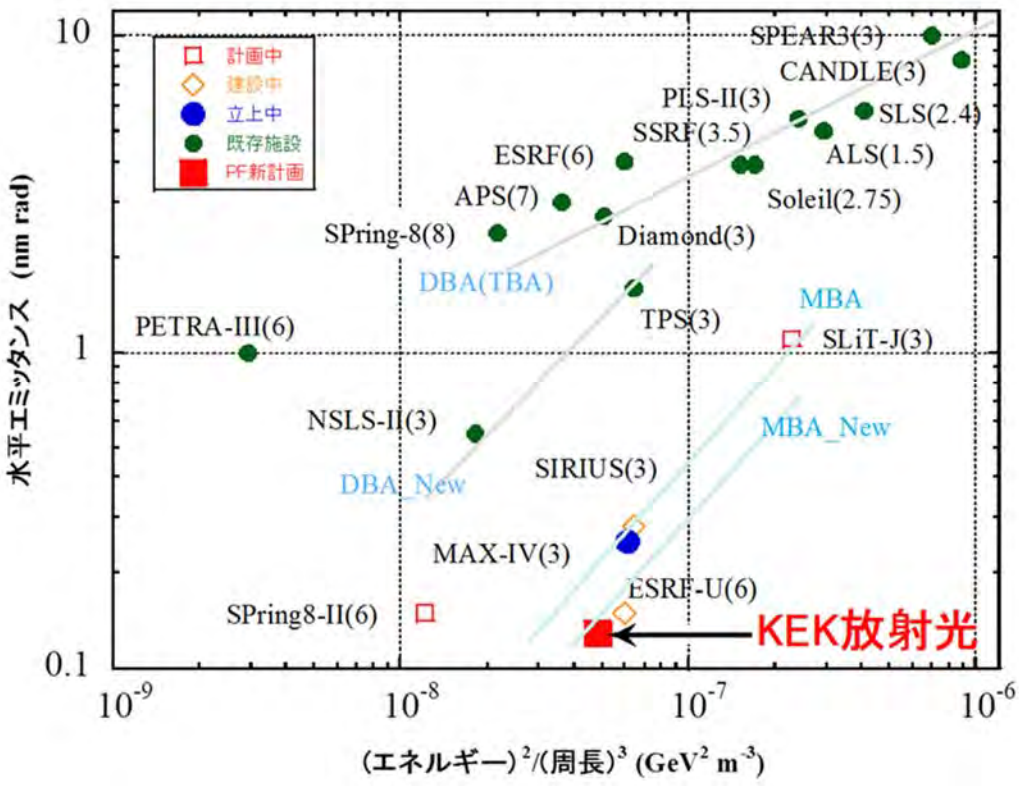


図 1.1　光源のエミッタンスと周長の関係

２．蓄積リングのラティスとオプティクス，ビームダイナミクス

2-1. リングのラティスと基本パラメータ

蓄積リング型光源の性能を決めるパラメータは主に光束と輝度である。光束とは，光源から発生する全光子数で，主にリングの蓄積電流値で決まる。一方，輝度は光子をその位置と向き（発散角）とで張られる空間（位相空間）に分布させた時の光軸上の密度である。輝度は主に，リングを周回する電子ビームのサイズによって決まる。電子ビームを光子と同様に位相空間に分布させた時，その体積をエミッタンスと呼び，電子ビームのサイズは主にエミッタンスによって決まる。エミッタンスと輝度はどちらも量子ビームの位相空間上の分布を特徴づける量だが，電子ビームは全体から光が発生し，一方，光は光軸付近を切り出して使う為，それぞれ輝度とエミッタンスを使うのが適しているということである。低エミッタンス電子ビームからの光は高輝度になるので，高輝度光源設計の目標は，低エミッタンスということになる。加速器としての現実性，安定性を確保しながら，できる限り高輝度を目指すことが本計画の目標である。高輝度の光によって，実験側では，空間分解能の向上，エネルギー分解能の向上，より高いエネルギーの光でのコヒーレンスの利用，が可能になる。現在の PF の 3～4 桁上の輝度が見込まれる為，それぞれ 3～4 桁向上するといえる。例えば，PF では百ミクロン角の集光だったのが，同じかそれ以上の光子数で百ナノメーター角の集光が可能になる（発散角は同程度）し，数十 eV でのコヒーレンス利用がやっとであったのが数 keV での利用が可能になる。（詳しくは測定器の章，挿入光源の章を参照。）

なお，パルス幅も光源における重要なパラメータだが，fs の桁の極短パルス光が FEL によって実用化されている現在，蓄積リング型光源において光束や輝度を犠牲にしてまで，リング全体を数 ps や数百 fs の極めて特殊な短パルスモード用に設計することは大きな意味を持たないと考える。本計画のパルス幅は，既存の第 3 世代光源と同等である 10～数十 ps とする。

さて，光束，輝度の定義などに関しては挿入光源の章で詳細を述べるが，設計目標として簡単にここでも触れたい。光には波長で決まる固有エミッタンスがあり，それは波長 $\lambda[m]$ の光では $\lambda/4\pi[m\cdot rad]$ となる。一般に，位相空間内のこの固有エミッタンスで決まる体積内の光はコヒーレントになる。従って，全光束の内でどの程度の割合がこの中に収まっているかが重要で，それをコヒーレント比という。現実の光子のエミッタンスは電子ビームのエミッタンスと固有エミッタンスのコンボリューションになるが，コヒーレント比は，光子の固有エミッタンスを現実の光子のエミッタンスで割った量である。完全点光源からの光に対する，有限サイズ光源からの光の輝度の比ということもできる。実際の輝度は密度なので全光束も関係するが，低エミッタンスの効果という意味では，コヒーレント比は良い指標の一つである。光の固有エミッタンスは，特徴的には，10 eV で 10 nm·rad，100 eV で 1 nm·rad，1 keV で 100 pm·rad，10 keV で 10 pm·rad となる。1980 年代建設の PF は建設時には 300 nm·rad のエミッタンス[2.1, 2.2]で光に換算すると 1 eV の桁，2 回の高輝度化

[2.3, 2.4, 2.5]を経て現在 37 nm·rad なので 10eV の桁となっている。これが第 3 世代[2.6]，新第 3 世代光源[2.7]となると，数～10 nm·rad となるので，およそ 100eV の桁に進み，我々が目標とする第 4 世代光源[2.8, 2.9]では 100 pm·rad，1 keV の桁となる。電子ビームのエミッタンスと光子のエミッタンスが等しくなった時を回折限界と呼ぶが，第 4 世代光源ではだいたい水平エミッタンスで 1keV での回折限界を目標としていることになる。なお，挿入光源のパラメータや電子ビームのオプティクス，色消しかどうかにも依存するので簡単ではないが，水平だけを考えると，エミッタンス 100 pm·rad，1 keV で回折限界の時，目安としては 1 keV ではエミッタンスに対する電子ビームと光子の固有値の寄与が等しくなるのでコヒーレント比は$1/\sqrt{1^2+1^2}=1/\sqrt{2}$で約 70%，10 keV では電子の方が 10 倍大きいので$1/\sqrt{10^2+1^2}$で約 10%となる。実際には第 4 世代一般的に 1keV で数十%，10keV で数%である。

高輝度光として利用可能な光のエネルギーの上限も光源設計において重要である。光のエネルギーは主に電子ビームのエネルギーと挿入光源技術によって決まるが，本計画では SX(Soft X-ray, 特徴的には約 1 keV とそれ以下)から HX（Hard X-ray, 特徴的には約 10keV 程度まで）のアンジュレータ光の利用を主目的とする。PF 建設当時の 1980 年代，PF と同じような約 3 GeV 程度のエネルギーの光源から 10 keV の光を発生させる為には，より強い磁場を持つ超伝導ウィグラーや多極ウィグラーを利用することが必要であった。ウィグラーの光は連続スペクトルで，高輝度ではない。それが 2000 年代になると，PF-AR で開発された真空封止挿入光源の短周期，小ギャップ化が蓄積リングの軌道安定化や真空技術の発展と共に可能になり，周期長 2 cm 以下，最小ギャップ数 mm の挿入光源が実用化されるようになった。それを新第 3 世代光源と呼ぶこともある。真空封止短周期挿入光源は PF でも 2005 年の直線部増強改造で導入され，現在，周期長 1.2～1.8 cm，最小ギャップ 3.5 mm（ユーザーランは 4 mm まで），磁極長約 50 cm の挿入光源が 4 台稼働中である。PF では DBA(Double Bend Achromat)的に色消し直線部を作る 2 台の偏向電磁石の中央の，最も分散の大きな部分に新しい直線部を確保し，そこで縦方向のビームサイズを絞って真空封止挿入光源が設置されている。分散が大きい為に水平ビームサイズは大きく，また，エネルギー方向のビーム不安定性がビームサイズを変化させてしまっている。新光源では挿入光源に最適化した短直線部を用意し，そこに全長 60 cm 程度の真空封止短周期挿入光源を設置することを考えている。また，5m 級の挿入光源としても，同様の真空封止光源挿入光源を採用することを考えている。長直線部だけではなく，短直線部を設けることで，設置可能な挿入光源の数は 2 倍となるし，60 cm 級の挿入光源といえども輝度や光束は既存の第 3 世代光源の中では最上位に匹敵する性能となる。

本計画では, ESRF アップグレード計画の為に ESRF で開発された HMBA(Hybrid Multi Bend Achromat)ラティス[2.10]に，短直線部を追加挿入した構造うを採用する。エネルギ

ー3GeV，周長約 570m，水平自然エミッタンス 132.5pm·rad である。リングには，偏向電磁石ライン 20 本に加え，5.6m 直線部が 20 本（入射と RF を含む），1.2m 直線部が 20 本あり，最大 38 本の挿入光源 BL が設置可能である。輝度は PF に比べ，1keV で 3 桁，10keV で 4 桁向上する。

加速器に電子ビームを安定に蓄積する為には，エネルギーや位置のずれた粒子を中心に引き戻す復元力が必要である。ビーム進行方向（縦方向）の復元力は RF 空洞で，それに垂直なリング上下内外方向（横方向）の復元力は電磁石によって与えられる。復元力があると，ずれた粒子はある点（中心軌道と設計位相）を中心に振動を行う。ビーム進行方向の振動（RF 空洞の位相に対する粒子到着時刻の振動）をシンクロトロン振動といい，横方向の振動をベータトロン振動という。ベータトロン振動数のエネルギー依存性（色収差）をチューンシフトといい，振動の中心軌道のずれ（一般にエネルギーの高い，重い粒子は外回り，逆に軽い粒子は内回りになる）を分散という。電子は曲げられると光を出すが，その効果は量子力学的な揺らぎを含むので，光を出した電子ビームにはエネルギーのばらつきが生じる。エネルギー毎に振動中心は分散で決まる別の軌道なので，光を出すと微少なベータトロン振動が励起される。それを放射励起という。一方，光は粒子の進行方向に出される為，光を出すとずれた方向の運動量が必ず減る。一方で RF による加速は常に中心軌道と平行な向きなので，光を出してその分加速されて，を繰り返すと振動は減衰する。それを放射減衰という。電子ビームの自然エミッタンス，エネルギー拡がりは放射励起と放射減衰の平衡状態で決まる値である。また，入射ビームは水平方向にオフセットした位置に入射される為，最初，大振幅のベータトロン振動を行う。大振幅のベータトロン振動は放射減衰によって減衰し，やがてビームサイズと同じ程度になって入射ビームは蓄積ビームと混ざって，無事「蓄積」されるのだが，それまでにかかる時間（減衰時間）は通常，数十 ms，リング数万周回に相当する。リングに対して安定に入射蓄積を行う為には，大振幅の粒子が数万周回安定に周回するように設計を行わなければならない。ビーム力学的に粒子が安定に周回できる領域をダイナミックアパーチャという。

さて，加速器を周回中の粒子が失われる原因は色々あるが，横方向のビームダイナミクスに原因がある場合，それはベータトロン振動が共鳴振動になり，振幅がどんどん大きくなっていくことである。ベータトロン振動が整数，半整数などキリの良い値になった場合，振動しながら周回している粒子を加速器のある点で観測すると，整数なら常に同じ場所を通過し，半整数なら 2 箇所を交互に通過する，ということになる。その様な状態で誤差としての小さな蹴りがどこかにあると，粒子はそこを通過する度に同じ蹴りを受けるので，振幅がどんどん大きくなるのである。共鳴振動を防ぐ為，設計粒子の振動数は端数を持った値に設定するが，運動量や振幅のずれに起因するチューンシフトの為，ずれがある程度大きくなると必ず良くないチューンに当たり，共鳴振動が励起されて粒子がなくなる。最大のチューンシフトはエネルギー依存のものだが，それは主に 4 極電磁石の集束力のエネルギー依存性に起因する。チューンシフト補正（色収差補正）の為にはエネルギーに依存する集束力が必要

だが，分散関数の有限な場所に 6 極電磁石を設置するとそれが可能になる。6 極電磁石の蹴りは振幅の 2 乗に比例するが，ベータトロン振動に起因する振幅と，エネルギーのずれと分散関数に起因する振幅とを別のものだと考えるなら，そのかけ算で集束力が与えられるということは，ベータトロン振動に対しては，エネルギー偏差に比例する集束力が与えられるということになるのである。4 極が強ければチューンシフトも大きく，強い 6 極が必要となる。6 極の欠点は，6 極の磁場分布から，3 次の共鳴振動（チューンの端数が 1/3 の整数倍で起こる）を引き起こすことと，振幅依存のチューンシフトを引き起こすことである。通常，6 極を入れないと運動量方向にはアパーチャが非常に狭いが，水平垂直の振幅方向にはアパーチャは広い（エネルギーが少しでもずれると不安定になるが，エネルギーが合っていればベータトロン振動が非常に大振幅でも安定）。6 極を入れると運動量方向のチューンシフトが改善してアパーチャが増える一方，振幅依存チューンシフトが増大して，安定領域が減少する。加速器設計としては 6 極を入れた状態でどれだけ運動量，振幅依存チューンシフトを小さく抑え，さらに整数と半整数以外の共鳴の効果を抑制するか，ということが最重要項目となる。それがダイナミックアパーチャの広さということである。

電子ビームは集団として蓄積リング内を周回しており，それをバンチという。バンチ内の電子はシンクロトロン，ベータトロン振動中に衝突散乱するのだが，ビームサイズが小さくなるとその頻度が大きく，また，相対論的効果でエネルギーが低い方が衝突頻度は大きくなる。PF ではほぼ完全に無視して良い一方，第 3 世代放射光ではタウシェック効果という，ベータトロン振動中の粒子が衝突し，縦方向に散乱される効果が原因で粒子が失われるという，タウシェック寿命が重要なパラメータとなる。第 4 世代光源では寿命の効果がさらにシビアになると共にエミッタンスやエネルギー拡がりに対する増大効果も無視できなくなっている。タウシェック寿命の改善には運動量方向のダイナミックアパーチャの広さが重要で，数時間の寿命の確保の為には，最低 3～4%の運動量アパーチャが必要となる。なお，エミッタンス，エネルギー拡がりの増大の効果はかなり抑制することもでき，その為には高次高調波空洞でバンチ長を伸ばしてバンチ内の電子密度を減らすことが最も効果的である。

本計画のラティスの基本となる HMBA 構造の特徴は，極低エミッタンスと広いダイナミックアパーチャを両立した点であるが，それは，既存の第 3 世代光源のラティスと，理論最小エミッタンスのラティスの長所を組み合わせることで実現されている。

第 3 世代光源で最も一般的なラティスは DBA だが，それは偏向電磁石 2 台の間で分散関数を閉じ，色消し直線部を作るラティスである。色消し直線部に挿入光源を設置し，分散が大きい領域に 6 極を設置することで，6 極磁場の影響を抑制して広いダイナミックアパーチャが確保できる。一方，偏向電磁石の中で分散関数を大きくするので，放射励起の効果でエミッタンスが大きくなり，一般に数 nm·rad が DBA 構造の現実的な最小エミッタンスとなる。DBA 構造で 100 pm·rad を狙う為には，セル数を増やし，非常に巨大なリングを作るしかない。なお，PF は最古の加速器ラティスである FODO セル（凹レンズ(defocus)と凸

レンズ（focus）を交互に並べる構造）の弧部と，4 箇所の DBA からなっている

一方，蓄積リングでエミッタンスを下げるには，偏向電磁石の中で分散関数を小さく抑えれば良い。平均して分散を小さくする為には，偏向電磁石に発散力を加えた機能結合型偏向電磁石を採用した上で，偏向電磁石を細かく分割し，偏向電磁石の入口でオプティクスを絞ることが必要である。偏向電磁石の数を決めれば理論的に到達可能な最小エミッタンスは決まる。その様なラティスを TME（Theoretical Minimum Emittance）ラティスという。TME 構造を主構造として採用した上で，TME 両端に挿入光源直線部用の色消しマッチング部を加えたラティスを MBA（Multi Bend Achromatic）構造という。MBA 構造の特徴はとにかく低エミッタンスであることだが，6 極電磁石が非常に強くなり，アパーチャは非常に狭くなる。MBA を基本としながら，色消しマッチング部分をメインに，分散をエミッタンスに大きな影響が出ない範囲で大きくするような工夫を行い，6 極を設置したのが MAX IV のラティスであると思われる。

HMBA 構造は，TME 部分を DBA で挟むことで実現される。TME 部分は必ずしも完全な理論最小値には達していないが，周長から考慮すると既存の光源よりは十分に低エミッタンスである。DBA 部分はエミッタンス増大を防ぐ為，分散関数の増大と共に偏向電磁石の磁場を弱くする，進行方向に勾配を持つ偏向電磁石（Bending Magnet with Longitudinal Gradient, LG Bend）を採用し，緩く長く曲げる様になっている。HMBA では DBA 部分を分散バンプと呼ぶが，分散バンプ中に 6 極を設置することで，6 極の磁場は第 3 世代～PF 並の弱い磁場で十分に色収差補正が可能となる。さらに，2 箇所の分散バンプ間のチューンの進みを半整数とすることで，6 極磁場の非線形の蹴りの効果をセル内で打ち消しており，6 極起因の共鳴線の効果と振幅依存チューンシフトを小さくできる。

表 2.1 にリングの基本パラメータを示す。リングは 20 セルからなり，内 19 セルがノーマルセル，1 セルは入射用にβ関数を大きくした入射セルである。各セルには 8 台の偏向電磁石が配置されている。ノーマルセルには 4 極電磁石のコア間距離で 5.6 m の長直線部と 1.2 m の短直線部が 1 本ずつ存在し，それぞれに挿入光源を設置してビームラインが設置される。ただし，長直線部の内の 2 本は入射および RF 空洞設置の為に利用され，挿入光源を設置しない（RF 空洞を 2 カ所に分けて設置し，それぞれに 2～3 m 程度の短い挿入光源を設置することもできる）。リングのラティスを図 2.1 に示す。

表 2.1 リングの基本パラメータ

エネルギー	E [GeV]	3GeV		
ラティスの型		HMBA (Hybrid Multi-Bend Achromat)		
長周期数	N_s	20		
周長	C [m]	570.721		
1.2m 短直線部数		20		
5.6m 長直線部数		20		
セル数		20		
RF周波数	f_{RF}[MHz]	500.0735096		
ハーモニック数	h	952		
RF電圧	V_{RF}[MV]	2		
Bucket height	%	3.98		
Energy loss	MeV/rev	0.2984335		
モーメンタムコンパクション	α	2.1893×10^{-4}		
ベータトロンチューン	ν_x, ν_y	48.58, 17.62		
damping turns x,y,z	[turns]	15364, 20105, 11887		
damping time x,y,z	[ms]	29.25, 38.28, 22.63		
beam current	[mA]	0	200	500
hor. emittance	[pmrad]	132.51	230.5	314.74
ver. emittance	[pmrad]		8.1	8.2
y/x	[%]		3.5	2.6
Touschek lifetime (2.8% mom.acc $200\sigma_x$)	[h]	-	2.9	1.8
Energy spread	$\times10^{-4}$	6.42	7.24	8.22
Bunch length	mm	2.73	3.08	4.18

v03_68

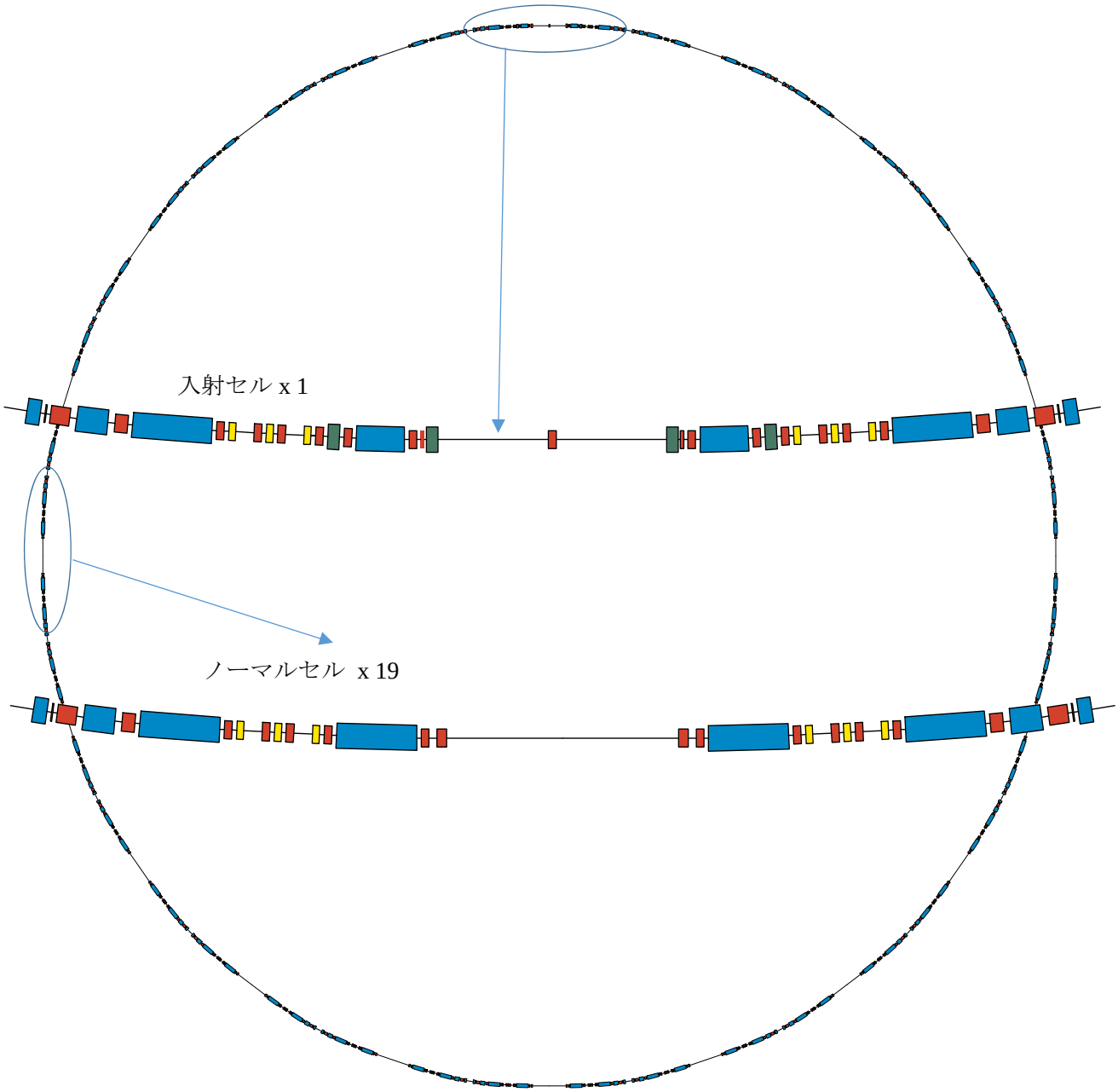


図 2. 1 リングのラティス

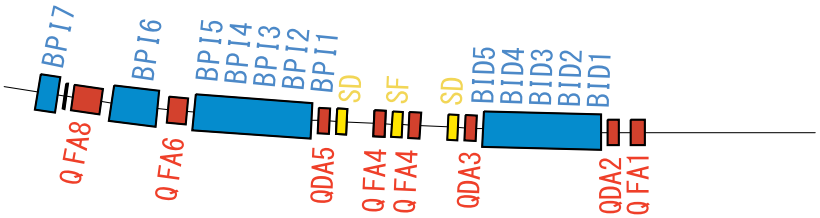


図 2.2 ノーマルセル（半セル）の電磁石配置

ノーマルセルは直線部中央を対称点として，折り返し対称になっている。図 2.2 にノーマルセル半分の電磁石配置を示す。青が偏向電磁石，赤が 4 極電磁石，黄色が 6 極電磁石である。1 セルに偏向電磁石が 8 台存在し，そのうち，BPI6 と BPI7 は発散力を含む機能結合型，BID1～5 と BPI1～5 が進行方向に勾配のある偏向電磁石（LG Bend）である。計算上，曲率半径を 5 段階で変化させており，便宜上，BID1～5，BPI1～5 と称している。実際に 5 段階で製作するか，連続的に変化させるかはハードウェア設計と並行して検討中である。オプティクスのマッチング（4 極電磁石の値）は LG ベンドのモデルに依存した最適化（マッチング）を行う必要があるが，エミッタンスや誤差と補正を含むアパーチャなどの主要な性能は，マッチングによって大きくは変化しない。ハードウェアとして製作後，きちんと磁場測定を行い，できるだけ正確にモデル化して電磁石の電流値を決めることが重要である。電磁石の製作精度，数値計算や磁場測定の精度を考えると，モデルと現実との差はいわゆる通常の電磁石の誤差の範囲内として扱うことがほぼ可能であろうと思われる。

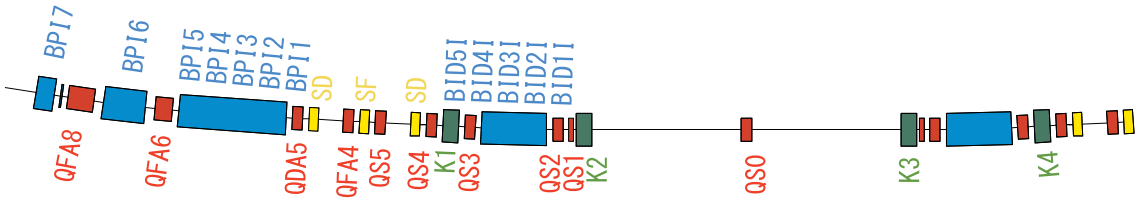


図 2.3 入射セルの電磁石構成

図 2.3 に入射用のセルのラティスを示す。入射用の直線部の両側の 6 極より長直線部側（図では SD より右側）の部分が入射用に最適化される。直線部両脇の LD ベンド BID を短く（BID1I～5I）し，長直線部側に 4 極を 1 台追加する。図の緑 K1～K4 が入射キッカー電磁石である。SD から短直線部側（図では左側）は通常のノーマルセルと同一，セル全体のチューンの進みも一定にすることで，理想的な場合の非線形オプティクスとしては 20 回対称を維持している。

電磁石の間隔はコアーコア間で最小 15 cm（LG ベンドである BPI1~5 の両脇）である。現実のハードウェア設計を進めた段階でそれを広げなければいけない場合，電磁石の重心を変えずにコアを僅かに短くするなどの工夫が可能だが，その様な微妙な調整が可能な程度のフレキシビリティは十分にあり，エミッタンスや（誤差ありの）ダイナミックアパーチャに大きな影響がないことを確認している。（勿論，モデル化と電磁石電流値の最適化は各場合についてきちんと行わなければいけない。）

2-2. リングのオプティクス

図 2.4 にリング 1 周のオプティクスを示す。水平ベータ関数の大きな部分が入射セルである。また，図 2.5 に弧部 1 セルのオプティクスを，図 2.6 に入射セルのオプティクスを示す。

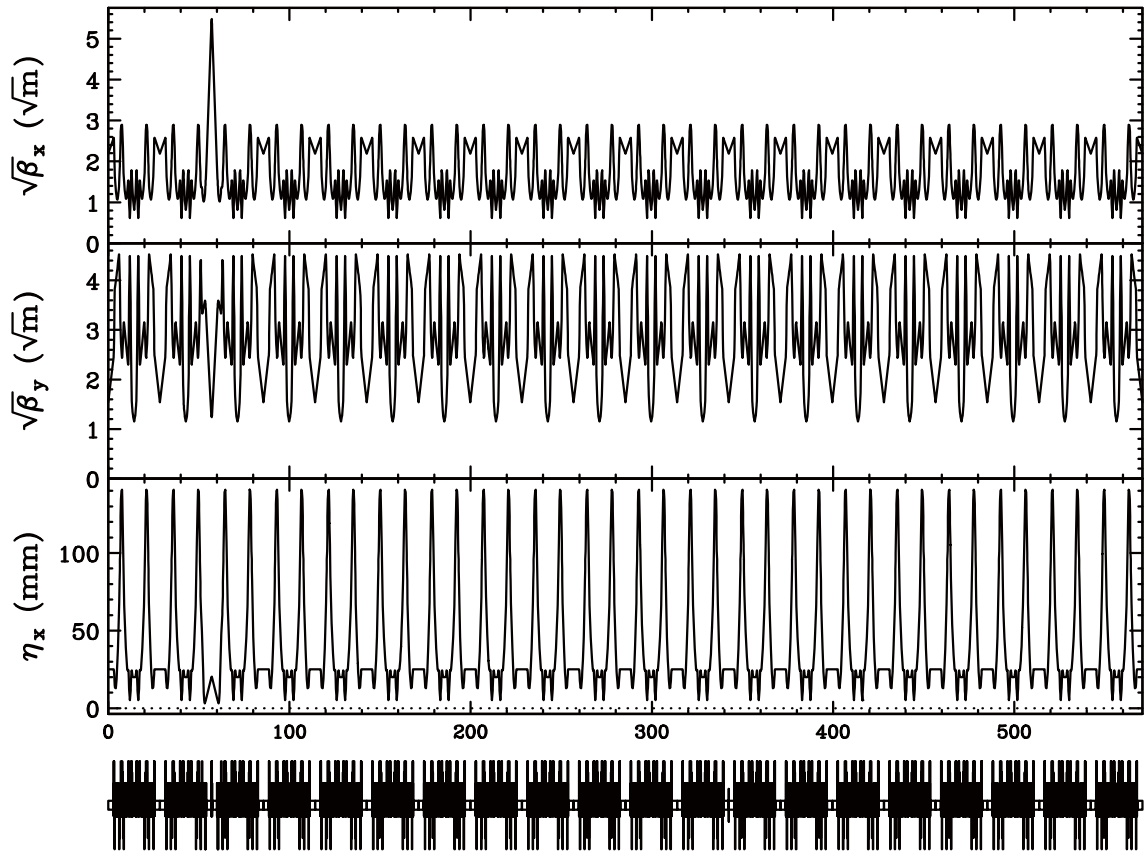


図 2 .4 リング 1 周のオプティクス

長直線部，短直線部とも，分散はゼロではない。分散をゼロにしないことでエミッタンスを大幅に下げることができる一方，分散関数のビームサイズへの寄与が小さいため，両者のバランスから最適なオプティクスとしている。電子の位相空間内の体積がエミッタンスで

あり，ここでは，エネルギー拡がりと分散関数の効果を含んだ体積を実効エミッタンスとして考える。具体的には，直線部中央でのビームサイズと角度広がりを，βとγで規格化したもの

$$\varepsilon_{eff} = \sqrt{\left(\beta\varepsilon + (\eta\sigma_E)^2\right)\left(\gamma\varepsilon + (\eta'\sigma_E)^2\right)/\beta\gamma}$$

になる。IBS の影響を考えない場合，$\varepsilon = 132.5\,pm \cdot rad$ ，$\sigma_E = 6.422 \times 10^{-4}$ であるので，5.6m 長直線部中央（$\beta = 4.79m$， $\eta = 2.5cm$， $\alpha = 0$， $\eta' = 0$）では実効エミッタンスは約 $\varepsilon_{eff} = 157\,pm \cdot rad$ となる。一方, 1.2m 短直線部中央（$\beta = 0.664m$, $\eta = 2.0cm$, $\alpha = 0$, $\eta' = 0$）では約 $\varepsilon_{eff} = 225\,pm \cdot rad$ となる。短直線部ではビームを若干絞りすぎで，ビームサイズと発散角のバランスが悪い為に，分散自体は小さいのに実効エミッタンスが長直線部よりも悪くなっている。

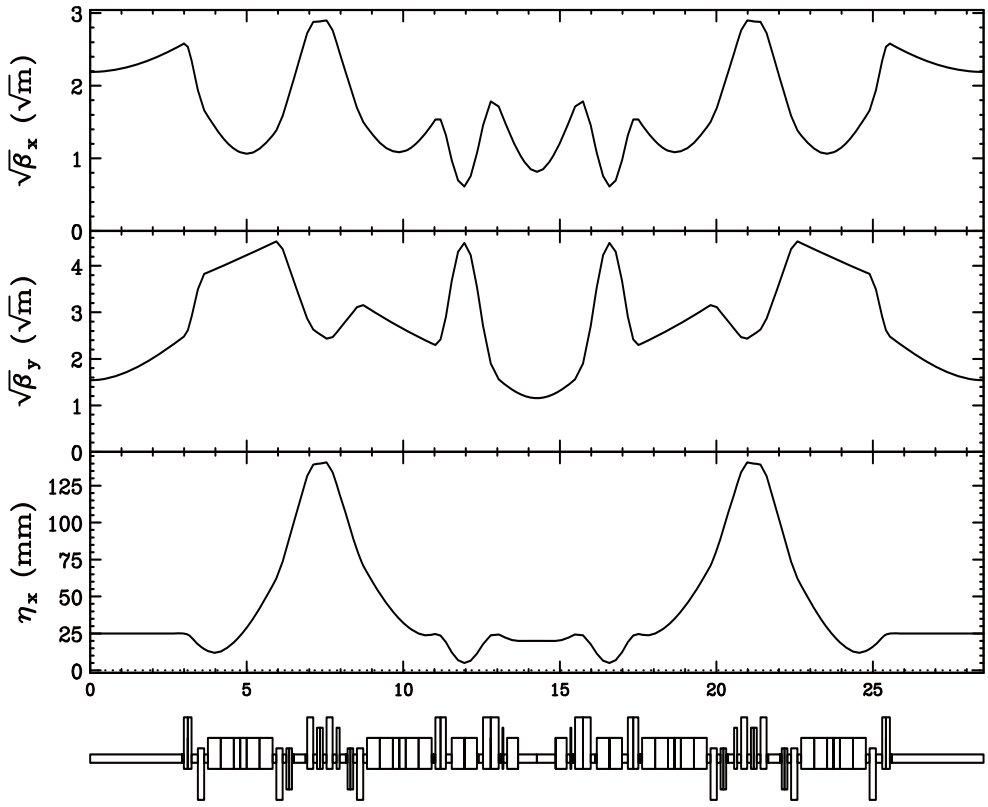


図 2.5 ノーマルセルのオプティクス

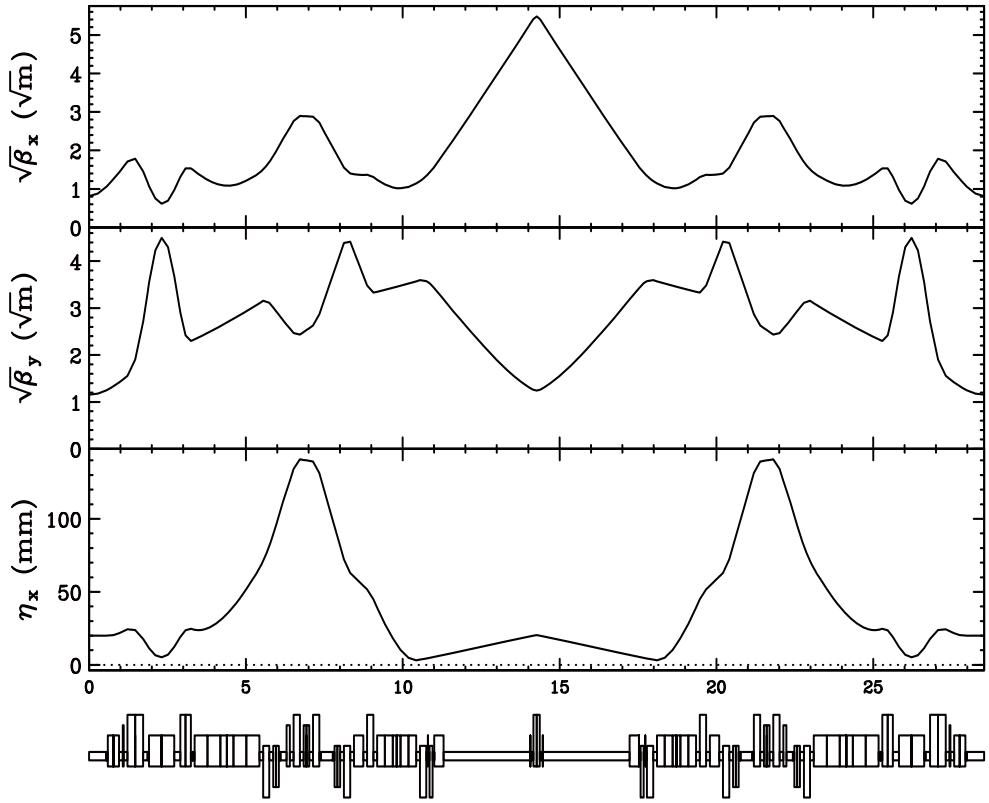


図 2.6 入射セルのオプティクス

2-3. ダイナミックアパーチャ

ダイナミックアパーチャを広げるため，図 2.7 のように，ノーマルセル内の 6 極電磁石間のチューンの進みはおよそ半整数になるように調整されている。チューンの進みを半整数とすれば，非線形力を 6 極ペア同士で打ち消すことができる。

加速器では，粒子の運動を記述するのに，各要素内で粒子の運動方程式を解き，線形の範囲ではそれを行列（転送行列）として扱う。加速器のある部分での粒子の入口における位置（振幅）と向き（発散角）に，その範囲の転送行列をかけると，出口における粒子の位置と発散角が求まるということになる。転送行列は入口と出口のトゥイスパラメータとチューンの進みを使って書くこともできるのだが，出入り口のオプティクス（トゥイスパラメータ）が対称で，チューンの進みが半整数の場合，転送行列は単位行列に-1 をかけた行列になる。すなわち，入口の粒子の位置と発散角が出口では反転するのである。一方，6 極電磁石が粒子に及ぼす力は，粒子の振幅を $x[m]$ とすると， ax^2 と書ける。入口の 6 極で発散角が ax^2 だけ増えた時，半整数の領域を通過後，それは $-ax^2$ になっている。出口の 6 極では，振幅も反転するが受ける力は ax^2 で入口と変わらないので，結局出入り口で 6 極の蹴りを打ち消すことができる。6 極の蹴りを打ち消すことができれば，3 次共鳴の影響を抑えるとともに，振幅依存チューンシフトも小さくできる。

なお，ESRF 式の HMBA の場合，分散バンプ内に SD-SF-SD と 3 台の 6 極があるため，チューンの進みが完全に半整数でも，打ち消しは完全ではない。それを interleaved 式という。1 カ所に 1 台の 6 極しか置かず，6 極間に他の非線形要素を挟まないで打ち消しをより完全にする non-interleaved 式もあるが，6 極の台数が減るので強さが強くなるので，セル数が相当多くないと利点として成立しない。ESRF 式の場合，チューンの進みが半整数に近づくに従い，6 極の影響も小さくなるが，半整数からずらすことで，別の原因でアパーチャが改善する場合もある。様々な効果のバランスで現在のチューンが決められている。

セル中央の機能結合型偏向電磁石部分だけでセルを作ると，周長は短くなる一方で 6 極電磁石が非常に強くなる。MAX IV を含め，一般の MBA ラティスは実際に 6 極が非常に強い。一方，分散関数バンプ部分だけを取り出して DBA 的にセルを作ると，曲げ角が小さい為に巨大なリングとなってしまう。例えば NSLS II は周長 780 m，DBA32 セルだがエミッタンスは 1 nm·rad を越えてしまっている。両者の良いところを組み合わせることで，中規模でダイナミックアパーチャの大きな極低エミッタンスリングを作ることができるのが HMBA（Hybrid Multi Bend Achromat）ラティスの特徴である。

6 極の非線形磁場の効果はチューンシフトと 3 次共鳴だが，チューンシフトが連続的である一方，3 次共鳴線を超えられるかどうかは連続ではない。超えられればアパーチャはそれを挟んで先まで広がり，超えられなければそこで落ちる。それを計算で予言することはできないが，誤差入りのダイナミックアパーチャサーベイやマッチングをずらした場合の計算で，ある程度のシミュレーションが可能である。たとえば，チューンをずらしたときにどこまでずらしても 3 次共鳴を超えられるか，マッチングを崩したときにどうなるか，また，誤差を入れた時に，例えば 100 通りの中で何通りが 3 次共鳴で落ちるか，などの結果からある程度判定することができる。現在の案では 3 次共鳴線が原因でアパーチャが制限されることはなく，誤差入りの場合も整数，半整数共鳴までは安定領域になっている。

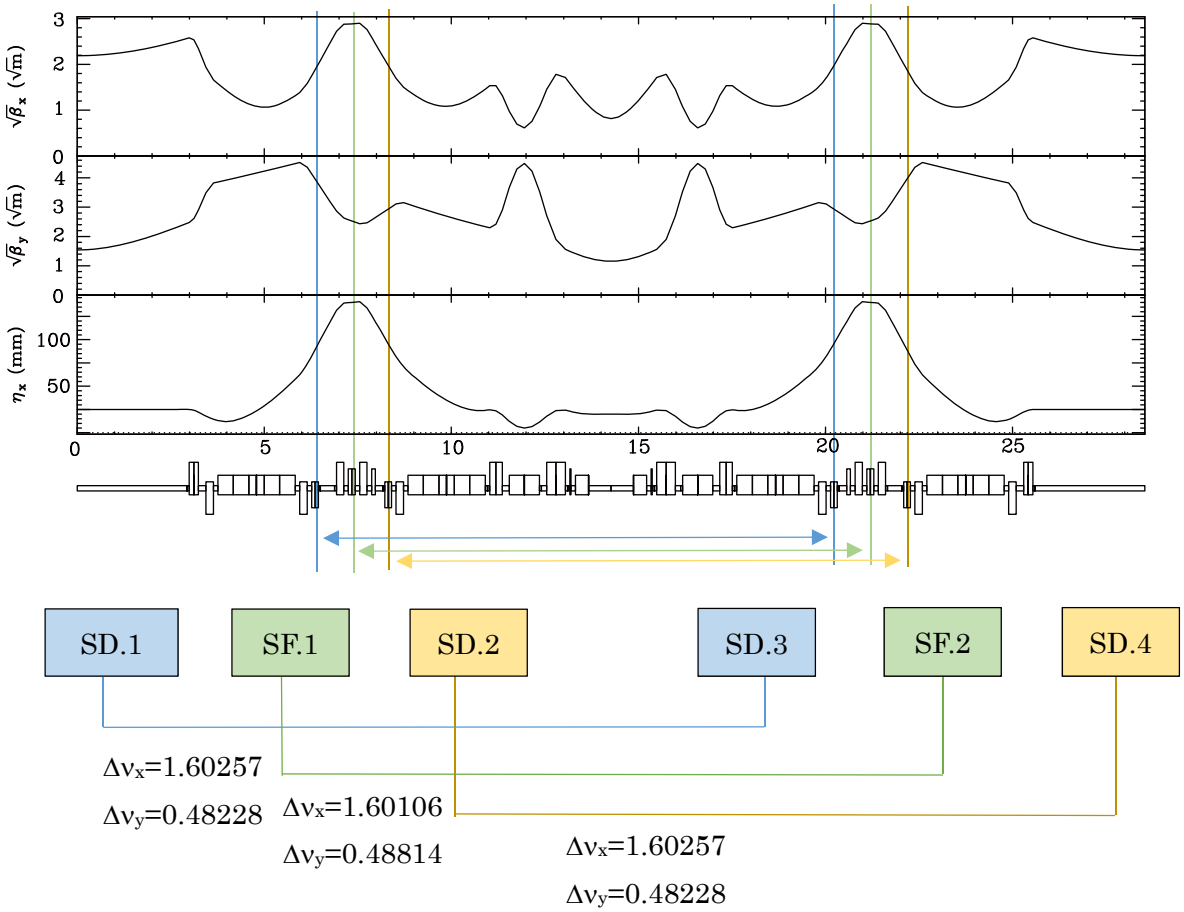


図 2.7 ノーマルセルの 6 極電磁石間のチューンの進み

図 2.8 に誤差を考えない場合のダイナミックアパーチャを示す。+X はリング外側方向，-X は内側方向，+Y はリングの上方向，-Y が下方向のアパーチャで，振幅方向の単位はエミッタンスの効果のみを考えた水平ビームサイズである。誤差を入れない場合，整数共鳴をまたいでその先まで安定領域となる。詳しくは後で述べるが，現在の PF 並の電磁石の誤差を入れた場合，整数共鳴と半整数共鳴を境に安定領域が決まるようになり，それは水平約 160σ，垂直約100σである。その場合，入射点のβ_x=30m なので，160σの実寸のアパーチャは約 10mm となる。誤差入りのダイナミックアパーチャ，入射スキームの項目で詳細を述べるが，従来のキッカーとセプタムを使った入射に困難はない。同様に，図 2.9 に，誤差のない場合の，XY 平面内のダイナミックアパーチャを示す。運動量方向については，+2.5%，0%，-2.5%の 3 通りについて計算を行っている。

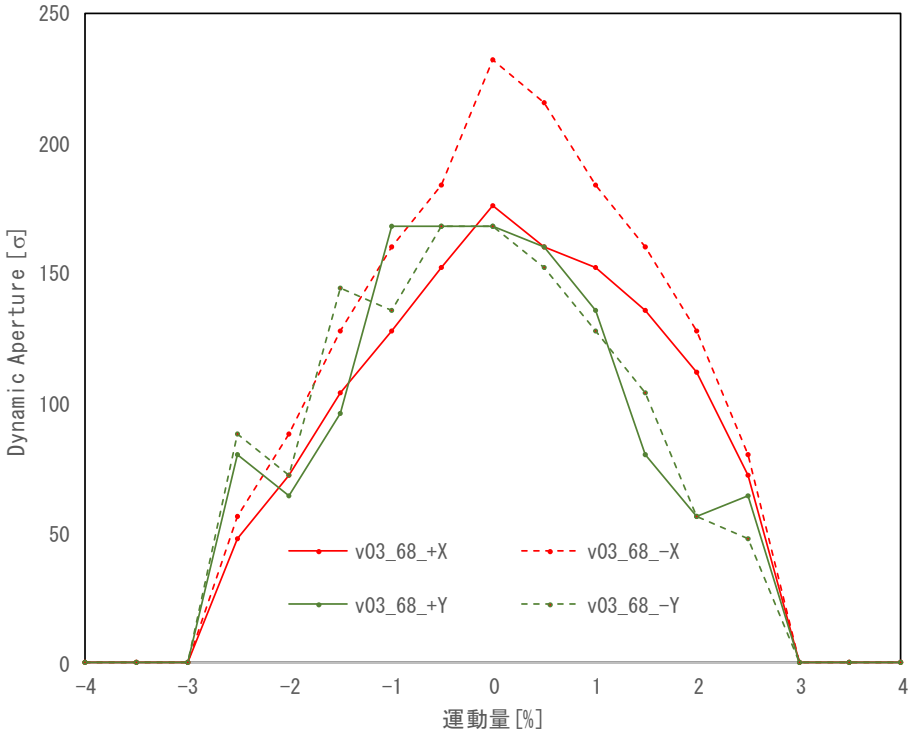


図 2.8 誤差のない場合のダイナミックアパーチャ

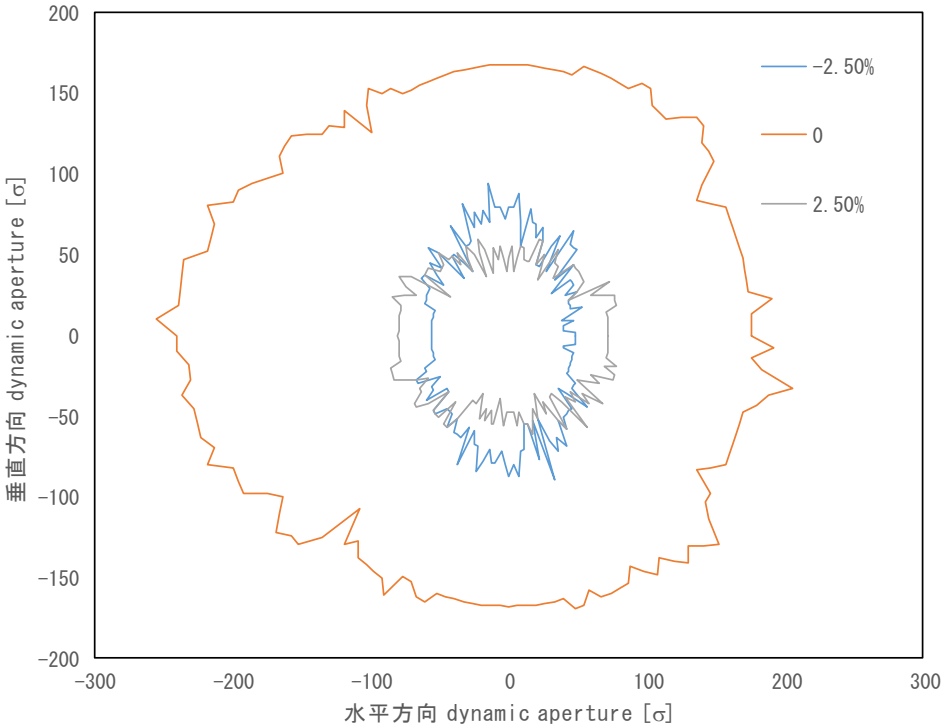


図 2.9 誤差のない場合の XY 平面内のダイナミックアパーチャ

2-4. RF 電圧と Bucket Height

RF 電圧で決まる，安定なシンクロトロン振動の最大振幅となるエネルギー偏差をバケットハイトという。バケットハイトとビーム力学的なダイナミックアパーチャの狭い方が，現実の運動量方向のアパーチャとなる。図 2.10 に RF 電圧と Bucket height，バンチ長の関係を示す（バンチ内散乱の効果は考慮されていない）。RF 電圧 2.0 MV の場合，IBS の効果なしでバンチ長 2.73 mm，バケットハイト 3.98%となる。運動量方向のダイナミックアパーチャは約 3%なので，Bucket height の方が広い。タウシェック寿命を 6～7 時間にする為には運動量アパーチャが約 4%必要であり，ダイナミックアパーチャがそこまで広いことが前提であるが，その場合，RF 電圧として多少の余裕をみて最大約 2.5MV 必要となる。

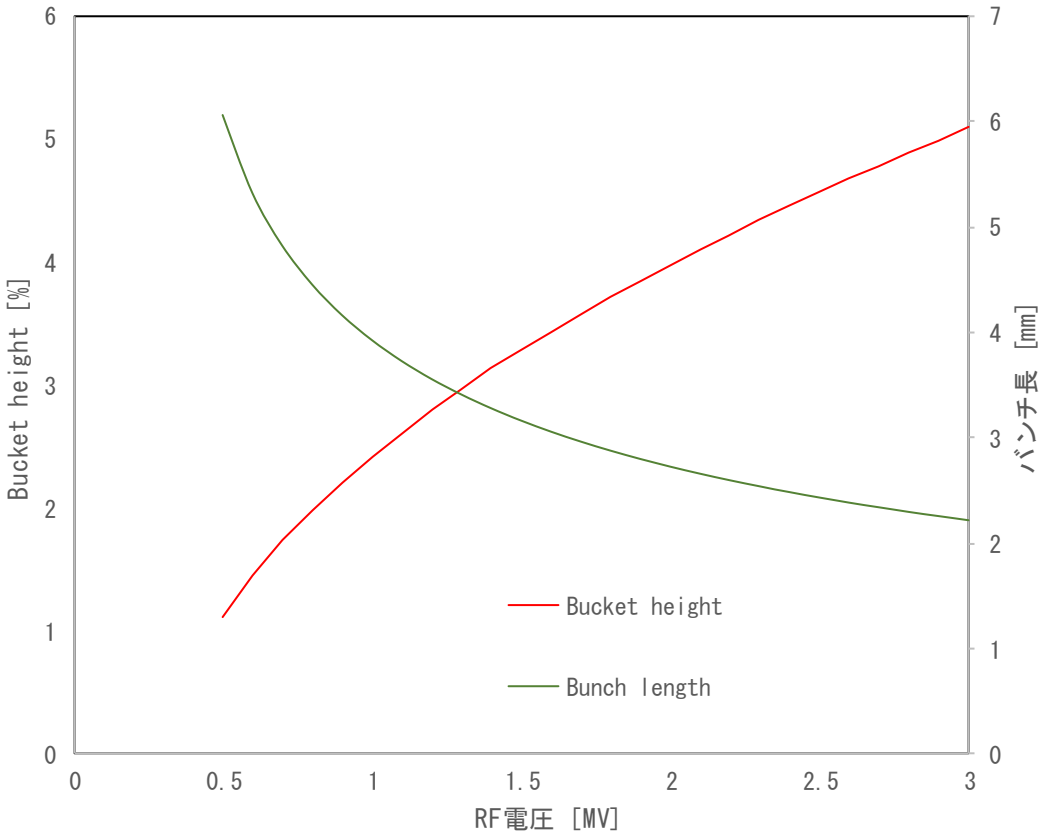


図 2. 10　RF 電圧とバンチ長，bucket height

2-5. バンチ内散乱の効果

エミッタンスが小さい為，バンチ電流を増やしていった時のバンチ内散乱（Intra Beam Scattering, IBS）によるエミッタンス増大と，IBS の一種であるタウシェック効果によるビーム損失の効果が大きい。

まずは図 2.11 にカップリング 2.6%とした時の水平アパーチャとタウシェック寿命の計算を示す。

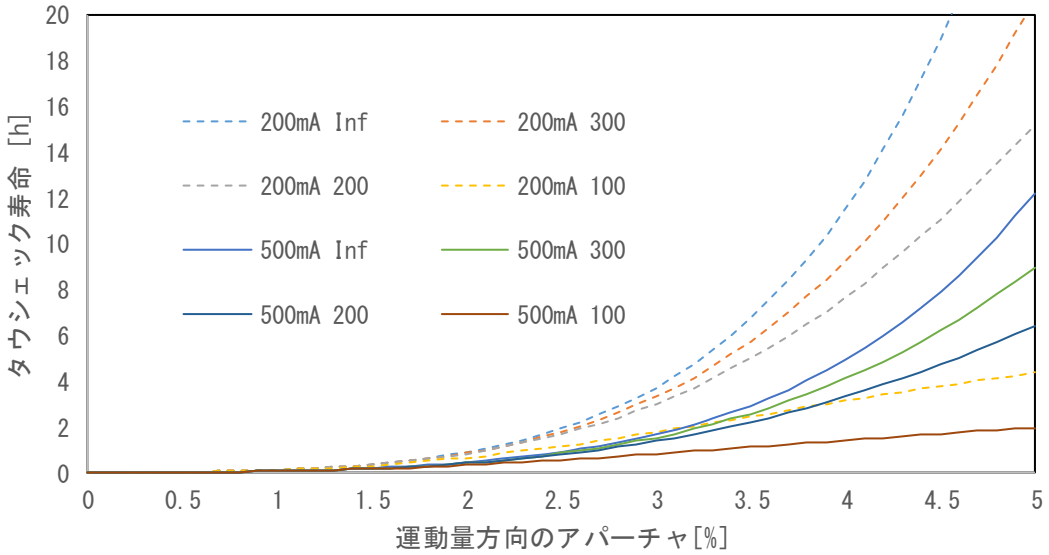


図 2. 11　水平方向のアパーチャ，運動量アパーチャとタウシェック寿命

グラフの点線は電流 200 mA の場合，実線が 500 mA の場合である。運動量方向のアパーチャは RF 電圧 2.0 MV の場合のエネルギー広がりを使って計算しており，実際のバケットハイトは約 4%，ダイナミックアパーチャから決まる運動量アパーチャは約 3%である。また，垂直方向のアパーチャはビームサイズに比べて十分広いとしているが，現実もそうなっている。凡例の Inf，300，200，100 は仮定する水平方向のダイナミックアパーチャの大きさを表し，単位はバンチ内散乱を考慮しない，ゼロ電流での水平エミッタンス約 133 pm·rad で規格化されている。（Inf は水平方向のアパーチャを計算に入れない（無限に広い）とした場合である。）　また，実際の水平エミッタンスは 200 mA の場合で約 231 pm·rad（カップリング 3.5%），500 mA の場合で 315 pm·rad（カップリング 2.6%）である。133 pm·rad の 100σは，500 mA 時の 315 pm·rad の約 65σである。ダイナミックアパーチャは電磁石の誤差ありで約 160σ程度（後述）であるので，バケットハイト 3%のタウシェック寿命は 200 mA の場合で 2.9 時間，500 mA の場合で 1.8 時間となる。オプティクスのさらなる最適化で振幅，運動両方向のアパーチャが改善できれば，タウシェック寿命も改善させることができる（その様なラティスオプションも検討中である）。

ビームロスの大きさについては，バンチ伸長などを行わずに 1.8 時間のままの場合，例え

ば現在の PF のハイブリッド運転時のビーム寿命が 5～6 時間であるので，その約 1/3 だと言える。現在の PF の入射ビームの捕獲率（約 30%），周長の違いによる必要電荷量（約 3 倍）を考慮すると，非常に粗い見積もりでは，ビーム損失はハイブリッドモードでトップアップ運転中の PF の約 3 倍程度になる可能性があると思われる。対策を行わない，短いタウシェック寿命のままでも，PF に比べて非常に厚い放射線遮蔽が必要ということはなさそうである。

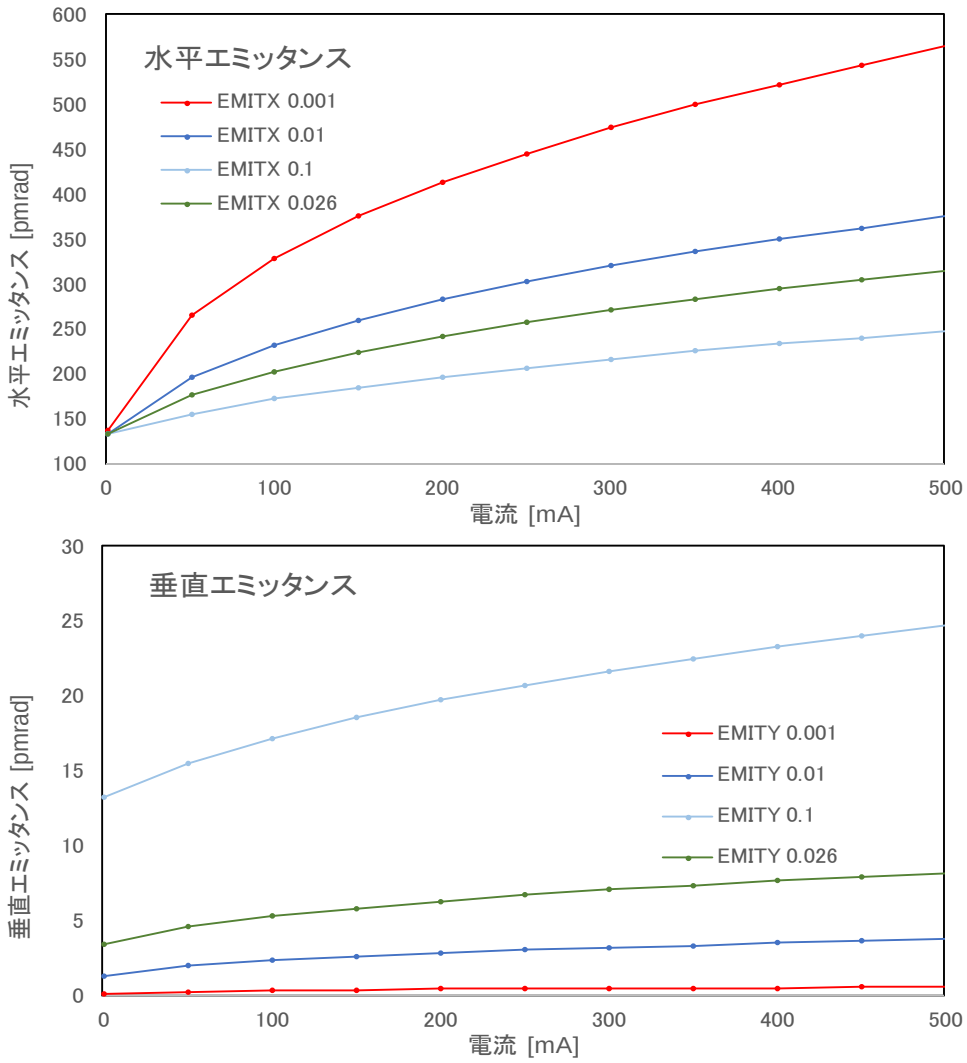


図 2.12 IBS によるエミッタンス増大の効果

図 2.12 に IBS による水平垂直方向のエミッタンス増大の効果を，図 2.13 に運動量広がりとバンチ長増大の効果を示す。凡例の数字はカップリングで，500 mA の時に垂直 8 pm·rad が目標なので，0.026（2.6%）が設計値である。RF 電圧は 2 MV としている。垂直方向はビームサイズが小さいのでベータトロン振動がそもそも小さく，IBS の効果もほとんどないのでエミッタンスは水平方向のエミッタンス（増大）とカップリング値でほぼ決まる。誤差の効果で垂直数 pm·rad のエミッタンスは発生するが，歪 4 極電磁石よってその補正を含め，正確にカップリングを制御する予定である。

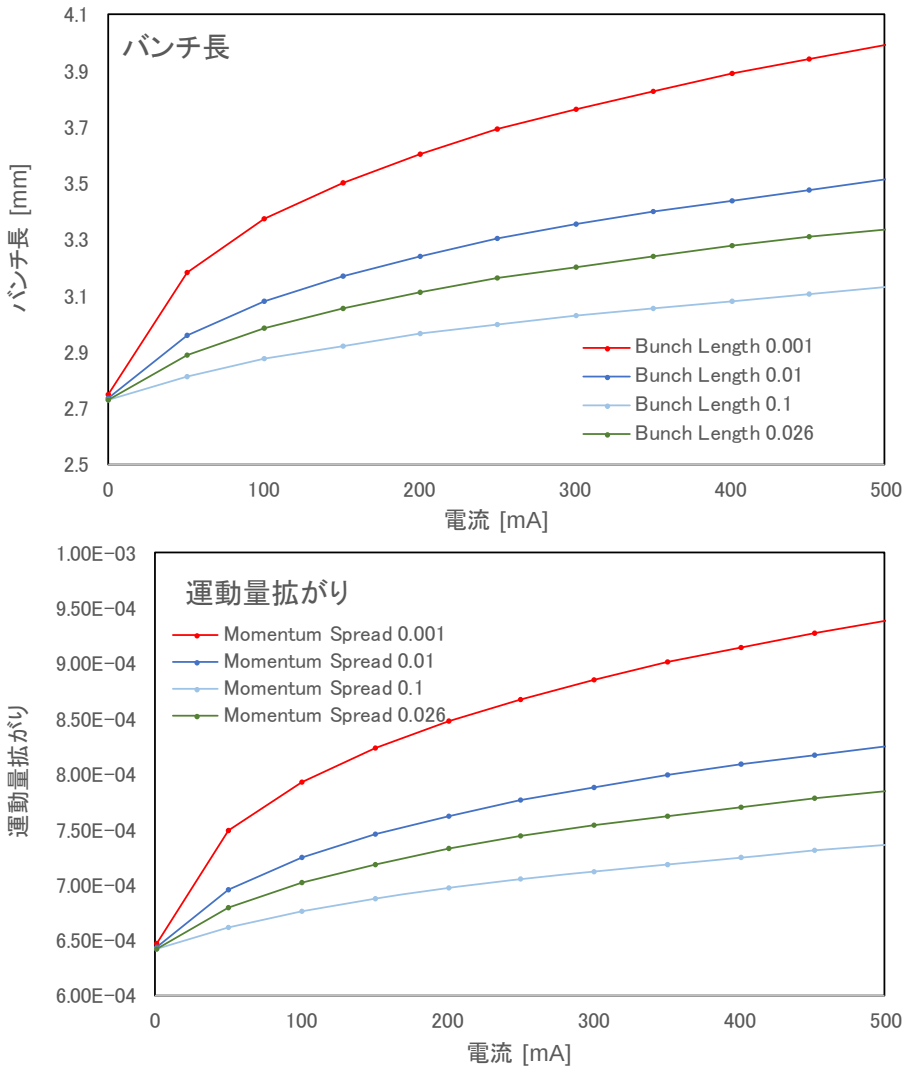


図 2.13　IBS による運動量広がり及びバンチ長増大の効果

2-6. 電磁石の強さと設計

2-6-1. 進行方向に勾配のある偏向電磁石

1 セルに 8 台の偏向電磁石が存在し，うち直線部の両脇 4 台はビーム進行方向に磁場強さが変わっていく，LG ベンド（Bending magnet with Longitudinal Gradient）であり，残りの 3 台は垂直方向の集束力をもつ機能結合型の偏向電磁石である。ノーマルセル 1 セル分の偏向電磁石のパラメータを表 2.2 に示す。表の上側では BID，BPI の進行方向の変化（5 段階）を書き，「和」で全体の長さと曲げ角をまとめた値を示している。BID_I は入射セル用の短い LG ベンドである。

表 2.2 偏向電磁石 1 セル分のパラメータ

		L [m]	angle [rad]	angle [deg]	B [T]	ρ [m]	K[m^{-1}]
BID	BID5	0.413	0.01990	1.140	0.482	20.757	
	BID4	0.413	0.01094	0.627	0.265	37.766	
	BID3	0.413	0.00827	0.008	0.200	49.927	
	BID2	0.413	0.00654	0.007	0.158	63.158	
	BID1	0.413	0.00533	0.305	0.129	77.537	
	和	2.065	0.05097	2.920	0.247	40.514	
BPI	BPI1	0.413	0.00524	0.300	0.127	78.864	
	BPI2	0.413	0.00632	0.362	0.153	65.393	
	BPI3	0.413	0.00758	0.434	0.184	54.478	
	BPI4	0.413	0.00958	0.549	0.232	43.117	
	BPI5	0.413	0.01350	0.774	0.327	30.585	
	和	2.065	0.04222	2.419	0.204	48.916	
BID_I	BID1I	0.250	0.00533	0.305	0.213	46.935	
	BID2I	0.250	0.00817	0.468	0.327	30.585	
	BID3I	0.250	0.01034	0.592	0.414	24.178	
	BID4I	0.250	0.01094	0.627	0.437	22.860	
	BID5I	0.250	0.01990	1.140	0.796	12.565	
	和	1.250	0.05467	3.133	0.437	22.863	
BPI6		0.806	0.05453	3.125	0.677	14.780	-2.020
BPI7		0.352	0.00936	0.536	0.266	37.607	-0.013

図 2.14 に進行方向に曲げ角が変わる偏向電磁石のビーム進行方向に対する磁場及び曲率半径の変化を示す。曲率半径がビーム進行方向に対して線形に変化していることが分かる。解析的に書き表すと，$\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7}[H/m]$を真空（～大気中）の透磁率，$N[turns]$を上下磁極を合わせたコイル巻数，$I[A]$を電流値，$h[m]$を磁極の全幅として，磁場は$B_0[T]$は$B_0 = \dfrac{\mu_0 NI}{h}$と書け，ビームのエネルギーを$E[GeV]$とすると，曲率半径$\rho[m]$は

$\rho = \dfrac{E}{0.3\mu_0 NI} h$ と書ける。すなわち，曲率半径をビーム進行方向に線形に変化させるためには，磁極ギャップを線形に変化させればよい。ESRF では永久磁石を使った 5 段階変化の磁極が採用されるが，もし，電磁石を使う場合，テーパー磁極でも対応できる。5 段階に変化させる場合でも，ギャップを 5 段階に変化させる方法や，一定ギャップでコイルを 5 段階に巻く方法など，いくつかの方法がある。コイルを 5 段階に巻く方法では，磁束線が混じらないようにコアにスリットをもうける必要がありさらに，コイルごとに電源を変えなければ，コイルの巻き数の比で磁場が決まってしまう。

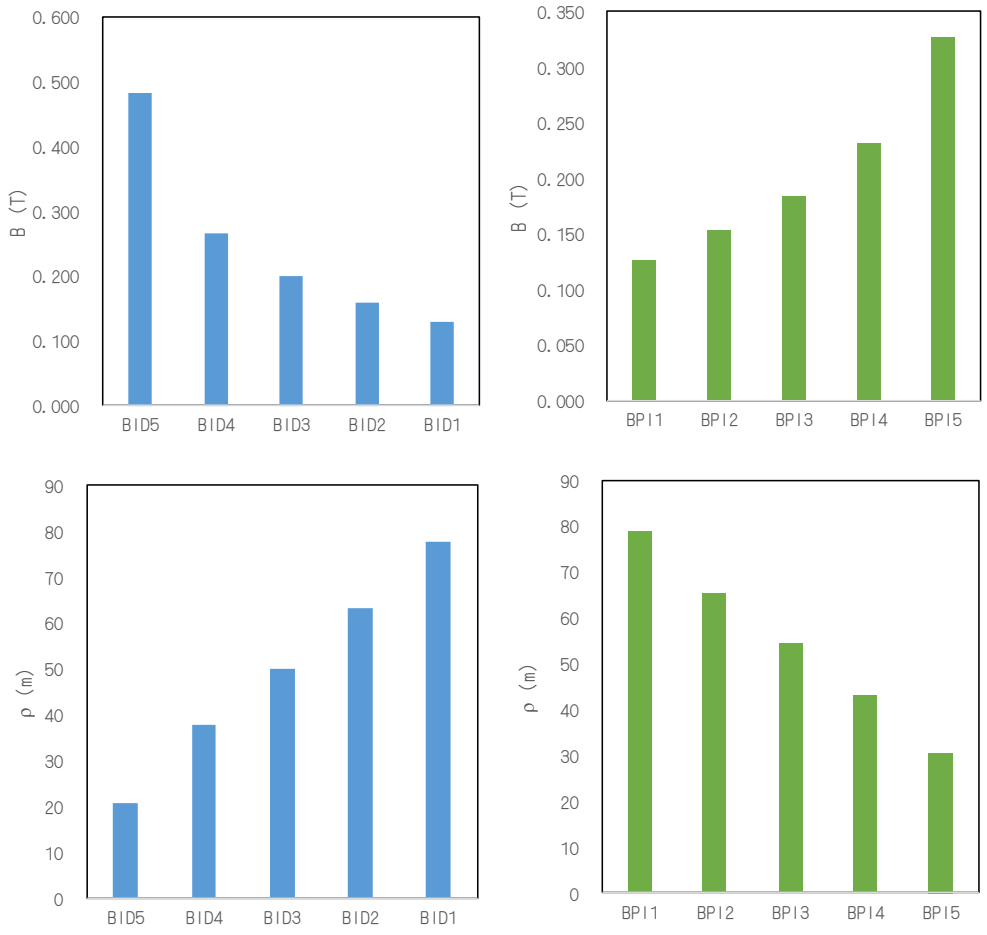
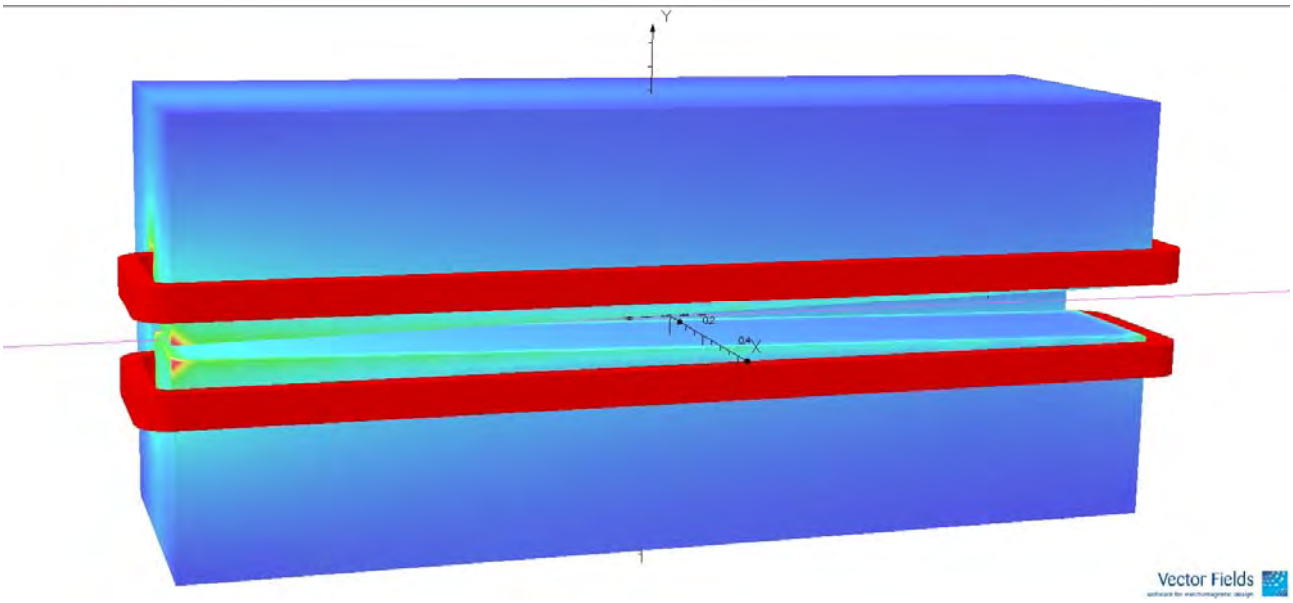


図 2. 14 Longitudinal Gradient Bend のパラメータ

進行方向に勾配のある電磁石の設計は 3 次元で行う必要がある。OPERA 3D によるモデルを図 2.15 に，磁場計算の結果を図 2.16 に示す。サジッタ等を考えた磁極幅の最適化等はまだこれからだが，電磁石の大きさや製作，飽和等については問題なさそうである。また，ビーム進行方向の磁場成分(ソレノイド成分)は非常に小さく，カップリングを有意に増大させたりアパーチャを減少させたりする問題は生じない。

(a) ギャップをテーパー（スロープ）的に変化させる場合のモデル例



(b) ギャップを階段状に変化させる場合のモデル例

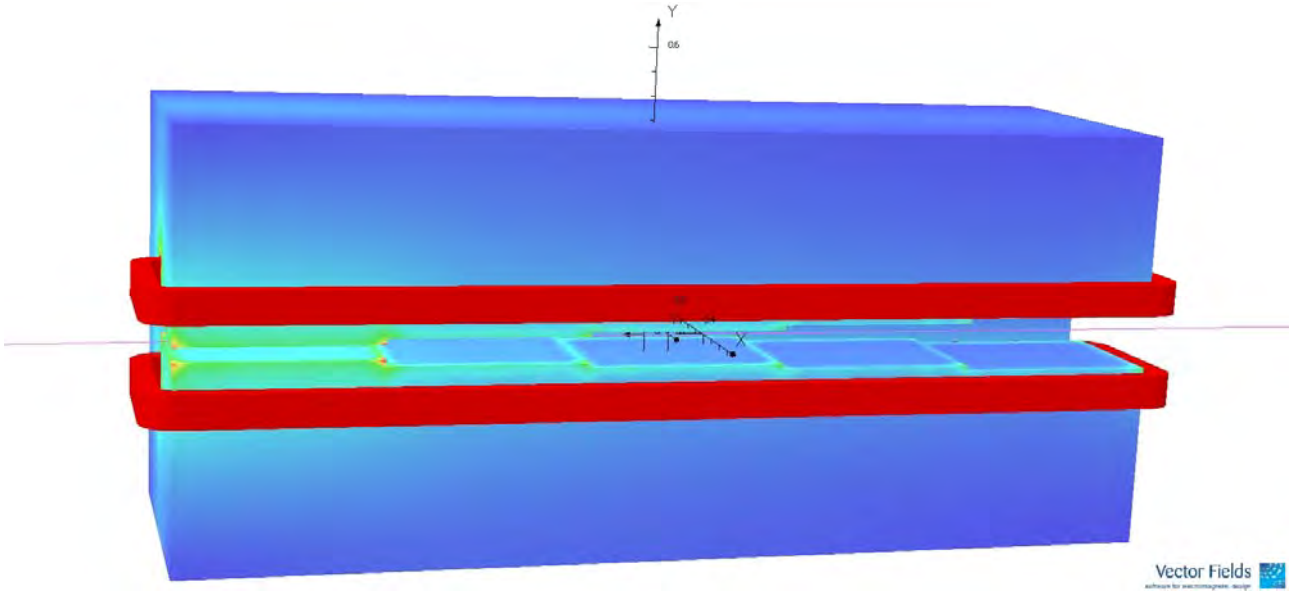
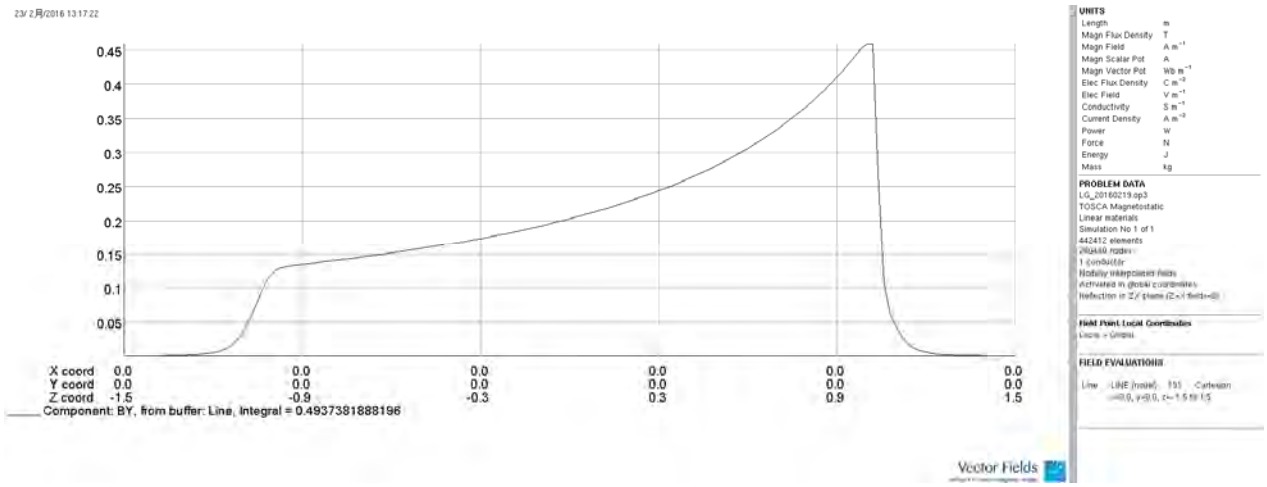


図 2. 15 進行方向に勾配のある電磁石のモデル2通りの例

(a) ギャップをテーパーで変化させた場合の磁場分布



(b) ギャップを階段状に変化させた場合の磁場分布

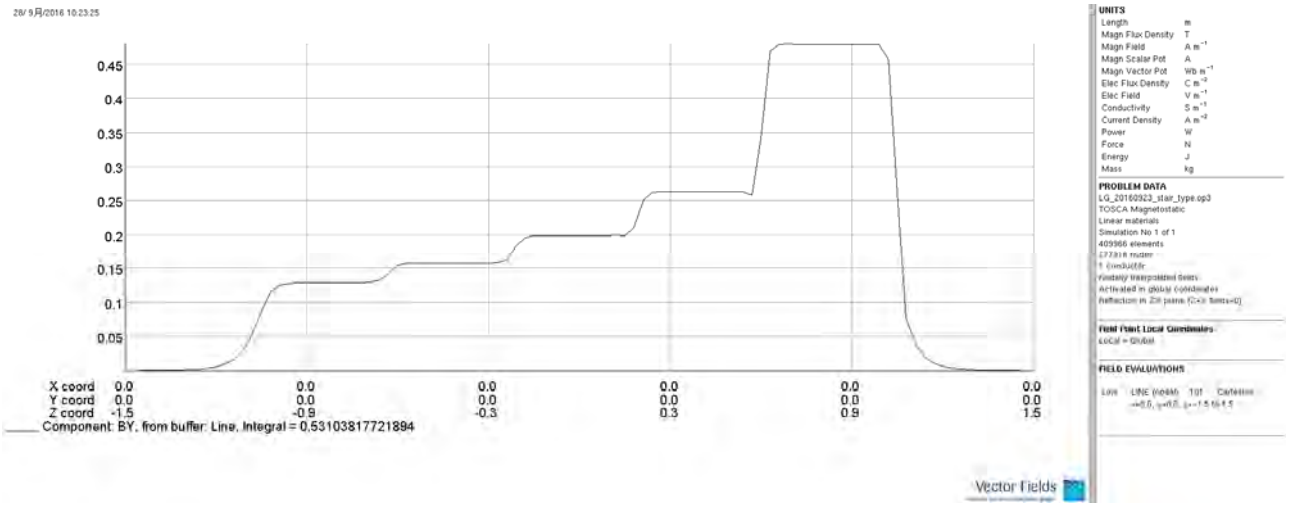


図 2. 16 BID のための磁場計算例

なお，ギャップを一定にしてコイルの巻き数を 5 段階に変える方法もあるが，各コイルのビーム進行方向の磁束線の混じりを防ぐ為に，コアにスリットを入れる必要が生じ，構造や応力計算が複雑になる。また，各コイルを直列に 1 台の電源に接続した場合にはコイルの巻き数の比が磁場変化の分解能になってしまう。その様な案も検討中であるが，ここでは代表的かつ有力な 2 案についてのみ例を示した。また，セクタか矩形か，微妙なエッジや裾などについては，各場合について正確に磁場測定及びモデリングが行われて，4 極のマッチングが行われれば，エミッタンスやダイナミックアパーチャに与える影響が小さいことを確認済みである。

2-6-2. 機能結合型偏向電磁石

2 台の機能結合型の偏向電磁石 BPI6，BPI7 だが，BPI7 は磁極を傾けるタイプの機能結合型偏向電磁石で問題はない。BPI6 については発散力が強いので，オフセットありの 4 極電磁石として考えてみることにする。パラメータをまとめると，以下のようになる（表 2.3）。

表 2.3 機能結合型偏向電磁石の発散力

	L[m]	B[T]	K[m^{-1}]	B'[T/m]
BPI6	0.806	0.677	-2.020	-25.064
BPI7	0.352	0.266	-0.013	-0.364

4 極磁場は中心軸からの距離に従って線形に変化する磁場である。従って，ビームが 4 極電磁石の中心軸からずれた場所を通過すると，ずれた距離に比例する偏向磁場を感じることになる。BPI6 の場合，25.06 T/m の磁場があるので，1 cm 中心軸から離れると，0.2506 T の偏向磁場成分があることになる。BPI6 を機能結合型偏向電磁石ではなく，オフセットありの 4 極電磁石として考えた場合，必要なオフセット量は 2.7 cm となる。例えば PF の場合，以前のボア直径 9 cm の 4 極電磁石の最大磁場勾配は約 20 T/m であった。従って，20 T/m の 4 極電磁石で 3.2 cm のオフセットはそれほど非現実的な値ではないことが分かる。また，水平発散極性の 4 極電磁石なので，オフセットした方向は通常の C 型の偏向電磁石と同じで，ヨークがある側にビームが曲がり，放射光が磁極の広い側に向かって出る，という極性になる。長さ 80.6 cm なので，ビーム軌道の曲率を考えずに，まさに通常の 4 極電磁石的に製作するか，それとも軌道の曲がり（サジッタ）を考慮に入れて，磁極をビーム進行方向に沿って曲線形状にするかは，製造し易さと精度，磁場測定のしやすさなどを総合的に考えて判断する必要がある。ESRF II では軌道の曲率を入れた曲線的な設計，同様にオフセットした 4 極を機能結合型偏向電磁石的に使っている J-PARC では直線的な設計になっている。いずれにせよ，磁場の値も磁場勾配の値も，限界に挑戦という感じの困難な値ではなく，PF や J-PARC の経験を生かして無理なく製作できる範囲になっていると言える。

cERL の 4 極電磁石は，補正コイルで水平，垂直ステアリング機能が追加されている。同じ原理で，垂直磁場と 4 極磁場を独立に変化させることも可能であるが，4 極電磁石で 2 極磁場を発生させると，6 極成分も発生する。そこで，BPI6 と BPI7 の間には補正用の薄い 6 極電磁石が設置されている。

低エミッタンスを実現するためには，偏向電磁石の磁場は弱くしなければいけない。その為，このリングの偏向電磁石の最大磁場は BPI6 の 0.677 T である。偏向電磁石からの光の臨界エネルギーは $\hbar\omega_c = \hbar\dfrac{3\gamma^3 c}{2\rho}$ と書ける。ここで，$\hbar$ はプランク定数を 2π で割った値，γ はビームのローレンツ因子，c は光速である。PF の場合，偏向電磁石 0.962 T で曲率半径が 8.66 m，臨界エネルギーは 4.00 keV となる。一方，BPI6 の場合，3 GeV で 0.67 T なので曲

率半径は 14.78 m，ローレンツ因子の増大の効果（$3^3/2.5^3=1.728$）で臨界エネルギーは PF と同じ 4.05keV となる。

BPI6 に対する 2 次元計算のモデルを図 2.17 に，ダクト位置を示す断面図を図 2.18 に，励磁曲線を図 2.19 に示す。BPI7 についても同様に，2 次元計算のモデルを図 2.20 に，ダクト位置を示す断面図を図 2.21 に，励磁曲線を図 2.22 に示す。

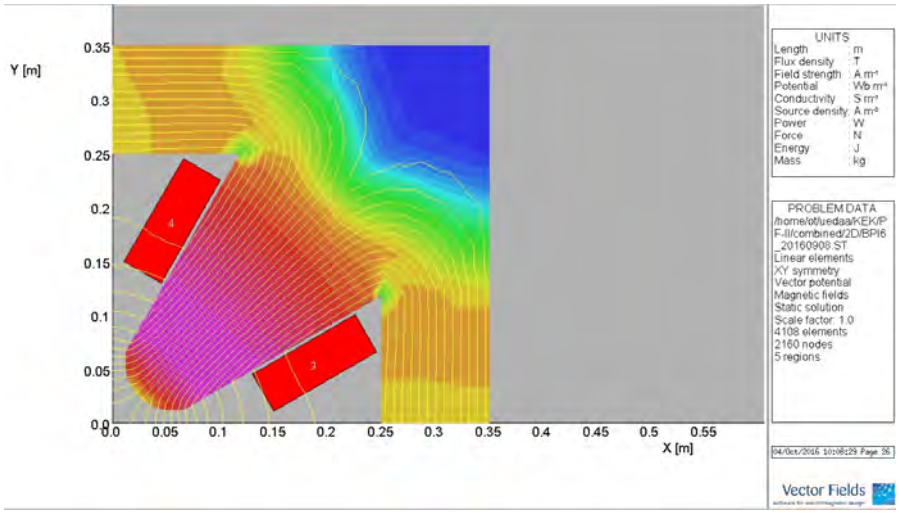


図 2. 17　BPI6 のモデル計算例

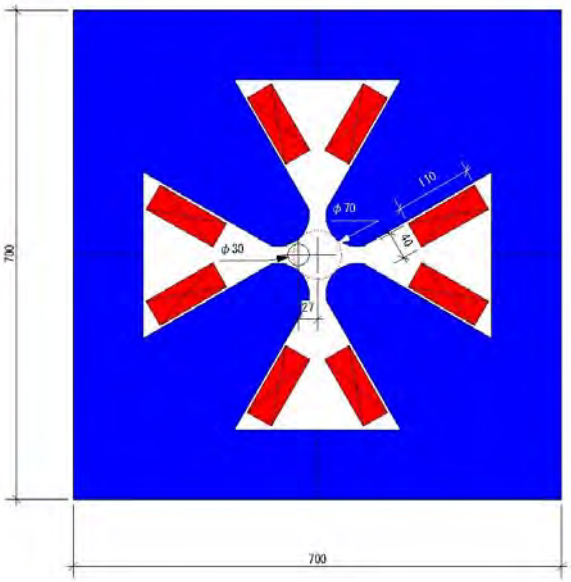


図 2. 18　BPI6（4 極型）の断面図例

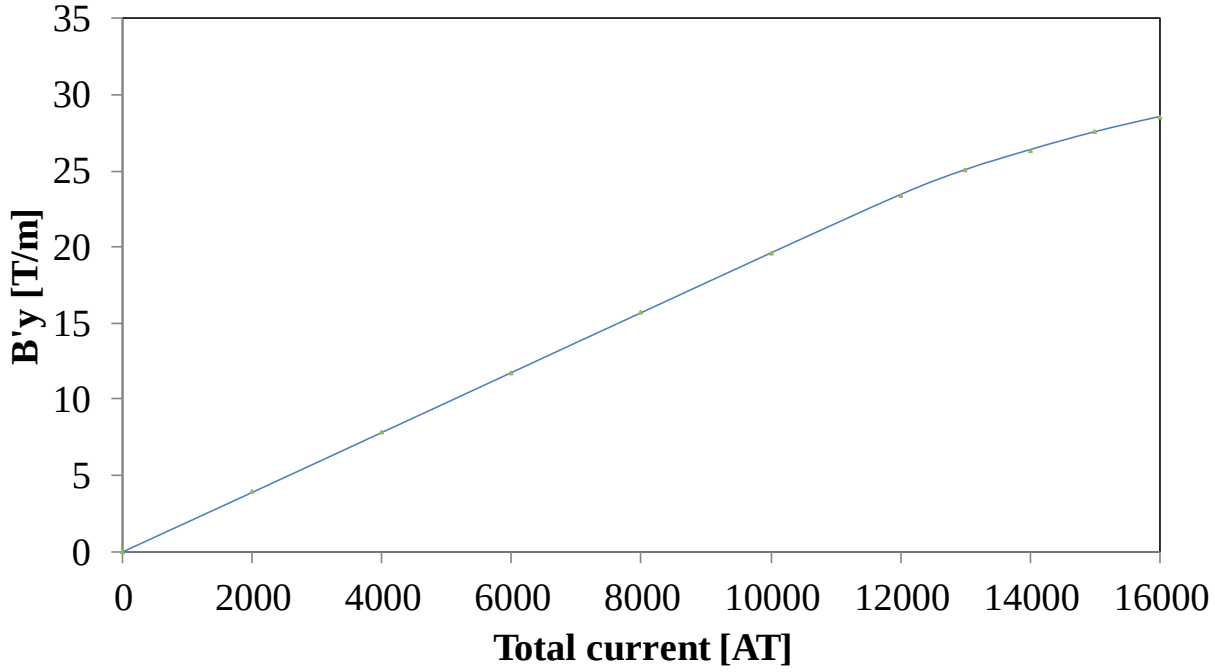


図 2. 19 BPI6 の励磁曲線例

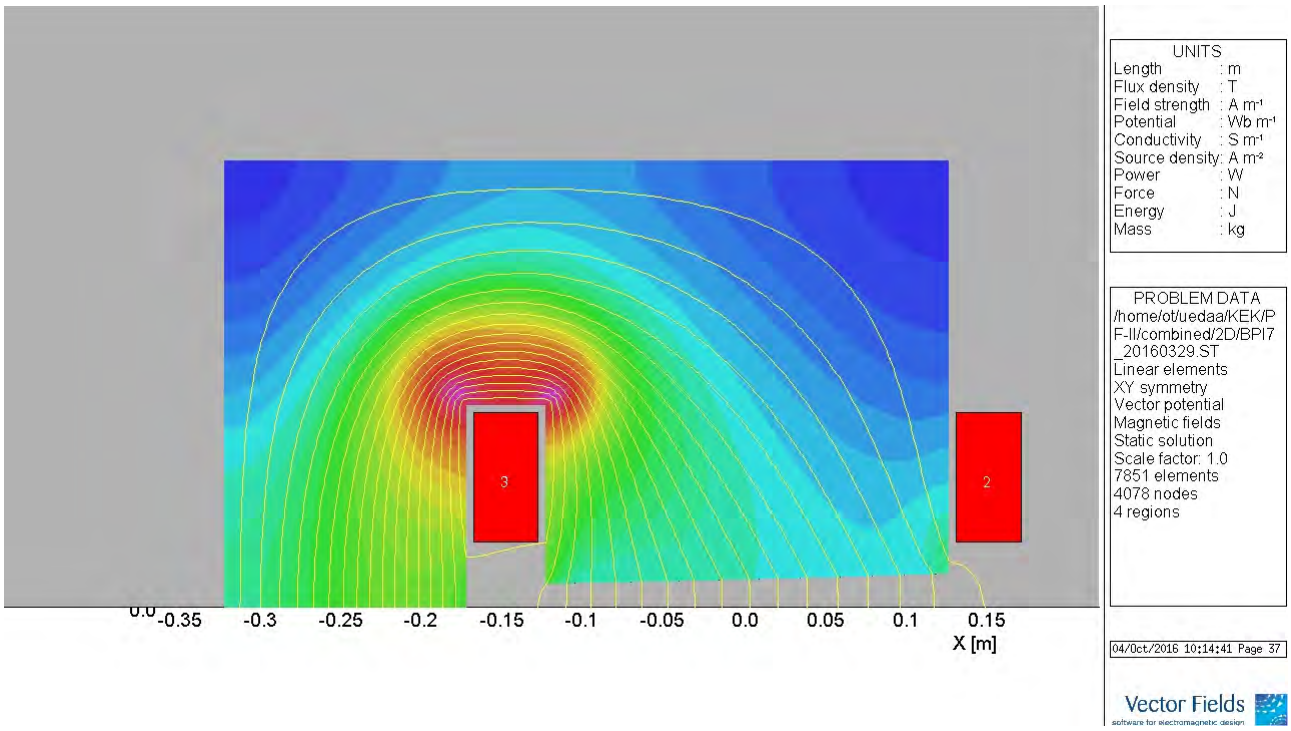


図 2. 20 BPI7 のモデル計算例

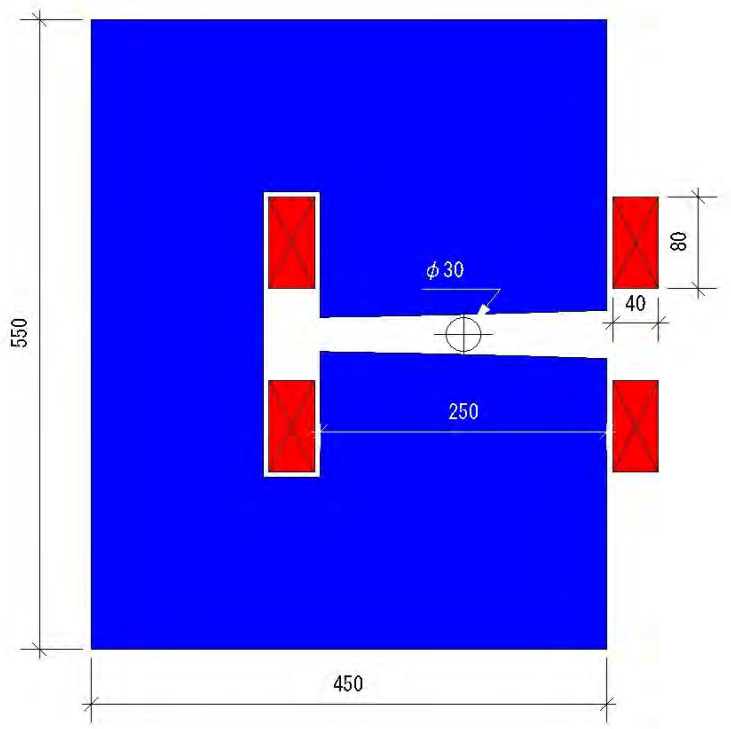


図 2. 21 BPI7 の断面図例

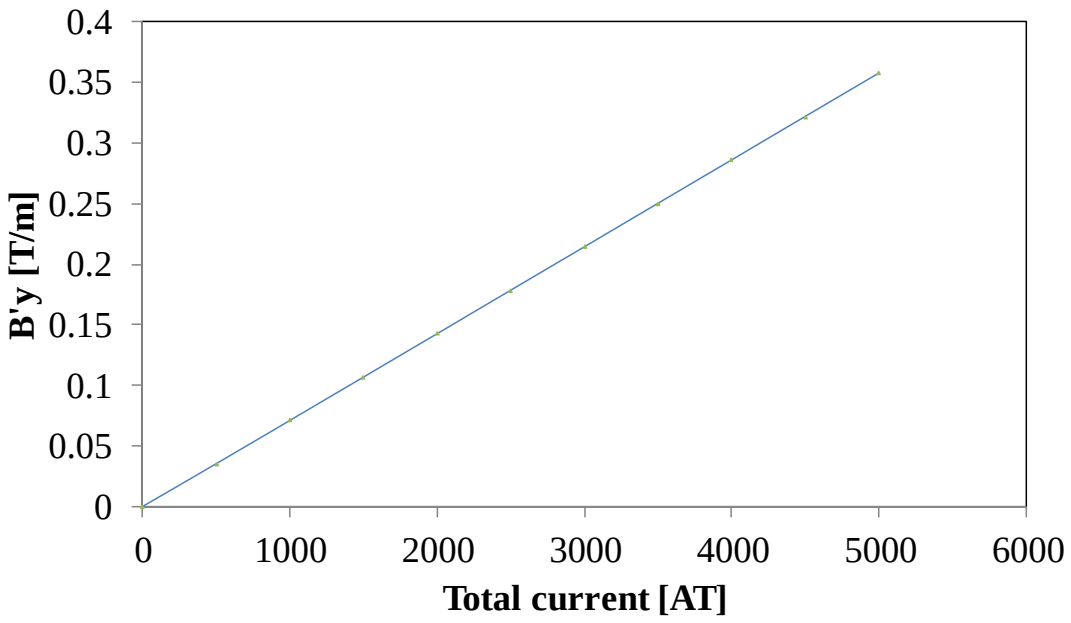


図 2. 22 BPI7 の磁場勾配の電流変化例

2-6-3.　4 極電磁石

4 極電磁石のパラメータを表 2.4 に示す。QS は入射セルの長直線部側の電磁石である。4 極電磁石の磁場勾配 $B'[T/m]$ は，$R[m]$ を磁極のボア半径として，$B' = \frac{2\mu_0 NI}{R^2}$ と書ける。また，4 極電磁石の K_1 $[m^{-1}]$ は電磁石の長さを $L[m]$，magnetic rigidity を $B_0\rho[T \cdot m] = \frac{E[GeV]}{0.3}$ として，$K_1 = \frac{B'L}{B_0\rho}$ と書ける。従って，ボア半径を小さくしていくと，その 2 乗に従って磁場を強くすることができる（飽和の問題があるので，限界はある）。

まず，参考として，PF リングノーマルセルに設置されている QD タイプの 4 極電磁石のパラメータを示す。電磁石の長さは 30 cm，コイル巻き数は各磁極あたり 23 ターン，ボア半径は 35 mm である。電源最大電流値は 800 A であり，その時の磁場勾配は計算では 37.8 T/m となるが，現実には電流値 500 A 付近から飽和が見られ，電流 800 A の時の実際の磁場勾配は 30 T/m である。ほとんどの電磁石は 30T/m を越え，最大は約 50T/m なので，PF と同じ設計では対応できない。そこで，ボア半径 35 mm を小さくすることを考える。2 乗で効くので，50T/m にする場合，飽和を考えなければ半径 30 mm にすれば 37 T/m は 50 T/m になる。一般的な電磁軟鉄を想定して 2 次元計算を行うと，ボア半径約 15 mm とすれば飽和の影響がそれほどない領域で十分な強さが得られる（飽和領域では必要な電源電流が大きくなり，漏れ磁場も増えるので，可能な限り飽和は避けたい）。

表 2. 4　4 極電磁石のパラメータ

	L[m]	K[m^{-1}]	B'/Bρ[m^{-2}]	B'[T/m]
QFA1	0.25	0.925	3.699	36.989
QDA2	0.2	-0.725	-3.626	-36.256
QDA3	0.2	-0.500	-2.498	-24.979
QFA4	0.2	0.517	2.583	25.834
QDA5	0.2	-0.405	-2.026	-20.261
QFA6	0.335	1.757	5.243	52.434
QFA8	0.5	1.884	3.767	37.670
QS5	0.2	0.528	2.640	26.403
QS4	0.2	-0.824	-4.121	-41.210
QS3	0.2	0.555	2.773	27.731
QS2	0.2	-0.173	-0.867	-8.672
QS1	0.1	-0.113	-1.131	-11.310
QS0	2.01	0.458	0.228	2.278

4 極電磁石の設計例として，2 次元断面図を図 2.23 に，励磁曲線を図 2.24 に示す。放射光が通るビームラインチャンネル用のダクトの配置を考慮し，鉄磁極（図の青）は上下のみとし左右（図の黄緑）は SUS のサポートである。これは PF リング直線部増強用 4 極電磁石

の設計を踏襲しているが，PF 同様，非磁性体部分についてはビームラインチャンネルのダクトをよけられるようにそれぞれ設計配置を行う。なお，磁極間の最も狭い間隔は 9 mm であるが，幸い，配置上，ビームラインがそこを通ることはない。磁場計算は最大磁場勾配が 50 T/m でよい場合（ポール幅 60mm）と余裕をみて 60 T/m とする場合（同 80mm）の 2 通りについて計算を行っている。ラティスの隙間の確保，オプティクスの改善でより強い 4 極が必要になった場合などは 60 T/m までは問題ないと言える。

(a) 幅狭(60mm)の場合の例　　(b) 幅広（80mm）の場合の例

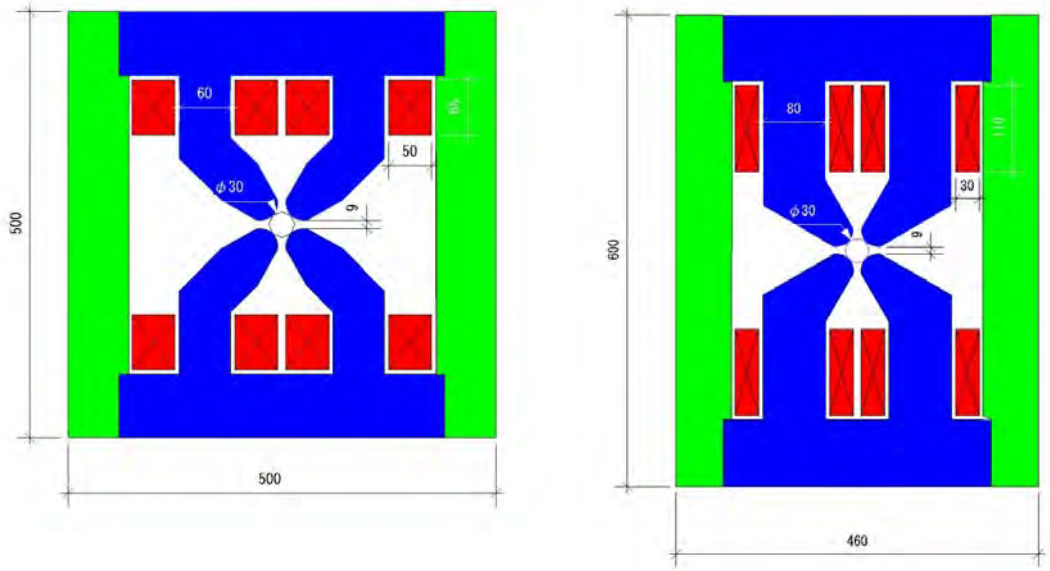


図 2. 23　4 極電磁石の例

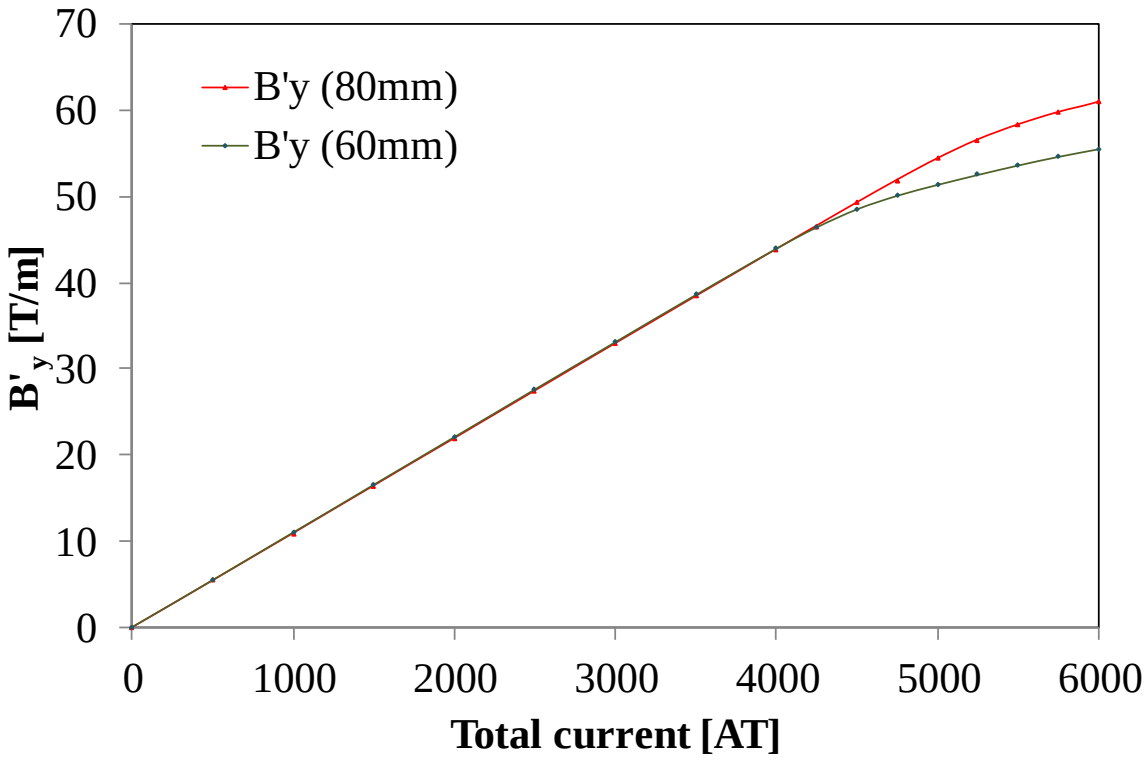


図 2. 24 4 極電磁石の励磁曲線例

2-6-4. 6 極電磁石

6 極電磁石の強さを表 2.5 に示す。6 極電磁石の磁場強さ $B''\left[T/m^2\right]$ は $B'' = \dfrac{6\mu_0 NI}{R^3}$ と書ける。また，K 値 $\left[m^{-2}\right]$ は $K_2 = \dfrac{B''L}{B_0\rho}$ と書ける。まずは参考の為，PF リングノーマルセルの SD タイプ 6 極電磁石のパラメータを示す。電磁石の長さは 20 cm, コイル巻き数は 17 ターン，ボア半径は 45 mm である。電源最大電流値は 450 A であり，その時の 6 極磁場は計算では 633 T/m^2 となる。ただし現実には電流値 300 A 付近から飽和が見られ，最大 6 極磁場の強さは 600 T/m^2 である。4 極電磁石の場合は磁場強さの観点からボアを半径 1.5 cm にする必要があるが，6 極電磁石の場合，ボア半径を 2 cm としても，総電流 3500 AT で線形領域で 3500 T/m^2 まで磁場を出すことができる。コアを薄くしすぎると裾磁場の影響が大きくなりすぎるが，コア長はもっと短くすることも可能である。真空やチャンネルとの取り合いを除けば，電磁石性能としての設計製造はそれほど難しくない。

表 2.5　6 極電磁石のパラメータ

	L[m]	K[m^{-2}]	B"/Bρ[m^{-3}]	B"[T/m^2]
SD	0.18	-24.765	-137.583	-1375.832
SF	0.18	30.269	168.160	1681.600

6 極電磁石の設計例として，2 次元断面図を図 2.25 に，励磁曲線を図 2.26 に示す。

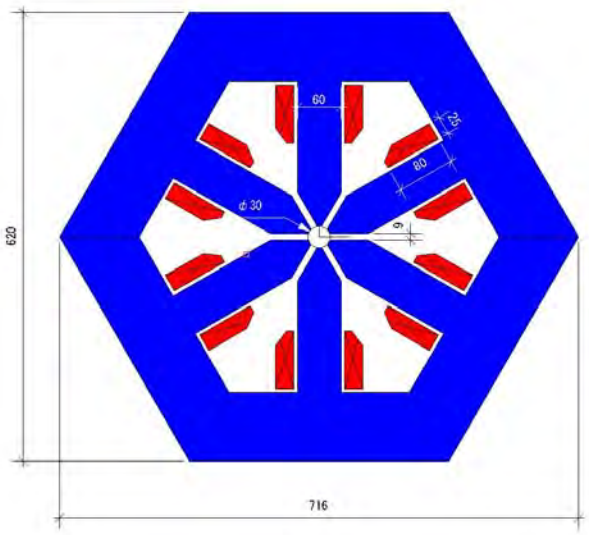


図 2.25　6 極電磁石の断面形状例

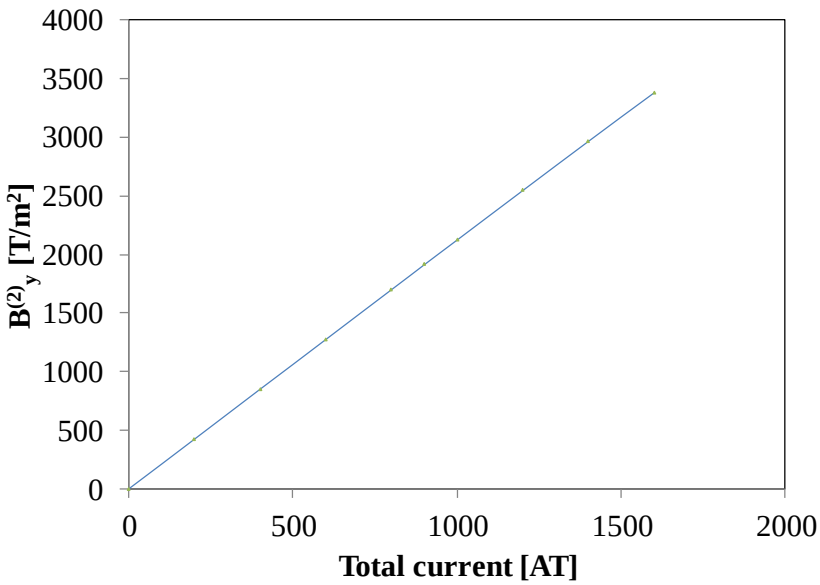


図 2.26　6 極電磁石の励磁曲線例

2-7. チューンシフトと色収差

図 2.27 に運動量依存, 振幅依存チューンシフトを示す。誤差を入れると水平振幅約 160σ, 運動量方向 3%に限界があり，整数共鳴線がアパーチャを決めていることが分かる。6 極電磁石の最適化，運転チューンの微調整でアパーチャを広げられる可能性も残されている。図 2.28 に色収差補正前後の水平方向，垂直方向の運動量依存チューンシフトを示す。色収差はゼロになるように 6 極 2 ファミリーで補正を行っている（全周の 6 極を自由に振って遺伝的アルゴリズム等を用いて最適化する方法もあるが，微妙な非線形性の変化やモデル化の精密性に大きく依存する為，ここでは，単純に 2 ファミリーの 6 極しか用いていない)。

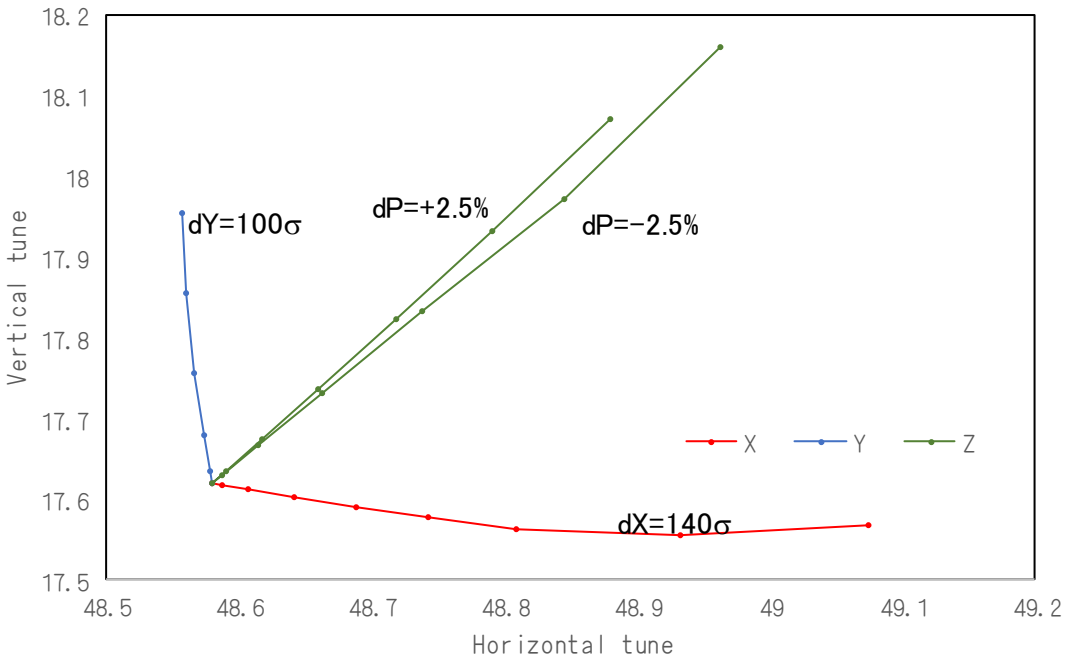


図 2.27 チューンシフト

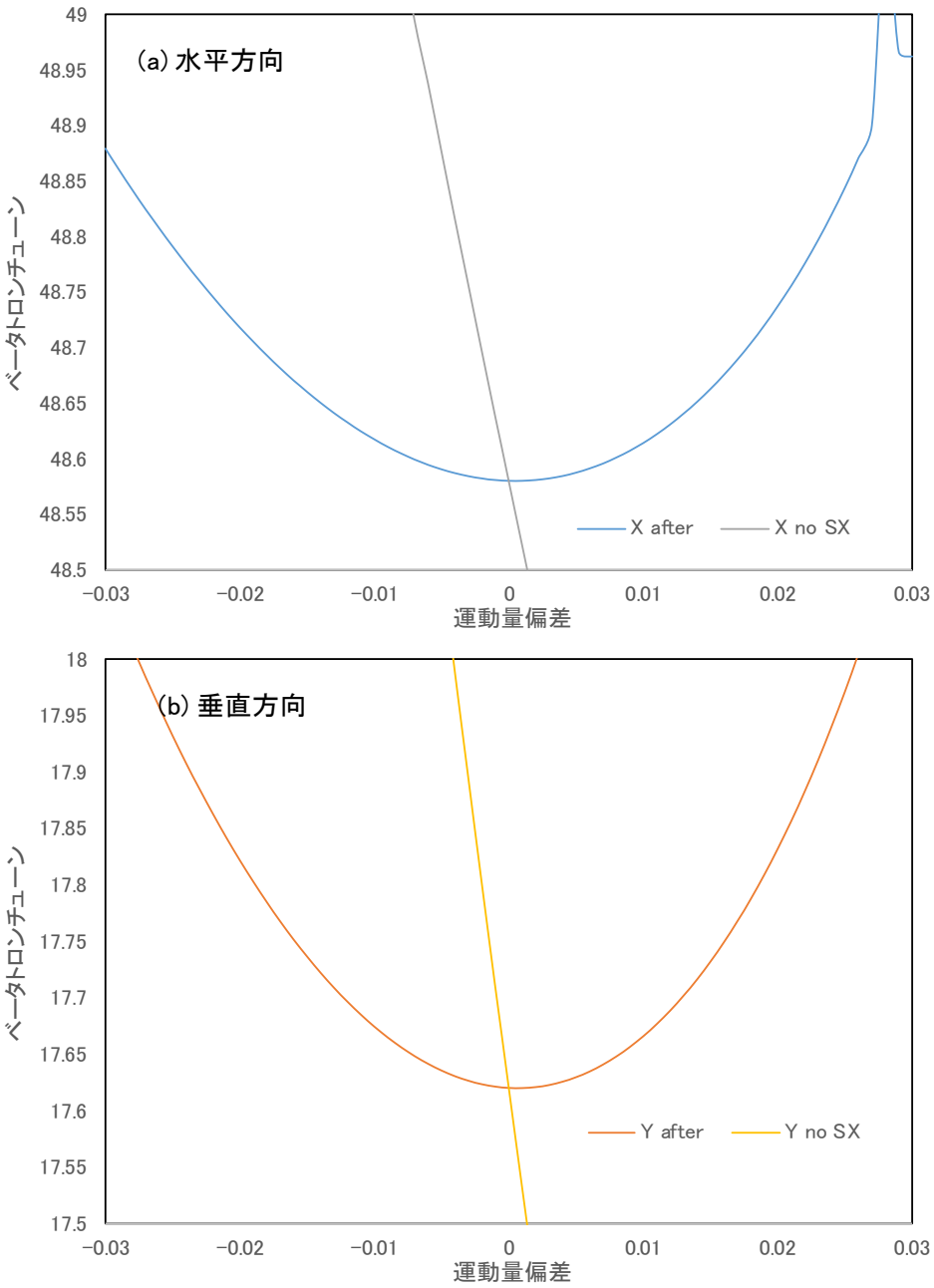
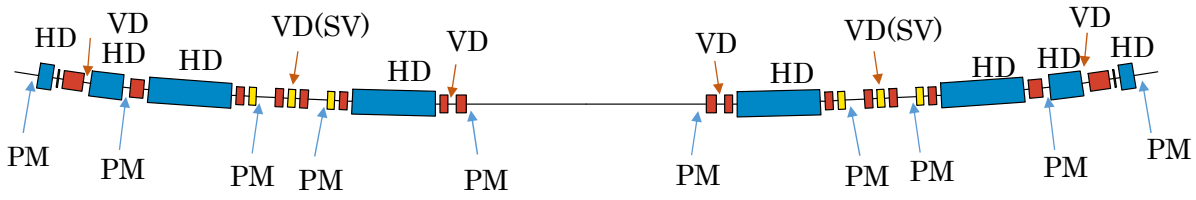


図 2. 28 色収差補正前後の運動量依存チューンシフト

2-8. BPM とステアリングの配置

ステアリングの配置を図 2.29 に示す。HD が水平ステアリング, VD が垂直ステアリング, PM は BPM である。ノーマルセルでは，水平ステアリングは偏向電磁石のバックレグで，垂直ステアリングは 4 極電磁石及び 6 極電磁石の補正コイルを考えている。入射セルについては，通常のノーマルセルに加え，直線部中央の 4 極 QS0 の補正コイルをステアリングとする。ノーマルセル 1 セルにつき，水平ステアリング 8 カ所，垂直ステアリング 6 カ所，BPM10 カ所であり，入射セルは水平 9 カ所，垂直 7 カ所，BPM11 カ所である。リング 1 周では水平ステアリング 161 カ所，垂直ステアリング 121 カ所，BPM 201 カ所となる。

弧部ノーマルセル



入射セル

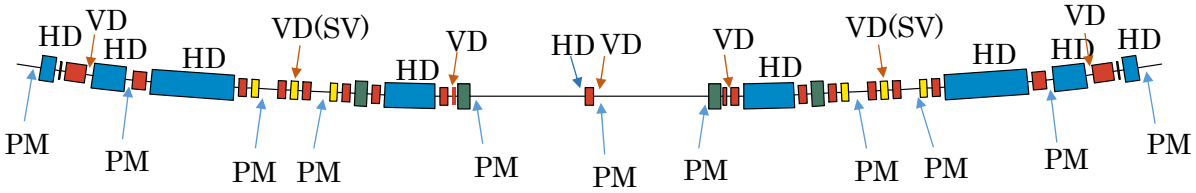


図 2. 29 BPM, ステアリング配置

2-9. 誤差の影響

据え付け誤差，磁場強さの誤差，電磁石の傾き誤差の影響について述べる。まずは各誤差単独で入れた場合について影響を計算し，最後に，一式全て入れた場合のアパーチャ等を計算する。

図 2.30 に電磁石の据え付け誤差の影響を示す。ここでは据え付け誤差のみを考え，最大誤差は 1σとする。例えば，50 μm の据え付け誤差という場合，幅 50 μm のガウス分布の乱数誤差を入れるが，50 μm を超えた場合は 50 μm 以下になる様に乱数を振り直している。据え付け誤差 0～60 μm まで 5 μm 毎に 1000 通りを計算し，平均値をプロットしている。一般的な据え付け誤差を 50 μm とすると，単独でそれしかない場合，COD はリング一周の最大値で 4 mm，rms で 1 mm 程度発生することが分かる。また，COD や分散の歪みが巨大（計算上，COD が 20 cm，分散歪みが 2 m 以上を解なしと判断した）になったり，チューンが整数共鳴をまたいでしまって解が求まらなかったりした場合の割合も示す。50 μm の場合でも 1000 回中 523 回が解なしであった。現実的には，ステアリングと 4 極をシングルターンモニタで調整しながらコミッショニングを行うので，全く無補正時の発散はその手順をシミュレーションに入れればよいのだが，今回はそこまで行っていない。

図 2.31 に 4 極，6 極電磁石の強さの誤差の影響を示す。同様にまずは強さの誤差のみを単独で考え，据え付け誤差と傾きの誤差は入れていない。誤差 0.01%毎に 1000 通りの平均値である。強さの誤差単独の場合，0.1%あったとしてもそれほど問題にはならない。磁場測定や電磁石製造上の限界は，恐らく 0.05%（最大 3 乗，σ で 4 乗台前半）程度であろうと思われる。強さの誤差のみの場合，解なしにはならない。

図 2.32 に偏向電磁石，4 極，6 極電磁石の回転誤差の影響を示す。水平方向の分散，エミッタンスが誤差によるカップリングによって垂直方向に回る量の大きさである。垂直方向の目標エミッタンスを 8 pm·rad とすれば，回転誤差単独であれば 0.4 mrad まで許されることになる。現実には回転誤差は 0.1 mrad 程度までは容易に抑え込むことができ，その場合，回転誤差単独ならばビーム品質を大きく悪化させることはないことが分かる。回転誤差だけの場合も，解なしにはならない。

最後に，3 種類全ての誤差を入れた場合についてまとめる。目標とする誤差の許容量を設定するのは難しいが，上記の誤差，すなわちガウス分布の誤差で，標準偏差 1σが，据え付け誤差 50 μm，強さの誤差 0.05%，回転誤差 0.1 mrad であるものを考え，最大誤差は 1σ とする。据え付け誤差と回転誤差については，PF 直線部増強の際，レーザー・トラッカーと N3，精密水準器で据え付けを行った後の確認測量結果のばらつきがほぼこのような値であった。新リングでは架台等の剛性が向上するので，締め付けによるたわみなどが原因で増大する分については改善されると想定される。すなわち，PF 並の誤差は余裕のある大きめの値ということになる。一方，磁場強度の誤差については，DR や cERL の電磁石に対するハーモニックコイルによる磁場測定精度がほぼこの値である。図 2.33 に，この大きさの誤差

を入れた場合の影響を 50 通り計算した結果を示す。図 2.34 に，各場合に対して COD 補正を行った結果を示す。COD 補正は固有値法で行い，固有値はステアリング数の半数（水平 80，垂直 60）とする。また，補正後のステアリングの蹴り角は半分入れるものとし，補正を 20 回繰り返す。BPM 及びステアリングの強さに誤差はないものとしている。

図 2.35 に前述の誤差（据え付け誤差 50 μm，強さの誤差 0.05%，回転誤差 0.1 mrad，最大値は標準偏差と同じ）を入れた場合の，COD 補正に対する水平方向の固有値の数の影響を示す。垂直方向の固有値はステアリングの半数の 60 であり，補正はステアリング半分戻しで 20 回行った結果である。水平方向の固有値 5～160 まで, 5 毎に 50 通りの平均値である。BPM とステアリングの誤差は考えないので，固有値を増やすほどずれの残留値は減っているが，固有値がおよそステアリング数の半分（80）程度になると，それ以上増やしてもあまり改善しないことが分かる。図 2.36 に同様に垂直方向の計算結果を示す。垂直方向も同様にステアリング数の半分（60）程度になると，それ以上固有値を増やしてもあまり改善しないことが分かる。図 2.37 に，固有値をステアリング数の半数（水平 80，垂直 60）とし，ステアリング半分戻しとした時の COD 補正回数とずれの残留値の関係を示す。

図 2.38，図 2.39 に前述の誤差（据え付け誤差 50 μm，強さの誤差 0.05%，回転誤差 0.1 mrad，許容最大値は標準偏差と同じ）を入れた場合のダイナミックアパーチャを示す。グラフには，100 通りの平均値の他に，アパーチャの領域の広さで並べ替えた場合の水平垂直の和が最も広い場合と，その運動量で最も狭かった場合とを示す。なお，回転誤差と強度の誤差については増減させてもアパーチャはほとんど変わらない。一方，据え付け誤差についてはじわじわとアパーチャが増減するが，整数共鳴線でアパーチャが決まっているので，減らしても大幅に改善しない一方，100 μm でも大きく減少することはなかった。誤差入りでアパーチャ約 160σ, 入射点の実寸で約 1 cm となる。また, 運動量方向のアパーチャは約 3%, タウシェック寿命は 500mA 時で 1.8 時間となる。

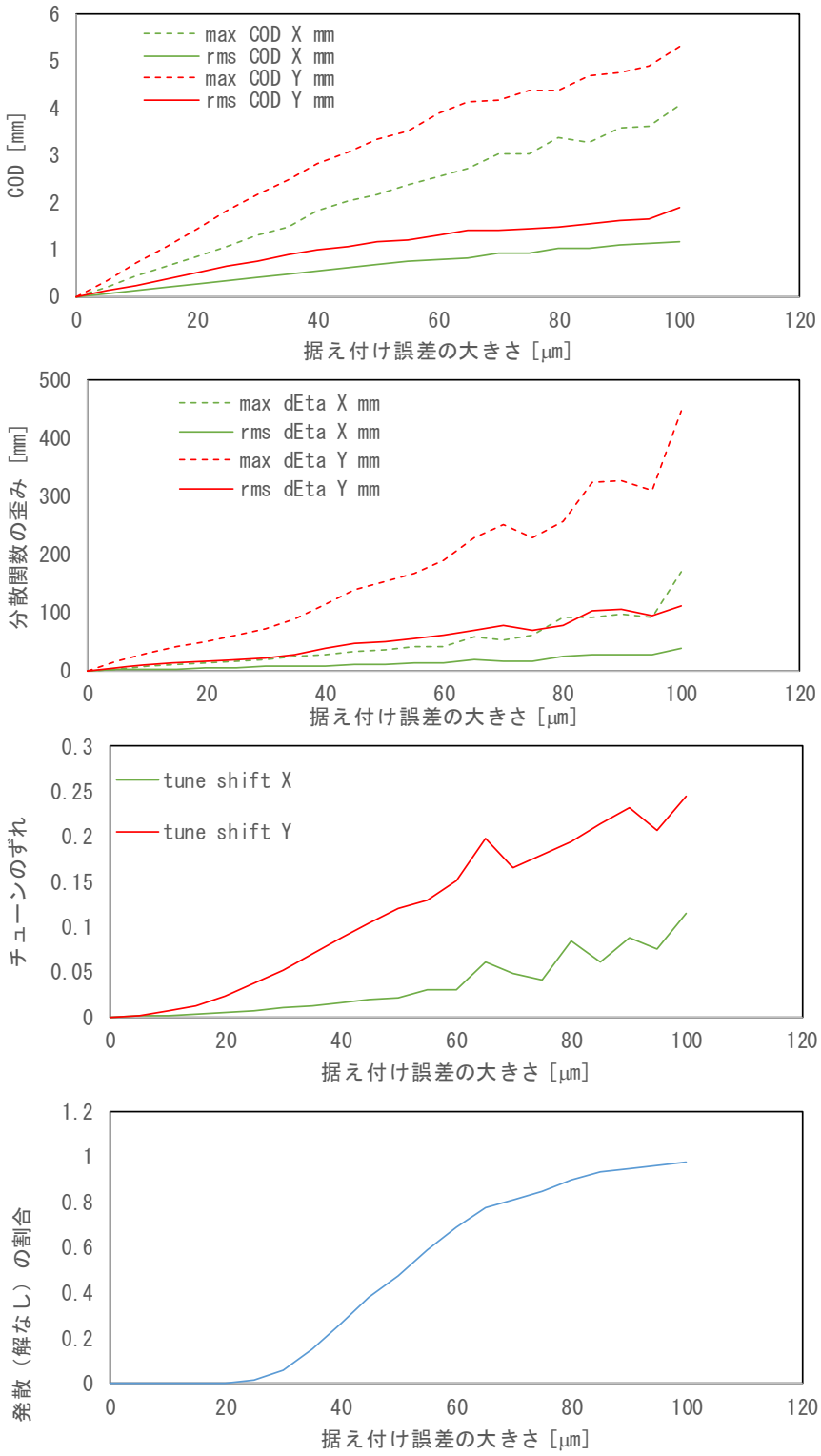


図 2.30 据付誤差の影響

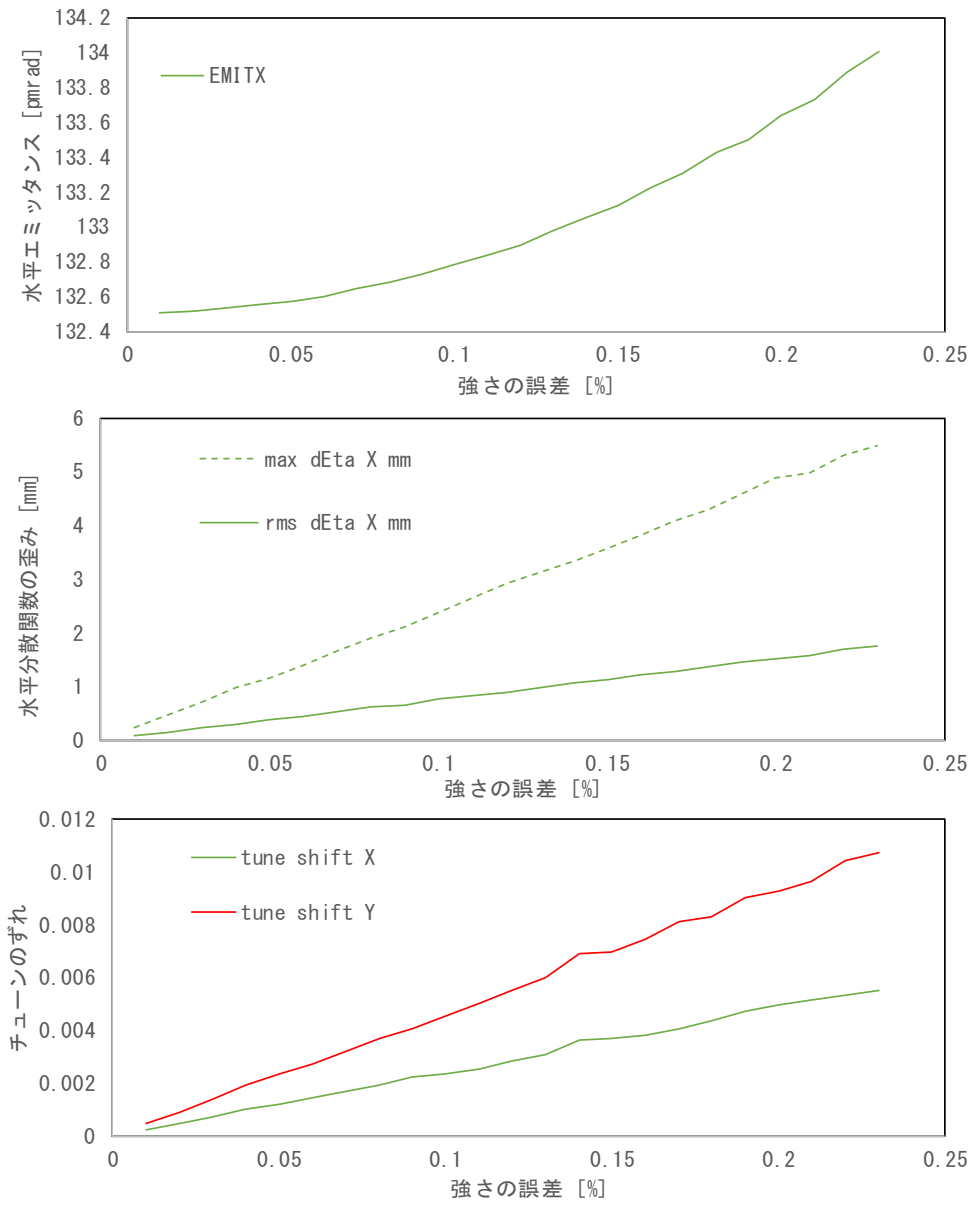


図 2.31 強さの誤差の影響

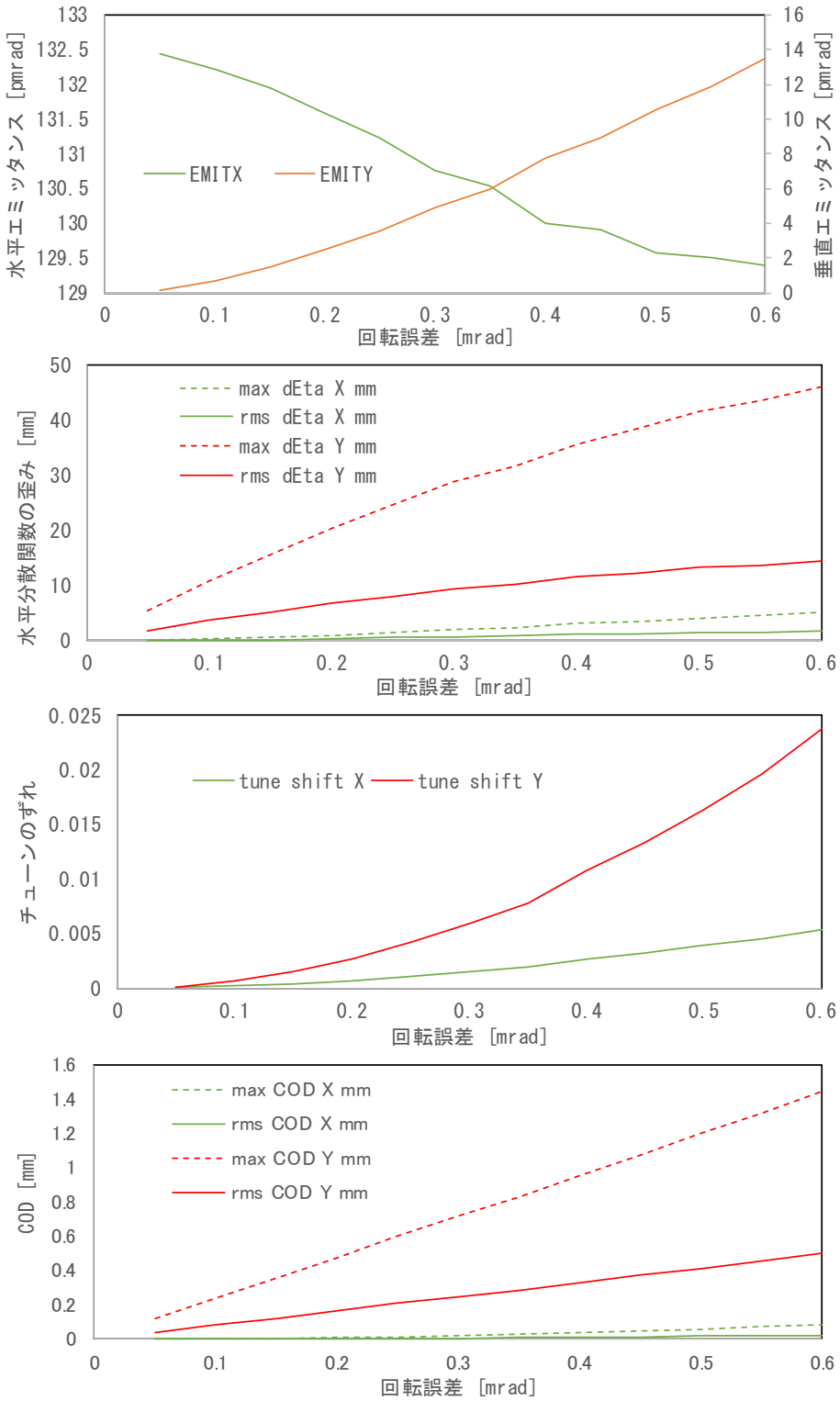


図 2.32 回転誤差の影響

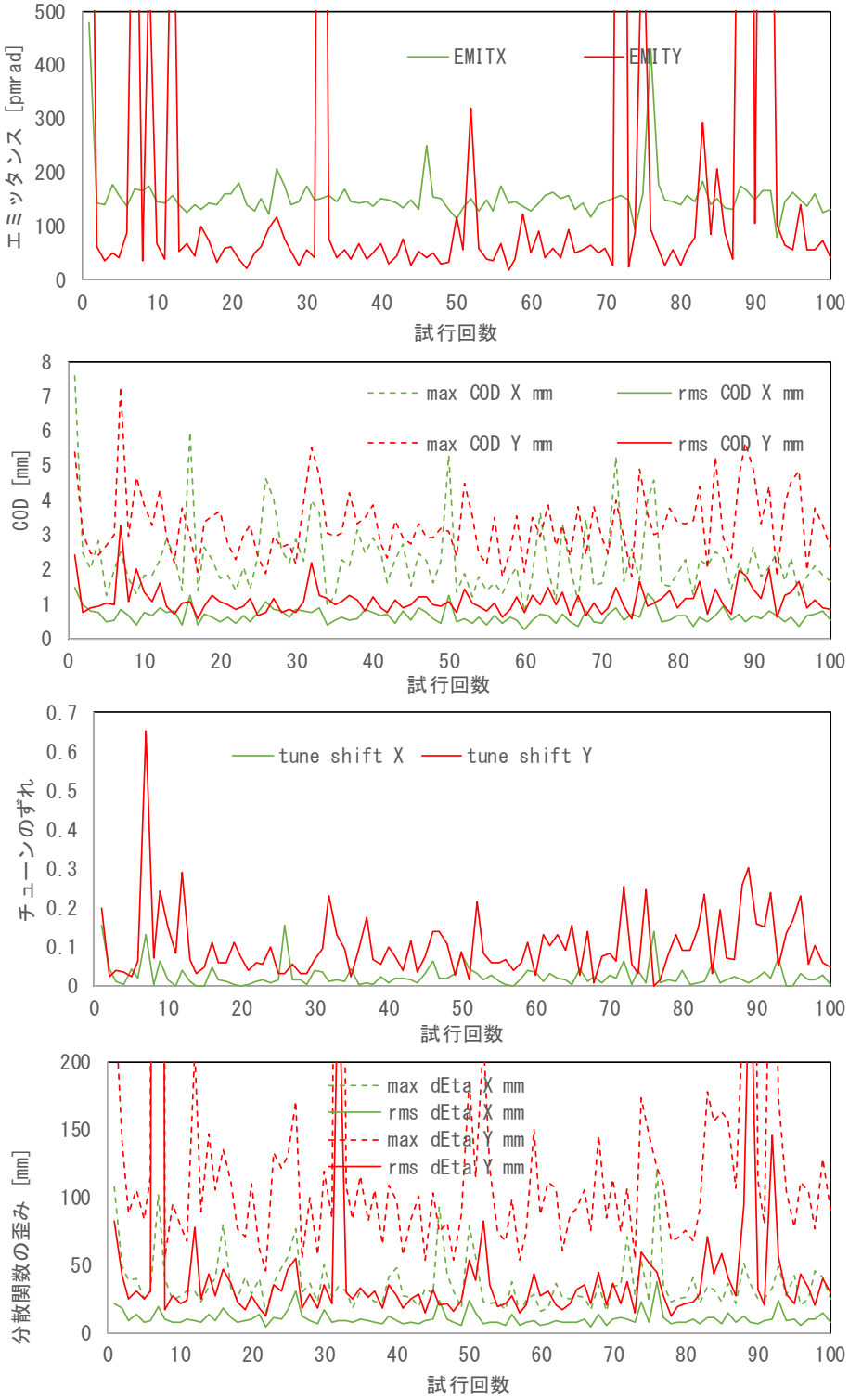


図 2.33 標準的な誤差の影響(補正前)

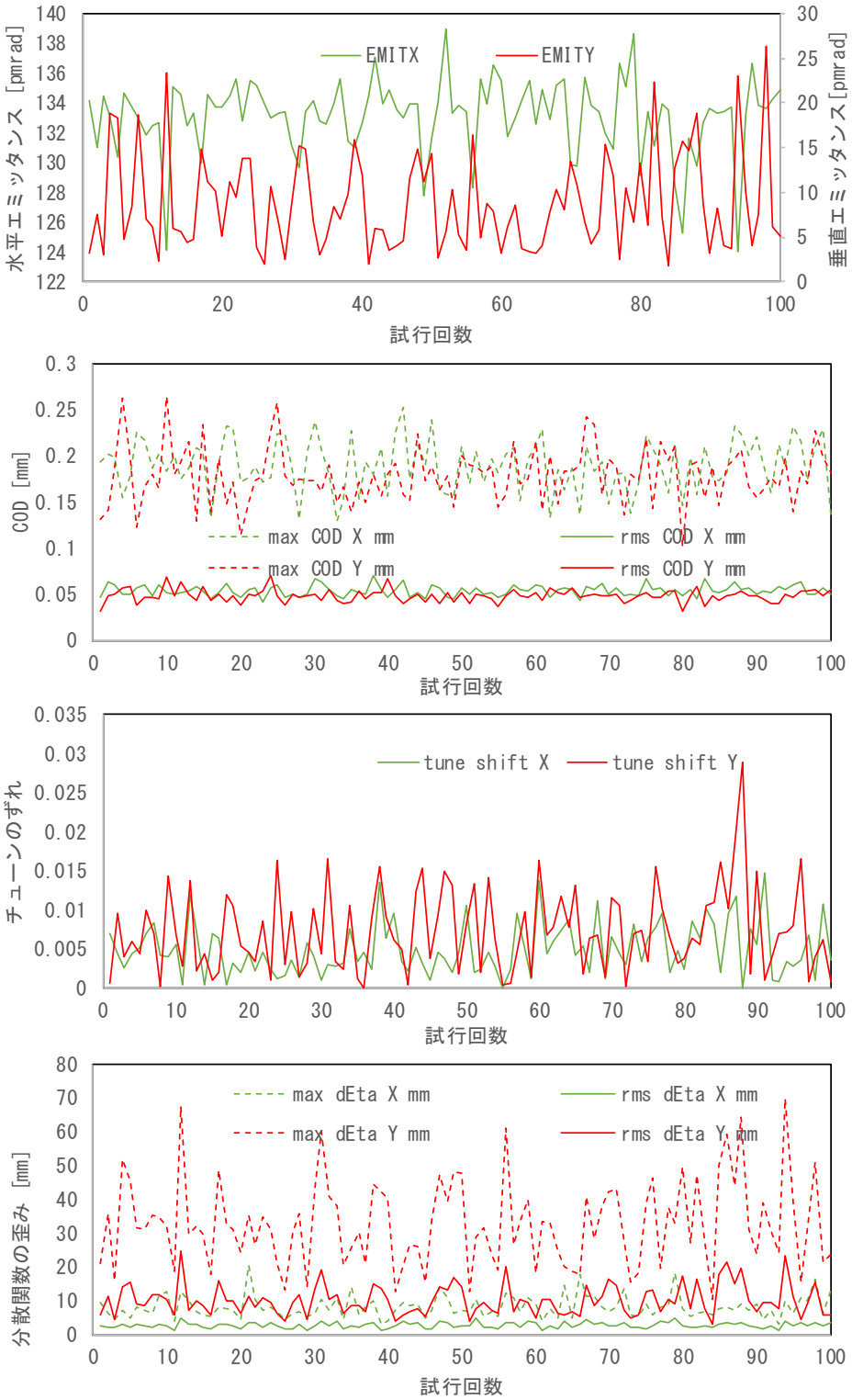


図 2.34 標準的な誤差の影響(補正後)

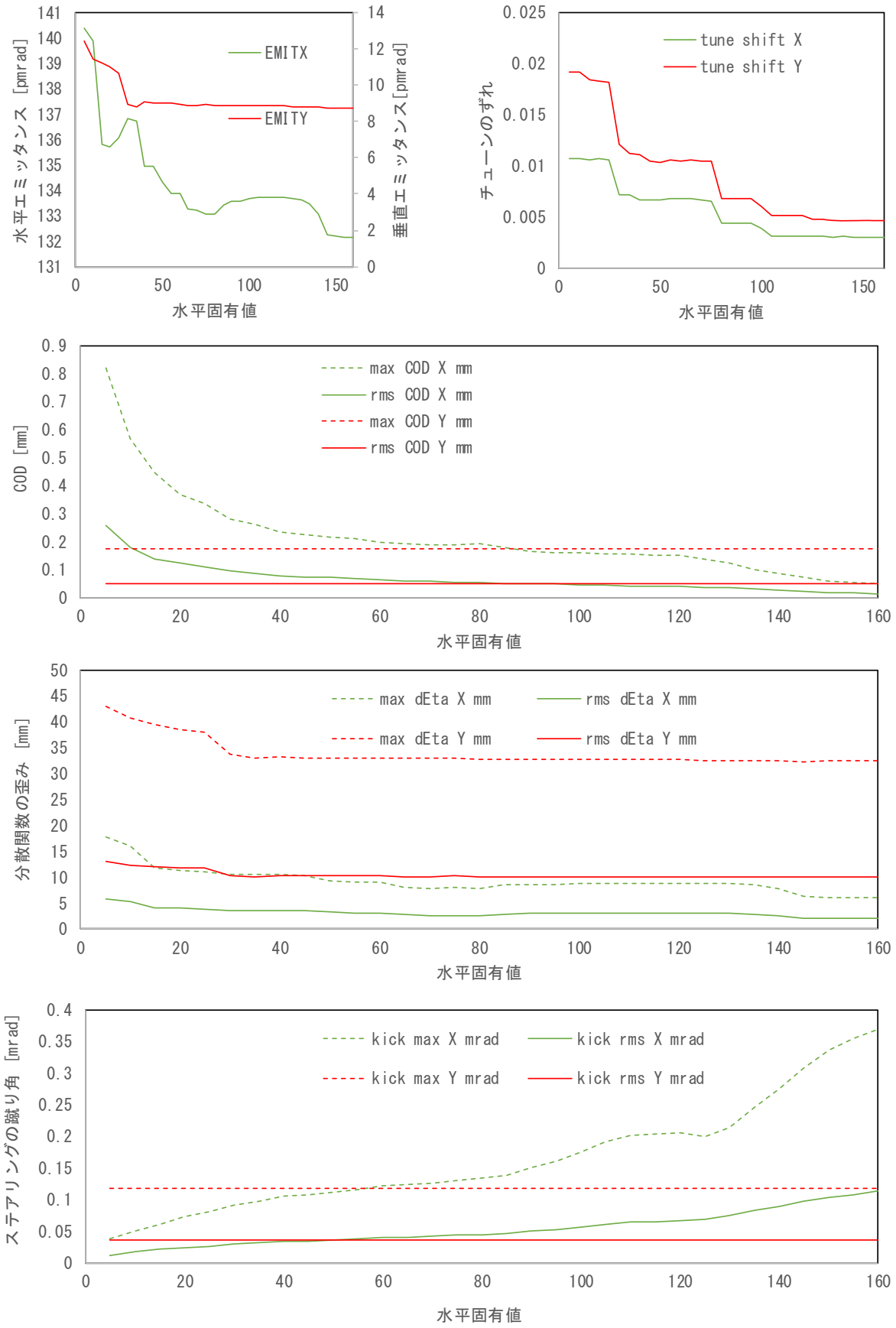


図 2.35 水平固有値と COD 補正

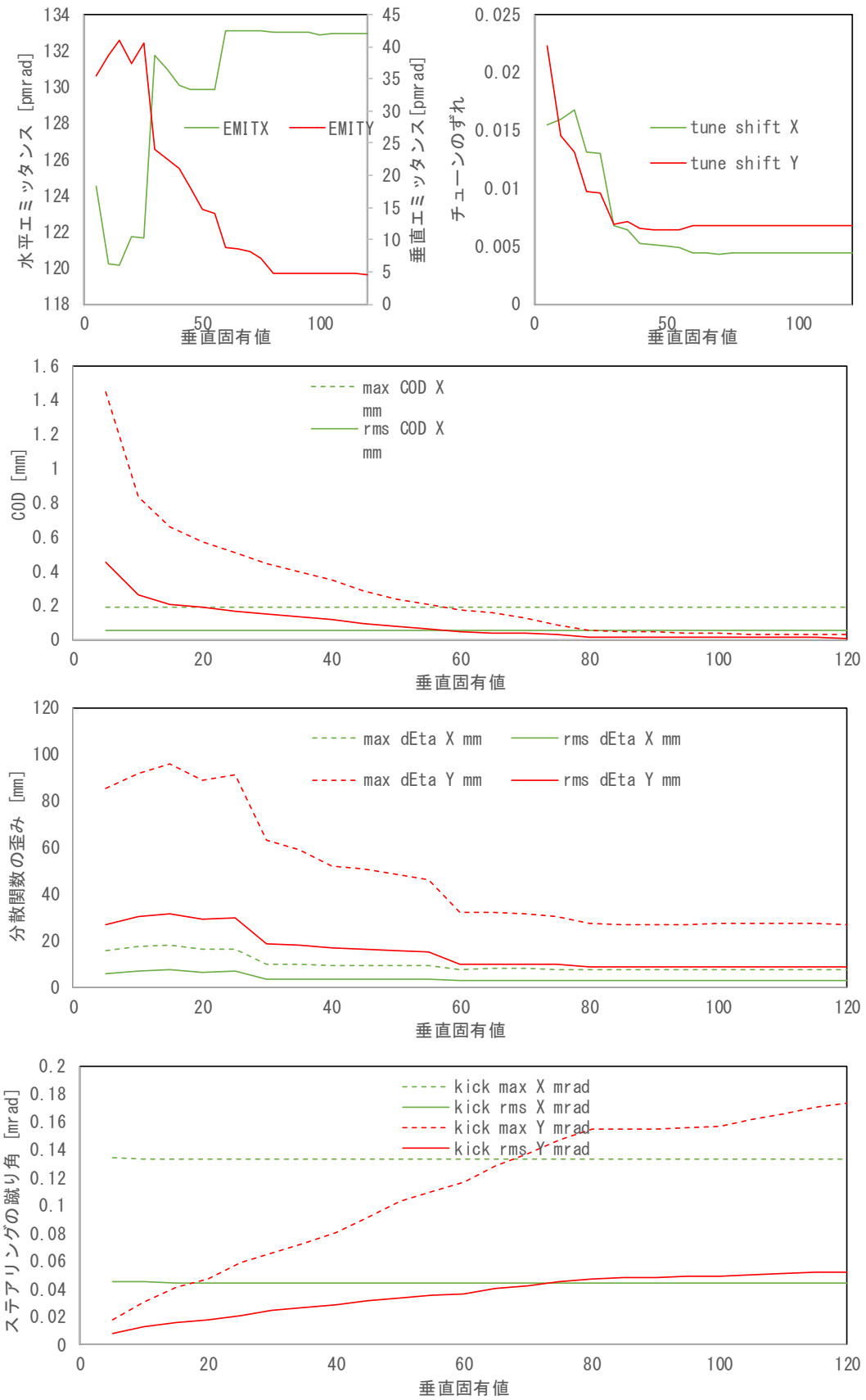


図 2.36 垂直固有値と COD 補正

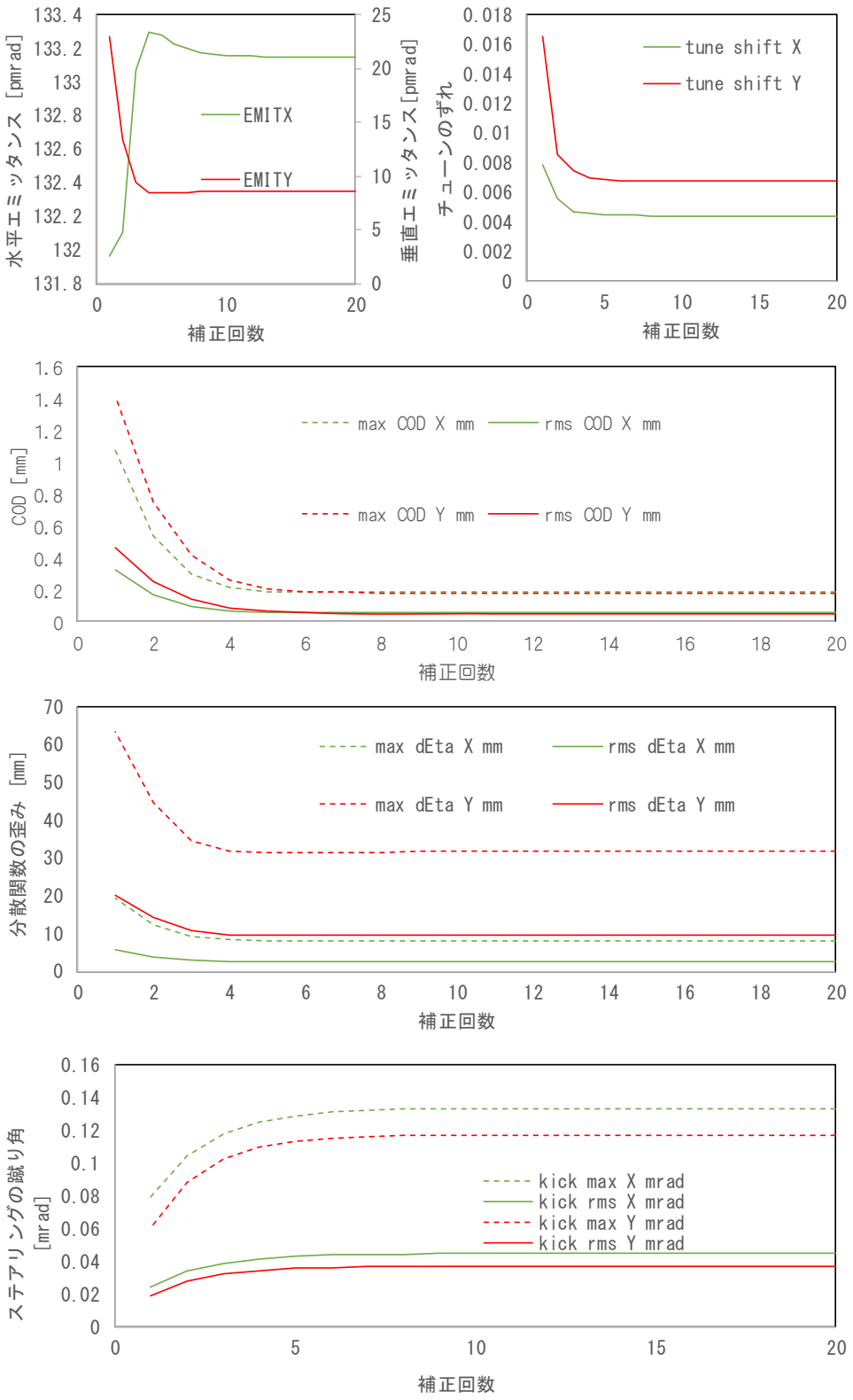


図 2.37 補正回数と補正値

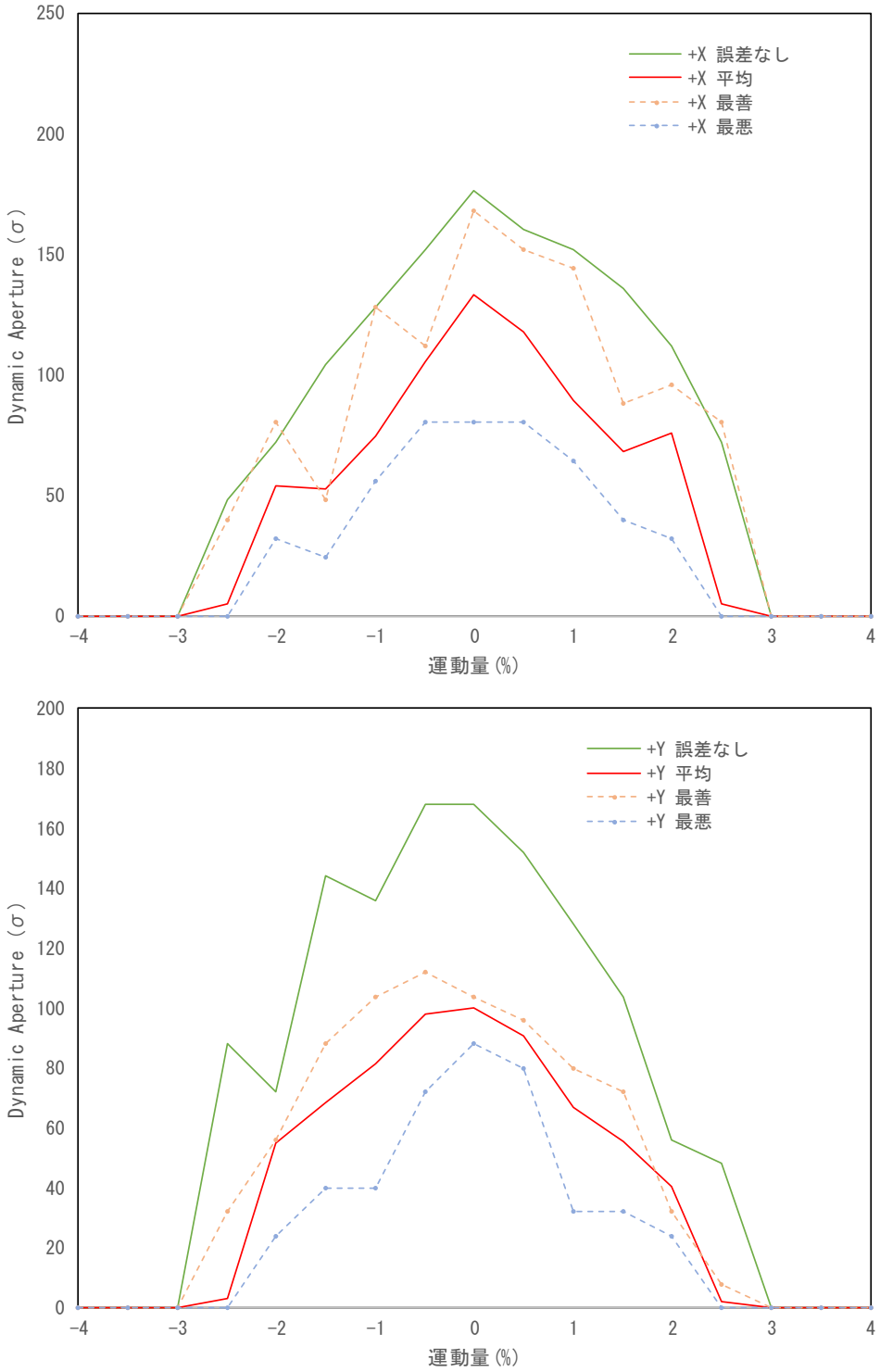
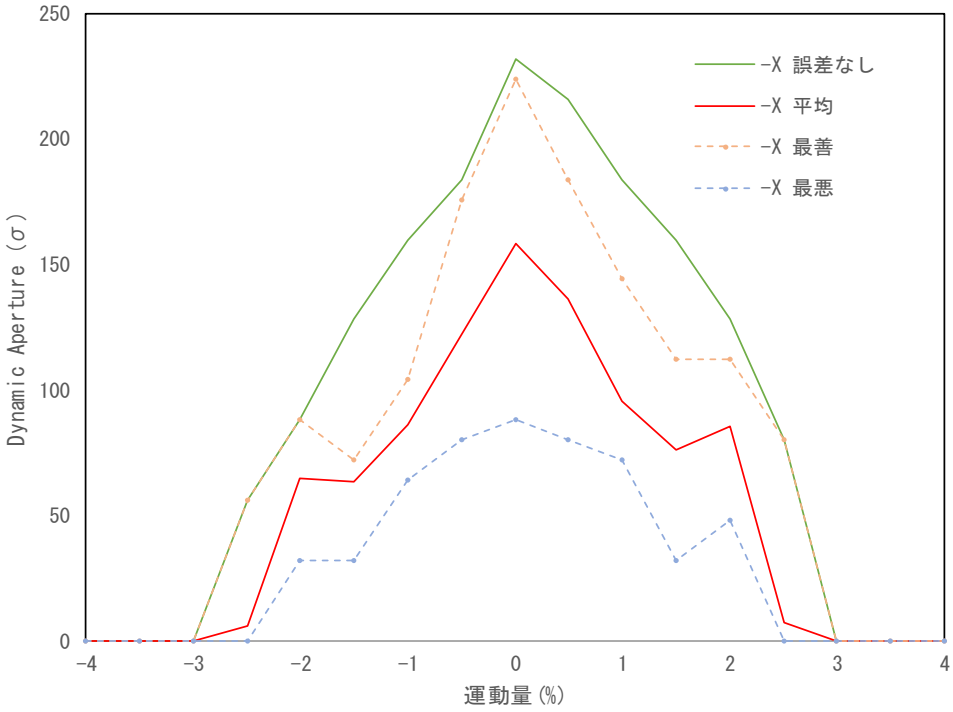


図 2.38 ダイナミックアパーチャ(正(外・上)側)



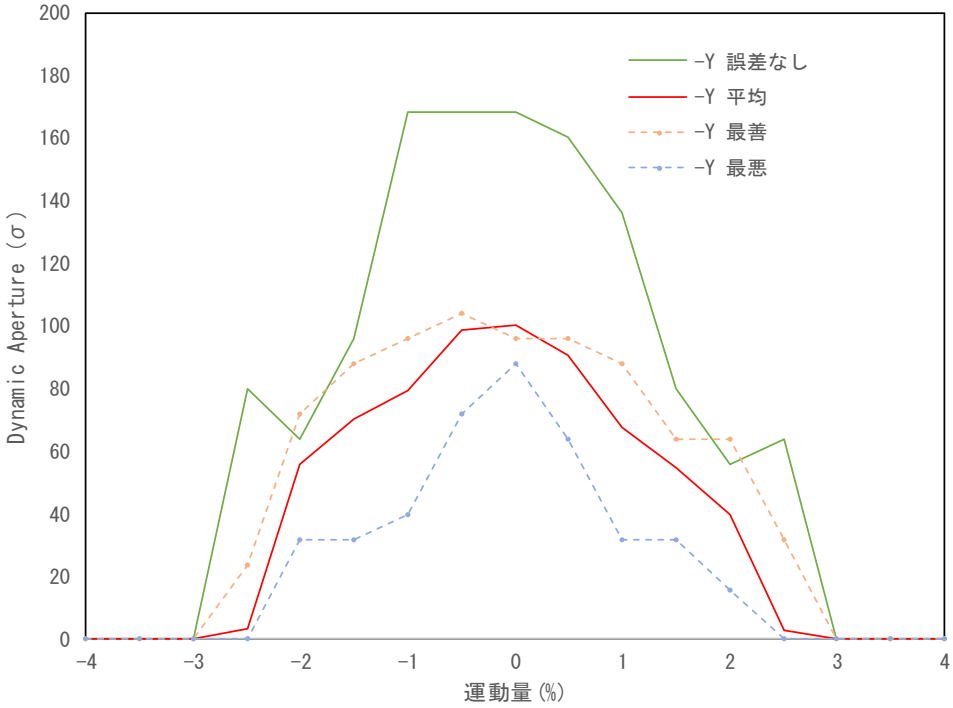


図 2. 39 ダイナミックアパーチャ(負(内・下)側)

2-10. 入射スキーム

既存の PF 入射器である LINAC を引き続き利用し，さらに，入射器のビーム性能をアップグレードしなかった場合の入射スキームを図 2.40 に示す。ダイナミックアパーチャ，キッカーの強さ等，特に問題はない。電子銃の性能向上によって入射ビームサイズが小さくなればより入射は容易となる（現在は PF に対して 3T 熱電子中から入射を行っているが，SuperKEKB Phase II 運転の為には準備中の A1-RF 電子銃から PF への入射を行う必要があり，それが可能になれば入射ビームの品質は KEK 放射光計画の実現を待たずに向上する）。

また，既存の新第 3 世代放射光源のように，独立した小さな LINAC からリングトンネル内にコンパクトに設置したブースターへ入射し，加速した後にメインリングに入射するという選択肢も考えている。

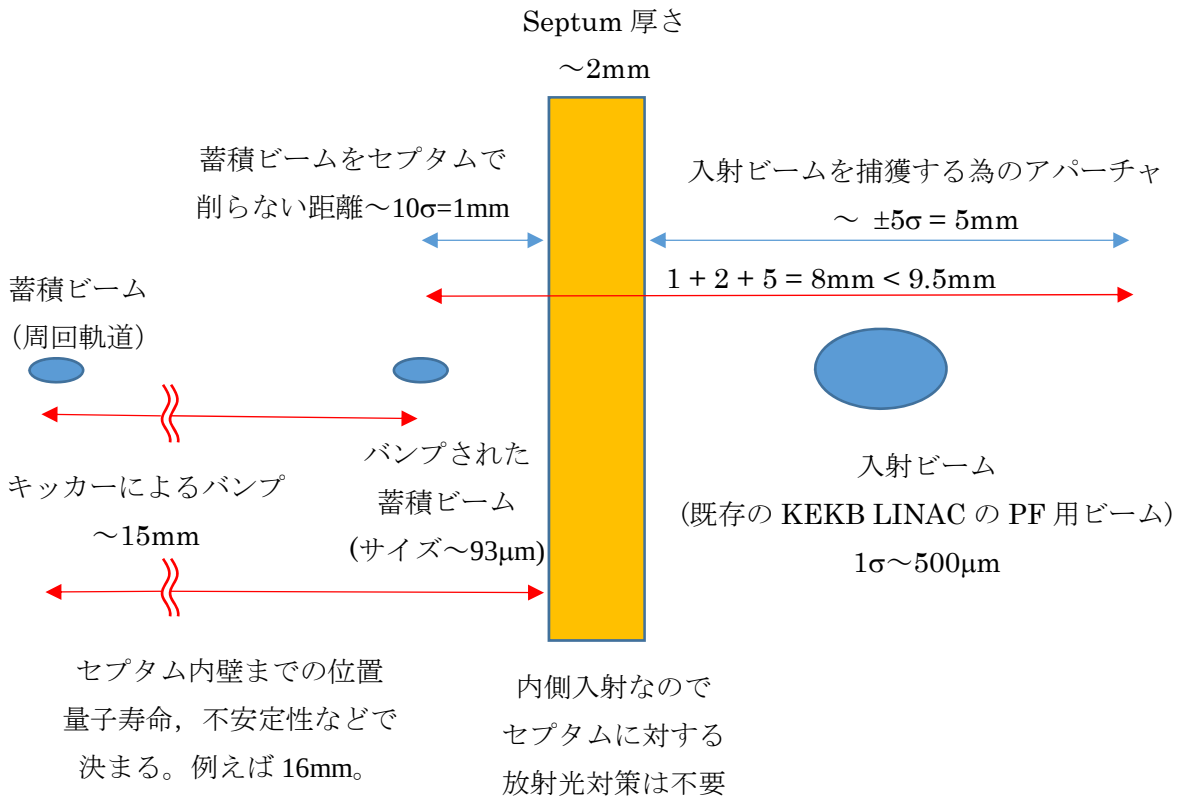


図 2. 40 入射スキーム

2-11. 抵抗性インピーダンスの影響

本リングに設置する小ギャップ真空封止型アンジュレータの数や長さが PF リングに比べて増加し，ベータトロン関数もやや大きくなる。そのために，横方向の抵抗性インピーダンス（Resistive-wall impedance）によるビーム不安定性が生じやすくなる。また，バンチ長が短くなるために，同じアンジュレータギャップであっても縦方向の抵抗性インピーダンスによる発熱量が増加する。ここでは，アンジュレータの抵抗性インピーダンスによるビーム不安定性や発熱への影響について述べる。

2-11-1. ウェーク場とインピーダンス

リング内を周回する電子やバンチはリング内壁の凹凸や壁の材質の抵抗によって電磁場を発生し，同一バンチ内の後続の電子あるいは後続のバンチに影響を与える。単位電荷当りのこの電磁場をウェーク場（wake field）と呼ぶ。ウェーク場には縦方向（longitudinal）ウェーク場$W_\ell(z)$と横方向（transverse）ウェーク場$W_t(z)$があり，それぞれに対して縦方向と横方向のインピーダンスをそれぞれ次のように定義する[2.11]。

$$Z_\ell(\omega) = \frac{1}{c}\int_{-\infty}^{\infty} W_\ell(z) e^{-i\omega z/c} dz \tag{2-1}$$

$$Z_t(\omega) = \frac{i}{c}\int_{-\infty}^{\infty} W_t(z) e^{-i\omega z/c} dz \tag{2-2}$$

インピーダンスはウェーク場のフーリエ変換のようなものである。一般にウェーク場あるいはインピーダンスは，ビームと加速器の壁までの距離が近くなると大きくなる。抵抗性インピーダンスでは，さらに壁材の抵抗率（あるいは電気伝導率）に依存する。

2-11-2. 抵抗性インピーダンスによる発熱

小ギャップ真空封止アンジュレータの磁石列カバー用銅シートの縦方向抵抗性インピーダンスによって生じる発熱の影響を評価する。単位バンチ電荷当りのウェーク場によるエネルギー損失 k_{loss} はロスファクタと呼ばれ，バンチ内での電子分布$\rho(z)$と縦方向のウェーク場あるいはインピーダンスを用いて次のように書ける。

$$\begin{aligned} k_{loss} &= \int_{-\infty}^{\infty} dz' \rho(z') \int_{z'}^{\infty} dz \rho(z) W_\ell(z'-z) \\ &= \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty} \left|\tilde{\rho}(\omega)\right|^2 \mathrm{Re}\{Z_\ell(\omega)\} d\omega \end{aligned} \tag{2-3}$$

ここで，

$$\tilde{\rho}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \rho(z) e^{-i\omega z/c} dz \tag{2-4}$$

である。Re{ }は，{ }内の量の実数部を意味する。長さ L の銅シートの銅の厚みが十分厚いとき，その縦方向の抵抗性インピーダンスは，

$$Z_\ell(\omega) = \frac{\omega Z_0 L}{4\pi bc}\sqrt{\frac{2}{\sigma_c \mu_0 |\omega|}}\{\mathrm{sgn}(\omega) - i\} \tag{2-5}$$

と近似できる。ここで，b, σ_c, μ_0, Z_0 は真空封止アンジュレータのギャップ g_u の半値（$g_u/2$），銅の電気伝導率，真空の透磁率とインピーダンスである。また，sgn() は()内の値の符号が負ならば-1，正ならば+1 をとる。縦方向の抵抗性インピーダンスはアンジュレータのギャップ g_u と電気伝導率の平方根に反比例する。また，バンチの分布形状をバンチ長 σ_t とするガウス分布とすると，

$$\rho(z) = \frac{c}{\sqrt{2\pi}\sigma_t} e^{-\frac{c^2 z^2}{2\sigma_t^2}} \tag{2-6}$$

$$\tilde{\rho}(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{\sigma_t^2 \omega^2}{2}} \tag{2-7}$$

となる。このとき，ロスファクタは，

$$k_{loss} = \frac{Z_0}{8\pi^2 bc}\Gamma\left(\frac{3}{4}\right)\sqrt{\frac{2}{\sigma_c \mu_0}}\sigma_t^{-1.5} = \frac{6.38\times 10^{12}}{g_u[mm](\sigma_t[ps])^{1.5}}(g_u = 2b) \tag{2-8}$$

と表せる。ロスファクタを使ってビームによる発熱量 P_{RW} は次のようになる。

$$P_{RW} = k_{loss} Q_b^2 f_b = \frac{k_{loss} I_{total}^2}{f_b} \tag{2-9}$$

ここで，f_b, Q_b はバンチ繰り返し周波数，バンチ電荷である。バンチのフィルパターンは等間隔で全 RF バケットを同じ電荷（電流）で満たされているとする。このときのバンチの繰り返し周波数（RF 周波数）と全電流 I_{total}=500mA を考えると，単位長さ当りのビームによる発熱量は，バンチ長 σ_t=11ps を仮定してギャップ 4　mm と 6　mm に対して計算すると，

$$\begin{aligned} P_{RW}/L &= 14.6[\mathrm{W/m}](g_u = 6\mathrm{mm}, k_{loss} = 2.91\times 10^{10}\,\mathrm{V/C/m}) \\ &= 21.9[\mathrm{W/m}](g_u = 4\mathrm{mm}, k_{loss} = 4.37\times 10^{10}\,\mathrm{V/C/m}) \end{aligned} \tag{2-10}$$

となる[2.2]。比較のために PF リングでの小ギャップアンジュレータでの単位長さ当りの発熱量をバンチ長 σ_t=32ps を仮定して最小ギャップ 4　mm に対して計算すると，

$$P_{RW}/L = 3.5[\mathrm{W/m}]\,(g_u = 4\mathrm{mm}, k_{loss} = 8.68\times 10^9\,\mathrm{V/C/m}) \tag{2-11}$$

となって，新リングでの発熱はこれに比べるとかなり大きくなる。PF リングでは通常のマルチバンチ運転の他にハイブリッドモードでの運転（1 つのバンチに 50 mA，残り 400 mA をリング半分のバンチに等しく入れる）も行っていて，その場合の発熱量は 10 W 程度と評価されるので，新リングでのマルチバンチの発熱でも現状の真空封止アンジュレータシステムでほぼ対応できるものと考える。しかし，新リングでハイブリッドモードのような運転を考える場合はさらに発熱量が大きくなるので，冷却系の改善など何らかの検討をする必要が出てくるかもしれない。

2-11-3. 抵抗性インピーダンスによるバンチ結合型ビーム不安定性

小ギャップ真空封止アンジュレータの磁石カバー用銅シートの抵抗性インピーダンスによって生じる横方向のバンチ結合型ビーム不安定性についてここでは考える。長さ L の横方向の抵抗性インピーダンスは,

$$Z_t(\omega)=\frac{\pi Z_0 L}{16b^3}\sqrt{\frac{2}{\sigma_c\mu_0|\omega|}}\left\{\mathrm{sgn}(\omega)-i\right\} \tag{2-12}$$

と近似できる[2.12]。アンジュレータのギャップ g_u と銅シート間のギャップは同じとする（実際はシートの厚み分を引く必要があるが，ここでは無視した)。簡単のために，バンチのフィルパターンは等間隔で全 RF バケットを同じ電荷（電流）で満たされているとする。ある電流閾値を越えるとバンチ同士は抵抗性インピーダンスによるウェーク場によって結合して振動する。バンチ間の振動モード（μ= 0, 1, ..., k_b-1）はバネでつながれた質点の連成振動のように，バンチの数 k_b だけ存在する。一方で，もう 1 つはバンチ内での振動の種類を表すモード数 a（a= 0, 1, 2, ...）がある。a=0 はバンチの重心のベータトロン振動である。a=1 はバンチの頭と尾が横方向に互い違いに振動する。a=2 以降はさらに高次のシンクロトロン振動が加わってさらに複雑な振動になる。通常は，最低次 a=0 を考えれば良いが，クロマティシティが大きいと高次モードの成長率も増大するので注意が必要である。本光源リングの目標となる全蓄積電流 I_{total}=500mA における全振動モードの中で最大の成長率を求めてビーム不安定性を評価する。下記に振動モード(μ , a)での成長率 $g^t_{\mu,a}$ の式を示す[2.13]

$$g^t_{\mu,a}=-\frac{eI_{total}\omega_0\beta_t}{4\pi E}\cdot\frac{1}{2^a a!}\cdot\mathrm{Re}\left[\sum_{p=-\infty}^{+\infty}\left\{\sigma_t(\omega^t_p-a\omega_s-\omega_\xi)\right\}^{2a}\exp\left\{-\sigma_t^2(\omega^t_p-a\omega_s-\omega_\xi)^2\right\}\cdot Z_t\left(\omega^t_p\right)\right] \tag{2-13}$$

$$\omega^t_p=\left(pk_b+\mu+\nu_t+a\nu_s\right)\omega_0,\quad \omega_\xi=\omega_0\xi/\alpha,\quad \omega_s=\nu_s\omega_0,\quad \omega_0=2\pi f_0 \tag{2-14}$$

ここで，E, R, f_0, k_b, I_{total}, ν_t, ν_s, β_t, α, ξ, σ_t, b, σ_c, μ_0, Z_0 は，ビームエネルギー，リングの平均半径，周回周波数，バンチ数，全蓄積電流，ベータトロンチューン，シンクロトロンチューン，アンジュレータでのベータトロン関数，モーメンタムコンパクション因子，クロマティシティ，バンチ長，真空封止アンジュレータのギャップ半値（b=g_u/2)，アンジュレータ磁石用銅シートの電気伝導率，真空の透磁率とインピーダンスである。この成長率が正値で大きいとその振動モードのビーム不安定性が起こりやすく，負の場合は減衰して起こらない。また，この成長率が正でも，リングの放射減衰率より小さければビーム不安定性は生じない。今回の計算では全蓄積電流を I_{total}=500mA とし，バンチ数としてはハーモニック数

を考える（k_b=952）。バンチ電流は I_b=500mA/952=0.525mA となる。

図 2.41 に L=5m の長直線部アンジュレータ，L=1m の短直線部アンジュレータに対する抵抗性インピーダンスによるビーム不安定性の垂直方向の振動モード中最大の成長率をベータトロンチューンの関数として示す。アンジュレータギャップ g_u=4mm と 6mm の 2 つの場合について計算した。ただし，最低次（a=0）のモードのみである（それより高次のモードの成長率はリングの放射減衰率 26 s^{-1} に比べて無視できるほど小さい）。比較のために，図 2.42 に PF リング短直線部の小ギャップアンジュレータ(SGU)と PF リング長直線部アンジュレータ U16 の抵抗性インピーダンスによるビーム不安定性の垂直方向の最大成長率の計算結果も示す。

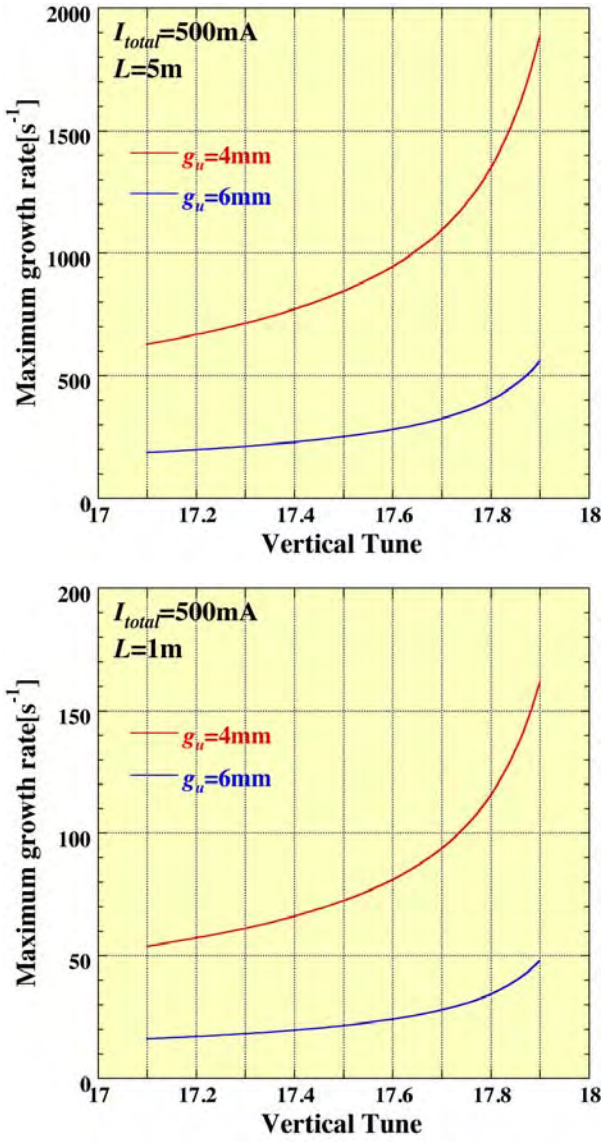


図 2.41 ビーム不安定性の垂直方向の最大成長率。L=5m の長直線部アンジュレータ（上）及び L=1m の短直線部アンジュレータ（下）の抵抗性インピーダンスによるビーム不安定性の垂直方向の最大成長率を示す。

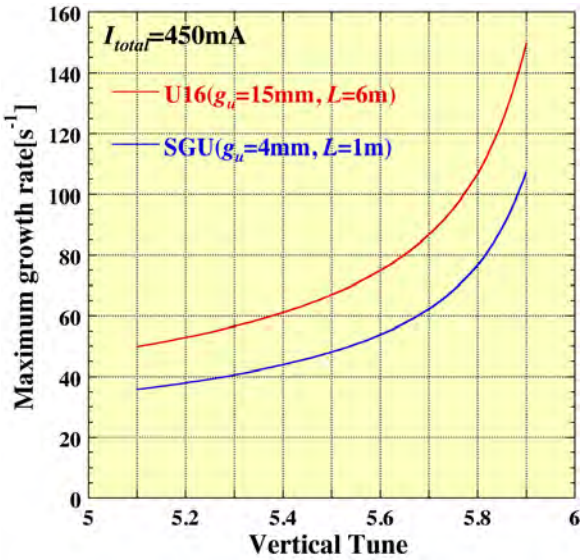


図 2.42 PF リング短直線部の場合。PF リングの場合の，小ギャップアンジュレータ(SGU)との PF リング長直線部アンジュレータ U16 の抵抗性インピーダンスによるビーム不安定性の垂直方向の最大成長率を示す。ベータトロンチューンは 5.28 である。

図からわかるように，最大成長率はベータトロンチューンの小数部の値とともに大きくなり，ギャップが 4 mm と 6 mm では 4 mm の方がギャップ値の 3 乗の比（=3.375）だけ大きくなる。これは，式 2-12 のインピーダンスの表記からもわかる。また，L=5m の長直線部アンジュレータの方が L=1m の短直線部アンジュレータに比べて長さが長くベータトロン関数もやや大きいために，1 桁以上大きくなっていることがわかる。現状のベータトロンチューン ν_t=17.62 の場合，g_u=4mm で成長率はそれぞれ 967s^{-1}，83s^{-1} になり，単独でもリングの放射減衰率 28 s^{-1} より大きい。これに対して，PF リングのアンジュレータの抵抗性インピーダンスによる成長率は，PF リングの放射減衰率 128 s^{-1} 以下で，ビーム不安定性は生じない。本リングは 20 セルのラティスで，設置可能な各アンジュレータは最大で 20 台ずつになるので，全合計で約 21000 s^{-1} の成長率になる。リングの放射減衰率では安定化されないので，ビーム不安定性による振動に対して何らかの減衰機構が別途必要になる。ビーム不安定性対策として，クロマティシティの調整とフィードバックキッカーの導入がある。

図 2.43 に垂直方向のベータトロンチューン 17.62 の場合の L=5m の長直線部アンジュレータ，L=1m の短直線部アンジュレータに対する抵抗性インピーダンスによるビーム不安定性の垂直方向の最大の成長率を a=0 と a=1 のモードについてクロマティシティの関数として示す。ここでも，アンジュレータギャップ g_u=4mm と 6mm の場合について計算した。

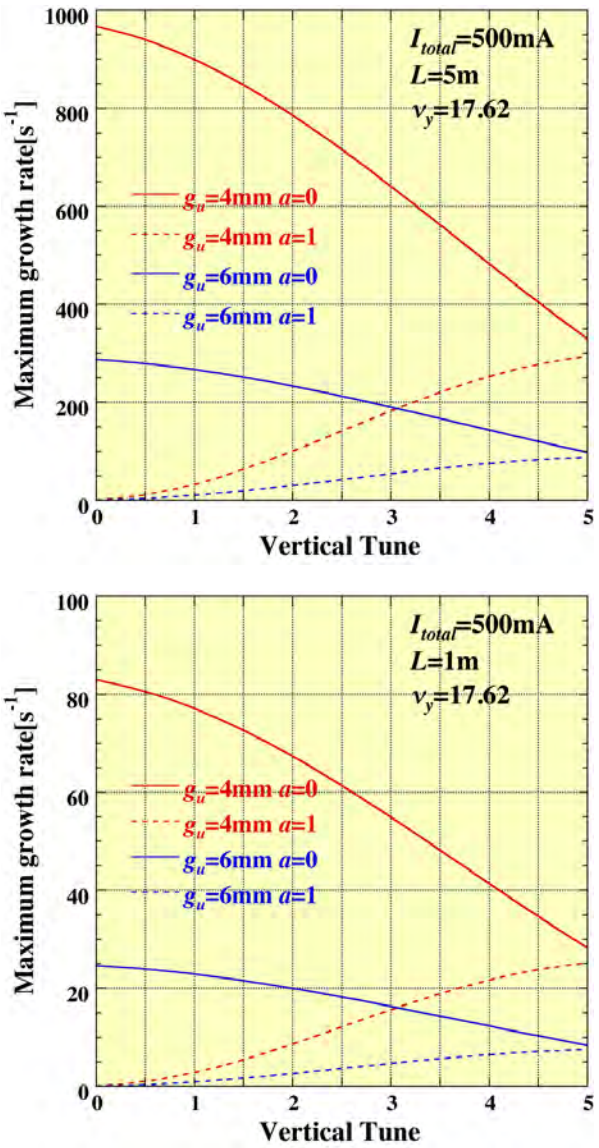


図 2.43 不安定成長率の色収差依存性。L=5m の長直線部アンジュレータ（上）及び L=1m の短直線部アンジュレータ（下）の抵抗性インピーダンスによるビーム不安定性の垂直方向の最大成長率のクロマティシティ依存性。実線は最低次（a=0）のモード，破線は a=1 のモードの成長率。

図に示すように，垂直方向のクロマティシティをゼロから正に上げることで最低次のモード（a=0）のビーム不安定性の成長率をある程度下げることができる。ただし，その一方で高次のモード（a=1）が逆に成長してくることがわかる。また，クロマティシティを上げることでダイナミックアパーチャを下げたり，他の不安定性を引き起こしたりする。従って，完全にこの不安定性を抑えるためにはフィードバックキッカーをリングに設置して振動を減衰することが必須となる。このフィードバックキッカーの減衰率としては，ビーム不安定性の成長率を考えると 10^4 s^{-1} を上回るものが必要になる。PF リングでは現在イオン捕獲によるビーム不安定性の安定化のために 10^4 s^{-1} 程度の減衰率を有するフィードバックキッカ

ー[2.14]を使用しており，改良することで本リングにも十分対応できるシステムが構築できるものと考えている。世界的にも最近の高輝度光源リングでは，同じような最小ギャップと長さを持つアンジュレータの設置が考えられていて，ビーム不安定性の成長率に対して同様な対策が施されている。

2-11-4. 真空封止アンジュレータ銅シートの厚みについて

小ギャップ真空封止アンジュレータではその磁石列の構造や材質によるウェーク場の発生を防ぐために電気伝導率の良い銅シートでカバーする。銅シートの内側（磁石側）には磁石にくっつけるためにニッケルの層がある。銅シートの銅の厚みが十分ではないと，ビームによってニッケルやさらにその内側にあるアンジュレータ磁石の抵抗性インピーダンスによるウェーク場の発生が起こることになり，ビーム不安定性や発熱が大きくなる可能性がある。真空封止ではないアンジュレータでも SUS などの真空チェンバー内壁に銅メッキする場合にそのメッキ厚が薄いと同様の結果になる[2.15]。そこで，銅シート（あるいは銅メッキ）に必要となる厚みについてここで見積もる。直接に 2 層の金属による縦方向及び横方向の抵抗性インピーダンスを求めて評価する方法[2.16]もあるが，ここでは簡単に表皮深さ（skin depth）から必要な厚みを見積もることにする。

式 2-3 のロスファクタは，バンチ形状をガウス分布とすると式 2-6 から

$$k_{loss} = \frac{1}{\pi}\int_0^\infty \mathrm{Re}\{Z_\ell(\omega)\}\exp\left\{-(\sigma_t\omega)^2\right\}d\omega = \frac{1}{\pi}\int_0^\infty \mathrm{Re}\{Z_\ell^{eff}(\omega)\}d\omega \tag{2-15}$$

と書ける。ここで，式 2-16 の積分内のバンチ形状の効果を含む縦方向の実効インピーダンス Z_ℓ^{eff} は，角周波数がバンチ長程度にまで上がるとバンチ長の影響で急激減少し始めることになる。リングのバンチ長は 10-50 ps 程度なので，それに対応する周波数 5-16 GHz がカットオフ周波数になる。従って，それよりも十分に低い周波数に対応する表皮深さを銅の厚みとすれば式 2-5 をそのまま使うことができる。表皮深さは，

$$\delta(\omega) = \sqrt{\frac{2}{\sigma_c\mu_0|\omega|}} \tag{2-16}$$

と表される。銅の場合，2 μm の表皮深さに対応する周波数が約 1 GHz なので，10 μm 以下の厚みでも十分であることがわかる。

次に横方向のインピーダンスによるビーム不安定性について考える。式 2-12 からわかるように，インピーダンスは縦方向とは異なり，今度は低周波数で増大する。式 2-14 の級数項の中で正の最大値を与えるような ω_p^t がビーム不安定性の最大成長率に最も寄与するが，それは ω_p^t が 1 からベータトロンチューンの小数部 $\Delta\nu_t$ を引いた値に周回角周波数 ω_0 を掛

けた値$(1-\Delta\nu_t)\omega_0$になる場合に相当する。ベータトロン振動の整数共鳴を避けるために，ベータトロンチューンの小数部$\Delta\nu_t$は 0.1-0.9 になるので，リングの周回周波数 f_0（約 526kHz）に対してそれらに対応する周波数は 53-474 kHz になる。ただし，$(1-\Delta\nu_t)f_0$なので，0.1 が 474 kHz，0.9 が 53 kHz にそれぞれ対応している。式 2-17 からそのときの表皮深さ 95-286 μm になり，ベータトロンチューンの小数部$\Delta\nu_t$が小さい方が表皮深さは小さくなる。式 2-12 が有効でかつインピーダンスをそれ以上有意に増大させないためには，ベータトロンチューンの小数部$\Delta\nu_t$に依存して表皮深さ 95-286 μm 程度の厚みの銅が必要になる。これはアンジュレータの最小ギャップと比べて無視できるほど小さくはない。最小ギャップを設定する場合に銅シートの厚みも含めて検討すべきであろう。

2-11-5. NEG コーティングの影響

次世代放射光リングではビームパイプのアパーチャが狭くなるために，パイプ内側に NEG コーティングを施して超高真空を早期に実現することが考えられている。ここでは，NEG コーティングを銅製の円形真空パイプに施した場合の発熱やビーム不安定性への影響を評価した。

発熱を計算するのに必要な NEG コーティング銅パイプの縦方向インピーダンスは，2 層の金属パイプによる縦方向抵抗性インピーダンスの解析解[2.16]を使って正確に計算した。ここで，銅の厚みは十分厚く，表皮深さ以上あるものとした。図 2.44 に NEG コーティング（厚み d=1, 3, 10 μm の場合）した半径 12.5mm の銅パイプの単位長さ当りのインピーダンスを計算した結果を赤，ピンク，紫の実線で示す。3 つの破線はコーティングなしの銅パイプ及び NEG パイプのンピーダンスと式 2-5 で与えられる銅パイプの縦方向インピーダンスの近似式（conventional expression）である。ここで，使用される NEG コーティングの電気伝導度は過去の測定結果[2.17]から $5\times10^5[\Omega^{-1}m^{-1}]$と仮定した。図から NEG コーティング銅パイプのインピーダンスは，コーティングなしの銅パイプのインピーダンスから NEG パイプのインピーダンスへと移行していくことがわかり，結果として高周波領域で盛り上がることになる。NEG への移行がほぼ完了する周波数は，NEG 厚が NEG の表皮厚さと等しくなる周波数に対応している。ただし，黒の実線で示した厚み d=1 μm の NEG コーティング銅パイプの縦方向の実効インピーダンスは，コーティングなしの銅パイプと比べてその変化は小さい。ここでは，バンチ長σ_t=10ps を仮定した。

上で計算した縦方向インピーダンスから，式 2-16 からロスファクタ値を求めて，式 2-9 から発熱量を計算した。図 2.45 に NEG コーティング厚の関数として計算した単位長さ当りの発熱量（パワー）を示す。図からわかるように，厚みが 2-3μm を越えると急に発熱量が大きくなることがわかる。一方で，NEG コーティング厚 1μm 以下であれば，コーティングなしと大きな差はない。これは，仮定したバンチ長σ_t=10ps では式 2-16 からバンチ構造の高周波フィルターによって 1μm 以下の NEG によって生じるインピーダンス成分がほぼ

除かれるためである。バンチ長が長ければ，さらにその効果は大きくなる。一方で，NEG の厚みが 10μm 以上では NEG 厚は十分に表皮深さ以上になり，バンチ構造の高周波フィルターの遮断周波数との関係から発熱量は飽和する。以上の結論は，発熱量の絶対値を除けば，アンジュレータの真空チェンバー及び真空封止アンジュレータの銅シートへの NEG コーティングについても同じ結論になる。

次に 2 層金属の横方向インピーダンスの解析解を使って NEG コーティング銅パイプの横方向インピーダンスを計算した。図 2.46 に NEG コーティング（厚み d=1, 3, 10 μm の場合）した半径 12.5mm の銅パイプの単位長さ当りの横方向インピーダンスを示す。縦方向インピーダンスと同様に，横方向インピーダンスは NEG コーティング厚が NEG の表皮厚さと等しくなる周波数付近で盛り上がる。一方，黒の実線で示した厚み d=1 μm の NEG コーティング銅パイプの横方向の実効インピーダンスは，コーティングなしの銅パイプと比べてその変化は小さいこともわかる。横方向の実効インピーダンスは，式 2.15 の縦方向の実効インピーダンスの定義においてインピーダンスを縦方向から横方向に入れ替えたものに等しく，式 2.13 において a=0, ξ=0 の場合に p に関する級数項を表すので図 2.41 のビーム不安定性成長率を決めるものである。加えて，抵抗性インピーダンスによる多バンチビーム不安定性に支配的な周波数は$(1-\Delta\nu_y)f_0$ であり，相対的に低周波数領域にあるために NEG コーティングによる高周波でのインピーダンスの変化の影響は相対的にはさらに小さくなる。即ち，NEG コーティング厚 1μm では横方向のインピーダンスは無視できて，純粋な銅パイプのインピーダンスと同じとみなして成長率を計算して良い。従って 2.11.3 での最大成長率の評価結果を変えるものではないと結論できる。

以上のように，1 μm 程度の NEG コーティングであれば，発熱やビーム不安定性の成長率への影響は小さいかもしくは無視できるので，KEK 放射光蓄積リングの真空パイプ等に使用することは十分可能であると言える。

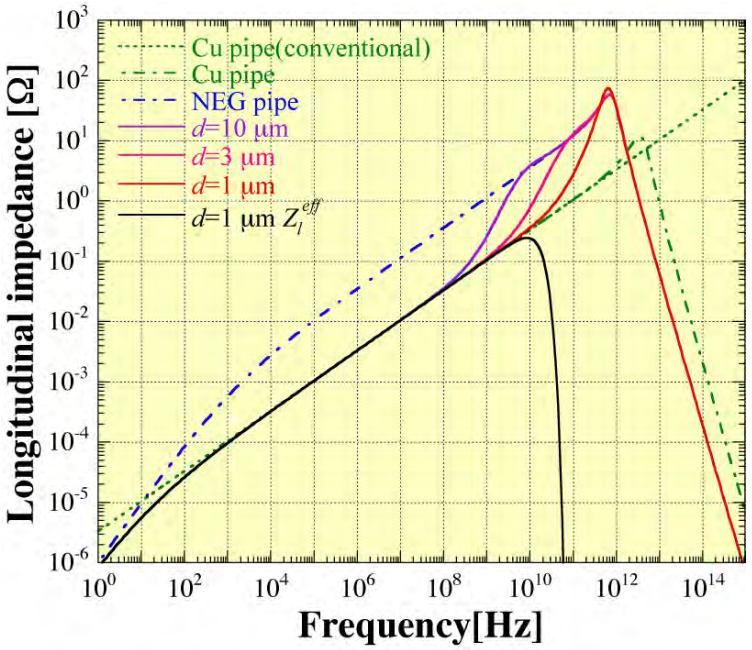


図 2.44　3 つの実線（赤, ピンク, 紫）は長さ 1m, 半径 12.5mm の NEG コーティング（厚さ 1, 3, 10 μm）銅パイプの縦方向抵抗性インピーダンス。3 つの破線は同じ半径を持つコーティングなしの銅パイプ及び NEG パイプのンピーダンスと式 2-5 で与えられる銅パイプの縦方向インピーダンスの近似式(conventional expression)である。

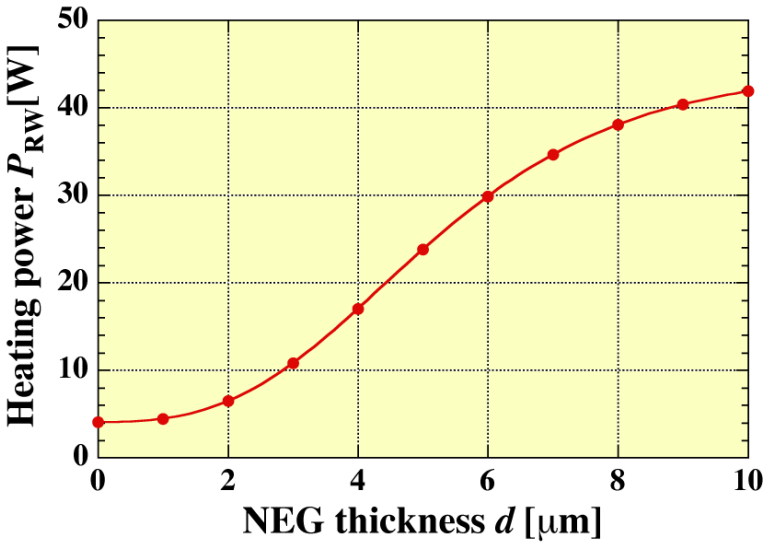


図 2.45　半径 12.5mm の NEG コーティング銅パイプの縦方向抵抗性インピーダンスによる単位長さ当りの発熱量の NEG コーティング厚依存性。

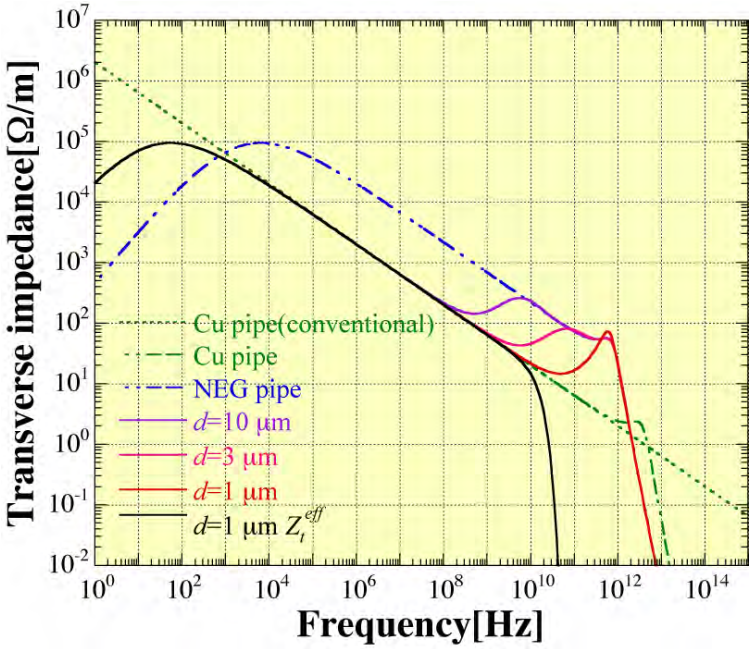


図 2.46　3 つの実線（赤, ピンク, 紫）は長さ 1m, 半径 12.5mm の NEG コーティング（厚さ 1, 3, 10 μm）銅パイプの横方向抵抗性インピーダンス。3 つの破線は同じ半径を持つコーティングなしの銅パイプ及び NEG パイプのンピーダンスと銅パイプの横方向インピーダンスの近似式 (conventional expression)である。

参考文献

[2.1] S. Kamada, Y. Kamiya , M. Kihara, “Lattice of Photon Factory Storage Ring”, Proc. of PAC 1979, p3848, 1979

[2.2] "PF Ring Design Handbook", 1979

[2.3] 神谷幸秀, 木原元央, “PF における低エミッタンスラティスの検討”, KEK Internal 85-10, 1985 年 12 月.

[2.4] Y. Kobayashi, A. Araki, Y. Kamiya, “A Test of 3GeV Operation at the Photon Factory Storage Ring”, Proc. of EPAC 1992, 483.

[2.5] 加藤政博, 堀洋一郎編, “PF リング高輝度化計画デザインレポート”, KEK Report 92-20, 1993 年 2 月.

[2.6] A. S. Schlachter, “The Advanced Light Source: A New 1.5 GeV Synchrotron Radiation Facility at the Lawrence Berkeley Laboratory”, LBL-27473, 1989.

[2.7] A. Streun, et al., "Commissioning of the Swiss Light Source", SLS-TME-TA-2001-0186, 2001.

[2.8] “The MAX IV Detailed Design Report”, 2010.

[2.9] “ESRF upgrade programme phase II”, ESRF, December 2014.

[2.10] Pantaleo Raimondi, "3GeV, 523m, 20 cells ring of HMBA type (example lattice)", private communications, June 2013.
[2.11] A. W. Chao, “Physics of Collective Beam Instabilities in High Energy Accelerators”, Wiley, New York 1993.
[2.12] A. Piwinski, DESY 84-097, 1984.
[2.13] M. S. Zisman, S. Chattopadhyay and J. J. Bisognano, LBL-21270/UC28, 1986.
[2.14] R. Takai et al., Proc. of DIPAC2009, Basel, Switzerland, pp.59-61 (2009).
[2.15] N. Nakamura et al., Proc. of EPAC1998, Stockholm, Sweden, pp.984-986 (1998).
[2.16] N. Nakamura, Proc. of ERL2009, Ithaca, New York, pp.85-89 (2009).
[2.17] E. Koukovini-Platia, Proc. of TWIICE 2 (2016).

３．高周波加速システム

3-1. 概要

高周波加速システム（RF システム）では，加速空洞内に高周波の加速電圧（RF 電圧）を発生してビームの縦方向運動の収束を行うと共に，ビームが放射するエネルギーを高周波電力により供給する。システムの基本構成を図 3.1 に示す。マスターオシレータで発生する基準となる RF 信号をローレベル RF 系（低電力高周波制御系）に入力し，大電力に増幅する前段階の RF 信号を作る。ローレベル系では，加速電圧を一定に保つフィードバック制御や RF 機器の制御，異常時の保護などが行われる。次に小電力の RF 信号を高周波増幅器で 100 kW レベルまで増幅し，導波管系を通して加速空洞に導き，空洞内に加速電圧を発生させる。高周波増幅器としては半導体アンプまたはクライストロンを用いる予定である。高周波増幅器と加速空洞の間にはサーキュレータとダミーロードを配置し，空洞からの反射電力を分離・吸収し，高周波増幅器を保護する。次節で RF システムに必要な機能について述べる。

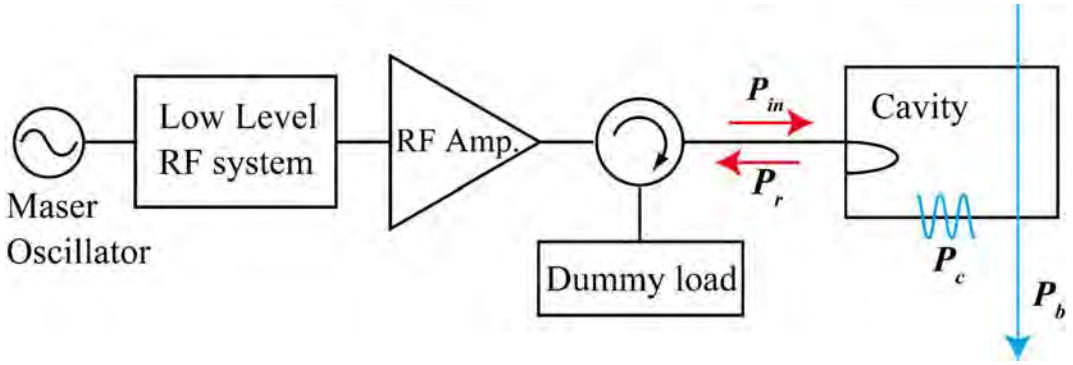


図 3.1 高周波システムの基本構成。

3-2. 高周波システムに必要な機能

KEK 放射光蓄積リングの RF システムには，次のような機能や性能が必要である：
放射光を放出して失うエネルギーを電子に供給する。
必要な加速電圧を発生する。
空洞の高次モード共鳴等によるビーム不安定性を起こさない。
加速電圧が十分に安定である。
放電や故障による運転中断が少ない。
AC 電力から RF 電力への変換効率が高い。
加速空洞が占有する直線部の長さが出来るだけ短い。
高調波空洞によりバンチ長を伸ばすことができる（オプション）。
これらについて，1）～8)にて詳しく説明する。

1) 蓄積リングを周回する電子は，偏向電磁石内や挿入光源内で放射光を放出しエネルギーを失う。このエネルギー損失を補うことが高周波加速システムの最も大切な役割である。

2) 電子のシンクロトロン振動（縦方向の振動）が安定である為には，放射損失に相当する電圧 U_0/e より加速電圧を高くする必要がある。十分なビーム寿命を確保するために必要な RF バケットハイトから加速電圧が決定される。KEK 放射光では，現時点で，加速電圧 2.5 MV でバケットハイト 3.5%を確保する設計（で U_{ID} = 553 keV/turn の放射損失を仮定した場合）である。今後の検討により必要な RF 電圧は多少変更される可能性がある。

3) 加速空洞内には多数の共振モードが存在し，そのうちの基本モード（加速モード）を励振してビームの加速を行う。しかし，空洞内には他の高次モード（higher order mode; HOM）も存在する。高次モードの共振周波数が，ビームの縦方向または横方向の振動数と一定の関係になった場合に，高次モードにより多数のバンチが結合した振動が励振される「バンチ結合型不安定性（coupled-bunch instability）」が発生する。不安定性が生ずるとビーム損失やエミッタンス増大が生じるため，これを起こさずに大電流ビームを蓄積できる加速空洞の設計が重要である。また，リング全周での広帯域（ブロードバンド）なビーム結合インピーダンスが高いと，各種の単バンチビーム不安定性が発生し易い。空洞セクションの真空チェンバーについても，ブロードバンド・インピーダンスが小さくなるように設計する必要がある。

4) 加速電圧の振幅や位相が変動すると，ビームのシンクロトロン振動や縦方向 4 極振動が励振されることがあるため，振幅・位相を安定化する必要がある。特にシンクロトロン振動数（約 2.6 kHz）およびその 2, 3, 4 倍付近の周波数成分の変動を小さくすることが重要である。

5) 多くの放射光利用者が同時に実験を行う光源加速器では，運転の安定性が重要である。近年の光源加速器は蓄積電流を一定に保つトップアップ運転を行うことが前提となっており，加速用高周波の運転中断（トリップ）による利用実験の中断は，極力避けなければならない。このため加速空洞や高周波源には高い信頼性が求められる。PF リングの実績では，

RF システムに起因する運転中断は一年に数回以内に抑えられており，同等以上の信頼性を確保することが目標となる。また，高周波源等の機器が重故障を起こして蓄積リングが長期間運転中断する事態も避けなければならない。その対策として，RF システムを複数の系統で構成し，そのうちの 1 系統が重故障してもリングを最低限必要な性能で運転できる方策を検討する。

6) RF システムでは，50 Hz で供給される商用電力を高周波電力に変換し利用する。運転時の消費電力を抑えるためには，高周波源での電力変換効率が高いことが望ましい。

7) リングの直線部の中で加速空洞の占有する長さが短いほど，挿入光源を設置できるスペースが増えるため好都合である。一方で，高次モードやブロードバンド・インピーダンスへの対策をしつつ必要な加速電圧を発生する為には，ある程度の占有長さが必要である。空洞に必要な性能を確保しつつ，設置スペースを短くする工夫が求められる。

8) KEK 放射光では自然バンチ長が約 2.5 mm と短いため， a) Touschek 寿命が短い，b) バンチ内散乱によりビームエミッタンスが増大する，c) 真空封止アンジュレータの内面での発熱密度が大きい，などの課題がある。加速周波数の数倍（一般的には 2, 3, 4 倍）の共振周波数をもつ高調波空洞を利用し，バンチ長を伸ばすことで上記の問題を緩和することが出来る。そのための高調波 RF システムの設計も課題である。

ここで加速電圧と RF 電力について補足する。一つの電子がリングを一周する間に放射するエネルギーを U_0 [eV]，平均ビーム電流を I_0 [A]とすれば，ビームに供給すべき高周波電力 P_b[W]は，

$$P_b = (U_0 / e) I_0 , \tag{3-1}$$

$$U_0 = U_{\mathrm{bend}} + U_{\mathrm{ID}} , \tag{3-2}$$

で与えられる。U_{bend}, U_{ID} はそれぞれ，偏向電磁石内と挿入光源内で放射されるエネルギーである。U_{ID} は挿入光源の磁場や台数によって変化するため，ゼロから想定される最大値までの U_{ID} に対して RF システムが対応する必要がある。空洞内に加速電圧 V_c[V]を発生させると，空洞壁では電気抵抗により

$$P_c = \frac{V_c^2}{R_{sh}} , \tag{3-3}$$

の損失電力が発生する。ここで，R_{sh}[Ω] は空洞のシャントインピーダンスである。定常状態では，空洞への入力電力 P_{in}[W]，壁損失電力 P_c[W]，ビームに供給される電力 P_b[W]，空洞からの反射電力 P_r[W]の間に，

$$P_{in} = P_c + P_b + P_r , \tag{3-4}$$

の関係が成り立つ（エネルギー保存則）。ここで反射電力は，高周波の入力線路から見て

空洞系（空洞とビーム）がインピーダンス整合していない場合に発生し，その反射率（P_r/P_{in}）はビーム電流，空洞共振周波数，入力カップラー結合度に依存する[3.1]。高周波源の最大出力については，上記の P_{in} に加えて，伝送線路での損失，フィードバックに必要なマージンを上乗せして仕様を決定する。

3-3. RF 周波数と常伝導・超伝導空洞の選択

RF 周波数の選択に関して考慮すべき点としては，a）その周波数において大電力高周波源が入手できること，b）加速空洞が適当な大きさに収まること，c）高次モードの減衰または周波数調整が行い易いこと，d）バンチ長とバンチ当たりの電荷量が加速器にとって都合が良い事，e）過去に開発された技術や試験設備ができるだけ活用できること，などが挙げられる。世界の放射光リングで用いられている RF 周波数は，表 3.1 に示す通り，500 MHz 付近，350 MHz 付近，100 MHz 付近に大別される。世界的な拠点である DESY, CERN 等の研究所で開発された高周波技術が，光源加速器に応用されたなどの経緯から，500 MHz 帯と 350 MHz 帯が最も多く用いられている。これらに大きな違いはない。一方の 100 MHz 帯では，加速空洞に関して以下の短所がある：I）空洞外径を小さく収めるために加速ギャップが狭くなり，共振周波数がギャップ寸法にに敏感である， II）多数の高次モードが存在するため高次モード対策が難しい。100 MHz 帯の長所としては，バンチ長を長くできる事があるが，バンチ当たりの電荷も大きくなるため，どの程度のメリットになるかは見極めが必要である。

本蓄積リングでは，PF リング（500.1 MHz）やそれに近い周波数を採用した KEKB（508.6 MHz），Super-KEKB などの，KEK 内で蓄積された高周波技術を最大限活用することができる 500.1 MHz を採用する予定である。この周波数では，加速空洞を開発する際に PF リングの大電力テストベンチを使用でき，開発の期間やコストを節約できる。

表 3.1　主な放射光リングで用いられている RF 周波数。

リング	RF 周波数 (MHz)
UVSOR	90.115
MAX-IV	99.931
ESRF	352.2
APS	351.93
SOLEIL	352.202
PF	500.1
ALS	499.654
BESSY-II	500
DIAMOND	500
SLS	500
SSRF	499.654
TPS	499.66
NSLS-II	500
Sirius	500
PF-AR	508.57
SPring-8	508.58

次に，加速空洞として常伝導空洞，超伝導空洞のどちらを採用すべきかについて検討する。超伝導空洞は常伝導空洞に比べてより高い加速勾配を実現でき，少ない台数で必要な加速電圧を発生できる。これは空洞セクション全体での高次モードやブロードバンドなインピーダンスを下げる点でも有利である。また超伝導空洞は R/Q が低く Q 値が高いため，大電流運転時のデチューニング量が小さいことや，バンチギャップにより誘起される加速電圧の変動が少ないなど，高ビーム負荷時の諸問題に強いメリットもある。これらの長所のため放射光リングでは，コーネル放射光源（CESR），カナダ光源（CLS），DIAMOND，上海光源（SSRF），SOLEIL, NSLS-II 等で用いられている[3.2]。

しかし超伝導空洞にはヘリウム冷凍機設備が必要となり，その運転のためには冷凍機運転員と高圧ガス保安係員が必要となる。したがって，初期投資および運用コストが大きい。中規模の蓄積リングにおいて必要とされる超伝導空洞は 1 台程度であるが，1 台だけの超伝導空洞が重故障するとリングが長期停止するため，スペアの空洞が必要である。また，超伝導空洞は極低温と高電界が共存する複雑なシステムのため，放電あるいは原因不明による運転中断（トリップ）が頻発するものが多い[3.2]。例えば文献[3.2]に記載された 2011 年頃のデータでは，DIAMOND の超伝導 RF システムの MTBF (Mean Time Between Failures) が 140 時間，SSRF が 79 時間である。超伝導空洞では，トリップの頻度を減らすために，運転前にエイジングを必要とするケースが多い。

本光源はビームエネルギー3 GeV の中規模な蓄積リングであり，必要な加速電圧は数台の常伝導空洞で発生できる。この場合数台の加速空洞でビーム負荷を分担し，何れか一台に不具合が起きた時にも残りの空洞でビーム運転を継続することが可能で，故障に強いシステムになる。また極低温を使わないため，運転や維持が容易である。後で述べる通り，バンチ結合型不安定性についても常伝導空洞で対応できる見込みが得られている。以上の考察から，本光源には常伝導空洞を採用する予定である。

3-4. 高周波システムの概念設計

本光源の仕様をもとに検討した高周波システムのパラメータを表 3.2 に示す。後述するように，ここでは加速空洞として PF 型空洞を 5 台用いることを仮定した。挿入光源としては，各種のアンジュレータを合計 38 台用いて最大で $U_{\mathrm{ID}} = 553$ keV/turn の放射損失があると仮定した。ここで，挿入光源としては，短直線部に UL20N30 を 20 台，長直線部に UL20N250 を 9 台，UL48N104 を 5 台，UL160N31 を 4 台用いると仮定した。ただし挿入光源の台数や内訳は今後の検討で多少変更される可能性がある。また，後述する高調波空洞での損失は蓄積電流値 500mA において U_{HC}=106 keV/turn となる。表 3.2 より，ビーム電流 500 mA で挿入光源を 38 台使用した場合（ビーム負荷最大の場合）には，RF 電力は合計約 658 kW 必要である。表 3.2 の右半分には，挿入光源を使わない場合の RF パラメータを示す。この場合 RF 電力は合計約 377 kW である。RF 源の最大定格電力を決定する際

には，フィードバックに必要なマージン（クライストロンの場合で 20-30%）と導波管系での損失（5-10%程度）を上記の RF 電力に加える必要がある。

5 台の加速空洞を用いた場合に，空洞一台当たりの入力電力（赤色），反射電力（青色）をビーム電流に対して示したグラフを図 3.2 に示す。挿入光源の台数は最大（38 台）を仮定した。ビーム電流 500 mA において，空洞一台当たりの入力電力は約 132 kW であり，円筒窓型入力カップラーの実績の範囲内である。入力カップラーの結合度（β_c）は最大ビーム負荷の場合にほぼ最適となる 3.5 に選び，ビーム電流 500 mA で反射電力がゼロとなる。ビーム電流がゼロの場合，反射電力は約 16 kW であり，これも十分許容できる。図 3.3 は，挿入光源を使用しない場合の空洞一台当たりの入力・反射電力を示したものである。カップラーの結合度は同じ 3.5 を仮定した。この場合もビーム電流 0～500 mA の範囲で問題なく運転できるパラメータである。

ビーム負荷がある場合，空洞内の RF 電圧（$\tilde{V}_c$）は，RF 源により誘起される電圧（$\tilde{V}_g$）とビームが誘起する電圧（$\tilde{V}_b$）のベクトル合成，$\tilde{V}_c = \tilde{V}_g + \tilde{V}_b$ となる（重ね合わせの原理）。最大ビーム負荷の場合について，空洞内に発生する RF 電圧のベクトル図を図 3.4 に示す。計算法と記号は文献[3.1]に準ずる。図中で ϕ_s, ψ はビームの同期位相と空洞の最適同調角（表 3.2 参照）を示す。このベクトル図で，$\tilde{V}_g$ は上半面内（$-\tilde{I}_b$ を示す直線より上の領域）にあるため，静的なロビンソン不安定性を起こさない。最大ビーム負荷の場合，加速電圧を 2.0 MV（バケットハイト約 2.7%）より下げると静的ロビンソン不安定性を起こす可能性がある。

5 台の加速空洞系（それぞれ独立な RF 源で駆動される）のうち一系統を止め，残りの 4 系統でも運転できる。RF 源の最大電力が上記で仮定したのと同じ 132 kW/cavity の場合，合計加速電圧 2.0 MV，最大ビーム電流 400 mA までの運転が可能である。従って RF 源に重故障等が発生した場合でも，加速電圧とビーム電流を通常運転時より少し下げれば，残りの 4 系統でリングを運転継続することができる。なお，この場合でも静的ロビンソン不安定性は問題ない。

次の節では，個別の RF 機器についてさらに検討する。

表 3.2 高周波システムのパラメータ

			パラメータ（ID38 台）	一台当たり（空洞 5 台運転）	ID 無しのパラメータ	一台当たり（空洞 5 台運転）
RF 周波数	f_{rf}	(MHz)	500.074		500.074	
周回周波数	f_{rev}	(MHz)	0.525		0.525	
RF 電圧	V_c	(MV)	2.5	0.500	2.5	0.500
電子の放射損失	U_o	(MeV/turn)	0.957	0.191	0.335	0.067
偏向電磁石	U_{bend}		0.298		0.298	
挿入光源	U_{ID}		0.553		0.000	
高調波空洞	U_{HC}		0.106		0.036	
ビーム電流	I_o	(mA)	500		500	
RF 電力	P_{rf}	(kW)	658	132	377	75
ビーム負荷電力	P_b	(kW)	479	96	167	34
壁消費電力	P_c	(kW)	179	36	179	36
反射電力	P_r	(kW)	0.4	0.2	31.1	6.2
最適結合度	β_{opt}		3.68	3.68	1.94	1.94
入力カプラの結合度	β_c		3.5	3.5	3.5	3.5
空洞の無負荷 Q 値	Q_o			40000		40000
シャントインピーダンス	R_{sh}	(MΩ)		7.0		7.0
シンクロトロン振動数	f_s	(kHz)	2.65		2.75	
同期位相	ϕ_s	(deg.)	67.5	67.5	82.3	82.3
最適同調角	ψ	(deg.)		-55.2		-57.0
空洞デチューニング量	δf	(kHz)		-40.4		-43.4

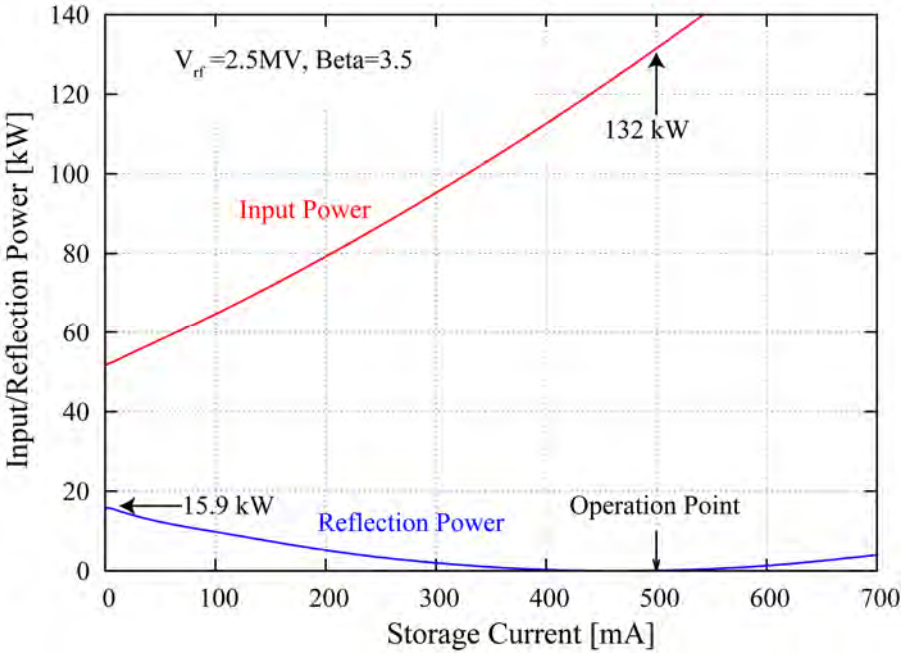


図 3.2 空洞1台当たりの入力電力と反射電力の蓄積電流依存性。入力電力を赤色で，反射電力を青色で示す。放射損失 957 keV/turn（挿入光源 38 台，高調波空洞有り）の場合。

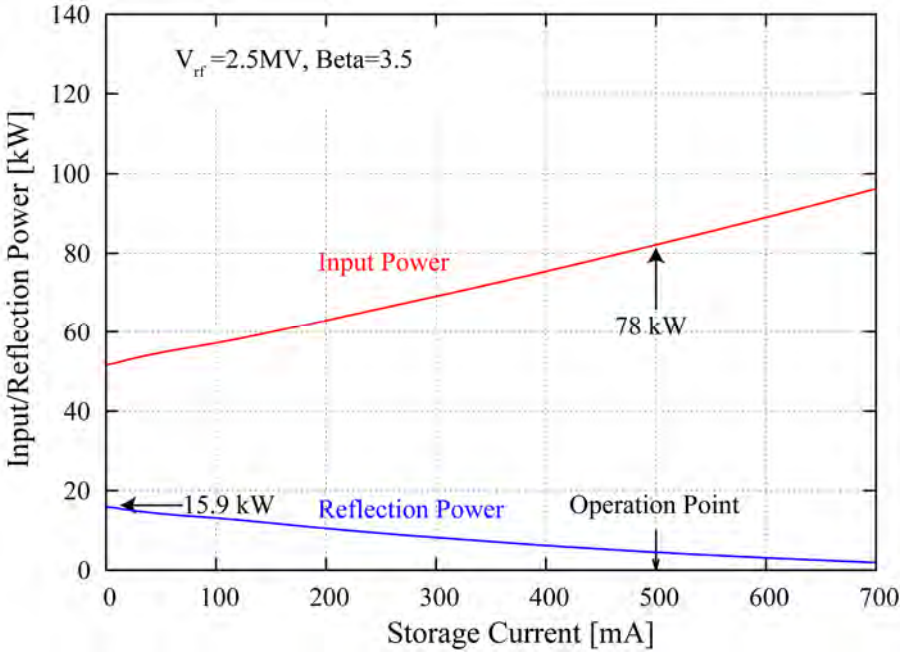


図 3.3 空洞1台当たりの入力電力と反射電力の蓄積電流依存性。入力電力を赤色で，反射電力を青色で示す。放射損失 335 keV/turn（挿入光源なし，高調波空洞有り）の場合。

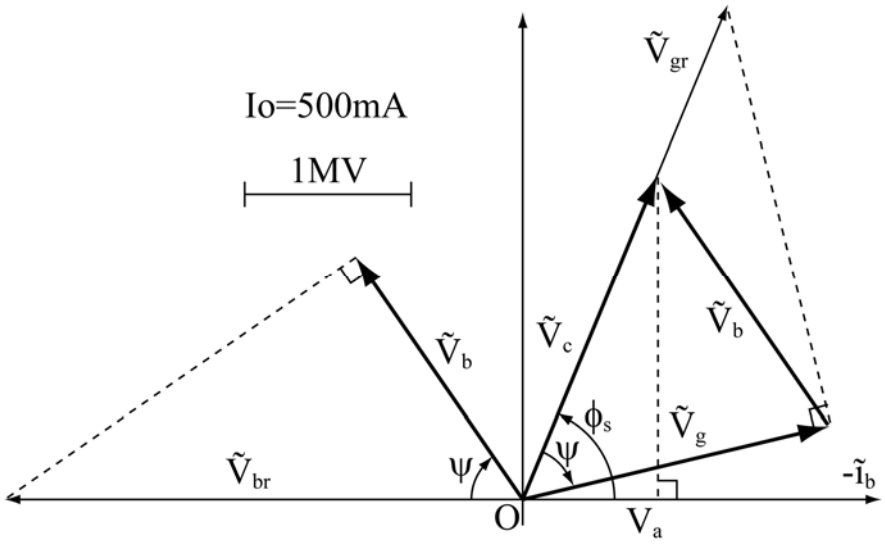


図 3.4　空洞内 RF 電圧のベクトル図。放射損失 957 keV/turn, ビーム電流 500 mA の場合。

3-5. 加速空洞

3.2 で述べたように加速空洞には，加速電圧の発生と電子ビームへの RF 電力の供給を長期間安定に行い，かつ高次モードによるビーム不安定性を起こさないことが求められる。これらの要求を満たす空洞としては様々な候補が考えられるが，高次モード対策の違いにより，それらは次のような方式に分類される：1）高次モードの Q 値は高いままで，その共振周波数を調整することによりバンチ結合型不安定性を避ける方法[3.3]，2）空洞に高次モードカップラーという一種のアンテナを付けることにより幾つかの高次モードを減衰させる方法[3.4, 3.5]，3）空洞に高次モード引き出し用の導波管を付けることにより高次モードの Q 値を強力に減衰させる方法[3.6-10]。これらのうち 3)の方式は減衰空洞（damped cavity）と呼ばれ，高次モード対策としては最も強力である。その反面，高次モード引き出し用導波管の内部に浸みだした加速用高周波によりマルチパクタ放電を起こすなどの現象があり得るため，放射光リングで要求される超低トリップレート（トリップが年数回以下）が達成できるかは，慎重な調査が必要である。また減衰空洞には高次モード引き出し用導波管等が付属するため，一般に空洞セクションに長いスペースが必要である。最近提案されている TM020 モードを加速に利用する減衰空洞[3.10]は，コンパクトかつ比較的シンプルな方法で高次モードを減衰できるため非常に魅力的な提案であるが，まだ開発途上であることに注意が必要である。

PF リングで現在使用している加速空洞[3.11, 3.12]は，上記の 1)と 3)とを折衷した方式である。ビームパイプの内径を直径 140 mm まで太くすることにより，周波数の高い高次モードをビームパイプ側に引き出し，吸収体で減衰させる。一方，周波数の低い幾つかの高

次モードは空洞内に残されるが，それらの共振周波数を 2 個の固定チューナーを用いて精密に調整しておき，バンチ結合型不安定性を起こさないようにする。空洞本体に複雑な構造を持たないため局所的に電場や発熱が集中することがなく，長期間にわたりトリップなしで安定に加速電圧を発生できる。高次モードの周波数調整に微妙な技術が要求される短所があるが，長期安定性には大きな魅力がある。国内ではニュースバル[3.13]，佐賀ライトソース[3.14], あいちシンクロトロン[3.15]の 3 つの施設で PF とほぼ同型の空洞（PF 型空洞）が安定に運用されており，国外ではオーストラリア放射光源において PF 型空洞に（高次モードカップラーを追加するなどの）改良を施した空洞[3.16]が使用されている。

本蓄積リング用の加速空洞については，様々な方式について比較・検討を行っている段階であり，まだ一つの方式に決定していない。これらの候補の中で，安定性に実績がある PF 型空洞を使用できるかについてまず検討を行った。

初めに PF 型空洞の設置スペースを検討する。本光源ではラティスの各セルに約 6 m の長直線部と約 1 m の短直線部が存在する。このうち，6 m 直線部を 2 箇所利用し，各々に 3 台と 2 台の PF 型空洞を設置することを検討する。図 3.5 に空洞 2 台配置時の例を示す。2 台の空洞は直線部で約 3.2 m の長さを占有し，残りのスペースには挿入光源を設置できる。2 台の加速空洞の両側に高次モード減衰用ダクト（SiC ダクト）を配置し，両端をテーパー管で直径 24 mm のビームパイプと滑らかに接続する。空洞のビームポート（内径 140 mm）の遮断周波数は，空洞のモノポールモードと結合する TM01 モードで 1.63 GHz，空洞のダイポールモードと結合する TE11 モードで 1.25 GHz である。これらの周波数より高い共振周波数を持つ高次モードはビームパイプに引き出され，マイクロ波吸収体（SiC ダクト）で吸収される。現在の PF リングでは，各空洞の両端にテーパー管を設置し，高次モードを空洞間で独立にしている。しかし図 3.5 の配置では空洞間のテーパー管を省いたため，遮断周波数以上の高次モードは互いに結合する。その場合に，全ての高次モードを十分に減衰できるか今後確認が必要である。空洞セクションの広帯域インピーダンス，排気系の排気容量や空洞に対するコンダクタンスなども今後の検討課題である。

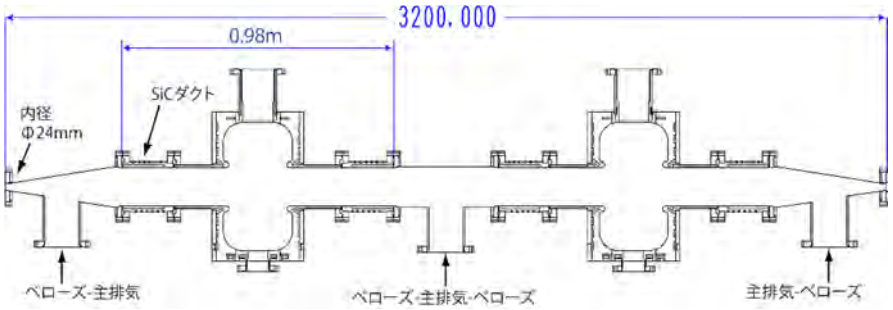


図 3.5 空洞配置の例

3-6. 高次モードによるバンチ結合型不安定性

蓄積リングを周回する多数のバンチは，縦方向にはシンクロトロン振動，横方向にはベータトロン振動をする可能性がある。これらの振動数と，空洞の高次モードの共振周波数および結合インピーダンスが一定の条件を満たすと，高次モードにより多数のバンチの連成振動が引き起こされるバンチ結合型不安定性（coupled-bunch instability; CBI）が発生することがある。バンチ結合型不安定性の原因には，空洞の高次モードの他，ビームダクトの段差で発生する共振モードやビームダクトの抵抗性インピーダンス（resistive wall impedance）などがあり，リング全体での対策が重要である。

蓄積リングには，ハーモニック数（h）だけの RF バケットが存在する。このうちの等間隔な M 個のバケットに電子バンチが入る場合を考える。（イオン捕獲対策として 10%程度の空バケットを導入した場合でも，全バケットにバンチが入った場合と大きな差はない）。電子のバンチを点電荷で近似すれば，縦方向のバンチ結合型不安定性の成長率（growth rate）は次式で与えられる[3.17-19]:

$$\tau_g^{-1} = \frac{e\alpha I_0}{4\pi E \nu_s}\left\{\sum_{n=0}^{\infty}\omega_{\mu,n}^{+}\,\mathrm{Re}[Z(\omega_{\mu,n}^{+})] - \sum_{n=1}^{\infty}\omega_{\mu,n}^{-}\,\mathrm{Re}[Z(\omega_{\mu,n}^{-})]\right\}, \tag{3-5}$$

$$\omega_{\mu,n}^{\pm} = \{nM \pm (\mu+\nu_s)\}\omega_0, \tag{3-6}$$

ここで n はゼロまたは正の整数，μはバンチ結合振動のモード数（0, 1, ..., M-1 の整数），I_0 はビーム電流，αはモーメンタムコンパクションファクター，Eはビームエネルギー，ν_s はシンクロトロンチューン，ω_0は電子ビームの周回角周波数を示す。$Z(\omega)$は縦方向結合インピーダンスであり，一つの高次モードからの寄与は次式で表される：

$$Z(\omega) = \frac{R}{1 + iQ_L\left(\dfrac{\omega_a}{\omega} - \dfrac{\omega}{\omega_a}\right)}. \tag{3-7}$$

ここでω_a はその高次モードの共振角周波数，Q_L は負荷 Q 値，R は縦方向結合インピーダンス（$=R_{sh}/2$）である。複数の高次モードがある場合，結合インピーダンスはそれらの寄与の和となる。式 3-5 より，ビーム軸上に縦方向電場がある高次モード（モノポールモード）の共振角周波数が，

$$\omega_a \approx \{nM + (\mu+\nu_s)\}\omega_0, \tag{3-8}$$

の関係を満たす場合に縦方向不安定性が起こり易く，式 3-5 で与えられる成長率がバンチの縦方向振動の減衰率を超えるとバンチ結合振動が成長する。したがって不安定性対策としては，高次モードの共振周波数を式 3-8 の条件（一種の共鳴条件）から離すように調整するか，またはその

負荷 Q 値を下げて式 3-7 における結合インピーダンス R（$=(R_{sh}/Q)\cdot Q_L/2$）を下げるか，どちらかの方法が有効である。

横方向（水平または垂直方向）のバンチ結合型不安定性の成長率は，次式で与えられる[3.17-19]：

$$\tau_g^{-1} = \frac{eI_0\omega_0\beta_{x,y}}{4\pi E}\left\{\sum_{n=1}^{\infty}\mathrm{Re}[Z_T(\omega_{\mu,n}^{-})] - \sum_{n=0}^{\infty}\mathrm{Re}[Z_T(\omega_{\mu,n}^{+})]\right\}, \tag{3-9}$$

$$\omega_{\mu,n}^{\pm} = \left\{nM \pm (\mu + \delta\nu_{x,y})\right\}\omega_0, \tag{3-10}$$

ここで $\beta_{x,y}$ は空洞の場所でのベータトロン関数（水平または垂直方向），$\delta\nu_{x,y}$ はベータトロンチューンの小数部（水平または垂直方向），$Z_T(\omega)$は横方向結合インピーダンスであり，一つの高次モードの寄与は次式で表される：

$$Z_T(\omega) = \frac{R_T\left(\dfrac{\omega_a}{\omega}\right)}{1 + iQ_L\left(\dfrac{\omega_a}{\omega} - \dfrac{\omega}{\omega_a}\right)}. \tag{3-11}$$

ここで R_T はその高次モードの横方向結合インピーダンスである。横方向バンチ結合型不安定性は，高次モードの共振周波数が，

$$\omega_a \approx \left\{nM - (\mu + \delta\nu_{x,y})\right\}\omega_0, \tag{3-12}$$

の関係の時に起こりやすく，その成長率がバンチの横方向振動の減衰率を超えると不安定性が起こる。対策としては，バンチを横方向にキックする高次モード（ダイポールモード）の共振周波数を式 3-12 の条件からずらすか，または高次モードの負荷 Q 値を下げて横方向インピーダンス R_T を下げる方法が有効である。

上記の式をもとに，本蓄積リングに PF 型空洞 5 台を設置した場合の，高次モードに起因するバンチ結合型不安定性の発生について検討する。前節で述べたように，PF 型空洞における高次モード対策は，1) ビームパイプの遮断周波数より高い周波数の高次モードを SiC ダクトで減衰し，2) 空洞内にトラップされる高次モードの共振周波数を固定チューナーで調整する（周波数シフト法），の二つである。まず初めに，後者のトラップされるモードについて，論文発表されているデータをもとに不安定性の検討を行う。

表 3.3 に検討に用いた高次モードの特性とチューナー位置に対する周波数依存性を示す[3.12, 3.14]。このうち周波数,Q 値,チューナー依存性は実際に PF にインストールされた加速空洞で測定されたものであり，R/Q および R_T/Q は数値解析計算により得られたものである。表 3.3 に示した高次モードのうち，上の 3 つは縦方向，次の 3 つは水平方向，残りの 3

つは垂直方向の不安定性を起こし得る。ここで 5 台の空洞性能は同じだと仮定した。

表 3.3 PF 型空洞内にトラップされる高次モード。モード名の最後の H または V は水平および垂直方向にビームを偏向するモードを示す。チューナー1, 2 はそれぞれ水平方向，垂直方向の固定チューナーを示す。

高次モード	共振周波数 [MHz]	Q_L	R/Q [Ω] または R_T/Q [Ω/m]	チューナー1 依存性 [kHz/mm]	チューナー2 依存性 [kHz/mm]
TM011	794.0	35900	52 Ω	39.6	39.6
TM012	1312.0	8500	9.2 Ω	35.6	0
TM021	1373.0	26800	9 Ω	23.8	39.6
TE111H	703.0	40000	6.5 Ω/m	31.7	138
TM110H	793.0	43600	255 Ω/m	0	-79
TM111H	989.0	22000	415 Ω/m	59.4	148
TE111V	706.0	10300	6.5 Ω/m	0	-106.9
TM110V	789.0	9000	255 Ω/m	0	71
TM111V	991.0	23200	415 Ω/m	7.9	-95

表 3.3 に示した各高次モードの共振周波数は，そのままでは式 3-8, 3-12 の条件に近く，ビーム不安定性を引き起こすものがある。実際に空洞をインストールする際には，水平方向と垂直方向に取り付ける固定チューナーの突き出し量を調整し，全ての高次モード周波数が式 3-8, 3-12 の条件から外れることを目標に，共振周波数の調整を行う。ただし高次モードが多数あるのに対し，調整の自由度は 2 つしかない。この周波数調整を計算上で模擬した。具体的には，表 3.3 に示した各高次モード周波数のチューナー依存性を用いて，TM012 を除く全ての高次モードがバンチ結合型不安定性を起こす周波数から出来るだけ離れるような，最適な固定チューナー1, 2 の位置（突き出し長さ）を決定した（TM012 については次パラグラフに詳細を参照）。それらの高次モード周波数を用いて，縦・水平・垂直の各方向のバンチ結合型不安定性の成長率を求めた。計算結果を図 3.6，図 3.7，図 3.8 に赤色の線で示す。図の横軸はバンチ結合振動のモード数 μ であり，縦軸は振動の成長率である。ビーム電流は 500 mA を仮定した。図の中で青色の横線は放射減衰による減衰率を示す。図 3.7，図 3.8 より，TM111H,V 及び TM110V については成長率が放射減衰率をわずかに上回っており，注意が必要である。しかし，挿入光源を使用した場合に放射減衰率が上がること，横方向個別バンチフィードバック系を導入する予定であることから，これらの高次モードによる不安定性は十分に抑制可能であると考えられる。一方縦方向振動については図 3.6 よ

り，ビーム電流 500 mA では一つの高次モード（TM012 モード）が引き起こす不安定性の成長率が放射減衰率の約 1.5 倍程度となり，縦方向不安定性が発生することが予想される。

図 3.9 に，TM012 モードによる結合インピーダンスの実部（赤色）と，縦方向不安定性を引き起こす周波数（縦の線）の関係を示す。縦方向不安定性を引き起こす周波数は周回周波数（約 525 kHz）の間隔で存在するので，TM012 モードの共振周波数をその真ん中に来るように（理想的に）調整されたと仮定する。その場合でも，このモードの Q 値が 8500 と中途半端に低いため，不安定性を起こす周波数において結合インピーダンスが高い事がわかる。参考までに PF リングの場合には，周回周波数が高いために，不安定性を起こす周波数において結合インピーダンスは約 1/8.5 になっていることがわかる。この高次モードへの対策としては，高次モードカップラーを取り付けて Q 値を十分下げるか，または何らかの方法で Q 値を上げて，インピーダンスの裾が不安定性を起こす周波数にかからないようにすることが考えられる。上記のモードに有効な HOM チューナーを取り付け，空洞毎に高次モード周波数をずらす方法も有効である。また，縦方向個別バンチフィードバック系の導入も有効な対策である。

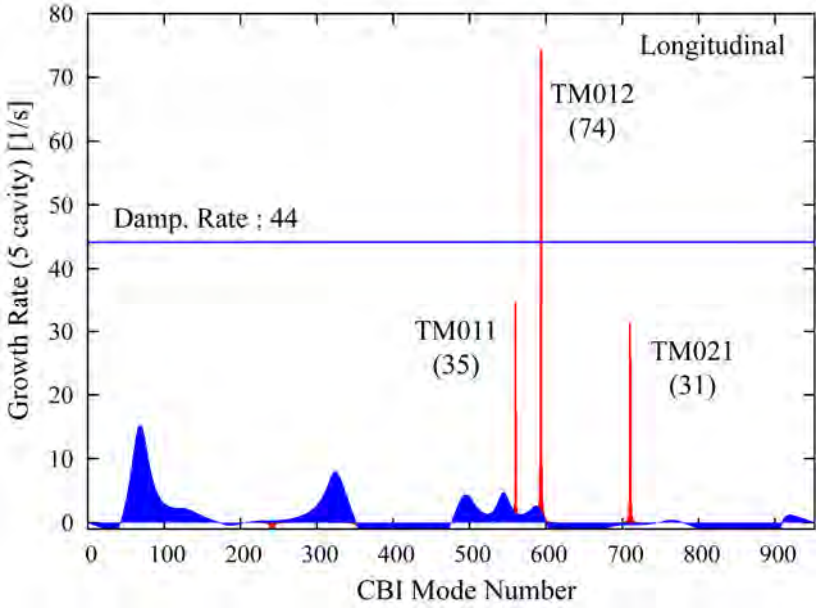


図 3.6 縦方向のバンチ結合振動の成長率の計算結果。横軸：バンチ結合振動のモード数，縦軸：成長率。空洞内にトラップされるモード（赤色）とトラップされないモード（青色）の寄与を分けて示す。固定チューナー1,2 の位置により，空洞内にトラップされるモードの周波数を最適値に調整したと仮定。ビーム電流 500 mA。

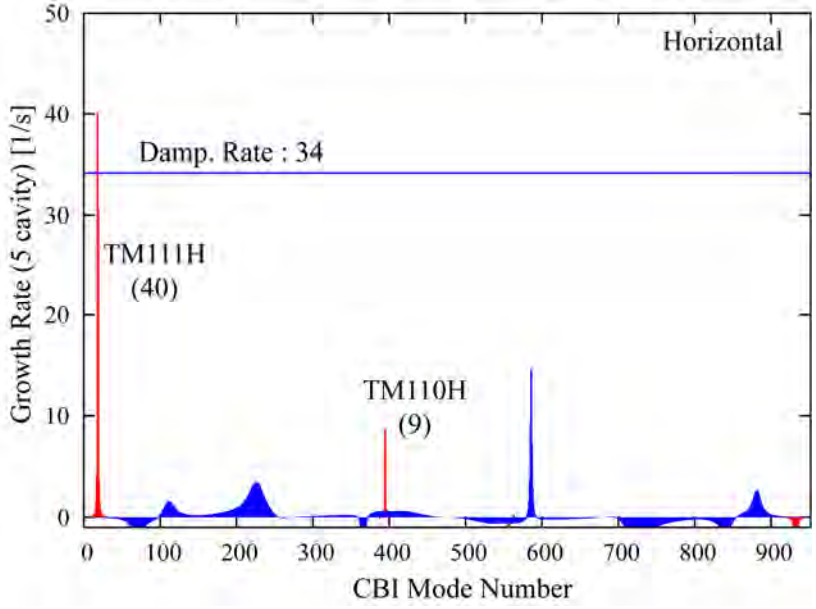


図 3.7 水平方向振動のバンチ結合振動の成長率。横軸：バンチ結合振動のモード数，縦軸：成長率。空洞内にトラップされるモード（赤色）とトラップされないモード（青色）の寄与を分けて示す。固定チューナー1,2 の位置により，空洞内にトラップされるモードの周波数を最適値に調整したと仮定。ビーム電流 500 mA。

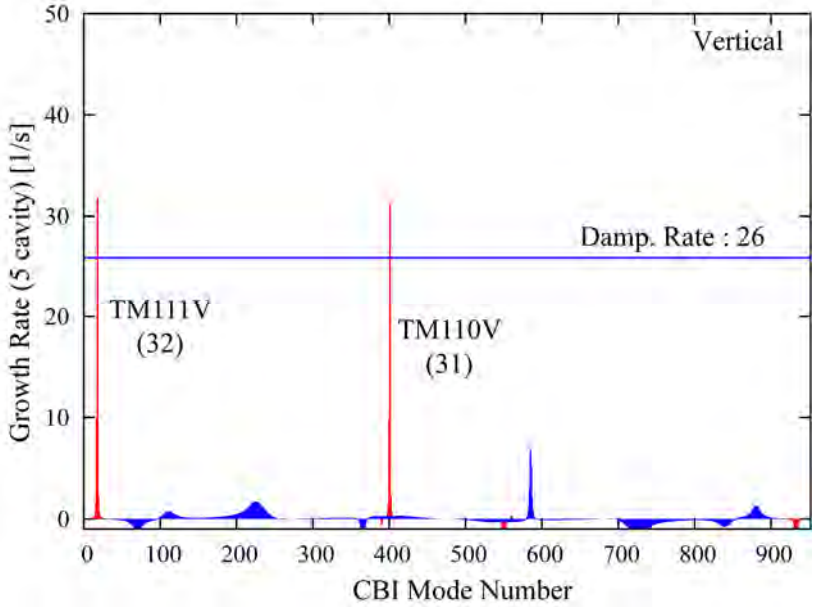


図 3.8 垂直方向のバンチ結合振動の成長率。横軸：バンチ結合振動のモード数，縦軸：成長率。空洞内にトラップされるモード（赤色）とトラップされないモード（青色）の寄与を分けて示す。固定チューナー1,2 の位置により，空洞内にトラップされるモードの周波数を最適値に調整したと仮定。ビーム電流 500 mA。

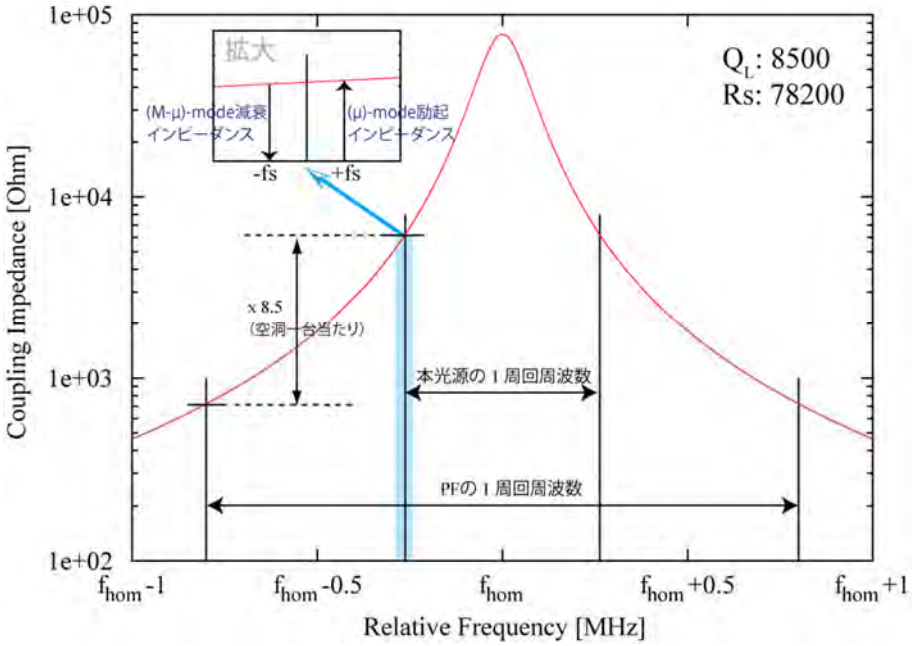


図 3.9 TM012 モードのインピーダンスと周波数。TM012 モードの結合インピーダンスの実部（赤線）と縦方向不安定性を引き起こす周波数（縦の黒線）との関係。不安定性を引き起こす周波数は，本光源の場合と，PF リングの場合の両方を示す。

次に空洞ビームポートの遮断周波数以上の高次モードについて，それらによる不安定性の成長率を評価する。検討に用いた高次モードの特性は文献[3.11]を参照した。また，水平方向と垂直方向の高次モード特性は同様であると仮定した。縦方向及び水平・垂直方向について，トラップされない高次モードによる成長率の計算結果を図 3.6，図 3.7，図 3.8 に示す（青色の線）。不安定性の成長率は，これら（赤色と青色で示した寄与）の合計になる。

各計算結果より，バンチ結合型振動の成長率は空洞内にトラップされる高次モードの効果が支配的であるが，幾つかのモードにおいては減衰率の 30%程度に迫っている。ただし，KEK 放射光のパラメータの場合は幸運なことに，空洞にトラップされるモードとトラップされないモードで成長率の大きくなる CBI モード数(μ)が異なっている。このため，先述した TM012 モードによる縦方向バンチ結合振動が最も考慮すべき課題といえる。

以上をまとめると，PF 型空洞 5 台を本光源に設置し，固定チューナー2 個の自由度で高次モード周波数を最適に調整した場合，縦方向の一つの高次モード（TM012 モード），横方向の三つの高次モード（TM111H,V と TM110V モード）を除き，バンチ結合型不安定性を避けることが出来ると予想される。これらの高次モードが引き起こす不安定性については，成長率が大きくない事から，個別バンチフィードバックシステムにより抑制可能であると考えられる。縦方向の TM012 モードについては，高次モードカップラーや HOM チューナーなどによる追加の対策をする事が望ましい。また，空洞の製作誤差などにより，高次モード周波数の初期値が表 3.3 の値からずれた場合には，固定チューナー2 個では高次モード周波数の調整が十分出来ないケースも考えられる。従って，周波数調整の自由度を増やすことが望ましい。この為にも，固定チューナーと内径や位置が異なる HOM チューナーを追加する事が望ましい（新たなポートが必要なため，空洞を新規製造する場合のみ可能）。

上記のように，幾つかの改良を加えれば，PF 型空洞はビーム不安定性の観点からも使用できる可能性がある。ただし HOM 周波数の調整等に労力を要する事と，不安定性のしきい値に余裕が無い事が短所である。今後は，他の方式の damped cavity（他の加速器で使われているものや新規設計するもの）の設計検討を進め，加速電場の長期安定性と高次モード性能の両方の観点から，最も良い空洞を採用する予定である。

3-7. ローレベル RF 系

ローレベル RF 系（低電力高周波制御系）の主な役割は，ビーム負荷や水温等の条件が変化した場合に空洞の共振周波数をチューナーにより調整し，また加速電圧（位相と振幅）を安定に保つ事である。このため，空洞や導波管系からモニター用の RF 信号を取り出し，フィードバック制御を行う。また，高周波機器の運転状態監視と異常発生時のインターロック処理もローレベル系の重要な役割の一つである。機器異常時には，高周波スイッチを高速遮断し，高周波システムを保護する。

ローレベル系で用いる RF フィードバックループでは，従来，アナログ回路による振幅・

位相差の検出とフィードバック制御が行われてきた。しかしアナログ回路には回路素子のばらつきや回路基板まわりの浮遊インピーダンス等があるため，フィードバックゲインや時間遅れを理想的に制御することが困難であった。一方，近年急速に発達した高性能なデジタル回路を用いると，アナログ信号を 16 ビット以上の高精度かつ数十 MHz 以上のサンプリング周波数で取り込む事ができ，そのデータをデジタル処理デバイス（FPGA）で高速に演算して，フィードバック信号を求めることができる。このようなデジタル・ローレベルシステムでは，一旦デジタル化された信号は，設計通りに信号処理されるため，フィードバックの調整を最適化することが容易である。KEK においては，コンパクト ERL[3.20], Super-KEKB[3.21]などでデジタル・ローレベル系が開発されており，加速電圧の安定度として振幅で 0.1%以下，位相で 0.1 度以下が達成されている[3.20]。本光源においては，これらのデジタル・ローレベル系と同様なローレベル系を構築することを検討する。また，大電力高周波源等の様々な機器の制御は, Programmable Logic Controller (PLC)を用い, 上位の EPICS システムから制御される。

3-8. 大電力高周波源

大電力高周波源（RF 源）はローレベル RF 系から入力される高周波信号を増幅し，加速空洞を駆動するのに必要な大電力の高周波を発生する。表 3.2 で検討したように，本光源では合計 658 kW の RF 電力が必要である。それぞれの加速空洞毎に高周波源を設置する場合，1 台あたりの RF 電力は 132 kW である。

大電力高周波源に求められる性能は，1) 必要な RF 電力を発生できること，2) 出力 RF の振幅と位相の安定度が良いこと，3) 出力 RF の信号純度が良いこと，特に高調波やサイドバンドが少ないこと，4) 商用電力から高周波電力への変換効率が高いこと，5) 故障頻度が少ないこと，また故障時に早期復旧が可能なこと，6) 振動などの光源性能に与える影響が少ないこと，7) 維持管理が容易なこと，8) 機器の立ち上げ時間が短いこと，などが挙げられる。

数百 MHz 帯で出力 100 kW 以上の RF 源には，従来クライストロンが主に用いられてきた。周波数 500 MHz においては，出力電力 180 kW のクライストロン製品があり，問題なく RF 電力を供給できる。しかし，クライストロンは直流高圧電源により電力が供給されるため，高圧電源に関連した幾つかの問題がある。一つは，高電圧部品の劣化や耐圧不良等による重故障が低頻度ではあるが発生することである。重故障の発生箇所によっては，電源を長期停止せざるを得ない場合もある。また，直流高電圧には電圧変動やリップルが大きく，これが出力 RF の変動を引き起こすため，ローレベル系でのフィードバックが必須である。さらに，高圧電源では大量の高圧絶縁油を用いる事があり防火上好ましくない事，大きな振動や騒音を発生する事が多いなどの短所もある。

近年，高周波増幅用の半導体素子が飛躍的に進歩しており，従来クライストロンなどの電

子管が用いられてきた用途で，半導体アンプが用いられる傾向にある[3.22, 3.23]。例えば放射光リング SOLEIL では，周波数 352 MHz，出力 190 kW/1 台の半導体アンプを RF 源として用いている[3.22]。半導体アンプでは，低電圧の電源により電力が供給されるため電源電圧の安定化が容易で，出力 RF における電源由来の変動やリップルが少ない。また，小電力アンプの出力を多数合成して用いるため，1 台のアンプユニットが故障しても運転を継続できる。省スペースでメンテナンスが容易という特徴もある。電子管技術が成熟しているのに対し，高周波半導体技術はまだ発展の余地が大きい。

電力効率に関しては現時点で商用製品として入手できる 500 MHz の半導体アンプの場合，直流高圧電源の損失を含んだ値で 50%程度が期待される[3.24] 。また，352 MHz であるが SOELIL ではフィードバックをかけて安定化する場合（フィードバック・マージンが必要）においても約 48~58%程度の効率が実現できている[3.24]。一方，クライストロンでの（RF 電力）/（直流電力）の効率は，飽和状態で 60～70%，フィードバック・マージンを含めて 50%程度である。これに直流高圧電源での損失を 5～10%と見込むと，電力効率は 45%程度となる。現時点での電力効率を比較しても，半導体アンプはクライストロンと同等の電力効率を有していると考えられる。

また，半導体アンプは各アンプユニットがサーキュレータとダミーロードを内蔵しており，実運転でも大電力用サーキュレータ及びダミーロードを用いずに済むというメリットがある。SOLEIL では 2007 年の運転開始以降，大電力用サーキュレータ及びダミーロード無しで運用してきたという実績がある。表 3.4 に半導体アンプとクライストロンとの定性的な比較をまとめる。

本光源の RF 源としては，今後の技術進歩も見込み，半導体アンプを用いるのが第一の選択肢である。ただし，クライストロンと高圧電源の組み合わせを用いる事もあり得る。その場合には，高圧電源は以下の点に注意して設計すべきである：1) 維持管理や防火上問題のある大量の高圧絶縁油を使わないこと，2) 振動・騒音が少ないこと，3) シンクロトロン周波数約 2.6 kHz およびその 2,3,4 倍の周波数におけるリップルが少ないこと，4) 十分な絶縁距離，コロナ放電対策，信頼できる部品選定等を通じて全体の信頼性が高いこと。

表 3.4　半導体アンプとクライストロンの定性的な比較

比較項目	半導体アンプ	クライストロンと 高圧電源
500.1 MHz, 約 140 kW の RF 電力を発生可能か？	可能	可能
出力 RF の振幅・位相の安定度	高い	電源高電圧の変動やリップルの影響により低い
出力 RF の信号純度	特に問題なし	特に問題なし
電力変換効率： （RF 電力）/（商用電力）	ユニット単体：50-60% フィードバック運転時: 48%程度	飽和時: 50-60% フィードバック運転時: 45%程度
故障頻度，故障復旧の早さ	多数の小型アンプを並列で使用するため，部分的な故障の場合には運転継続が可能	高電圧機器のため，低頻度で重故障がある。重故障の場合，早期復旧が困難な場合もあり
振動，騒音	比較的小さい	変圧整流器により大きな振動・騒音が発生する事がある
維持管理の容易さ	比較的容易	高圧電源において維持作業が多い。 大量の高圧絶縁油を用いる場合には防火上の問題もあり
装置の立ち上げ時間	10 分以内	クライストロン用ヒーターのウオームアップに約 1 時間必要

3-9. 高調波空洞

本光源では高調波空洞を導入して加速周波数の高次周波数の RF 電圧を重畳し，電子のバンチ長を数倍程度に伸ばすことを計画している。バンチ長を伸ばすことで，1) バンチ内散乱（intrabeam scattering）によるエミッタンス増大を減らす，2) Touschek 寿命を伸ばす，3) 真空封止アンジュレータの内面に流れる壁電流による発熱を減らす，などの効果が期待される。また，ビームのシンクロトロン振動数の広がりが発生するため，縦方向コヒーレント振動の減衰効果もある程度期待できる。

高調波 RF の次数（加速 RF 周波数との比）は 2, 3, 4 倍などが可能であり，まずどの次数が適当かを検討する。加速電圧（基本波）の n 次の高調波電圧を与えた場合，シンクロトロン振動の位相ϕを持つ電子が受ける RF 電圧は,

$$V(\phi) = V_c\left\{\cos\left(\phi+\phi_s\right)+k\cos(n\phi+\phi_n)\right\}, \tag{3-13}$$

で与えられる。ここで V_c は基本波の RF 電圧，k は高調波電圧の基本波電圧に対する比，ϕ_s, ϕ_n はそれぞれ基本波と高調波に対する電子の同期位相である。この時，RF ポテンシャルは,

$$\Psi(\phi) = \frac{1}{V_c}\int_0^{\phi}\left[V(\phi)-\frac{U_0}{e}\right]d\phi \quad , \tag{3-14}$$

で与えられる。ここで U_0 は放射損失, e は素電荷である。ビームの運動量分布が rms 広がり σ_p/p を持つガウス分布である場合, 電子の縦方向の分布は,

$$i(\phi) \propto \exp\left\{\frac{-eV_c\Psi(\phi)}{2\pi h\eta\beta^2E_0(\sigma_p/p)^2}\right\}, \tag{3-15}$$

で与えられる[3.25]。ここで h, η, β, E_0 はそれぞれハーモニクス数, スリッページファクター($\approx\alpha$), 相対論的速度（v/c），電子エネルギーを表す。

バンチ伸長の最適条件は，式 3-13 においてϕに関する一階微分と二階微分を$\phi=0$でゼロ($dV/d\phi|_o = d^2V/d\phi^2|_o=0$)とすることで求められる[3.25]。前者は$\phi=0$でバンチが伸長される条件, 後者は$\phi=0$に安定点が存在する条件である。前者のみを満たし後者を満たさない場合，$\phi=0$ 以外に位相安定点ができ，バンチ伸長位相とバンチ重心位相が異なってしまう。

上記の条件をもとに，基本波の 2 次，3 次，4 次を用いた場合の最適条件及び期待されるバンチ伸長効果を計算した結果を表 3.5 に示す。参考として，表の下部には高調波空洞に TM020 高調波空洞[3.26]を仮定した場合のパラメータも示す。空洞パラメータは R_{sh}/Q=77 Ω，$Q_0 = 37500\times\sqrt{1.5/f[\mathrm{GHz}]}$（無負荷 Q）である。空洞台数は，1 台当たりの加速電圧が無理のないように選んだ。また，入力カップラーの結合度は蓄積電流値 500 mA で外部 RF

源の供給を必要としない値(最適結合度)を仮定した。また電子の放射損失によるエネルギー損失は 851 keV/turn ，基本波の RF 電圧は 2.5 MV とした。

表 3.5 2～4 次の高調波空洞を用いた場合のパラメータ。バンチ伸長率は，自然バンチ長に対して高調波空洞導入時のバンチの伸び率を示す。

次数		2	3	4
高調波電圧比	k	0.460	0.311	0.234
基本波同期位相	ϕ_s	63.0 度	67.5 度	68.7 度
高調波同期位相	ϕ_n	-104.3 度	-97.9 度	-95.6 度
バンチ伸長率（rms）		5.8 倍	4.5 倍	3.8 倍
ピーク電荷比		14.0%	18.0%	21.1%
バケットハイト比		87.2 %	98.0 %	94.3 %
以下は高調波空洞のパラメータに依存				
高調波空洞数	N_{hc}	4 台	5 台	6 台
入力カップラーの結合度	β_{hc}	0.52	0.27	0.24
高調波空洞（全数）での壁損失	$P_{c,hc}$	93.3 kW	41.8 kW	22.8 kW
高調波空洞でのビーム負荷電力 [1] @500mA	$P_{b,hc}$	-141.8 kW	-53.2 kW	-28.4 kW
高調波空洞からの合計反射電力 @500 mA	$P_{r,hc}$	48.6 kW	11.4 kW	5.5 kW
入力高調波電力（合計）@ 0mA	$P_{g,hc}$	93.3 kW	41.8 kW	22.8 kW
入力高調波電力（合計）@ 500mA	$P_{g,hc}$	0 W	0 W	0 W
高調波空洞デチューニング量@500mA	δf_{hc}	65.1 kHz	184.6 kHz	393.0 kHz

[1] 負号はビームから高調波の電力が供給されることを示す。その電力は基本波 RF システムへの負荷となる。

表 3.5 より，高調波の次数が高いほど，1)バンチの伸び率が小さい，2) 基本波 RF システムへの負荷電力（ビームが高調波空洞内で発生する電力）が小さい，という事がわかる。2 次の高調波空洞があまり使用されない理由は，基本波 RF への負荷が大きいためと思われる。3 次と 4 次の場合を比べると，バンチ伸長率については 3 次の方が若干優れている。次数が上がるほど加速空洞の寸法が小さくなり，周波数チューナーや入力カップラー等の設計が難しくなると予想される。3 次高調波（周波数 1.5 GHz）の場合，KEK コンパクト ERL で開発実績のある 1.3 GHz バンチャー空洞[3.27]の周波数に近いため，バンチャー空洞向けに開発された周波数チューナーや入力カップラーの設計を若干変更するだけで開発可能である。また，RF 源や導波管系についても 1.3 GHz 向け製品の変更で対応可能である。これらのメリットにより，3 次高調波空洞を採用する予定である。

3 次の高調波空洞を用いた場合の RF 電圧，RF 位相空間での電子軌跡，電子ビーム分布の例を図 3.10 に示す。横軸はいずれも基本波の高周波位相である。図 3.10 上段の RF 電圧で，青色が基本波の電圧，緑色が高調波空洞による電圧，赤色が合成された電圧を，図 3.10 中段で，基本波のみの場合（青色）と高調波空洞を用いる場合（赤色）の RF 位相空間での電子軌跡（点線）とセパラトリックス（実線）を示す。高調波空洞を用いるとセパラトリクスの形が歪み，バケットハイトが約 2%減少する。図 3.10 下段は基本波のみの場合（青色）と高調波空洞を用いる場合（赤色）の電子ビーム分布を示す。高調波空洞ありでは，電子ビームのピーク電流が約 5 分の 1 に下がり，rms バンチ長が約 4.5 倍に伸びることがわかる。

また，高調波空洞では任意の電圧勾配を残した運転モードを検討している。これは，誘導性インピーダンスがある場合にバンチ伸長を最適化したい場合，あるいはマイクロウェーブ不安定性の閾値を制御したい場合に有用であり，式 3-13 においてϕに関する一階微分を有限とし二階微分を$\phi=0$でゼロとすることで位相安定条件を維持しつつ電圧勾配を任意に調整する運転条件が求まる。例えば電圧勾配を高調波空洞が無い時と比べ 5%まで許容する場合，得られる電子バンチ伸張率は 90%減少し 3.0 倍になると予測される（ただし，TM020 高調波空洞を使用し，60ns のバンチギャップを仮定した場合。電圧勾配が 0%の時はバンチ伸張率 3.3 倍）。

ここで，ビームが誘起する RF 電圧を使用するパッシブ方式の高調波空洞と，RF 源で駆動されるアクティブ方式とを比較する。多くの光源加速器では，パッシブ方式の高調波空洞を使用中[3.28, 3.29]または使用予定[3.30]である。パッシブ方式の場合，高周波源が不要になるというコスト面の利点がある。しかしパッシブ方式では高調波位相ϕ_n，高調波同調角，電圧 k に従属関係が生じるため，これらの量を独立に制御できなくなる。さらに，式 3.13 の一階，二階微分で与えられる最適条件にも制限が加わる。

パッシブ方式ではビーム電流や放射損失 U_0 が変化した場合にも，最適な運転条件には設定できない。高調波空洞を最適条件から少し外れた条件で運転する場合，バンチ伸長率は極端に低下する恐れがある。一方，RF 源でドライブされるアクティブ方式の場合，蓄積電流値がほとんど無い状態においても高調波空洞を最適に近い状態に保つことが可能となる。また，空洞本体や入力カプラを最適に設計することで，定常運転時の入力 RF 電力をほぼゼロに抑えることも可能となる。調整の自由度と電圧安定度は，アクティブ方式の方が優れている。さらに，RF 源や導波管系についても，コンパクト ERL で開発された周波数 1.3 GHz（CW）向け製品の設計を若干変更することで対応可能であり，開発に問題はない。これらの理由により，アクティブ方式を検討中である。

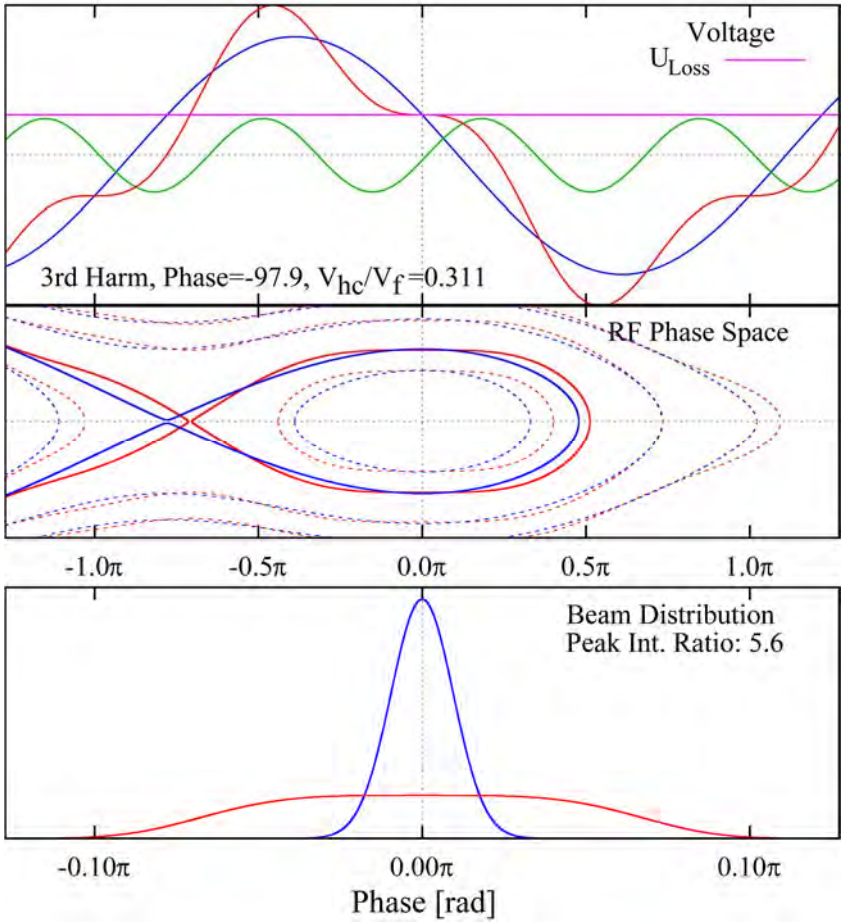


図 3.10　3 次の高調波空洞の効果。3 次の高調波空洞を用いた場合の（上から）RF 電圧，RF 位相空間での電子軌跡，電子ビーム分布の例。表 3.5 に示したパラメータを使用。横軸は基本波の位相。上段：基本波（青色），高調波（緑色），基本波と高調波の合成（赤色）の RF 電圧。中段：基本波のみ（青色）と高調波を重畳した場合（赤色）の RF 位相空間での電子軌跡。下段：基本波のみの場合（青色）と高調波を重畳した場合（赤色）の電子の縦方向分布。

基本波空洞と同様に高調波空洞についても，バンチ結合型不安定性を引き起こさないような高次モード対策が必要である。どのような高次モード対策を施した空洞が良いか，今後検討を進める予定である。また，イオン捕獲を避けるためのバンチギャップ（5～10%程度の空バケット）を導入した場合に，バンチギャップが加速空洞および高調波空洞内に誘起する過渡的電圧の変化により，同期位相がバンチ毎に変動し，バンチ伸長率が低下する現象が報告されている[3.28, 3.31]。この過渡的電圧の効果も検討が進んでいる[3.26]。

3-10. まとめ

RF システム全般:

周波数約 500.1 MHz，常伝導空洞を採用する予定である。

合計約 2.5 MV の加速電圧が必要である。

光源リングに要求される長期安定性，低トリップレートを重要な要素と考える。

加速空洞:

PF 型空洞を含む，常伝導の高次モード減衰空洞を幅広く検討中である。

PF 型空洞を 5 台使用する場合，高次モードチューナーや高次モードカップラーを追加すればバンチ結合型不安定性を避けられる可能性がある。ただし不安定性のしきい値に余裕がない。

他の方式の減衰空洞の設計検討を今後行う。

RF 源:

伝送ロスやフィードバック・マージンを除き，使える RF 電力として合計約 658 kW が必要である。

各空洞を独立の RF 源で駆動し，故障に対する運転継続能力を上げる。

半導体アンプとクライストロンの両方を検討中である。安定度に優れ，将来性のある半導体アンプが第一候補である。

ローレベル RF 系:

高精度にフィードバックが可能なデジタル・ローレベル系を検討中である。

高調波空洞:

バンチ長を伸ばす目的で，高調波空洞を導入する。

2,3,4 倍の高調波を検討した結果，3 次高調波空洞を採用する予定である。

空洞を RF 源で駆動するアクティブ方式が優れている。

バンチギャップによる過渡的な RF 電圧変化の影響を小さくできる TM020 空洞を採用する予定である。

高調波空洞は主加速空洞と同様に高次モード対策が重要である。これらを考慮した設計検討を今後行う。

参考文献

[3.1] P. B. Wilson, “High Energy Electron Linacs; Application to Storage Ring RF Systems and Linear Colliders”, AIP Conference Proceedings No. 87, pp. 450-563; SLAC-PUB-2884 (1991).

[3.2] M.R.F. Jensen, “Operational Experience with SRF Cavities for Light Sources”, in Proceedings of SRF2011, Chicago, 2011, pp. 27-31.

[3.3] H. Kobayakawa, M. Izawa, S. Sakanaka, S. Tokumoto, Rev. Sci. Instrum. 60 (1989) 1732.

[3.4] M. Izawa, H. Kobayakawa, S. Sakanaka, S. Tokumoto, Jpn. J. Appl. Phys. 26 (1987) 152.

[3.5] Y. Morozumi, T. Higo, Y. Yamazaki, Part. Accel. 29 (1990) 85.

[3.6] R. Rimmer et al., “Development of a High-Power RF Cavity for the PEP-II B Factory”, in Proceedings of PAC95 (1995) pp. 1729-1731.

[3.7] T. Kageyama et al., “Development of High-Power ARES Cavities”, in Proceedings of PAC97, Vancouver, 1997, pp. 1729-1731.

[3.8] S. Sakanaka, F. Hinode, K. Kubo, J. Urakawa, J. Synchrotron Rad. 5 (1998) 386.

[3.9] F. Marhauser, E. Weihreter, ”First Test of a HOM-Damped High Power 500MHz Cavity”, in Proceedings of EPAC2004, Lucerne, 2004, pp. 979-981.

[3.10] 惠郷博文，渡辺順子，木村諭，佐藤潔和, ”SPring-8-II 高次モード減衰型高周波加速空洞の開発”，第 11 回日本加速器学会年会プロシーディングス，青森，2014, pp. 237-241.

[3.11] T. Koseki, M. Izawa, Y. Kamiya, Rev. Sci. Instrum. 66 (1995) 1926.

[3.12] M. Izawa, T. Koseki, S. Sakanaka, T. Takahashi, K. Hass, S. Tokumoto, Y. Kamiya, J. Synchrotron Rad. 5 (1998) 369.

[3.13] Y. Shoji et al., “Upgrading of a RF System of the NewSUBARU Storage Ring”, in Proceedings of APAC2004, Gyeongju, 2004, pp. 368-370.

[3.14] 鈴木英範，他, “SAGA-LS 蓄積リング RF 空洞の高次モード対策”，第 1 回日本加速器学会年会・第 29 回リニアック技術研究会プリシーディングス，船橋，2004, pp. 338-340.

[3.15] 高嶋圭史 他，”あいち SR 光源加速器のコミッショニングと現状”，第 10 回日本加速器学会年会プロシーディングス，名古屋，2013, p. 385.

[3.16] S. Takayama et al., “Completion of the Australian Synchrotron Storage Ring RF System Commissioning”, in Proceedings of PAC07, New Mexico, 2007, pp. 1040-1042.

[3.17] H. Kobayakawa, Y. Yamazaki, Y. Kamiya, M. Kihara, Jpn. J. Appl. Phys. 25 (1986) 864.

[3.18] 赤井和憲, “RF システム”，高エネルギー加速器セミナーOHO’94 テキスト，pp. II-1 – II-45.

[3.19] Alexander W. Chao, “Physics of Collective Beam Instabilities in High Energy Accelerators”, Chap. 4, Wiley, 1993.

[3.20] F. Qiu, S. Michizono, T. Miura, T. Matsumoto, M. Omet, B.W. Sigit, Phys. Rev. ST Accel. Beams 18 (2015) 092801.

[3.21] T. Kobayashi et al., “Status of LLRF Control System for SuperKEKB Commissioning”, in Proceedings of IPAC2015, Richmond, 2015, pp. 924-926.

[3.22] P. Marchand, T. Ruan, F. Ribeiro, R. Lopes, Phys. Rev. ST Accel. Beams 10 (2007) 112001.

[3.23] T. Miura et al., “Performance of RF System for Compact-ERL Main Linac at KEK”, in Proceedings of IPAC2014, Dresden, 2014, pp. 2450-2452.

[3.24] D. Massamba, Private communication.

[3.25] A. Hofmann and S. Meyers, “Beam Dynamics in a Double RF System”, CERN-ISR-TH-RF-80-26.

[3.26] N.Yamamoto et al., “FEASIBILITY STUDY ON THE BUNCH LENGTHENING FOR HIGH BRIGHTNESS SYNCHROTRON RING WITH SUB-NM EMITTANCE”in Proceedings of PASJ, (2016) TUP013.

[3.27] T. Takahashi et al., “Development of a 1.3-GHz Buncher Cavity for the Compact ERL”, in Proceedings of IPAC2014, Dresden, 2014, pp. 3866-3868.

[3.28] J.M. Byrd, S. De Santis, M. Georgsson, G. Stover, J.D. Fox, D. Teytelman, Nucl. Instrum. & Methods A 455 (2000) 271.

[3.29] M. Georgsson, W. Andres, D. Kramer, J.M. Byrd, Nucl. Instrum. & Methods A 469 (2001) 373.

[3.30] M.P. Kelly et al., “Superconducting Harmonic Cavity for the Advanced Photon Source Upgrade”, in Proceedings of IPAC2015, Richmond, 2015, pp. 3267-3269.

[3.31] J.M. Byrd, S. De Santis, J. Jacob, V. Serriere, Phys. Rev. ST Accel. Beams 5 (2002) 092001.

4．真空システム

4-1. 概要

KEK 放射光蓄積リングの真空システムは,超低エミッタンスラティスからの要請により，従来の蓄積リングに比べ，より多くの空間的な制約を受けることになる。とりわけ，電磁石の典型的なボア径が 30 mm 程度になることから，ビームダクトは内径 25 mm 程度の狭小なものとなり，また，電磁石の密集化によりポンプやフランジなど真空機器の配置が制限される。そのような厳しい条件下においても，従来と同様な超高真空を実現するためには，詳細な設計と精密な製作技術が不可欠となる。また，ダクト壁がビームに近づくことやバンチ長が短くなることから，真空コンポーネントの低インピーダンス化が不可欠となり，さらには，高品質ビームの振動を抑制するために，ビームダクト，特に BPM 部の高い設置精度と安定度が求められる。

これらの要求を満足させるためには，現在までに培われてきた真空技術を最大限に駆使して，真空システムの設計，製作，設置，運転を行う必要がある。

4-2. ビームダクトの設計指針

ビームダクトは加速器においてビームに最も近い機器であり，その材質や形状，表面特性がビームの質や安定度に大きく影響する。一般に電子蓄積リングで採用されるビームダクトの材料は，ステンレス，アルミ合金，無酸素銅の 3 種類であり，形状に関しては，シンプルなレーストラック型や丸形に加え，ビーム路に沿って副室を設けたアンテチェンバ型がある。それぞれに利点と欠点があるため，その加速器において重要視すべき役割や製造コストなどを総合的に判断して，最適な材料と形状，およびそれに適した加工技術，表面処理技術を選択することになる。ここでは，それらを選択する上での判断材料として，ビームダクトの主要な役割を 8 つの項目に分けて考察する。

4-2-1. 超高真空状態の保持

真空システムの最も重要な役割は，充分に長いビーム寿命を実現するためにビーム路を超高真空に保つことである。KEK 放射光蓄積リングにおける要求圧力については後節で議論するが，一般にビーム路を 10^{-8} Pa 台の超高真空に保つことが求められる。また，通常そのレベルの超高真空を実現することで，真空に起因するイオントラッピングやビームラインへの制動放射γ線も抑制できる。

ビーム路を超高真空に保つには，運転時の放出ガスを効果的に排気できるように，適切な位置に良いコンダクタンスで真空ポンプを配置することが重要である。一方，材料自体の特性として，熱脱離によるガス放出速度が低いことに加え，放射光やその散乱光に曝される部位には低い光刺激脱離（Photon Stimulated Desorption; PSD）係数ηと高い熱伝導率を有

することが不可欠である。具体的には，適切な表面処理により実効表面積を低減させた上で，良質な酸化膜を形成させることになる。現在の真空技術では，3 種類の金属とも，適切な加工手法や表面処理，熱処理を施すことにより，蓄積リングで求められる超高真空性能を得ることができる。具体的な数値目標は，熱脱離によるガス放出速度を 10^{-11} Pa m^3 s^{-1} m^{-2} 以下，PSD 係数を 10^{-6} molecules/photon 台に下げることである。

気体分子の脱離機構は表面酸化膜の影響を大きく受ける。そして，材料によって表面酸化膜の性質が異なるため，材料ごとに最適な表面処理方法を選択しなければならない。PSD 係数は光焼出しによるビームダクト内面のコンディショニングの指標であり，一般に初期値は 10^{-2} molecules/photon 程度である。そして，立上げ運転の期間をなるべく短縮化させるために，速やかに 10^{-6} molecules/photon 台に涸れるような表面処理を施す。

運転初期から低い PSD 係数を得る手段の一つとして，NEG コーティングと呼ばれる非蒸発型ゲッター（Non-Evaporable Getter; NEG）材をビームダクトの内面に 1 μm 程度成膜させる方法が有効である。この NEG コーティングを活性化させることで，運転初期から通常のビームダクトより 2，3 桁低い PSD 特性が得られる[4.1, 4.2]。実機の採用例では，SOLEIL[4.3]，MAX IV[4.4, 4.5]，SIRIUS[4.6]の大部分のビームダクトに NEG コーティングが施されている。

次に，ビームダクト材料を選択する際の基礎事項について述べる。ビームダクト材として使用されるステンレス鋼は，通常 SUS304 や SUS316 のオーステナイト系であり，一般に Mo を添加した SUS316 の方が耐食性に優れる。表面処理として#400 バフ研磨+電解研磨を施し，ベーキングすることで，比較的容易に超高真空対応の低ガス放出特性を得ることができる。電解研磨でも表面に良質な Cr_20_3 不動態皮膜が形成されるが，硝酸水溶液処理や酸素雰囲気下での高温処理，または常温でのオゾン雰囲気暴露が有効で，この不動態皮膜がバルクから表面に拡散してきた水素に対するバリアとしても機能する。良質な酸化皮膜に加え，バルク内の含有水素自体を低減させる手法として，10^{-3} Pa 以下 950℃での真空高温熱処理（Vacuum Firing）が有効である[4.7]。

アルミ合金の場合は，Al-Mg 系 A5052 が耐食性や加工性に優れており，特殊な断面形状が必要な場合は押出加工に適した Al-Mg-Si 系の A6063 がよく用いられる。これらの合金では，最表面から順に，$Al(OH)_3$ 層，MgO 層，Al_2O_3 層が形成されるが[4.8]，厚くポーラスなため気体分子を多く含みやすい。これに対し，TRISTAN で開発された $Ar+O_2$ 雰囲気での特殊押出（EX）加工[4.9]や切削時にエタノールを用いる Ethanol Lathing（EL）加工[4.10]により，Al_2O_3 層を主体とする緻密で薄い（数 nm）酸化膜が形成され，ガス放出速度を低減させることができる。最近では，精密化学研磨技術も確立されてきており，複雑な構造にも応用できる上に，上記と同等なガス放出性能を得ることもできる。

最近の加速器での例としては，TPS では EL 加工に加え，表面層の炭素を低減させる目的でオゾン水洗浄を施している[4.11]。また，NSLS-II では 70℃で 6 時間の O_2 + 400 ppm O_3 雰囲気熱処理が，炭化水素系の汚染除去に効果を上げている[4.12]。

LCLS[4.13]，FERMI@Elettra[4.14]，SXFEL[4.15]，Euro-XFEL などでは，30nm 以下の面粗度が得られる砥粒流動加工（Abrasive Flow Machining）をアンジュレータ用アルミ合金押出ダクトに採用している。

無酸素銅の場合は，4N 銅と呼ばれる純度 99.99%以上の C1011 や，純度 99.96%以上の C1020 が真空容器材料として広く用いられている。一般に，酸素含有量が少ないほど水素焼鈍によって結晶粒が大きく（ポロシティが低く）なり，金属内吸蔵ガスが減る。無酸素銅は金属組織の健全性から，American Society for Testing and Materials（ASTM）規格で Class1 から Class5 に規定され，純度 99.9999%程度の 6N 銅は最高級の Class1 に分類されるが，高価なため，高周波加速空洞のように極限性能が要求される場合に限り使用される。

無酸素銅の表面処理では，国内ではキリンス処理といわれる硝酸と硫酸の混合液による酸洗いが普及している。また，ガス放出速度低減の観点から，硫酸と過酸化水素水（Sulfuric Acid Hydrogen Peroxide Mixture; SPM）による洗浄を施すことで，表面粗さの低減と炭素の少ない酸化膜が得られる。この表面は良好な PSD 特性も示すことから，加速器分野で広く採用されている。その他の表面処理として，電界研磨後に真空（10^{-6} Pa）中でプリベークし，O_2 と Ar を導入することでも良好な酸化膜が形成される。

以上のようなことを検討しながら，ビームダクト材と表面処理手法を選定し，まだ一般的ではない特殊な表面処理技術は，必要に応じて採用を検討することになる。

4-2-2. 放射光パワーの吸収

偏向電磁石からの放射光の大部分はユーザー実験に使用されず，ビームダクト内で吸収することになる。このため，真空システムは非常に大きな放射光熱負荷に対応しなければならない。放射光が照射する部位には，必ず銅やアルミ合金といった熱伝導に優れた金属を使用し，熱除去のための水冷パスを設ける必要がある。

ビームエネルギーE [GeV]，ビーム電流値が I [mA]のとき，1 台の偏向電磁石（曲率半径 ρ [m]，偏向角 θ [rad]）からの放射光パワーP [W]と臨界エネルギーε_c [keV]はそれぞれ，

$$P = 88.46 \frac{E^4 I}{\rho} \frac{\theta}{2\pi} \tag{4-1}$$

$$\varepsilon_c = 2.218 \frac{E^3}{\rho} \tag{4-2}$$

で与えられる。KEK 放射光の場合は，偏向電磁石の種類によって放射光のパワーとスペクトルが異なる。また，一部の偏向電磁石は磁場がビーム進行方向に一様でなく，上記パラメータの計算時に注意を要する。図 4.1 は SynRad+で計算した 4 種類の偏向電磁石からのフラックスを光子エネルギーの関数でプロットしたものである。また，表 4.1 にそれぞれの放射光パワーと臨界エネルギーを纏めた。比較のため，PF リングと PF-AR のデータも付記してある。

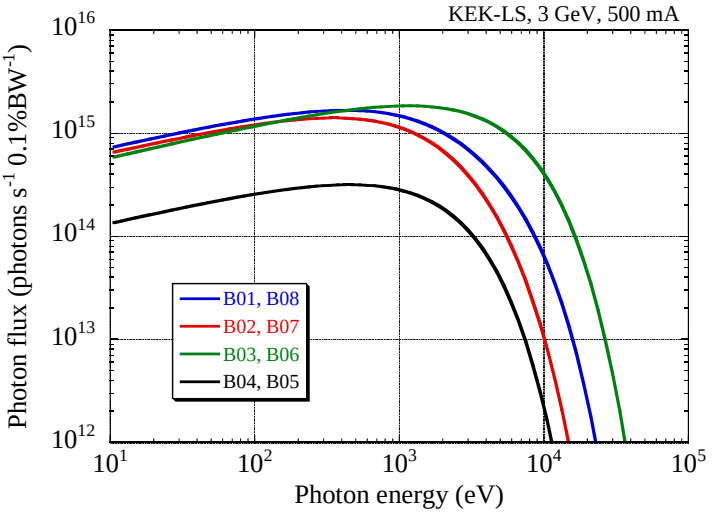


図 4.1　4 種類の偏向電磁石からの光子フラックス

表 4.1　4 種類の偏向電磁石からの放射光パワーと臨界エネルギー

	KEK-LS 3.0 GeV, 500 mA				PF-ring 2.5 GeV, 450 mA	PF-AR 6.5 GeV, 60 mA
	B01, B08	B02, B07	B03, B06	B04, B05		
Bend radius (m)	20.8–77.5	30.6–78.9	14.8	37.6	8.66	23.7
Bend angle (mrad)	51.0	42.2	54.5	9.4	224.4	112.2
SR critical energy (keV)	0.8–2.9	0.8–2.0	4.1	1.6	4.0	25.7
SR power (W/bend)	904.4	550.7	2103.9	141.9	6410.5	7136.2
Total power (kW/ring)	148.0				179.5	399.6
Linear power density (W/m)	259.4				959.9	1059.3

放射光パワーに関して KEK 放射光蓄積リングを PF リングと比較すると，ビームエネルギーと電流値が大きい効果は 2.3 倍であるが，曲率半径が平均で約 2.8 倍長いので，リング全体では 0.82 倍になる。また，リング周長が約 3 倍長いため，単位長さ当たりのパワーは 0.27 倍になる。したがって，熱負荷の観点からすると，放射光アブソーバやビームダクトに対する要求は低くなる。

ただし，ダクト径が小さいため，アブソーバ設置位置が発光点に近くなることと，放射光輝度が高くなることから，照射部の局所的なパワー密度の上昇を考慮する必要がある。また，B03 や B06 からの 2 kW を超える放射光のアブソーバや，挿入光源ビームラインへの分岐部に設置するクロッチアブソーバでは，熱負荷に応じて充分な対策が必要となる。すなわち，これらのアブソーバの設計では，ANSYS などによる熱構造解析を行い，温度上昇や発生応力，変位をシミュレーションし，堅牢性や耐久性を確かめる必要がある。さらに，クロッチアブソーバの材料として，高温時でも比較的高い引張強度と降伏強度を持ち，ヒートサイクルでも結晶粒界が成長しにくいアルミナ分散強化銅（GlidCop）を用いることも検討する。

4-2-3. ビームの誘起する電磁場の伝送

ビームダクトはバンチの誘起する電磁場を伝導させる良好な導波管としての役割も果たさなければならない。ダクト内面に段差やギャップのあるインピーダンスの高い構造では，バンチ通過に伴って高次高周波（HOM）が励起され，バンチは一部パワーを失う。HOM がトラップされやすい構造であれば，異常発熱や放電を引き起こしたり，後続のバンチに影響を及ぼしたりすることがある。特に短バンチ高電荷ビームを蓄積する場合に問題となりやすく，KEK 放射光でも真空コンポーネントが低インピーダンス構造となるように設計しなければならない。具体的な検討事項については 4.4 節で議論される。

材料に関しては，ステンレスの場合は熱伝導率が低く，HOM による発熱の除去が困難となる。また，狭小なビームダクトでは抵抗壁の影響が大きくなるため電気伝導率の高い材料が好ましく，ステンレスの場合は銅メッキを施すなど表面改質の検討が必要となる。抵抗壁に起因するバンチ結合型ビーム不安定性に関しては，ビームダイナミクスの章で詳しく議論される。

4-2-4. 電磁石磁場の伝達

電磁石からの磁場をそのままビームに伝えるために，ビームダクトは非磁性であることが求められる。アルミ合金や無酸素銅は完全非磁性であるが，ステンレスの場合は非磁性のオーステナイト系であっても冷間加工によりマルテンサイト変態を起こし，透磁率が増加する場合がある。その場合，SUS304 よりも Ni 比率の高い SUS316 の方が変態を起こしにくい。また，溶接時にフェライト組織を含む溶接棒を使用したりすると磁化する場合がある。加工により帯磁が避けられない場合は，固溶化処理（1100℃程度の高温熱処理）による消磁が有効である[4.16]。ステンレスで 450℃以上の高温熱処理を前提とする場合は，鋭敏化によるクロム炭化物析出を防止するために低炭素材（L 鋼種）を用いるのが効果的である[4.17]。低炭素による強度低下を防ぐために，窒素添加した SUS316LN を用いる加速器も多い。

速く変動する磁場をビームに伝える必要のあるキッカー電磁石や補正電磁石などでは，渦電流を抑止させるためにセラミックダクトが最適であるが，インピーダンス増大や帯電防止について検討する必要がある。蹴り角やパルスの時間特性によっては薄肉のステンレス（または，より電気抵抗率の高いインコネル）を用いることも可能である。

4-2-5. 超高真空を長期間保持する機械的強度

KEK 放射光の場合，電磁石のボア径が小さいためにビームダクトの厚みが 1～2mm 程度に制限されることになり，薄肉ダクトを真空に保持した状態でも変形が問題とならないような剛性が要求される。このため，設計時に ANSYS などでシミュレーションを行い，変位が問題にならないことを確かめておく必要がある。この観点からはステンレスが最適である。

また，フランジ部には良好なシール性能を保持するために充分な硬度も要求される。この

場合もステンレスが最適である。アルミ合金ダクトに対しては，クラッド材などを用いてシール面をステンレスに変換するか，CrN や TiC などのイオンプレーティング被覆や電子ビーム改質によりアルミ合金エッジ部の硬度を上げることが有効である[4.18]。無酸素銅の場合は，通常，ステンレスや BeCu のフランジをロウ付けや電子ビーム溶接で接合する。

4-2-6. 放射線の遮蔽

ビームダクトを透過したエネルギーの高い放射光（X 線）は，周辺のケーブルや機器を損傷させる。また，電子計測におけるノイズ源となる場合もある。このような問題を低減させるためには，ビームダクト材は質量吸収係数が大きく，放射線遮蔽能力に優れている方が好ましい。

ビームダクトの設計では，材質や厚さがどのように放射光の遮蔽に効くかを検討しておくことが重要である。X 線のエネルギーやビームダクトの材質によって，それらがどのような相互作用を起こし，また，どの程度透過するかが異なる。詳細なシミュレーションは Geant4 や FLUKA などにより可能であるが，大雑把には，アルミの場合で 60 keV 辺りまで，ステンレスと銅の場合で 100 keV 辺りまでは光電効果が主体で，それより高くなるとコンプトン散乱が主体になってくる[4.19]。

ここでは単純なモデルにより遮蔽能力を比較する。臨界エネルギーの最も高い B03 からの放射光がビームダクトに垂直に照射する場合を考え，入射放射光のフラックスが F_0 [photons/s]のとき，厚さ d [cm]のビームダクトを透過した後のフラックス F [photons/s]

$$F = F_0 \exp\left(-\mu_{\mathrm{m}} \rho d\right) \tag{4-3}$$

を比較する。ここで，μ_{m} [cm^2/g]は質量吸収係数，ρ [g/cm^3] は密度である。

図 4.2 のように，3 種類の材料に関して，厚さ 1.5 mm のダクトを透過するフラックスを比較すると，アルミに対するステンレス（ここでは鉄で代表）と銅の遮蔽能力の高さが，ある程度定量的に分かる。いずれの場合も，透過放射光のほとんどは数 10 keV 以上の硬 X 線である。

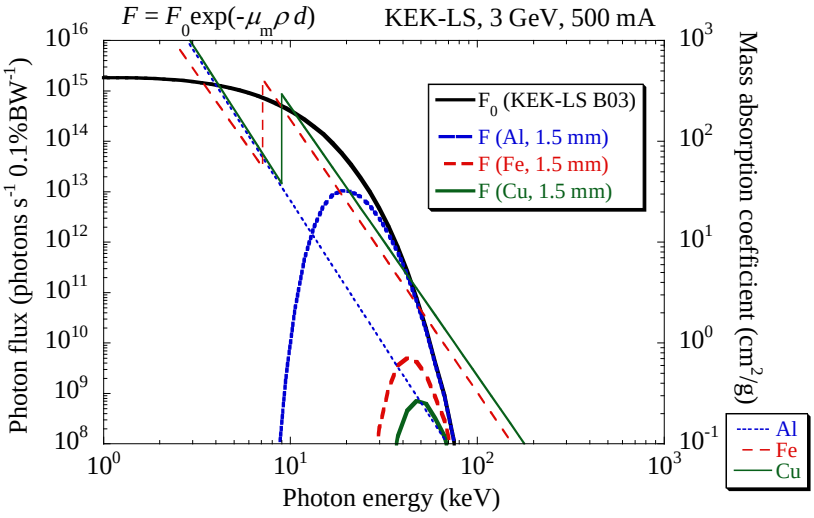


図 4.2　B03 ベンド光の透過フラックス比較

電子ビームのロスに起因する制動放射γ線や中性子に対しては，ビームダクトの遮蔽能力は皆無である。ビームスクレーパ近傍などのビームロスの想定される箇所には追加遮蔽が必要となる。残留放射能低減の観点からは，アルミやチタンといった放射能減衰の速い材料の選択も検討事項となる。

4-2-7. ビームの高い位置精度と安定度の実現

KEK 放射光では超低エミッタンスビームを蓄積するため，ビームダクトには高い機械加工精度と設置精度，および運転時の位置安定性が要求されることになる。しかしながら，すべてのビームダクトやコンポーネントを可能な限り高い精度で加工し，設置するのは，非常にコストや労力のかかる作業となる。したがって，加速器の性能を満たす範囲で許容値を決めることになる。その際，ビーム軌道の安定化を担う BPM や，放射光路を決めるクロッチアブソーバなど，放射光位置の安定化に寄与するコンポーネントを重要視する。

ビームダクトの典型的な横方向設置精度は，±100 μm 程度が現実的であろう。したがって，加工精度もその辺りが目標になる。KEK 放射光では，電磁石磁極とビームダクトとのクリアランスが 0.5 mm 程度しか許容されず，長尺ダクトに対する高い加工と設置精度が求められる。

位置の安定度に対する要求も，加速器の性能向上に伴って増してきている。KEK 放射光では，vertical emittance が　8 pm rad であり，低β_y部（β_y~ 1 m）での鉛直ビームサイズは約 2.8 μm となる。このため，BPM には 1 μm 以下の測定精度と，100 nm 程度の安定度が求められる。BPM の固定用架台には，温度変動による変位を防ぐ目的で，熱膨張係数の小さいインバーやカーボンファイバーが有効である。

4-2-8. 現場ベーキングへの対応

運転初期のベース圧力の改善，大気圧に近い大きいリークやアブソーバからの水分子のリークが起こった後の速やかな真空立上げに備えるために，現場ベーキング対応である方が好ましい。しかしながら，電子蓄積リングでは光焼出しによるビームダクトのコンディショニングが期待できることや，後者は極めて稀な事例であり水漏れしにくいアブソーバの設計も可能であることから，ビームダクトを現場ベーキング対応にしないという判断も充分にあり得る。

現場ベーキングへ対応にする場合，および NEG コーティングを採用する場合は，ビームダクトと電磁石磁極との隙間にヒーターを貼付する必要がある。NEG コーティングの活性化では，ビームダクトを 180～200℃で 24 時間，または 250℃で 4 時間，高温状態に維持する。ヒーターは，cERL でも実績のある厚さ 250 μm 程度のカプトンフィルムヒーターが候補となるが，SOLEIL でフィルムヒーターの放射線損傷が問題となった事例もあり[4.20]，特にアルミ合金ダクトの場合は注意を要する。

さらに，ベーキング時の熱膨張をすべて吸収できるベローズも必要となる。BPM やゲートバルブなどすべての固定点の間にベローズを配置することは限られたスペースでは困難であるため，一部はビーム進行方向に自由度のあるサポートを用いる。また，アーク部では外周方向に拡がることができるような固定方法も検討しなければならない。

ベーキング温度に関しては，アルミ合金の場合は，200℃以上で強度が著しく低下することに加え，蒸気圧の高い Mg が A5052 で 2.2～2.8%，A6063 で 0.45～0.9%含まれるため，150℃に制限される（Mg の蒸気圧は 150℃で 1×10^{-7} Pa 程度）[4.17]。

無酸素銅の場合も軟化防止のため，ビームダクトのベーキング温度は 200℃以下に制限される。LHC や MAX IV，SIRIUS では軟化温度を向上させる目的で，NEG コーティングダクトに低 Ag 無酸素銅を採用している[4.4, 4.6]。

4-2-9. ビームダクト設計のまとめ

ビームダクトに要求される性能の材料別比較として，以上の議論を表 4.2 に纏めた。各材料とも一長一短があるが，概して無酸素銅は欠点が少なく，多くの項目で優れていることが分かる。

表 4.2 ビームダクトに要求される性能の材料別比較

	ステンレス	アルミ合金	無酸素銅
低ガス放出速度	○	○	○
低 PSD 係数	○	△	○
高熱伝導度	×	△	◎
熱伝導率 (W m^{-1} K^{-1})	16-21	140-240	390-400
高電気伝導度	×	△	◎
電気伝導率 (MS/m)	1.4	32	59
非磁性	△	◎	◎
比透磁率	1.003-7	1.0000	1.0000
強度	◎	△	△
引張強度 (MPa)	580-680	180–320	235-315
剛性	◎	△	○
ヤング率 (GPa)	193-197	69-72	117
フランジに必要な強度	◎	△	△
ビッカース硬さ (HV)	350-380	60-120	75-120
0.2%耐力 (MPa)	175–255	200–240	200–275
放射線遮蔽	△	×	○
質量吸収係数 @10keV (cm^2/g)	171	26	216
任意断面形状加工	△	○	○
低熱膨張	○	△	○
線膨張率 (μm $m^{-1}K^{-1}$)	16-17.3	23.0	17.0
ベーキング耐性	○	△	△
最高ベーク温度 (℃)	450	150	200
材料コスト	○	○	△
加速器での採用例	SSRF, ASP, UVSOR-III, cERL, BESSY II, SLS, DIAMOND, ELLETRA, ESRF, ALBA, ANKA, CANDLE, CLS, LNLS	TRISTAN, PF-ring, SPring-8, TLS, TPS, PLS-II, SKEKB LER, SOLEIL, PETRA III, ALS, APS, NSLS-II	PF-AR, SKEKB HER, LHC, SPEAR-3, MAX IV, Sirius

ビームダクトの断面形状に関しては，電磁石のボア径 30 mm に対して，ダクトとのクリアランスを 1 mm，ダクト厚を 1.5 mm とすると，ビームダクトの内径はせいぜい 25 mm である。

量子寿命の観点からビーム蓄積に必要なアパーチャ（Beam Stay Clear; BSC）は

$$\mathrm{BSC}_x = 10\sigma_x + \mathrm{COD}_x = 10\sqrt{\varepsilon_x\beta_x + \eta^2\left(\frac{\sigma_E}{E}\right)^2} + \mathrm{COD}_x \tag{4-4}$$

$$\mathrm{BSC}_y = 10\sigma_y + \mathrm{COD}_y = 10\sqrt{\varepsilon_y\beta_y} + \mathrm{COD}_y \tag{4-5}$$

で与えられ[4.21]，KEK 放射光の場合，ビームサイズと COD の最大値として，(σ_x, σ_y) = (0.122 mm, 0.013 mm)，(COD_x, COD_y) = (0.25 mm, 0.25 mm) をとると，(BSC_x, BSC_y) = (1.47 mm, 0.38 mm)となる。したがって，内径 25 mm のビームダクトでも充分な BSC が確保されている。

放射光照射によるガス放出（PSD）の観点からは，断面形状としてアンテチェンバ型を採用すれば，放射光はビーム路に沿って配置された副室（アンテチェンバ）側で吸収でき，ビーム路を超高真空に保つという点で有利となる。この場合，押出加工のしやすさからアルミ合金か無酸素銅を採用するのが一般的である。ステンレスでも不可能ではないが，低コストと高精度を兼ね備える加工技術の R&D が必要となる。

アンテチェンバ型を採用しない場合は，単純な円形状，あるいは楕円，レーストラック，八角形のような横長の断面形状のいずれかとなり，製作の容易さと低コストの点で断然有利である。また，横長形状であれば，KEK 放射光の偏向電磁石のようにサジッタが比較的小さい場合，偏向電磁石ダクトとしてストレート管を設置することも不可能ではない。ただし，アンテチェンバ型でない場合は，多数の放射光アブソーバをビーム路に挿入するか，放射光をビームダクト内壁で受けることになり，前者の場合はインピーダンスと入射ビーム振幅の問題，後者の場合はビームダクト材の熱伝導の問題をそれぞれ考慮しなければならない。いずれにしても，放射光照射部にステンレスは採用できず，アルミ合金や無酸素銅を採用する場合でもビームダクトの PSD 特性に対する要求が高くなる。

また，4.3 節で詳しく議論するように，アパーチャの小さいダクトはコンダクタンスが小さいため，ビーム軌道上の実効排気速度を大きく取れず，充分な到達圧を得るための工夫が必要になる。その有力な手段の一つが，ビームダクト内面に NEG 材を成膜して，真空ポンプとして機能させるコーティング技術である。KEK は，NEG コーティング開発元の欧州原子核研究機構（CERN）と使用許諾契約を結んでおり，自前のコーティング装置を用いることが可能である。このため，比較的低コストで成膜することができる。

今後のビームダクトの設計方針としては，まず，目標ビーム性能を達成させることを念頭に置いて，ビームダクト材のどの性質を優先させるかを決める。その上で，1) MAX IV や

SIRIUS のような NEG コーティングを主ポンプとする低 Ag 無酸素銅製の丸管，2) NSLS-II や TPS のようなアルミ合金製アンテチェンバ，3) ESRF-II のような設置条件に応じたアルミ合金とステンレスチェンバの混在させる柔軟な設計，4) SPring-8 II のようなステンレス製アンテチェンバ，といった近年の低エミッタンスリングでの真空システム設計を参考にして，実際の運転情報なども収集しながら基本方針を確定させる。

そして，次節以降で議論するような SynRad+と MolFlow+による 3 次元圧力分布シミュレーションとビームダクトの涸れの推移（コンディショニングに必要な期間）の見積をさらに詳しく進めながら，GdfidL などによる加速器コンポーネントの縦方向インピーダンス計算，ANSYS などによるクロッチアブソーバの 3 次元熱構造解析を経て，ビームダクトの試作を行う。そして，PF の BL-21 を利用して，試作機器からの PSD を測定し，放射光照射下における真空性能評価を行う。

4-3. ビーム寿命と要求圧力

4-3-1. 圧力とビーム寿命の関係

ここでは KEK 放射光蓄積リングのビーム路の圧力とビーム寿命との関係を求め，充分に長いビーム寿命を得るために要求される圧力について考察する。

光速度 c（正確にはβc）で周回する 1 個の電子が一様な密度 n の気体分子によって散乱される頻度は，散乱断面積をσ_g とすると，$\sigma_g cn$ である。この散乱の結果として電子がバンチから失われる場合，気体分子との散乱によるビーム寿命τ_gはその逆数で与えられ，理想気体の状態方程式 $p = nkT$ を用いれば，

$$\tau_g = \frac{1}{\sigma_g cn} = \frac{kT}{\sigma_g cp} \tag{4-6}$$

のように，圧力に反比例することがわかる。

次に，この損失断面積σ_gについて少し詳しく考える[4.22]。リングを周回する電子は，残留気体分子内の原子核や核外電子によって散乱されることで，角度変化や運動量変化を受ける。いずれの場合も安定周回条件（アクセプタンス）から外れれば運動が不安定になり，やがてバンチから失われる。角度変化によるビームロスでは，次式のように，β 関数で規格化した物理アパーチャの最狭部で臨界角が決まるとする。

$$\phi_c = \frac{a}{\sqrt{\beta_c < \beta >}} \tag{4-7}$$

ここでは，アンジュレータ部での y 方向のアパーチャ（$2a_y$）が臨界角を与えるとして，$2a_y = 5\ mm$ と $2a_y = 10\ mm$ の 2 つの場合を想定する。すなわち，y 方向の最狭部で$\beta_c = 9\ m$，リング平均で $<\beta> = 9\ m$ として，$\phi_{c_y5} = 2.78 \times 10^{-4}\ rad$，$\phi_{c_y10} = 5.56 \times 10^{-4}\ rad$ の 2 つの場合を考える。

一方，運動量変化によるビームロスでは，RF バケット高さが臨界値を与えるとして，KEK 放射光の場合，$(\Delta p/p)_c = 0.0398$ とする。

電子ビームが残留気体分子によって散乱される過程として，原子核との弾性散乱（Rutherford 散乱），原子核との非弾性散乱（制動放射），核外電子との散乱（Møller 散乱）の 3 つの過程を考える。Rutherford 散乱ではϕ_c，制動放射では$(\Delta p/p)_c$，Møller 散乱ではϕ_c と$(\Delta p/p)_c$ の影響の大きい方がビームロスを引き起こすとすれば，それぞれの過程による損失断面積は近似的に以下のように書ける。

$$\sigma_R = 2\pi r_e^2 (Z/\gamma\phi_c)^2 \tag{4-8}$$

$$\sigma_{\mathrm{b}} = \frac{4r_{\mathrm{e}}^{2}Z(Z+1)}{137}\left(-\frac{4}{3}\ln\left(\frac{\Delta p}{p}\right)_{\mathrm{c}} - \frac{5}{6}\right)\ln\left(183Z^{-1/3}\right) \tag{4-9}$$

$$\sigma_{\mathrm{M}} = \mathrm{Max}\left(\frac{2\pi r_{\mathrm{e}}^{2}Z}{(\Delta p/p)_{\mathrm{c}}}, \frac{2\pi r_{\mathrm{e}}^{2}Z}{(\gamma\phi_{\mathrm{c}})^{2}}\right) \tag{4-10}$$

ここで，r_{e} は古典電子半径，γ は電子ビームのローレンツ因子である。Z は気体分子の原子番号であり，あるガス種との散乱断面積を考えるときは，構成する原子ごとに散乱断面積の和を取る。表 4.3 に CO 分子との各過程での損失断面積，および全過程での損失断面積 σ_{g} を纏めた。

表 4.3　CO 分子との散乱による損失断面積

$2a_{\mathrm{y}}$	Rutherford 散乱 σ_{R}	制動放射 σ_{b}	Møller 散乱 σ_{M}	全過程 σ_{g}
5 mm	1.88×10^{-27} m^2	4.18×10^{-28} m^2	5.25×10^{-28} m^2	2.82×10^{-27} m^2
10 mm	4.70×10^{-28} m^2	4.18×10^{-28} m^2	1.31×10^{-28} m^2	1.02×10^{-27} m^2

一方，電子蓄積リングにおける主要なビームロスには，この圧力に関係する過程以外に，バンチ内の電子どうしでの散乱の結果，運動量アクセプタンスを超えてしまう過程がある。この過程によるビーム寿命 τ_{T} は Touschek 寿命と呼ばれ，バンチ内の電子密度が高いほど短く，ビームエネルギーが高いほど長いという特徴を持つ。ビームダイナミクス（2.5 節）で議論したように，KEK 放射光の場合，500mA 蓄積時の τ_{T} は 1.8 時間（2.8%運動量アパーチャ，200σ水平振幅アパーチャの場合）と見積もられる。

したがって，ビーム寿命 τ は，ガス散乱によるビーム寿命 τ_{g} と Touschek 寿命 τ_{T} の重ね合わせとなり，次式に従って圧力 p とともに変化する。

$$\begin{aligned}\frac{1}{I\tau} &= \frac{1}{I\tau_{\mathrm{g}}} + \frac{1}{I\tau_{\mathrm{T}}} \\ &= \frac{\sigma_{\mathrm{g}}c}{kT}\frac{p}{I} + \frac{1}{I\tau_{\mathrm{T}}}\end{aligned} \tag{4-11}$$

ここで，運転中のガス放出が PSD によるとすれば，p はビーム電流 I に比例することから，圧力として規格化圧力 p/I を用いた。また，2 種のビーム寿命ともに I に反比例することから，ビーム寿命として $I\tau$ を用いた。

残留ガスを温度 T = 300 K の CO とした場合，上式をグラフに表すと図 4.3 のようになる。ビーム寿命において Touschek 効果が支配的となる領域（$p/I = 1\times10^{-7}$ Pa/A 以下）を達

成させることが，真空システム設計における一つの目標となる。

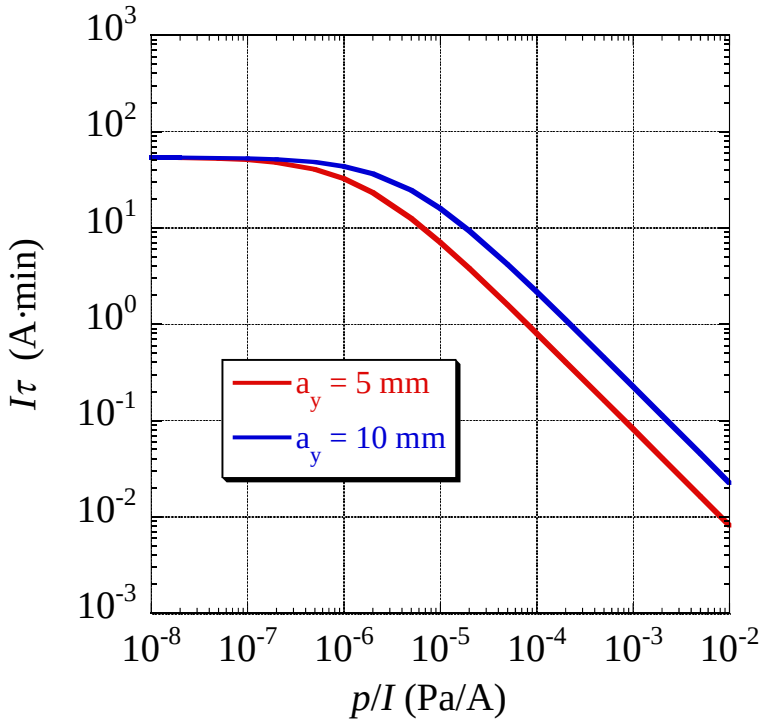


図 4.3 圧力とビーム寿命の関係

4-3-2. 圧力分布と涸れの予測

加速器建設後，数ヶ月のコミッショニング後に 1×10^{-7} Pa/A（500 mA 蓄積時で 5×10^{-8} Pa）の平均圧力を実現することは，従来型の電子蓄積リングにおける目標値と同程度であり，設計，製造，立上げにおいて相当な工夫や労力が必要となる。そして，KEK 放射光のような制約の厳しい環境では，さらに特別な措置が求められ，詳細な真空システムの設計が不可欠となる。ここでは，3 次元モンテカルロ法を用いた放射光照射と圧力分布のシミュレーションを行う。その結果から，運転時間（正確には積分電流値）の増加に伴うビームダクトの涸れの予測を行い，要求を満たす真空システムの設計方針を検討する。

ここでは基本シミュレーションとして，KEK 放射光の電磁石配置を基に真空ポンプを配置し，ビームダクト形状をφ25 mm の丸管とする条件で計算を行う。また，ビームダクト材として，無酸素銅，およびそのダクト内面に NEG コーティングを施した場合の 2 種類を想定する。シミュレーション領域は半セル分（約 14.3m）とし，実際とは異なるが，それらを 40 回繰り返し繋げることで，リング 1 周分に拡張させる。放射光は 4 台の偏向電磁石を光源とし，図 4.1 に示したとおりのフラックスでビームダクト内壁を照射する。実際には，ビームライン分岐部にクロッチアブソーバを挿入するため，大半の放射光がそのクロッチアブソーバに局在化する。その結果，ガス放出も局在化することになるが，それを効率良く排気させるためのポンプ配置の最適化は次のステップとする。

ここでのシミュレーションの流れは次のとおりである。まず，上記形状の 3 次元 CAD 図を SynRad+に読み込ませ，放射光照射分布を計算する。半セル中の 4 台の偏向電磁石のうち，B01(2 章の BID)と B02(2 章の BPI)は進行方向に沿って 5 段階で磁場を変化させる（プログラムは連続変化にも対応できる）。SynRad+では，500 mA 蓄積時に各メッシュに照射される放射光フラックス[photons/s]を計算する（図 4.4）。

その結果を MolFlow+に読み込ませて，ビーム路に沿った圧力分布を計算する（図 4.5）。その際，PSD 係数[molecules/photon]を用いて，放射光フラックス[photons/s]をガス放出速度[molecules/s]に変換する必要があり，そこで放射光が照射される表面の PSD 測定データが必要になる。ここでは，PF リングの BL-21 での測定データを用いた（図 4.6）。ビームダクトの涸れの進展はこの PSD カーブに基づいて計算される。MolFlow+では，積分電流値として 0.1～1000 A·h までの 5 段階に分けて，それぞれの照射時間に応じた各メッシュの積分光子数 [photons/cm^2]に対応する PSD 係数をそのメッシュに適用させる。

排気速度に関する条件としては，長さ 5 cm のポンプポートを電磁石の隙間 7 か所に配置し，各ポートの先端に 300 K の CO に対して 18.1 L/s の排気速度を有するポンプを接続する。NEG コーティングの排気速度は，吸着確率を 0.01 と仮定して，300 K の CO に対する理想排気速度 11.9 L s^{-1} cm^{-2} に 0.01 をかけた 0.119 L s^{-1} cm^{-2}（ϕ25 mm の丸管の場合，1 m 当たり 9.35 L/s）とする。

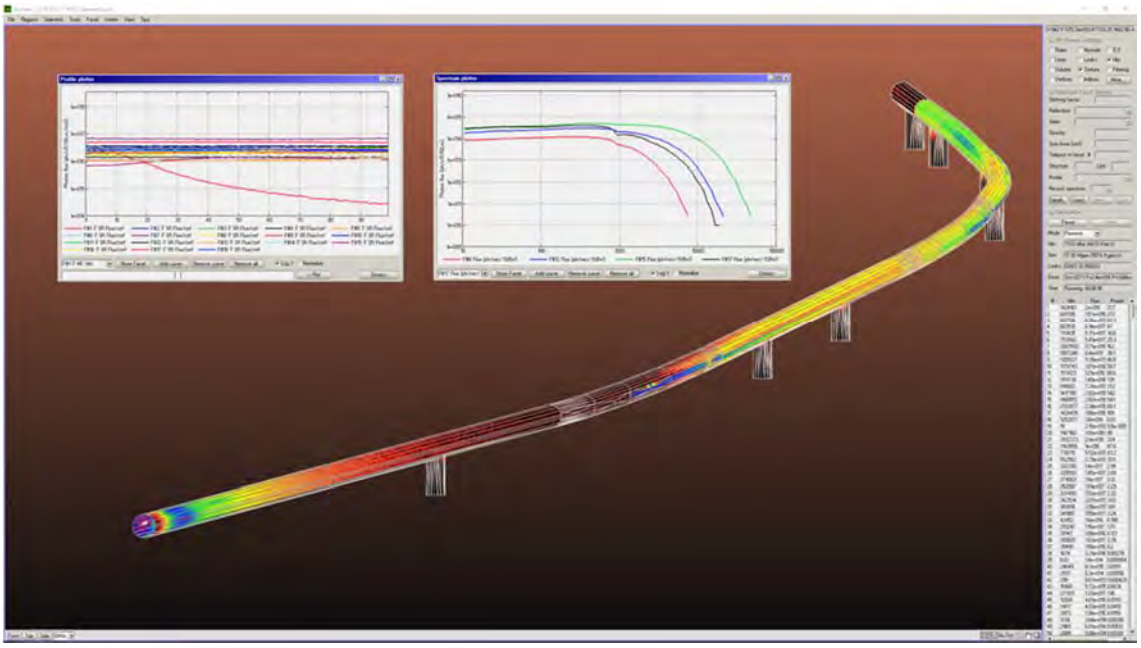


図 4.4　SynRad+による放射光照射分布シミュレーション（銅ダクト，半セル分）

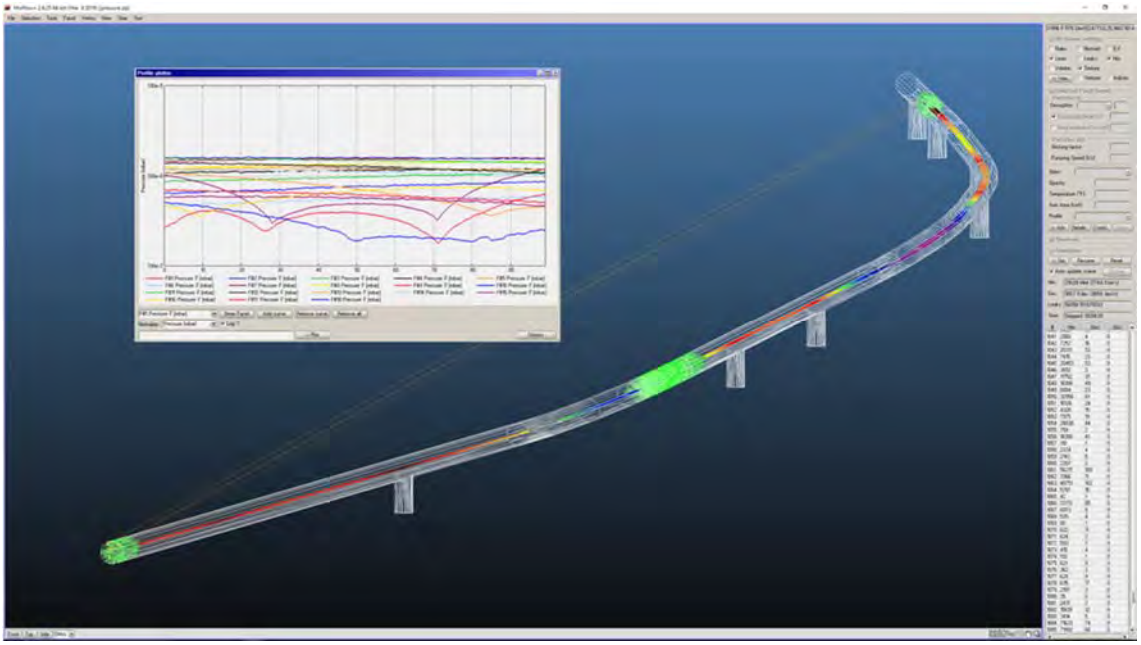


図 4.5　MolFlow+による圧力分布シミュレーション（銅ダクト，半セル分）

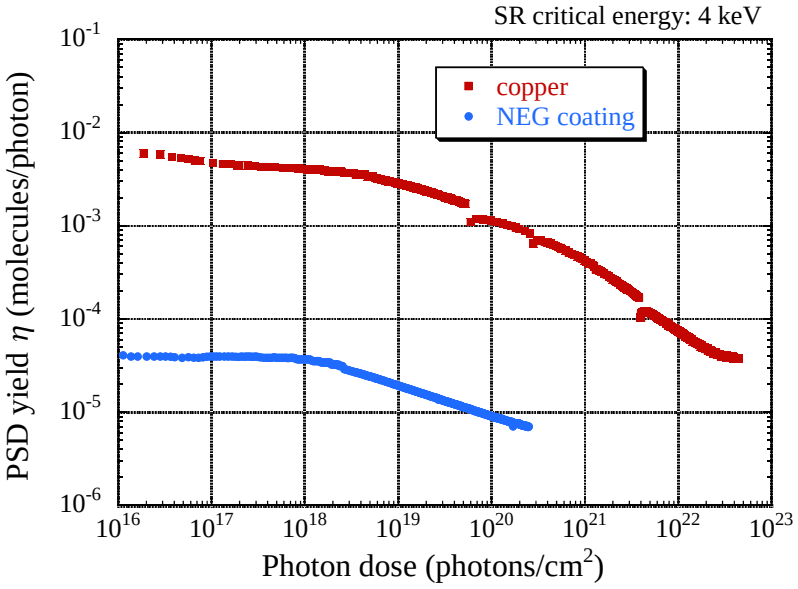


図 4.6　BL-21 での PSD 測定結果。

銅ダクトと NEG コーティングダクトに対する圧力分布計算結果を，それぞれ図 4.7 と図 4.8 に示す。積分電流値が 0.1 から 1000 A·h に増えるにつれてビームダクトの涸れが進み，圧力が低下していく様子が分かる。

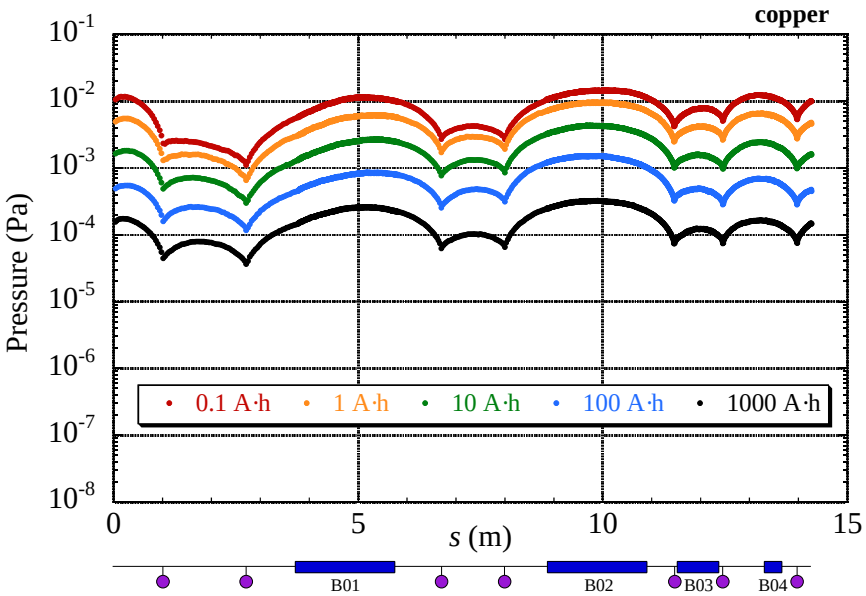


図 4.7　MolFlow+による銅ダクトの圧力分布計算結果

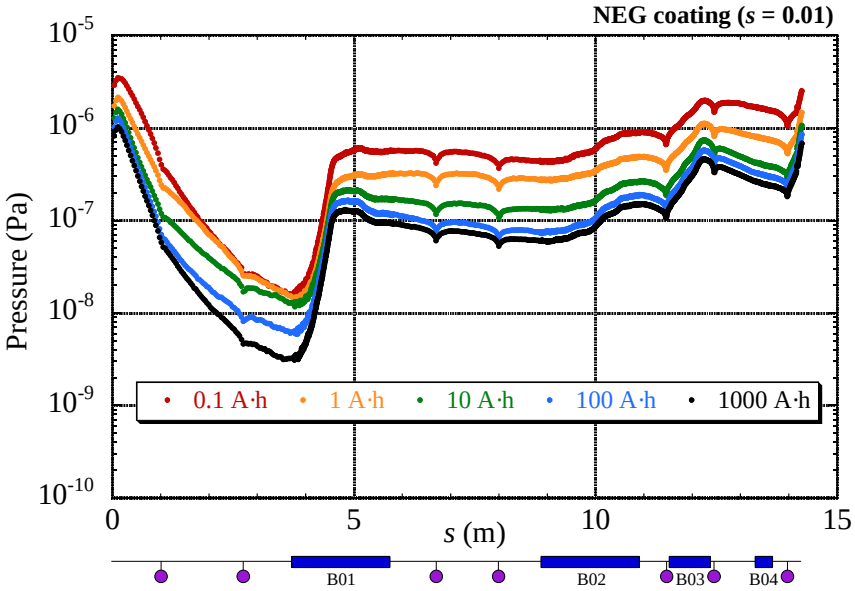


図 4.8　MolFlow+による NEG コーティングダクトの圧力分布計算結果

銅ダクトと NEG コーティングダクトの最も大きな違いは到達圧力であり，運転初期で約 4 桁，1000 A· h 時で約 3 桁，銅ダクトの方が圧力が高い。

圧力分布曲線にも大きな違いがあり，銅ダクトの場合はポンプポートで圧力が大きく低下する結果となったが，NEG コーティングダクトの場合は，PSD によるガス放出分布に近い形での圧力分布となり，ポンプポートの効果は限定的に見える。ただし，これらのポンプポートは，NEG ポンプで排気できない希ガスやメタンに対して排気速度を持つスパッタイオンポンプを設置するために不可欠である。

以上の圧力分布計算結果からリング平均圧力を求め，それを積分電流値の関数としてプロットしたのが図 4.9 である。ここでは，先に求めた圧力とビーム寿命の関係式を用いて，ビーム寿命の伸びの様子も合わせてプロットした。

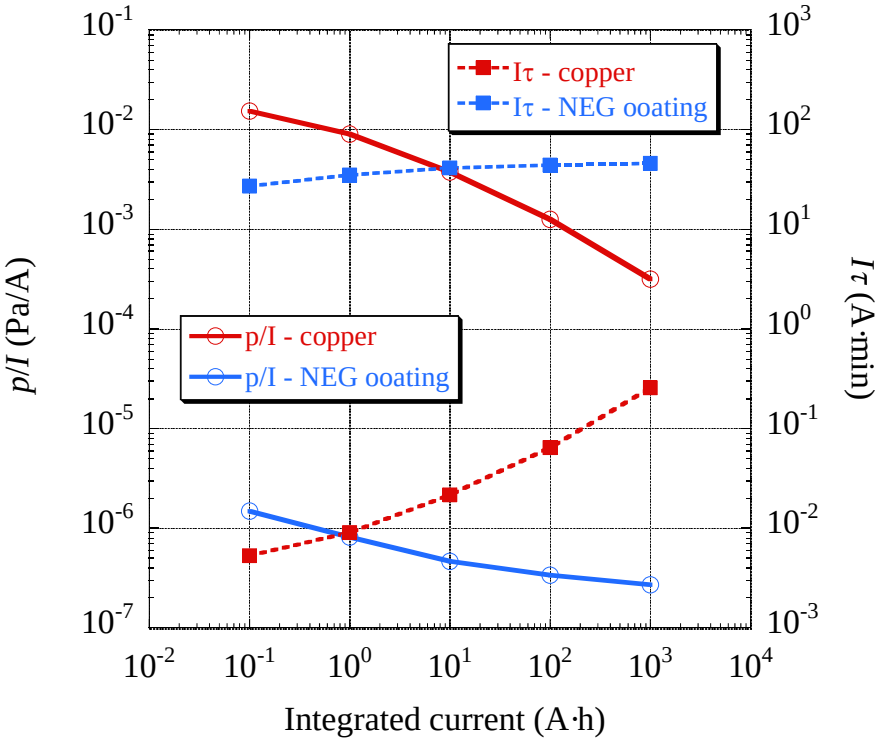


図 4.9 ダクトの涸れとビーム寿命の伸びの予測

銅ダクトのように運転初期にビーム寿命が短いと，同じ運転時間でも積分電流値がなかなか増えないこととなり，ダクトの涸れも進まない。逆に，NEG コーティングダクトのように運転初期からビーム寿命が長いと順調に積分電流値が増え，ダクトの涸れの進行も速くなる。また，運転中の圧力が速やかに 10^{-6} Pa/A 台に到達しない場合は，後述のイオントラッピングによるビーム不安定性のため，ビームを定格電流まで蓄積することも困難となる。

以上の結果，KEK 放射光蓄積リングのような狭小ダクトに対して真空ポンプを従来の構成で配置する設計では，加速器の真空システムとしては機能しないことが分かる。NEG コーティングを施すことで大幅に改善されるが，それでも 1000 A· h 時で規格化圧力は 2.7×

10^{-7} Pa/A である。実際のクロッチアブソーバの配置に即したポンプ位置の最適化を行う必要もあるが，目標の 1×10^{-7} Pa/A を得るためには，例えば，場所によってはアンテチェンバを採用し，ガス放出源をビーム路から離すなど，更なる改良が必要となる可能性がある。

また，今回ビーム寿命の計算では CO 当量の圧力がビーム路に沿って一様に分布するとしたが，ビーム寿命をより正確に見積るためには，残留気体分子の種類やビーム路に沿った圧力分布を基にした計算を行う必要がある。そうすることで，例えばビーム寿命への影響の大きい high-β 関数の領域の圧力を下げるように，ポンプ配置を最適化することも可能となる。

4-4. 低インピーダンスコンポーネント

4-4-1. HOM 励起によるパワーロス

電子蓄積リングの真空コンポーネントには，HOM による異常発熱や放電，および後続バンチへの HOM の影響を抑制するために，低インピーダンス性が要求される。電子ビームが，あるコンポーネントを通過する際に HOM の励起により失うパワーP[W]は

$$P = kqI = k\frac{I^2}{N_{\mathrm{bunch}}\, f_{\mathrm{rev}}} \tag{4-12}$$

で与えられる。ここで，q[C/bunch]はバンチの電荷，I[A]はビーム電流値，N_{bunch} はバンチ数，f_{rev} [Hz]は周回周波数である。k[V/C]は（縦方向）ロスファクタと呼ばれ，バンチ長が短くなるほど大きくなるという特徴を持つ。複雑な形状のコンポーネントに対しては，MAFIA や GdfidL などのシミュレーションコードを用いて，ロスファクタの計算を行う。

パワーロスの例として，KEK 放射光蓄積リング（f_{rev} = 525 kHz，I = 0.5 A）に設置された，あるコンポーネントのロスファクタが 0.1 V/pC のとき，N_{bunch} = 952 のマルチバンチ運転では q = 1.00 nC/bunch となり，50.0 W のパワーロスが生じると計算される。

PF リングの場合と比較すると，マルチバンチ運転では上式の q と I はともに 10%程度の違いしかないが，KEK 放射光ではバンチ長が約 3 mm であり，PF リングの約 1/3 になる。このため，同様な形状のコンポーネントでも（アパーチャが異なるので単純には比較できないが），ロスファクタが大きくなる。

また，仮に KEK 放射光において，PF リングのシングルバンチと同じ時間構造で 70 mA 相当のフォトンフラックスを供給する場合，周長がほぼ 3 倍なので 3 バンチ運転となる。したがって，I = 70 mA，N_{bunch} = 3 となり，マルチバンチ運転時（I = 500 mA，N_{bunch} = 952）に比べて，6.2 倍のパワーロスとなる。ハイブリッド運転では，マルチバンチ部分の寄与もあるため，さらに大きなパワーロスを生じる。

4-4-2. 低インピーダンス化対策

ビーム路には，真空封止型アンジュレータの磁石列，ストリップライン型 RF キッカー，ビームコリメータ，放射光アブソーバ，ゲートバルブ，ベローズ，フランジ，真空ポンプ用ポートなど，段差や突起形状を有する機器が多く設置されることになる。電子蓄積リングでは，これらすべての機器において，ギャップや段差を RF シールドで隠す，テーパーを用いて緩やかに形状を変化させる，などの対策が不可欠である。

とりわけ，放射線安全の観点からビームロスを局在化させる目的で使用するビームコリメータは，ビーム近傍まで可動コリメータを挿入して動作させるため，大きなインピーダンス源になりやすい。したがって，β 関数を考慮した設置位置の最適化はもちろんのこと，構造自体に低インピーダンス化のための充分な対策が求められる。KEK 放射光では，大電流加速器である SuperKEKB において実績のあるコリメータデザイン（図 4.10）を参考にしながら設計を検討する。

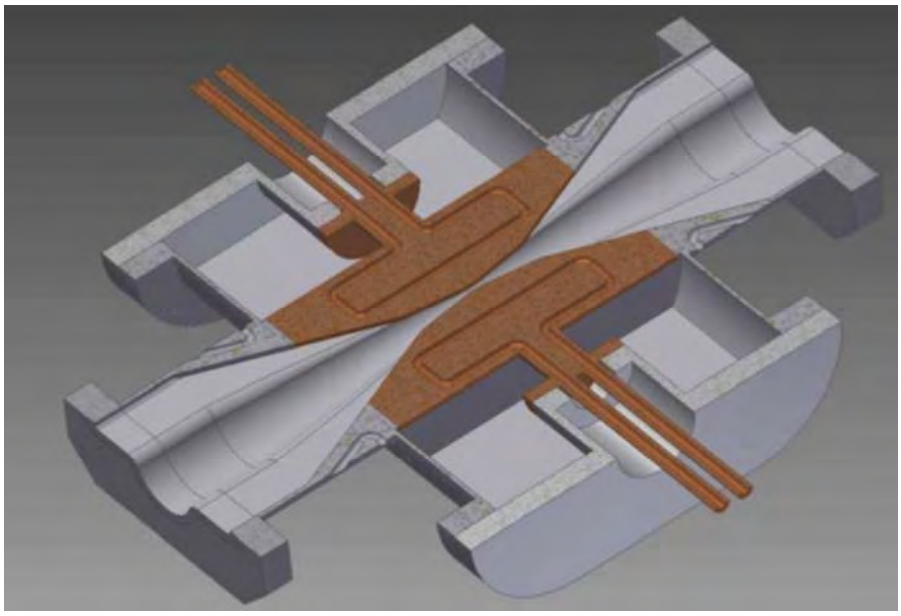


図 4.10　SuperKEKB 用ビームコリメータ[4.23]

また，ベローズ，ゲートバルブなどの可動機構を有する真空コンポーネントは，充分な強度の RF シールドをダクト内面が滑らかに繋がるように配置する必要がある。そのような高性能の RF シールドに関しても，KEKB において櫛歯型の RF シールドが開発されている。TPS 光源リングにも採用されており，KEK 放射光においても，このタイプの RF シールドが一つの候補となる。

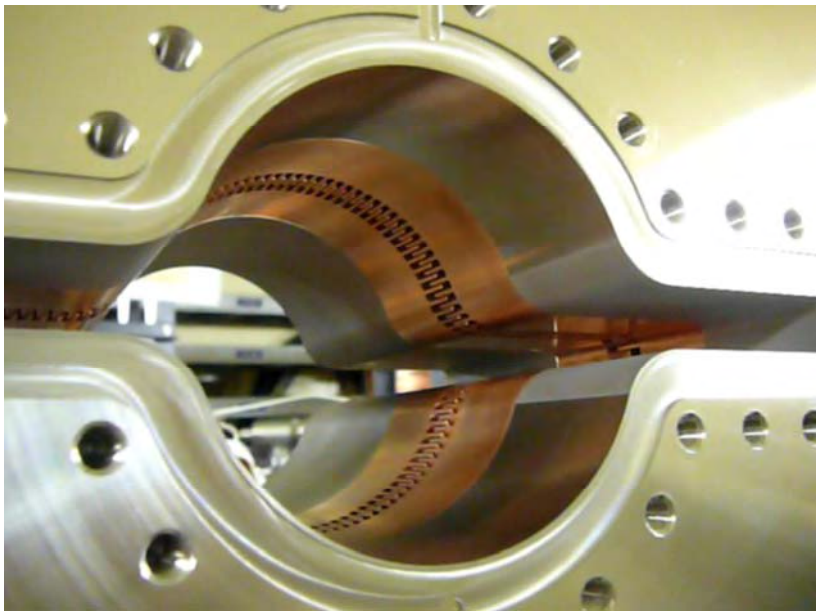


図 4.11　SuperKEKB 用櫛歯型 RF シールドゲートバルブ[4.24]

インピーダンス対策が必要な機器のうち，最も数が多いのはビームダクトを繋ぐフランジである。通常の ICF フランジでは締結後もフランジ面間にギャップが残るため，PF リングではギャップを埋めるためにバネ性を持つ BeCu の RF コンタクトを取り付けている。PF-AR では，ビームダクト断面と同じ形状のヘリコフレックスや中空 O リングを用いて，真空シールと RF シールドを両立させている。また，銅ガスケットが真空シールと RF シールドを兼ねる特殊フランジとして，SuperKEKB では MO 型フランジが，SACLA では ADESY 型フランジが開発されている[4.25, 4.26]。

特殊フランジのもう一つの候補は，cERL で開発されたギャップのないフランジ（ゼロギャップフランジ）である[4.27]。そのシール機構を図 4.12 に示す。

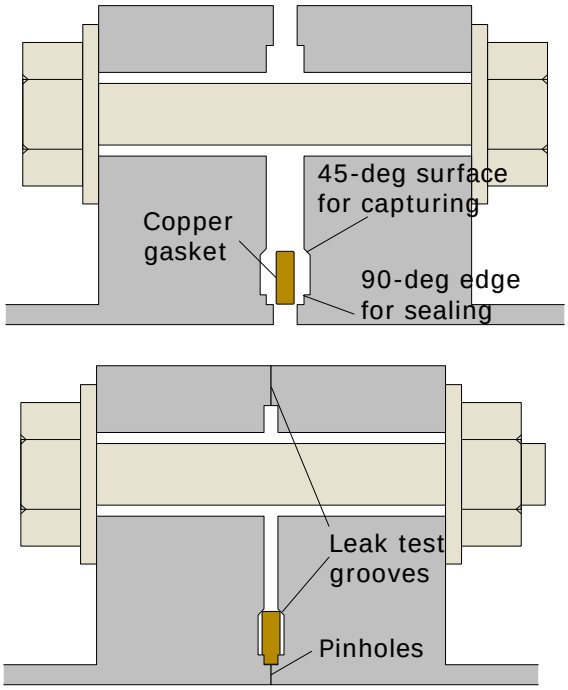


図 4.12 cERL 用ゼロギャップフランジ

このフランジの特徴は以下のとおりである。

1) ビームから段差やギャップが見えない
2) ICF フランジ同様，2 mm 厚の円形銅ガスケットを使用する
3) 90 度のエッジがガスケットに食い込み，良好なシール性能を得る
4) 45 度のテーパー部がガスケットをキャプチャして応力を保持することで，ベーキングの繰り返しによるガスケットの塑性変形を防ぐ
5) 円形以外の断面形状ダクトにも対応できる
6) ガスケット溝の平滑面を利用すれば，メタル O リングでも使用できる
7) ガスケット溝部の真空側にできるエアポケットは，2 つのピンホールを通してビームダクト側に排気される

締結後に段差をなくすためには，フランジどうしが同心軸上に繋がる必要があり，締結時に外から筒状ジャケットを被せて，フランジの芯を合わせる。このため，同心精度の落ちる回転フランジは使用できず，ボルト穴径を 8.4 mm から 10 mm に拡げることで多少の回転誤差を吸収する。非円形ダクトの場合は回転が許容されないので，フランジ外周の上下左右に切り欠きを施し，その面を利用して正確な嵌合を行う。

cERL において，10^{-9} Pa 台の超高真空にも対応することが確認されており，また，建設

において約 160 か所の締結でもリークは検出されていないなど，良好な実績を有する。ただし，このフランジは面タッチさせた状態で使用する必要があるため，ガスケットのフランジへの食い込みが大きく，フランジを切り離す際にガスケットが外れにくいという問題がある。したがって，KEK 放射光で採用する場合は，シール部溝形状の最適化が必要でとなる。また，KEK 放射光では，狭いスペースにも応用できるように，フランジの薄肉化も R&D 項目となる。

4-5. イオントラッピングとダストトラッピング

4-5-1. イオントラッピング

イオントラッピングは，電子ビームが残留気体分子を電離して生じた正イオンが，電子ビームのつくるポテンシャルにトラップされる現象で，チューンシフトや Fast ion instability などのビーム不安定性の要因となる。

イオントラッピングの起こりやすさの判断基準として，トラップされたイオンの横方向の運動に関する安定条件から，イオンの臨界質量を求めることができる[4.28]。横方向のうち，水平方向（x 方向）の運動は偏向電磁石磁場のある場所では縦方向の運動と結合するため，ここでは単純な鉛直方向（y 方向）の運動について考える。

y と $\dot{y}$ をそれぞれイオンの位置と速度とすれば，速度 βc で通過するバンチからの収束力と，そのバンチ通過後の時間 τ_b でのドリフトによるイオンの運動は，近似的に次式で記述される。

$$\begin{pmatrix} y \\ \dot{y} \end{pmatrix}_1 = \begin{pmatrix} 1 & \tau_b \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -a & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} y \\ \dot{y} \end{pmatrix}_0 = \begin{pmatrix} 1-\tau_b a & \tau_b \\ -a & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} y \\ \dot{y} \end{pmatrix}_0 \tag{4-13}$$

ここで，

$$a = \frac{2N_{\mathrm{b}} r_{\mathrm{p}} c}{\beta \sigma_y \left(\sigma_x + \sigma_y\right)} \frac{z}{A} \tag{4-14}$$

はキックパラメータと呼ばれる量であり，N_{b} はバンチ内の電子数，r_{p} は古典陽子半径（1.535×10^{-18} m），σ_x と σ_y はそれぞれ x 方向と y 方向の rms ビームサイズ，z はイオンの価数，A はイオンの質量数である。

バンチの強度と間隔がともに一定（uniform fill）の場合，バンチが m 回通過にすることによるイオンの運動は，上記行列を m 回かけることで求められる。そして，その場合でも $(y, \dot{y})$ が発散しない，すなわち，行列の固有値の絶対値が 1 以下となる安定解を求めると，

$$\left|2-\tau_b a\right| \le 2 \tag{4-15}$$

という条件式を得る。これを，キックパラメータを用いて書き換えれば，イオンの運動に関する安定条件

$$A \geq \frac{N_b r_p c \tau_b z}{2\beta\sigma_y\left(\sigma_x + \sigma_y\right)} \tag{4-16}$$

が得られる。この右辺を臨界質量（A_c）呼び，その質量以上のイオンが安定にトラップされることになる。表 4.4 に，KEK 放射光，PF，PF-AR の 3 リングでのビームパラメータと，1 価のイオンのトラップに対する A_c を纏めた。

表 4.4 イオントラッピングに対する臨界質量の比較

	KEK-LS	PF-ring	PF-AR
周長 [m]	570.7	187.1	377.3
ビーム電流 [mA]	500	450	60
バンチ数	952	312	1
バンチ内電子数, N_b	6.24E+09	5.62E+09	4.71E+11
バンチ間隔, τ_b [s]	2.00E-09	2.00E-09	1.26E-06
x 方向 rms ビームサイズ, σ_x [m]	5.3E-05	4.2E-04	1.6E-03
y 方向 rms ビームサイズ, σ_y [m]	8.6E-06	6.2E-05	1.6E-04
臨界質量, A_c	5.4	0.1	475.7

PF リングの A_c は 0.1 なので全てのガス種がトラップされるのに対し，PF-AR の場合は τ_b が大きい効果でイオントラッピングは問題とならない。KEK 放射光蓄積リングの場合，PF リングよりビームサイズが小さい効果はあるものの，A_c は 5.4 と計算され，水素やヘリウムはトラップされないが，それ以外のガス種はトラップされると推察される。

イオントラッピングを抑制するための有効な対策には，1)ビームダクト内の圧力を下げる，2)バンチトレインにギャップを開ける，3)クリアリング電極を設置する，などがある。

PF リングの運転では，312 バケットに対して 220～280 バンチの partial fill を採用し，バンチ毎フィードバックを併用することで，イオントラッピングによるビーム不安定性を解決している。リングの改造を行った後の立上げ時，圧力が 10^{-5} Pa 台以上の場合にイオントラッピングが原因と考えられるビーム不安定性が観測されるが，10^{-6} Pa 台以下に下がれば解消される。その理由としては，圧力が下がることでイオン生成の頻度が下がり，イオンの捕獲と消散の均衡が崩れる過程が考えられる。

4-5-2. ダストトラッピング

4-5-2-1. ビーム寿命急落現象

電子蓄積リングには，電子ビームの寿命が突然低下して短時間のうちにビームの一部が失われる現象があり，その状態が長時間持続するとビームの再入射が必要となる。この現象は正に帯電した微粒子（ダスト）が電子ビームに捕捉されるダストトラッピングによって引き起こされ，以下に示すような特徴を有する。

1) 前触れなくビーム寿命が急落する（低下したビーム寿命と圧力に相関がない）
2) ガンマ線がビーム進行方向前方で観測される[4.29, 4.30]
3) 正電荷ビーム（陽電子や陽子）を蓄積するリングではビーム寿命急落は起こらないか，起こってもその状態は持続しない[4.30, 4.31]
4) 加速器の建設や大規模な改造の直後に比較的多く観測される[4.32, 4.33]
5) トラップされたダストは高温状態にあり，発光を視覚的に観測できる[4.34]

ダストトラッピングは，1)および 2)の結果によってユーザー実験に対して多大な影響を及ぼし，PF リング や PF-AR（TRISTAN AR）でも問題となっていた[4.35, 4.36]。世界の加速器では 1980 年代に第 1，第 2 世代光源等で多くの観測例が報告されたが[4.30, 4.37]，1990 年代以降に建設された第 3 世代光源では運転初期を除き，ほとんど観測例が報告されていない。その理由については後節で考察する。

4-5-2-2. ダストの発生源

運転中の観測や人為的な実証実験から，以下に示すような機器がビームに有害なダストの発生源となり得ることが確かめられている。

1) ビーム進行方向に沿って設置された，電磁石磁場を利用する分布型イオンポンプ[4.31, 4.33, 4.35]
2) 真空封止型アンジュレータやストリップライン型 RF キッカーなど，インピーダンスの高い構造を有し，ビームからの電磁場で放電を起こしやすい機器[4.33, 4.38]
3) ビームスクレーパやビームシャッターなど駆動機構を有する機器[4.38, 4.39]

1)および 2)では内部での火花放電（スパーク）により，3)では摺動や振動，衝撃によりダストが発生すると考えられる。特に 2)のように運転に不可欠な機器ではインピーダンスの低い構造にするなど，ダストの発生を抑える対策が必要となる。

上記以外のダスト源として，ビームダクトの製造や設置の際に混入した微粒子が考えられるが，計算上，これらのダストは正に帯電した場合でも，鏡像電荷による導体ダクトからの引力がビームからの引力に勝り，ダストトラッピングには至らないと考えられている[4.38, 4.40]。ただし，ダストがビームダクト内に多く存在することで放電が起こりやすく

なり，これが加速器建設や改造の直後にダストトラッピングが多く観測される原因になっていると考えられる。したがって，ビームダクトの製造や設置の過程において，可能な限りダストの混入を抑えることが重要である。

4-5-2-3. 力学的に安定なトラップ条件

イオントラッピングと同様に，電子ビームにトラップされたダストは，バンチの周期的な通過によって，ビーム軌道に transverse 方向に引力を受け続ける。その運動の安定条件から，ダストの臨界質量電荷比$(A/z)_c$を見積もることができる[4.28]。そして，ダストの質量を仮定すれば，ある電荷数以下のものが安定にトラップされることになる。その条件式はイオントラッピングの臨界質量の式と同じであるが，ダストトラッピングの場合，Aはダストの総質量数（総核子数）となる。

例えば，KEK 放射光の運転パラメータでは，$(A/z)_c = 5.4$ なので，直径 1 μm のチタン球（$A = 1.4\times10^{12}$）を仮定すれば，電荷数 z として 2.6×10^{11} までの広い範囲の安定条件でトラップされる可能性がある。ただし，実際にはイオンの電界蒸発による緩和により，$z = 10^7$ 程度で電荷平衡に至ると考えられている[40]。

4-5-2-4. 熱的に安定なトラップ条件

ダストはトラップされるとビームからのエネルギー付与によって急激に温度が上昇する。蒸発や分裂によって瞬時にダストトラッピングが解消されれば，一部のビームが削れるだけの現象として観測される。一方，シリカ（SiO_2），アルミナ（Al_2O_3），チタンといった高融点かつ低飽和蒸気圧という熱的に安定なダストがトラップされた場合は，高温になるに従って熱輻射によるエネルギー放出（冷却効果）が増えるため，熱平衡状態，あるいは準熱平衡状態に達する。その場合，持続型のビーム寿命急落現象として観測され，ビームがほとんどなくなるまで数十分以上ダストトラッピングが持続する場合もある。

SPring-8 などの 1990 年代以降に建設された低エミッタンス蓄積リングや，KEKB などの大電流蓄積リングでは，持続型のダストトラッピングは発生していない。これは，ビームのフラックスが大きく（バンチ内電子の密度が高く），熱平衡が成立する前にダストが蒸発や分裂を起こすためと考えられている。

例えば，1950 K にある直径 0.5 μm のシリカからの輻射パワーはステファン・ボルツマンの法則から 6.4×10^{-7} W となり，この値を上回るために必要なビームフラックスは 1.4×10^5 A/m^2 と計算される[40]。

今，ビーム電流が I，rms ビームサイズがσ_x とσ_yのときのビームフラックスを

$$F = \frac{I}{2\pi\sigma_x\sigma_y} \tag{4-17}$$

と定義し，熱平衡条件を上回る目安である 1.4×10^5 A/m^2 と比較すると，ビームフラックスが 4.1×10^4 A/m^2 の PF-AR では実際にダストトラッピングが発生しやすく，2.8×10^6 A/m^2 の PF リング（1997 年高輝度化後），5.4×10^6 A/m^2 の SPring-8，7.2×10^6 A/m^2 の KEKB-HER では持続型のダストトラッピングは発生していない。KEK 放射光の場合は，エミッタンスが小さい効果によりビームフラックスが 1.7×10^8 A/m^2 と極めて高く，瞬間的なビームロスを除き，ダストトラッピングは問題にならないと考えられる。

参考文献

[4.1] P. Chiggiato and R. Kersevan, Vacuum **60**, 67 (2001).

[4.2] M. Ady, P. Chiggiato, R. Kersevan, *et al.*, *Proceedings of the 6th International Particle Accelerator Conference, Richmond, VA, USA, 2015*, pp. 3123-3126.

[4.3] C. Herbeaux, N. Bechu, and J.-M. Filhol, *Proceedings of the 11th European Particle Accelerator Conference, Genoa, 2008*, pp. 3696-3698.

[4.4] S. Calatroni, P. Chiggiato, P. C. Pinto, *et al.*, *Proceedings of the 4th International Particle Accelerator Conference, Shanghai, China, 2013*, pp. 3385-3387.

[4.5] P. C. Pinto, B. Bartova, B. Holliger, *et al.*, *Proceedings of the 6th International Particle Accelerator Conference, Richmond, VA, USA, 2015*, pp. 3145-3147.

[4.6] R. M. Seraphim, O. R. Bagnato, R. O. Ferraz, *et al.*, *Proceedings of the 6th International Particle Accelerator Conference, Richmond, VA, USA, 2015*, pp. 2744-2746.

[4.7] N. Yoshimura, H. Hirano, T. Sato, *et al.*, Journal of Vacuum Science & Technology A **9**, 2326 (1991).

[4.8] C. Lea and J. Ball, Applications of Surface Science **17**, 344 (1984).

[4.9] H. Ishimaru, Journal of Vacuum Science & Technology A **2**, 1170 (1984).

[4.10] M. Suemitsu, T. Kaneko, and N. Miyamoto, Journal of Vacuum Science & Technology A **5**, 37 (1987).

[4.11] C. K. Chan, G. Y. Hsiung, C. C. Chang, *et al.*, Journal of Physics: Conference Series **100**, 092025 (2008).

[4.12] H.-C. Hseuh, A. Blednykh, L. Doom, *et al.*, *Proceedings of the 2011 Particle Accelerator Conference, New York, NY, USA, 2011*, pp. 1244-1246.

[4.13] E. Trakhtenberg, P. D. Hartog, and G. Wiemerslage, *Proceedings of the 2011 Particle Accelerator Conference, New York, NY, USA, 2011*, pp. 2093-2095.

[4.14] G. Lanfranco, P. Craievich, D. L. Civita, *et al.*, *Proceedings of the 1st International Particle Accelerator Conference, Kyoto, 2010*, pp. 3138-3140.

[4.15] X. Hu and L. Yin, *Proceedings of the 4th International Particle Accelerator Conference, Shanghai, China, 2013*, pp. 2193-2195.

[4.16] I. C. Sheng, C. K. Kuan, C.T.Chen, *et al.*, *Proceedings of the 6th International Particle Accelerator Conference, Richmond, VA, USA, 2015*, pp. 3225-3227.

[4.17] 石川雄一，土佐正弘，第55回真空夏季大学テキスト (2015).

[4.18] M. Oishi, M. Shoji, Y. Okayasu, *et al.*, Journal of the Vacuum Society of Japan **53**, 140 (2010).

[4.19] 飯田博美，放射線概論 (1994).

[4.20] N. Hubert, N. Bechu, P. Brunelle, *et al.*, *Proceedings of the 2nd International Beam Instrumentation Conference, Oxford, UK, 2013*, pp. 644-647.

[4.21] 末次祐介，OHO'94テキスト (1994).

[4.22] 中村典雄，OHO'91テキスト (1991).

[4.23] T. Ishibashi, Y. Suetsugu, and S. Terui, *Proceedings of the 10th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, 2013*, pp. 1191-1195.

[4.24] Y. Suetsugu, K. Kanazawa, K. Shibata, *et al.*, Journal of Vacuum Science & Technology A **30**, 031602 (2012).

[4.25] Y. Suetsugu, M. Shirai, and M. Ohtsuka, Journal of the Vacuum Society of Japan **58**, 150 (2015).

[4.26] T. Bizen, Journal of the Vacuum Society of Japan **52**, 271 (2009).

[4.27] Y. Tanimoto, S. Asaoka, T. Honda, *et al.*, *Proceedings of the 4th International Particle Accelerator Conference, Shanghai, China, 2013*, pp. 3315-3317.

[4.28] Y. Baconnier and G. Brianti, CERN/SPS/80-2 (DI) (1980).

[4.29] Photon Factory Activity Report 1987, 66 (1988).

[4.30] P. C. Marin, Rev. Sci. Instrum. **63**, 327 (1992).

[4.31] Q. Qin and Z. Y. Guo, *Proceedings of the 2nd Asian Particle Accelerator Conference, Beijing, 2001*, pp. 451-453.

[4.32] F. Pedersen, A. Poncet, and L. Soby, *Proceedings of the 1989 Particle Accelerator Conference, Chicago, IL, 1989*, pp. 1786-1788.

[4.33] Y. Tanimoto, T. Honda, T. Uchiyama, *et al.*, AIP Conference Proceedings **1234**, 595 (2010).

[4.34] Y. Tanimoto, T. Honda, and S. Sakanaka, Phys. Rev. ST Accel. Beams **12**, 110702 (2009).

[4.35] K. Huke, N. Kajiura, Y. Kamiya, *et al.*, IEEE Trans. Nucl. Sci. **NS-30**, 3130 (1983).

[4.36] H. Saeki, T. Momose, and H. Ishimaru, Rev. Sci. Instrum. **62**, 874 (1991).

[4.37] A. W. Maschke, BNL Heavy Ion Fusion Technical Note 84-1 (1984).

[4.38] D. Sagan, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **330**, 371 (1993).

[4.39] E. Jones, F. Pedersen, A. Poncet, *et al.*, IEEE Trans. Nucl. Sci. **NS-32**, 2218 (1985).

[4.40] F. Zimmermann, PEP-II AP Note No.: 8-94 (1994).

５．制御システム

5-1. 概要

加速器制御の根本となるソフトウェア群には，KEK および諸外国において数多くの実績と開発経験のある EPICS(Experimental Physics and Industrial Control System)を使用する（図 5.1）[5.1]。EPICS はネットワーク 3 階層モデルをベースにした分散型制御フレームワークであり，世界中の加速器研究者によって開発されてきたオープンソースソフトウェアである。日本では KEK の B-Factory, Linac, PF, PF-AR, ATF はもちろんのこと，J-PARC の制御用ソフトウェアとしても全面的に採用されているほか，愛知シンクロトロンでも使用されている。このように多くの開発が現在も積極的に行われており，その信頼性と高機能性には定評がある。EPICS を採用することによって既存加速器で使用されてきた様々なソフトウェアを有効活用することができるため，迅速なソフトウェア開発が可能となる。また，後述する各種ビーム調整など高度な制御を行うことも可能となる。具体的には図 5.1 に示すように「Channel Access」と呼ばれるネットワーク透過なプロトコルを使うことで遠隔機器をシームレスに操作するフレームワークである。

ビームライン制御には，やはり PF リングや愛知シンクロトロンでの実績のある STARS (Simple Transmission and Retrieval System) [5.2] を採用するのが妥当であると考えている。既に EPICS と STARS との間はゲートウェイを介して互いに制御可能であるため，いままでの実績のあるソフトウェアを採用することがコストと開発時間の最小化に大きく貢献する。完全に２つのシステムを分離するのではなく，目的に応じて適材適所のソフトウェア実装をおこなって有機的に連携することが重要である。

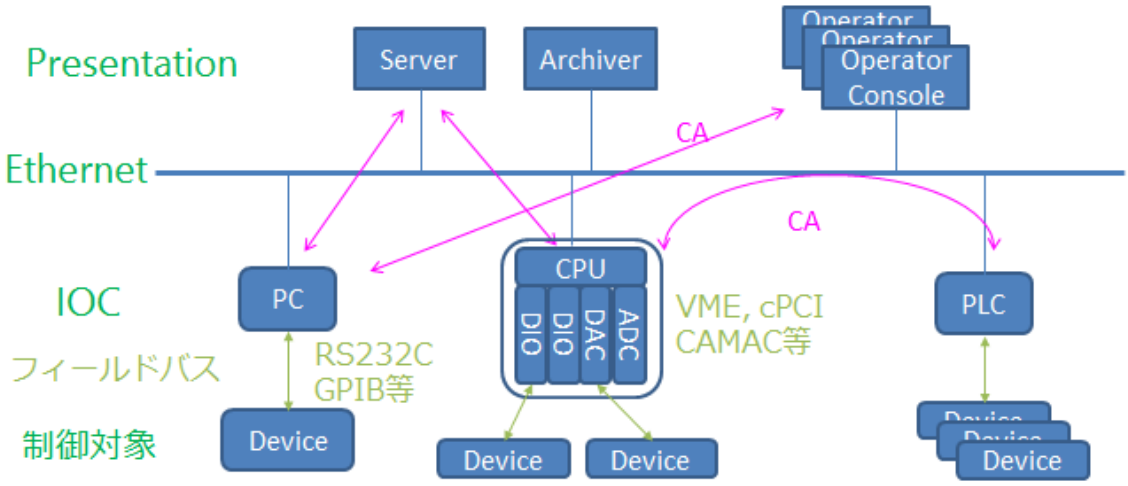


図 5.1　EPICS の概念図。EPICS の 3 階層制御モデル（制御層，ネットワーク層，プレゼンテーション層）と Channel Access (CA) によるデータ通信概念を示す。

5-2. ハードウェア構成

従来，加速器制御にはVME計算機とリアルタイム CPU/OS が使用されてくることが多かったが，開発にかかる初期コスト（ハードウェア及びソフトウェア）やメンテナンスコスト，長期間にわたるハードウェア保守の面からはいくらか問題があった。近年ではCPU性能の向上や，PLC (Programmable Logic Controller) の制御速度が向上したことや，市場にある製品群が充実していること，長期サポートが約束されていることなどを鑑みると従来に比べるとリアルタイム制御プログラムへの障壁は下がっている。ハードウェア制御の基本としてはPLCを採用し，遠隔制御についてはFL-NetあるいはEtherCAT規格での通信が最も有望である。特に高速な制御が必要な部分には国際リニアコライダー計画でも採用が本命視されているマイクロ TCA ベースのハードウェアを採用することを検討している。マイクロ TCA 規格のハードウェアは既に KEK のコンパクト ERL や STF の LLRF(Low-Level RF)制御ボードでも採用され，すでに実際の加速器制御に供されている。高機能性と高速制御を実現可能なハードウェアとして有望である。

加速器モデリングや各種のシミュレーションなど，上位プログラムを稼働させるハードウェアは一般的な Linux サーバ計算機を導入する。これには現在稼働中の PF リングの制御サーバをそのまま有効活用できると考えている。計算機と各種フィールドバスとの間は高速のネットワーク網が必要である。新リング建設にあたっては基幹部 10 Gbps，エッジ部 1 Gbps クラスの高速ネットワーク網をリング全体に敷設する。将来の高速化に対応するため，基幹部については 40 Gbps 以上に対応可能な光ファイバーを敷設する。

ネットワークは加速器制御・ビームライン制御・安全系・施設系・オフィス系を分離した構成をとる。なぜならば，万が一のトラブルが発生した際に互いに影響の及ぶ範囲を限定しておくことが非常に重要であるためである。近年，ネットワーク装置の通信速度は向上しており，適切な Firewall および Gateway 機器を設置して互いのネットワーク間通信を安定に確保可能である(図 5.2)。

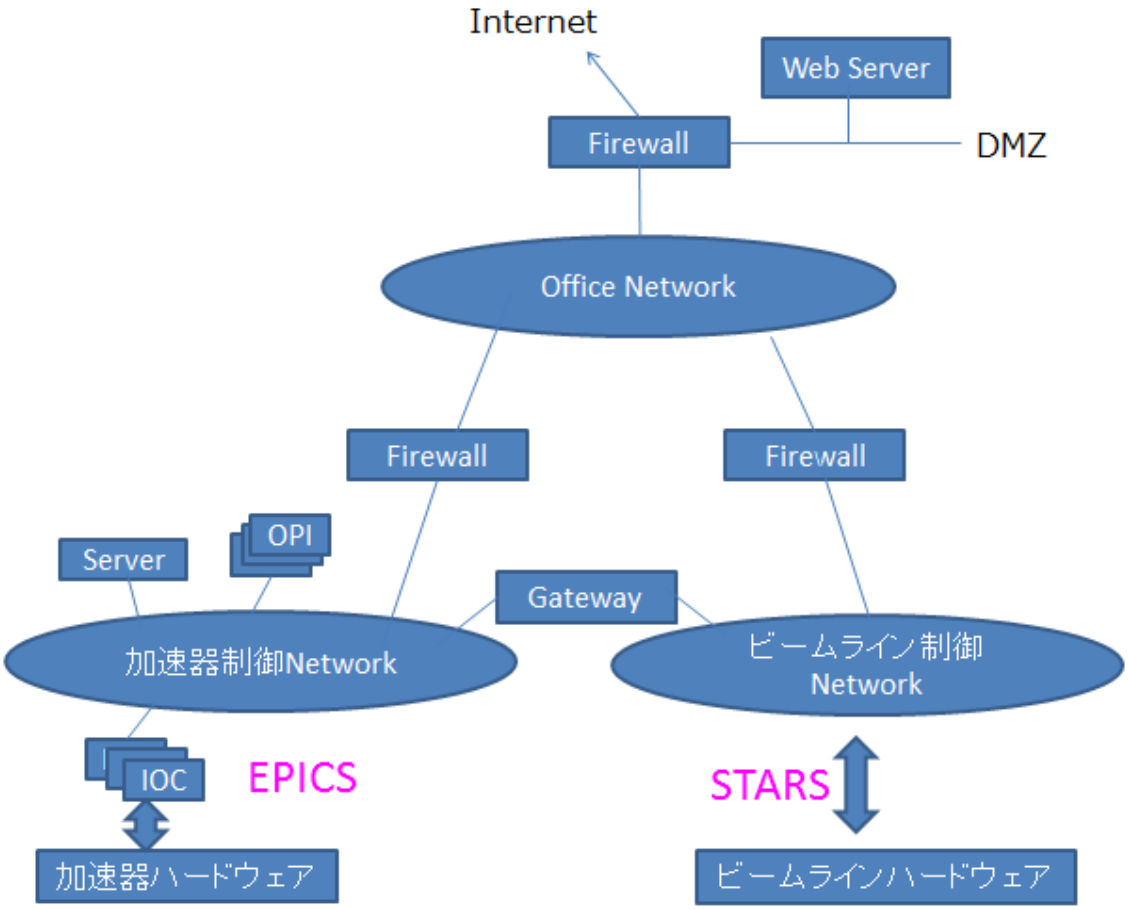


図 5.2　加速器ハードウェアとネットワーク構成図

5-3. Timing

タイミング分配には Microresearch 社の Event Generator/Receiver を採用する。通常の同軸ケーブルでは１つの信号線で１つの信号しか送ることができないが，このイベントシステムでは 255 パターンの任意イベントを 1 本の光ファイバーで送信できるため，例えば入射タイミングやキッカー・セプタムのトリガ信号など，複数の信号線を 1 本で伝送可能となる。同じ機能をもつモジュールは中国の上海放射光源制御グループでも開発されており，MRF 社にはない高精度タイミングやイベントの上位伝送などの機能を追加した互換ハードウェアが入手可能である。MRF 社の製品では VME 計算機が必須であったが，PLC でも使用可能なレシーバモジュールも開発している。今後も要望に応じて共同研究・開発をすることが期待できる。

前述のイベントシステムは多機能である一方，高精度のタイミング信号を低ジッターで伝送するには適していない。そこで時間ジッターが 1 ～数 ps 程度以下の精度が要請される部分には低ジッター分周器を開発している。これらの信号伝送にはリング建物を建設する時に温度安定化光ファイバーをリング各所に分配・配線する。現実的な範囲で伝送経路は断熱および温度安定化を施すことが求められる。

5-4. High Level Application / GUI

上位プログラムとしては KEK で長年にわたって開発されてきた SAD(Strategic Accelerator Design) [5.3]を使用する。SAD は加速器の光学設計（オプティクス計算）はもちろんのこと，各種の線形および非線形ビームシミュレーションやビーム制御にも使用できるため，TRISTAN をはじめとして多くの加速器の設計からコミッショニング，そして性能向上に大きく貢献してきた。多くのソフトウェア資産を有効活用することが可能である。

加速器制御には，軌道計算には直接関係しない制御パネルも多く必用である。例えば単に電源の On/Off 操作やステータス確認の表示などである。これらの GUI 作成には EPICS のツールキットである CSS (Control System Studio) を採用する(図 5.3) [5.4]。CSS は Java 言語をベースにした統合開発環境の１つであり，OPI 画面作成，アラーム表示・管理，保存データ参照など多くの機能を実装した開発プラットホームである。従来，これらのソフトウェア群は完全に独立のプログラムであったのに対し，CSS ではプラグイン機構によって複数プログラムを有機的に連携させることが可能となり，加速器制御の利便性向上に役立っている。最近ではコンパクト ERL の制御ツールとして多く活用されている。

このほか，スクリプト言語としてオープンソースソフトウェアである python を積極的に活用する。機器制御やデータ解析などに既に多く使用されており，既存のソフトウェア資産として活用可能である。

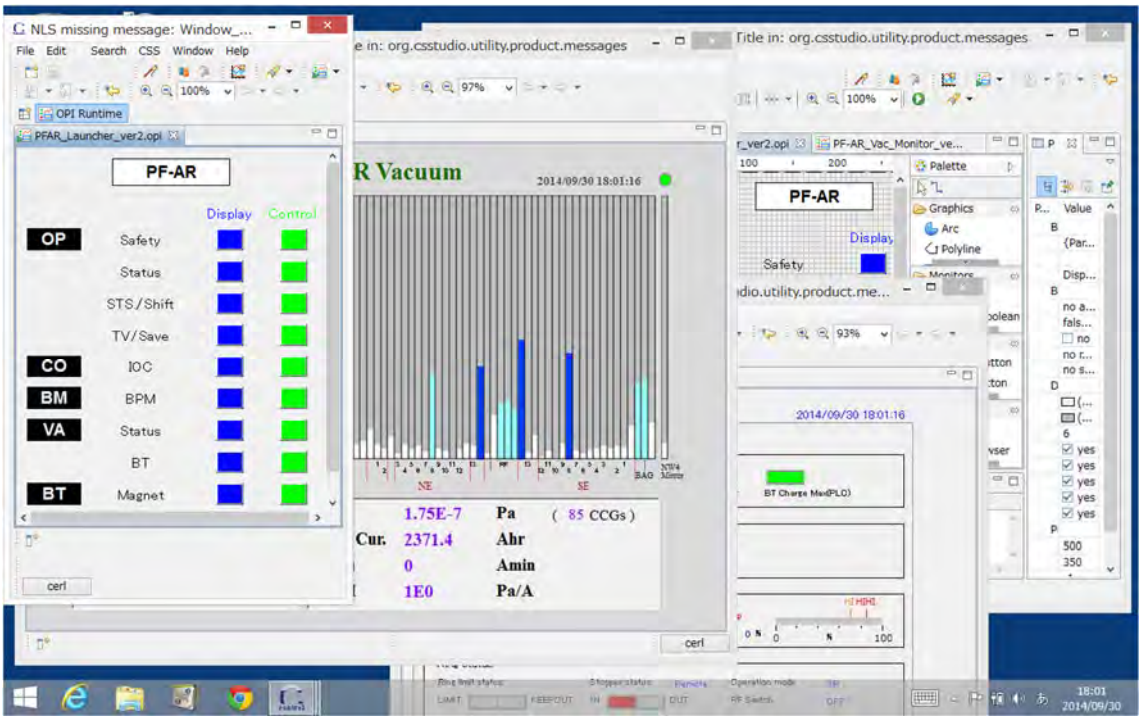

NLS missing message: Window_...
File Edit Search CSS Window Help
OPI Runtime
PFAR_Launcher_ver2.opi
PF-AR
Display Control
OP
Safety
Status
STS/Shift
TV/Save
CO
IOC
BM
BPM
VA
Status
BT
BT
Magnet
cerl
R Vacuum
2014/09/30 18:01:16
1.75E-7 Pa (85 CCGs)
Cur. 2371.4 Ahr
0 Amin
1E0 Pa/A
Palette
Graphics
Arc
Polyline
Safety
2014/09/30 18:01:16
18:01
2014/09/30

図 5.3 CSS の例

5-5. Archiver と運転ログ

加速器運転パラメータをはじめとする各種のデータを保存することは効率的な加速器立ち上げやビーム調整を実現するために特に重要である。データは出来る限り多く・高速に保存しておき，取り出し時間が短いことが理想ではあるが現実的なハードウェアの制約により調整が困難な部分でもある。

短時間（現在値～数日間を目安）の高速データ保存と取り出しには SSD をはじめとする高速ストレージを使用し，それよりも長期間のデータは通常のハードディスクをベースにしたデータ保存を行う。リレーショナルデータベースは多機能ではあるが，単に時系列のログデータを追記していくような保存形態にはあまり適しているとは言えない。しかし，多くのクライアント環境に対応していることや通信が標準化されていることなど多くのメリットもある。そこで短期間保存には RDB を使用し，長期間保存にはファイル追記型の Channel Archiver を使用する（図 5.4）。これは EPICS ソフトウェアの１つであり，Kay Kasemir 氏によって開発されている。日本では PF, Linac, J-PARC などでメインのアーカイブとして採用実績があり信頼性も十分である。

RDB Archive および Channel Archiver いずれのバックエンドも前述の CSS 環境からデータ取り出しと表示が可能である。時系列およびデータの Zoom In/Out, pan など直観的に操作可能な環境である。２つのアーカイブバックエンドを目的によって使い分けることでユーザーからみるとストレスの無いデータ取り出し環境を容易に構築可能である。

運転記録用の電子ログが恐らく必須となる。それについては，既存ソフトウェアを活用する。ZLog が主に KEKB 加速器用に開発され，現在利用されている。SuperKEKB でも使用予定であり，今後の機能追加も検討されている。

また，中央制御室の大きさについては，それほど大きい必要は無いと思われる。

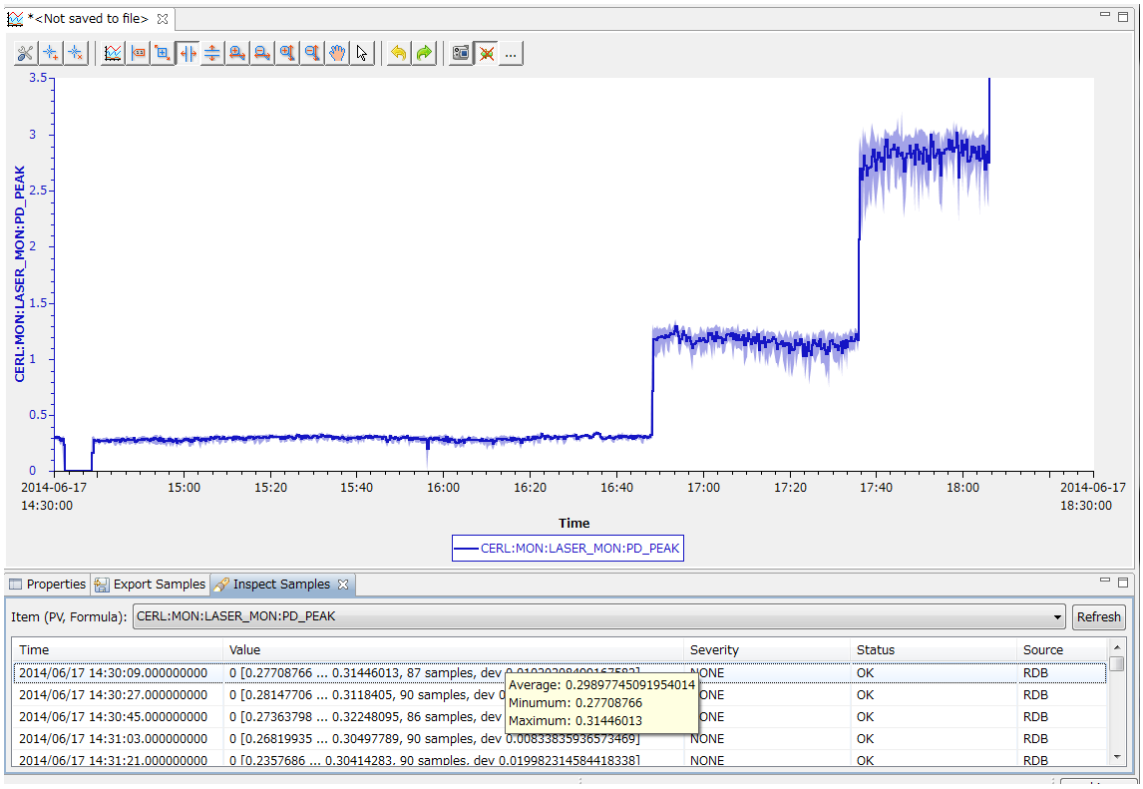


図 5.4　CSS Archiver 取り出し例

5-6. 安全系

安全管理システムは大別すると人間個人の安全管理（Personnel Protection System, PPS）とハードウェアの機器保護（Machine Protection System, MPS）とに分類できる。本節では主として PPS に関する設計指針について記載する。詳細設計や実装方法については将来の TDR（Technical Design Report）にて報告する。

PPS が担保すべきもっとも重要な項目は放射線安全管理である。このほかにも広義には高圧ガス安全，高電圧安全，レーザー安全，個別機器のインターロックなどなども含まれるが，これらについてはＫＥＫの安全ガイドブックに詳細な記述があるのでこれに準拠することが必須である。どの安全項目に関しても安全教育と意識の徹底が極めて重要である。過去に発生した事故事例に学ぶとこや，法令で定められている講習会以外にも一般安全に関する講習と，そのレビューが重要となる。Web などによるオンライントレーニングと試験も導入すべき。しかしこのような対策のみではヒューマンエラーを完全に無くすことは不可能である。むしろ事故を未然に防止する，あるいは被害を拡大させないため，人間同士のコミュニケーション：すなわち安全文化の醸成に努めることが求められる。このような意識は加速器の設計段階から運転にいたるまで，常に念頭におくべきである。そして装置やシス

テム設計を行う部署とは別に設計や各種業務の適正を確保するための体制を構築・運用することが必要である。

そのほかに，パーソナルキーを使用した入退出管理，安全装置の２重化，Fail Safe 側設定の必要性，放射線計測システムとの連携，インターロック，カメラによる監視システムなども必要だと思われる。

今後，Technical Design Report (TDR)に向け，

マニュアル整備の検討：常に最新情報に更新し周知する。運転マニュアル，安全マニュアルなど。異常時（火災，地震など含む）の対応を整備し，フローチャートを作成する。特にトラブルの拡大を防止するためには実験機器や周辺環境が異常かどうかの判断基準を明確にすることが重要である。また外部組織によるレビューにはこのような安全関係も含める必要がある。

マシンプロテクション系の検討：アボートシステムの必要性についても検討が必要であろう。従来の光源加速器では特にビームダンプが無くても問題なかったが，放射光パワーが集中する新光源では，真空や挿入光源保護の為に必要になることがあるかも知れない。

などについて検討を進める予定である。

5-7. 情報共有・プロジェクト管理

加速器建設にあたっては多くの人々が関わることになる。研究者・技術者・企業関係者などの間での情報共有は，プロジェクトを円滑に進めるうえで重要である。スペックだけ決めて企業に発注すれば出来上がるような製品とは異なり，高度な加速器コンポーネントの設計や製作はいわゆる「人月」による見積が困難な面が多く存在する。市販のプロジェクト管理ツールなどはあるが，加速器の設計と建設，コミッショニングに特化したものは存在しない。DESY で建設中の Euro-FEL では MSPE （Microsoft Project Enterprise） や EDMS（Engineering Data Management System）,の活用などもなされているが上層部と現場との乖離も指摘されている。

現実的には wiki のような情報ページと，NAS や Cloud 上の共有フォルダ，定例の報告などが重要で，打ち合わせのメモの整理，情報の交通整理に専任する人を割り当てることが望ましい。全体像をつかむことが難しい。全文検索は特に重要。

専門性が高い事項に関して，設計や検討に時間がかかり，また時間が予測できない

この分野の議論や経験の報告は PAC や ICALEPCS など国際学会でも報告されているが，いずれの組織でもできる限りプロジェクトの初期段階でツールの選定と共有，そして意思疎通をおこなうことが重要という結論が挙げられている。

また，今後はセキュリティ管理（情報セキュリティ）についても考える必要性があるかも知れない。

参考文献

[5.1] EPICS http://www.aps.anl.gov/epics/

[5.2] STARS http://stars.kek.jp/

[5.3] SAD http://acc-physics.kek.jp/SAD

[5.4] CSS http://controlsystemstudio.org/

参考資料

制御システム

＊ DESY XFEL : http://icalepcs.synchrotron.org.au/talks/moa3o02_talk.pdf

安全関連

* J-PARC 報告：https://j-parc.jp/HDAccident/images/HDAccident20141029_02-3.pdf
* ヒューマンエラー：https://staff.aist.go.jp/toru-nakata/index-j.html
* cERL 安全：http://pfconrg07.kek.jp:8082/trac/cerl/wiki/facility

プロジェクトマネージメント

* http://accelconf.web.cern.ch/AccelConf/ICALEPCS2013/papers/tucobab04.pdf
* http://accelconf.web.cern.ch/AccelConf/PAC2009/papers/th1pbi04.pdf
* http://accelconf.web.cern.ch/AccelConf/icalepcs2009/papers/tup048.pdf
* DESY XFEL：http://accelconf.web.cern.ch/AccelConf/e08/papers/tupd030.pdf

６．診断システム

6-1. はじめに

新リングのコミッショニングをスムーズに進め，安定なユーザー運転を早期に実現するためには，蓄積ビームの様々なパラメータを精密に測定し得るビーム診断機器の存在が欠かせない。特に，ビームサイズが数ミクロンに及ぶ新リングでは，ビーム軌道の位置と角度の時間変動をサブミクロン以下のオーダーまで抑制することが必須であり，その実現には高精度のビーム位置モニターと高速で動作する補正電磁石を組み合わせた軌道フィードバックシステムが重要となる。コスト削減のため，現有の PF リングや PF-AR 用の機器で新リングにおいても利用可能なものは，できる限り再利用することを検討する。また，新しく調達・開発すべきものについても，必要とされる性能や信頼性の高さに加え，導入にかかるコストや期間等も考慮して慎重に選定する。

6-2. ビーム位置モニター（BPM）

蓄積ビームの軌道を制御する上で中心となる BPM は，入射セルに 11 台，ノーマルセルに 10 台設置される予定である。1 周 20 セルから構成される蓄積リングを想定すると, BPM の総数は 201 台となる。図 6.1 にバンチ内散乱を無視した場合のノーマルセル 1 セルにおけるビームサイズの変化，及び BPM の設置予定位置を示す。これらのうち，長直線部の前後（#1 と#10）と短直線部の前後（#5 と#6）に位置する 4 台の BPM は，各挿入光源ビームラインにおける光軸の精密調整にも利用される。

BPM ダクトの断面形状についてはまだ暫定的であるが，現状では内径 24 mm の円形を予定している。このダクト内を伝わる最低次の導波管モードは TE_{11} モードであり，そのカットオフ周波数は 7.32 GHz となる。電極には予定されている蓄積ビームのバンチ長を目安に直径 4 mm のボタン型電極を採用し，放射光の直撃を避けるため上下左右から 45° 回転させた位置に 4 電極を配置する。電極の厚みと電極～ダクト間の距離は，物理的強度や工作精度，マルチパクタ放電の発生閾値等を考慮して，それぞれ 2 mm と 0.5 mm に設定する。この場合，電極とダクト間に生じる静電容量は 0.5 pF 程度となる。図 6.2 にこの BPM の模式図を示す。

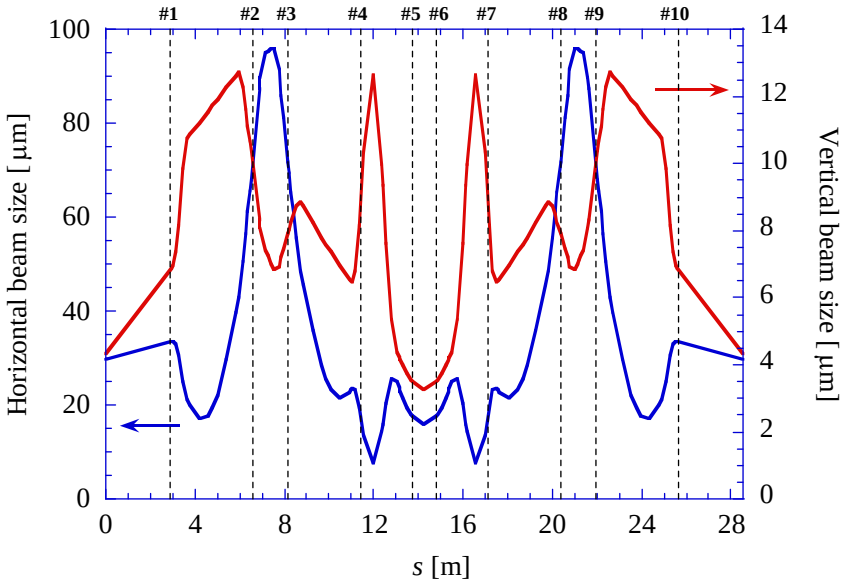


図 6.1 ビームサイズと BPM の位置関係。ノーマルセル 1 セルにおけるビームサイズを実線（青が水平・左軸，赤が鉛直・右軸），BPM の設置予定位置を縦の破線で示す。

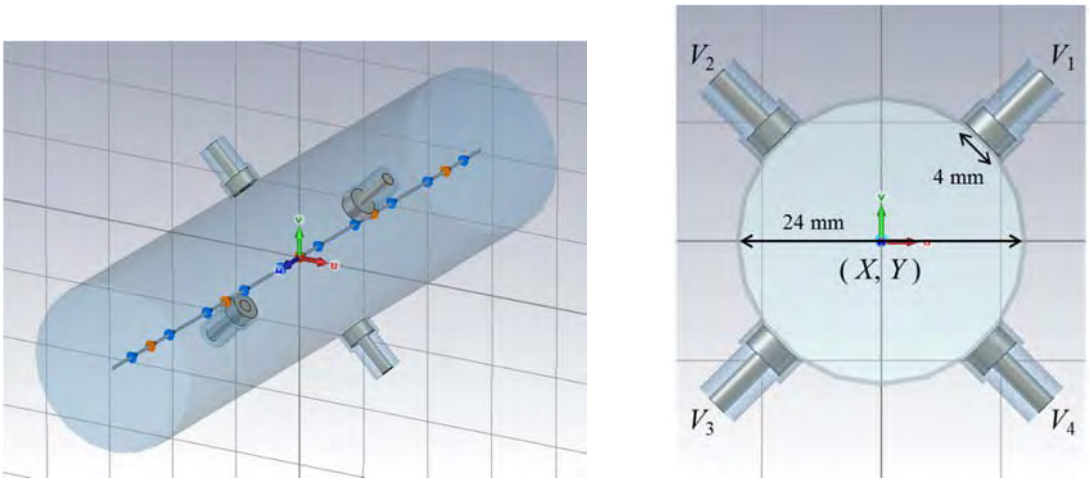


図 6.2 BPM の模式図

電荷 1 pC，バンチ長 4 mm（RMS）のガウシアンビームがダクト中心を通過したときの出力信号とその周波数スペクトルを図 6.3 に示す。ビーム位置計算に使用する 500 MHz 成分の信号レベルはおよそ-76 dBm であり，100 mA（～200 pC/bunch）の蓄積電流に対して-30 dBm 程度の出力を期待できる。これは，途中の同軸ケーブルによる減衰量を考慮しても後述する信号処理回路の入力レベルとして十分である。ただし，この計算ではフィードスルーを考慮していない。フィードスルーの材質や詳細構造は，高周波信号の通過特性や出力

信号の時間応答，ビーム結合インピーダンス等を考慮して決定される。

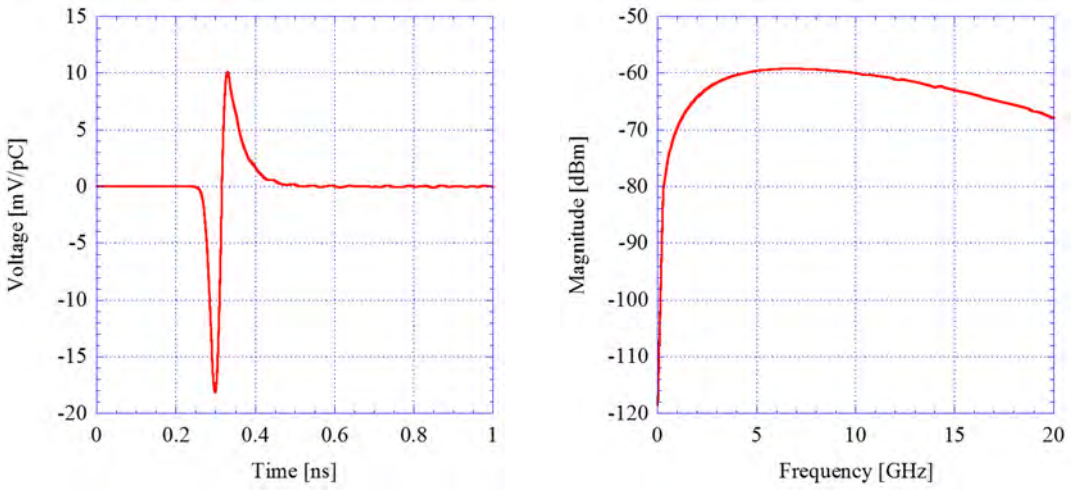


図 6.3 ボタン型電極の出力信号とそのスペクトル（CST Particle Studio[6.1]で計算）

図 6.4 (a)は，ビームの通過位置を 1 mm ずつ水平方向（鉛直方向）へずらしていったときに，各電極の出力信号の振幅 V_1, V_2, V_3, V_4（定義は図 6.2 を参照のこと）から次式で定義される U （V）をプロットしたものである。

$$U = \frac{V_1+V_4-(V_2+V_3)}{V_1+V_2+V_3+V_4},\ V = \frac{V_1+V_2-(V_3+V_4)}{V_1+V_2+V_3+V_4} \tag{6-1}$$

ダクトの中心付近におけるビームの重心位置 X, Yは，これら U, Vの値にそれぞれの感度係数 k_x, k_yをかけることによって得られる。

$$X = k_x \cdot U,\ Y = k_y \cdot V \tag{6-2}$$

図 6.2 のような電極配置の場合，その対称性から $k_x = k_y$となる。図 6.4 (a)のグラフを直線でフィットし，その傾きの逆数からこの BPM における感度係数を見積ると，およそ 8.9（単位は mm）となる。この係数を使って計算したビーム位置と実際のビーム位置を横方向面内で重ねてプロットしたものを図 6.4 (b)に示す。これらの図から，実際のビーム位置に対して U, Vが線形に応答する範囲は，ダクト中心から±3 mm 程度の範囲であることが分かる。それ以上の範囲をビームが通過した場合でもその位置を正しく評価できるよう，実際のビーム位置計算では Uと Vの多項式で表された感度曲線が使用される。

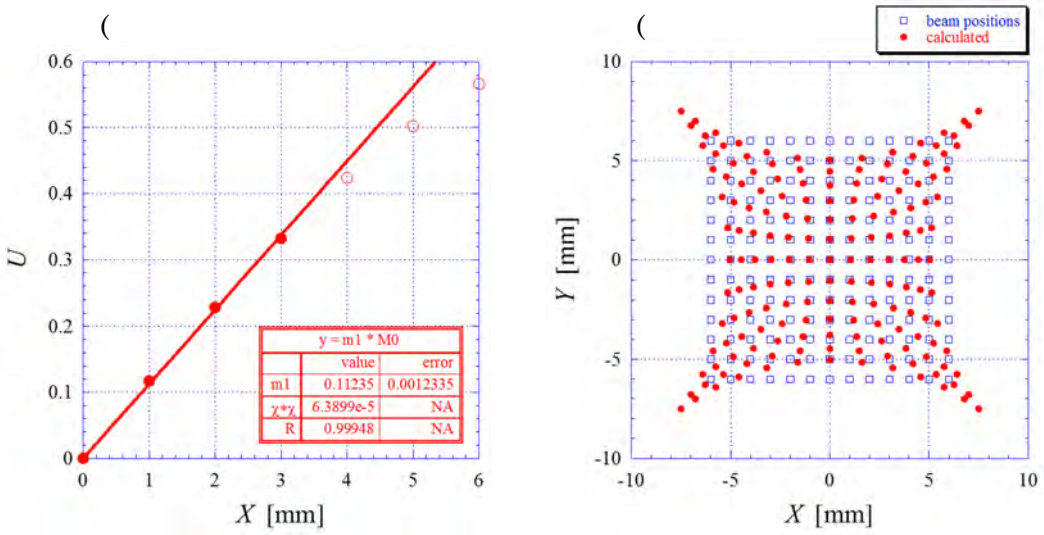


図 6.4 BPM のマッピング結果 (a)水平軸上 (b)横方向面内

BPM の位置分解能を示す例として，最小ビームサイズの 1/10，すなわち 0.4 μm のビーム変位に対する SN 比を計算してみる。このときの U（V）の変化は上式より 4.5×10^{-5} と見積られ，100 mA 蓄積時の出力変化に換算すると-117 dBm となる。一方，信号処理回路で生じる熱的なノイズ電圧 U_{noise} は次式から評価できる。

$$U_{\mathrm{noise}} = \sqrt{4k_{\mathrm{B}}TR\Delta f} \tag{6-3}$$

ここで，k_{B} はボルツマン定数，T は温度，R はインピーダンス，Δf は信号処理の帯域幅である。今，室温（298 K）で管理された 50 Ωの回路を想定し，10 kHz の帯域幅で処理した場合を考えると，ノイズフロアは-128 dBm となる。したがって，100 mA 蓄積時には 0.4 μm のビーム変位を 11 dB の SN 比で検出可能であることが分かる。定格の 500 mA では 25 dB まで改善する。

6-3. BPM 信号処理回路

現在稼働中の PF リングでは，全 65 台の BPM に対して 12 台の信号処理回路を使用しており，各電極並びに各 BPM からの信号を半導体スイッチで切り替えながら順次処理している[6.2]。複数の BPM で同じ回路を共用するこのような切り替え方式は，蓄積電流や温度に対する依存性が比較的小さいという利点を持つが，処理速度については高速なものでも数 10 Hz 程度に制限されてしまう。この処理速度は後述する軌道フィードバックの有効帯域と比例関係にあるため，より速い軌道変動まで抑制するためには各電極からの信号をできるだけ並列に処理することが求められる。そこで，新リングでは BPM と同数の信号処理

回路を導入する。

その候補としては，PF-AR や各国の蓄積リング型光源で実績のある Libera Brilliance+（Instrumentation Technologies，以下 Libera）が挙げられる[6.3]。Libera は BPM の信号処理に特化された市販のデジタル信号処理回路で，各電極から入力された 4 信号を独立した 4 系統の回路で並列に処理する。図 6.5 に Libera の外観と処理回路のブロック図を示す。アナログのフロントエンド回路は，帯域幅 10 MHz のバンドパスフィルター（BPF）と RF アンプ，可変減衰器から構成されており，BPM の生信号からビーム位置計算に使用する周波数成分を抜き出して後続の ADC へ入力するのに最適な信号レベルに調節する。このアナログ回路の前後にはクロスバースイッチが設けられており，４系統の回路を時間的にシャッフルすることで回路間の個体差を軽減している。高速の ADC（130 MS/s, 16 bit）でデジタル化された信号は，FPGA 上のデジタルダウンコンバータ（DDC）でビームの周回周波数までダウンコンバートされ，さらに後続のデジタルフィルターを通じて平均化される。このような一連の信号処理により，Libera からは ADC のサンプリング周波数（ADC rate，～117 MHz），ビームの周回周波数（TBT，～1 MHz），短時間平均（FA, 10 kHz），長時間平均（SA, 10 Hz）という 4 つの異なる帯域幅で処理されたデータが同時に出力される。ビーム位置の分解能は，入力信号レベルを-20 dBm，周回周波数を 300 kHz，感度係数を 10 mm と仮定すると，TBT データで最高 0.35 μm（RMS），FA データで 0.07 μm（RMS）となっており，いずれの場合も目標であるサブミクロン以下のオーダーを達成している。また，Libera は複数の制御システムに対応しており，新リングで採用される EPICS[6.4]からも容易に制御することができる。もし Libera を採用しない場合でも，最新のデジタル技術を駆使すれば同等の性能を持った信号処理回路を開発できると考えている。

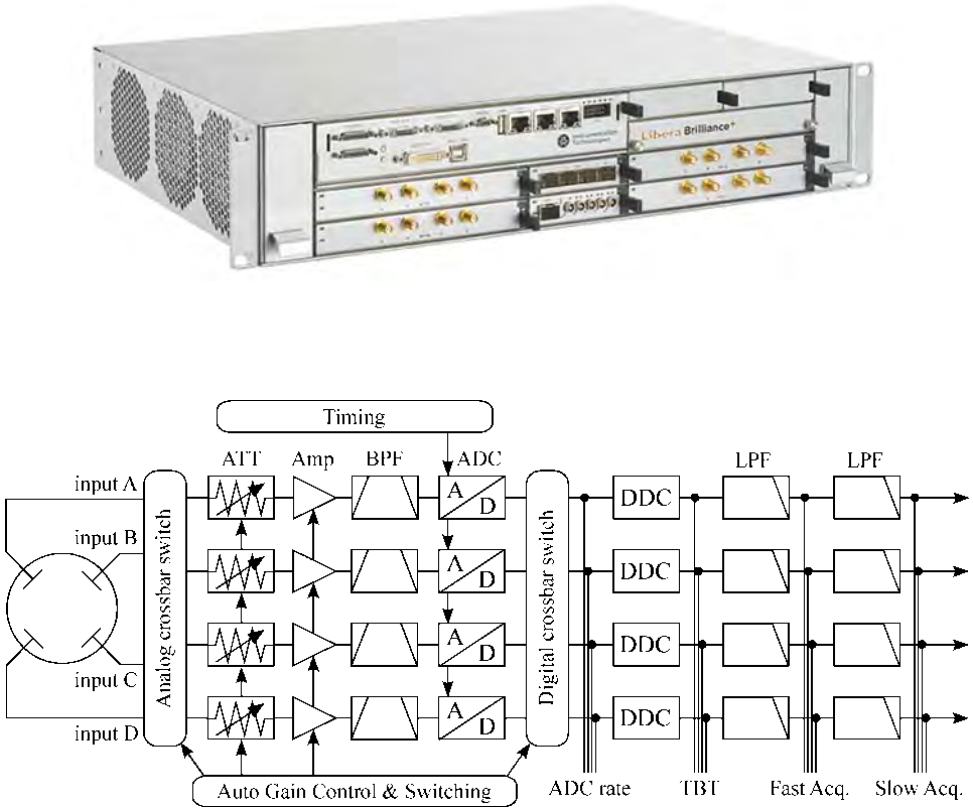


図 6.5　Libera の外観と処理回路のブロック図

6-4. 軌道フィードバック

冒頭でも述べたとおり，最小のビームサイズが数ミクロンに及ぶ新リングでは，その 10%に当たるサブミクロン以下の軌道安定度が必要である。軌道変動の周期はその要因によって異なり，自然環境に起因する比較的ゆっくりとした変動からビーム起因の速い変動まで様々である。主なものとしては

- 自然環境に由来するもの：気温変動，潮汐力，日照による建屋の歪み，風波等
- 実験環境に由来するもの：空調，冷却水，交通振動，機械振動，電源ノイズ等
- ビームに由来するもの：挿入光源ギャップ変更，入射振動，シンクロトロン振動，ベータトロン振動，ビーム不安定等

が挙げられる。特に，関東平野では地盤を形成する関東ローム層の固有振動（～3 Hz）の影響が大きく，関西地方よりも床振動の累積変位が大きくなる傾向がある。例えば，KEK のつくばサイトに建設された ERL 開発棟では，0.7 Hz～100 Hz の帯域で水平・鉛直方向とも 0.1 μm 程度の累積変位が観測されている（9.3「建物床の振動測定」参照）。これは関西に立地する SPring-8 と比較すると 1 桁程度大きな値である。このような床振動は，床を支える杭を地下の硬い岩盤まで打ち込む等すればある程度軽減できるが，つくばの地表から岩盤まではおよそ 300 m と深く，現実的ではない。そこで重要になってくるのは，この床振動を電磁石架台を通じて増幅させないことである。そのためには架台の固有振動数ができるだけ高くなるよう設計するのが有効であり，これによりビームの軌道変動に直結する電磁石の振動を最小限に抑えることができる。

以上のような床振動対策を施した上で，BPM と計算機，補正電磁石を組み合わせた高速軌道フィードバックシステムを導入する。利用できる BPM の最大数は 201 台，高速で動作する補正電磁石は 1 セル当たり 8 台として 160 台程度を予定している（水平･鉛直共用）。BPM の測定データには 10 kHz の帯域幅で測定した FA データを使用し，高速のデータリンクを介してリング 1 周に渡るグローバルなフィードバックシステムを構築する。上述した Libera には，拡張機能としてこのような複数台のグルーピングを想定した GDX（Gigabit Data eXchange）モジュールも用意されている。フィードバックの有効帯域としては，10 kHz のフィードバック周期から考えて 100 Hz～200 Hz 程度を目標とする。最近 BNL に建設された NSLS-II の例を見ると，床振動はつくばサイトとほぼ同じレベル（75 nm）でありながら，それをほぼ増幅しないよう設計された電磁石架台と Libera 相当の信号処理回路を用いた高速軌道フィードバックによって，およそ 100 Hz のフィードバック帯域を実現している[6.5]。ビームサイズに対する軌道変動は，水平方向で 1%，鉛直方向で 5%程度に抑えられており，新リングで目標としている軌道安定度を十分クリアしている。ミリ秒のオーダーより速い周期を持つビーム不安定等による変動は，別途個別バンチフィードバックを導入することで抑制する。逆に，気温の季節変化や潮汐力等による月単位のゆっくりとした変動は，定期的な光軸確認によって補正する。一方，リングの場所によって周期が異なるイ

ンコヒーレントな振動はこのようなグローバルフィードバックでは抑えらず，見かけ上のビームサイズ増大につながる。よって，将来的にはセルごとに独立したローカルフィードバックの導入を検討し，ビームラインも含めた更なる軌道安定化を目指す。

6-5. 個別バンチフィードバック

2.11「抵抗性インピーダンスの影響」で述べられたように，長尺の真空封止型アンジュレータが多数設置される新リングでは，加速空洞の高次モードだけでなくアンジュレータギャップで生じる横方向の抵抗性インピーダンスによりバンチ結合型のビーム不安定性が発生すると予測されている。また，ダクト内の真空度やリングのフィルパターンによっては，イオン捕獲現象に起因するビーム不安定も懸念される[6.6]。したがって，ビームを定格の500 mA まで安定に蓄積し，目標としている高い軌道安定度を実現するためには，バンチごとに振動を検出してそれらを個別に減衰させることができる個別バンチフィードバックの導入が不可欠である。

個別バンチフィードバックシステムは，各バンチの重心振動を独立に検出するための高速位置検出部，得られた位置情報からフィードバックに必要な信号を計算して適切なタイミングで出力するための信号処理回路，その信号を増幅して実際にビームを蹴り戻すためのキッカー部から構成される。バンチの振動検出には，上述したボタン電極型 BPM を使用する。この場合の位置計算には，BPM の感度とダクトのカットオフ周波数を考慮して 3 GHz 成分（RF 周波数の 6 倍）を用いる予定である。4 電極の生信号からこの周波数成分をコムフィルター等の BPF により抽出し，複数のハイブリッド合成器を用いて各方向のビーム変位に比例する高周波信号に変換した後，同期検波で位置情報とする。信号処理回路には，KEK-SLAC-INFN 間で共同開発された高速デジタルフィルター“iGp（Integrated Gigasample Processor)”を使用する[6.7]。この回路でフィードバックに不要な信号成分の除去や位相シフト，1 ターン遅延等の信号処理を行い，広帯域のパワーアンプで増幅後にキッカーへ伝送する。キッカーは振動検出に使用した BPM からフェイズアドバンスがおよそ 90°進んだ場所に設置する。このシステムは現在 PF リングで運用しているものとほぼ同じ構成となることから，ハードウェアだけでなく詳細設計のノウハウ等も多分に流用できる。参考のため，図 6.6 に PF リングで稼働中の横方向個別バンチフィードバックシステムのブロック図を示す。

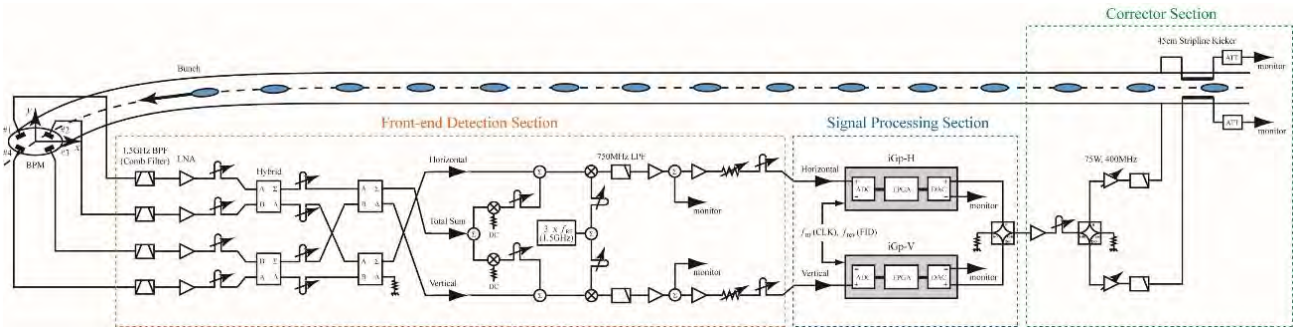


図 6.6　PF リングの横方向個別バンチフィードバックシステムのブロック図[6.8]

横方向キッカーにはストリップライン型のキッカーを採用し，水平方向用と鉛直方向用の２台を設ける予定である。予測されているバンチ結合型不安定性の成長率が最大で 1.8×10^4 s^{-1} 程度であることから，少なくとも 50 μs 以下の減衰時間を実現しなくてはならない。フィードバックによる振動の減衰時間を τ とすると，ビーム軌道上に必要なキック電圧 $V_\perp$ は

$$V_\perp = 2\,\frac{T_{\mathrm{rev}}}{\tau}\,\frac{E}{e}\,\frac{x_{\max}}{\sqrt{\beta_{\mathrm{m}}\beta_{\mathrm{k}}}} \tag{6-4}$$

で与えられる。ここで，T_{rev} はビームの周回時間，E はエネルギー，$x_{\max}$ は振動の最大振幅，β_{m} と β_{k} はそれぞれ BPM とキッカーの位置でのベータトロン関数である。ベータトロン関数をいずれも 6 m と仮定した場合，最大振幅 0.5 mm の振動を 50 μs の時定数で減衰させるためには，およそ 14.7 kV のキック電圧が必要であることが分かる。仮に最大出力が 1000 W（500 W× 2 台）の広帯域アンプを使用したとすると，キッカーに求められるシャントインピーダンスは 108 kΩとなる。一方，対向する 2 枚のストリップライン電極からなる単純な横方向キッカーの場合，シャントインピーダンス $R_\perp$ は解析的に次式で表される。

$$R_\perp = 2Z_0\left(\frac{2g_\perp L}{d}\right)^2\left(\frac{\sin kL}{kL}\right)^2,\quad g_\perp = \tanh\left(\frac{\pi w}{2d}\right) \tag{6-5}$$

ここで，Z_0 はストリップライン電極の特性インピーダンス，L は進行方向の長さ，w は横方向の幅，d は対向電極までの距離，k は入力する高周波電力の波数である。今，幅 20 mm の電極をダクト中心から 10 mm の位置に配置したキッカーを想定すると（見込み角 90°），シャントインピーダンスの周波数特性は図 6.7 のようになる。この図から分かるように，キッカーのシャントインピーダンスは電極が長い程大きくなるが，帯域幅は狭くなる。個々のバンチを異なる極性と強さで蹴るためには最大 250 MHz の帯域幅が必要であり，電極長はバンチの間隔，すなわち 60 cm を超えてはならない。これらの条件を基に 100 MHz 以下の

帯域で 100 kΩ以上のシャントインピーダンスが得られることを目標にすると，図 6.7 より電極長は 40 cm 程度に選ぶべきことが分かる。各電極とダクト間の距離は，反射波を抑えるため特性インピーダンスが 50 Ωになるよう設定する。そうするとキッカーダクトは通常のダクトより内径が大きくなると考えられるので，キッカーダクトの両端にはそれらを滑らかに繋ぐテーパー管を設置する。テーパー部分の長さはビーム結合インピーダンスやロスファクタを考慮して決定する。

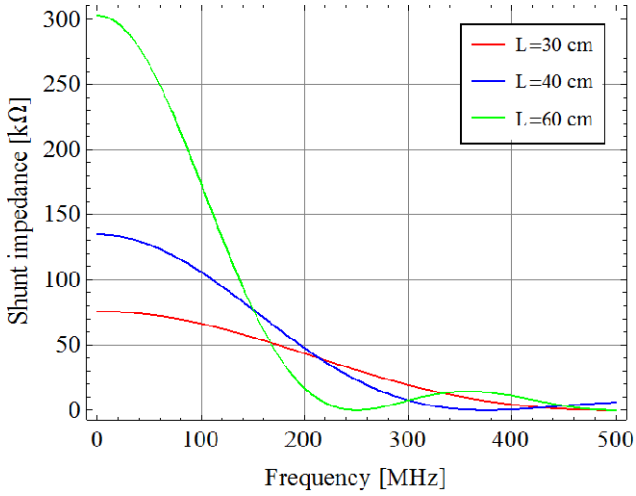


図 6.7　ストリップラインキッカーのシャントインピーダンスの周波数特性

ビーム進行方向のフィードバックシステムも横方向と同様の構成となるが，キッカーは DAFNE タイプの空洞型キッカーとなり，QPSK 変調器を用いてビームとの同期を図る。空洞の中心周波数は，ビームローディングを避けるため 1.125 GHz（RF 周波数の 2.25 倍）とし，帯域幅は 250 MHz とする。図 6.8 に PF リング用進行方向個別バンチフィードバックシステムのブロック図と空洞型キッカーの構造図を示す。

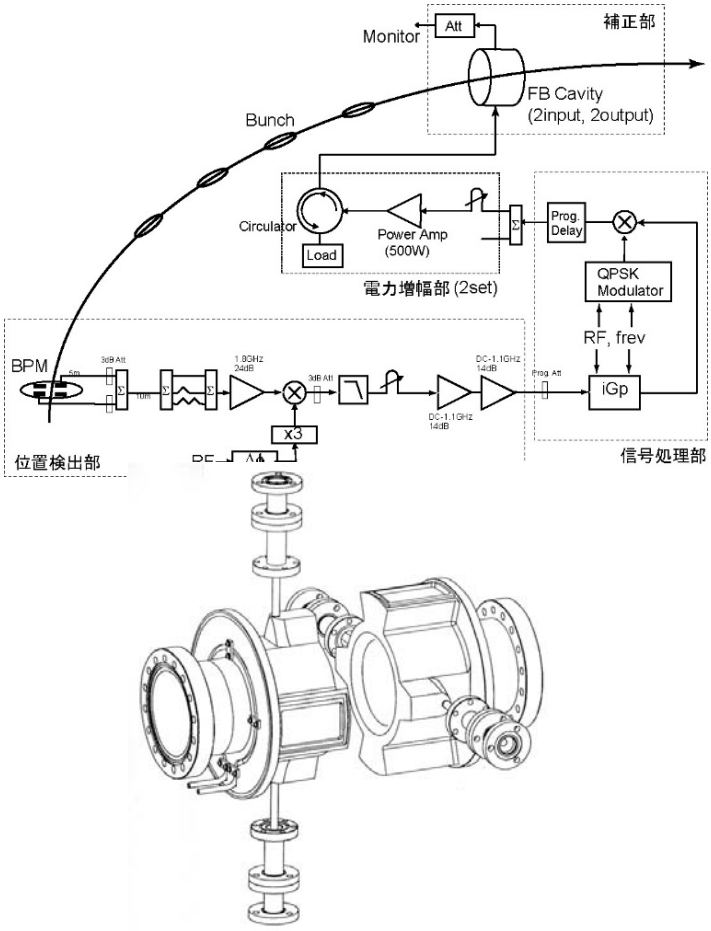


図 6.8　PF リングの進行方向個別バンチフィードバックシステムのブロック図と空洞型キッカーの構造図[6.9]

6-6. 放射光モニター

高いビーム安定度を求められる新リングにおいて，ビームを非破壊で精密に観測できる放射光モニターは強力なツールとなる。偏向電磁石を光源とするビームラインのうち，少なくとも２本をビーム診断に利用する。ひとつは可視光用で，水冷式のベリリウムミラーにより放射光に含まれる可視光成分を大気中へ取り出し，専用の暗室へと導く。光の転送ラインで使用する真空窓や中継ミラーには，後述する放射光干渉計の測定限界を下げるため大口径かつ高面精度のものを使用し，途中の光路は気密パイプで覆うことにより気流の影響を抑える。適切に温度管理した暗室内では複数のビームスプリッターを用いて光を分割し，主に次の測定機器へ分配して利用する。

（１） 可視光イメージングによるビームプロファイルモニター
（２） 放射光干渉計
（３） ストリークカメラ
（４） 高速ゲートカメラ

（１）は長焦点の望遠レンズ等を用いて放射光を高感度 CCD カメラの受光面に結像し，ビームの横方向断面における２次元プロファイルを光学的に観測するものである。光の回折効果によりその空間分解能は 50 μm 程度に制限されるが，ビーム強度やビームサイズの変動をリアルタイムで視覚的に確認できるため，新リングにおいても蓄積ビームの常時モニターとして有用である。ビームサイズの絶対値測定には，（２）の放射光干渉計を使用する[6.10]。これはダブルスリットを通過した光が作る干渉縞のコントラストから光源点の大きさを評価するもので，上記のような結像法の測定限界よりも小さなビームサイズまで測定可能である。ただし，新リングで予定されている数 μm のビームサイズを十分な分解能で測定するためには，干渉計を構成する光学素子の分散をできるだけ小さく抑えなければならない。そこで，新リングでは従来の屈折光学系ではなく，分散の影響を受けない反射光学系による干渉計を採用する。図 6.9 にそのレイアウトを示す。このような反射式干渉計は PF リングや KEK-ATF のダンピングリング，Australian Synchrotron（ASLS）等で実績があり，特に ASLS ではダブルスリットへの入射光量を意図的にアンバランスにすることで CCD ノイズの影響を軽減し，3 μm 以下のビームサイズまで測定できる可能性を示した[6.11]。計測すべきビームサイズが非常に小さいため，ベリリウムミラー本体や転送ライン，暗室の機械的振動を極力避ける設計も重要となる。真空窓の直後には，ベリリウムミラーの熱変形の影響を校正するためのハルトマンスクリーンを設置する。

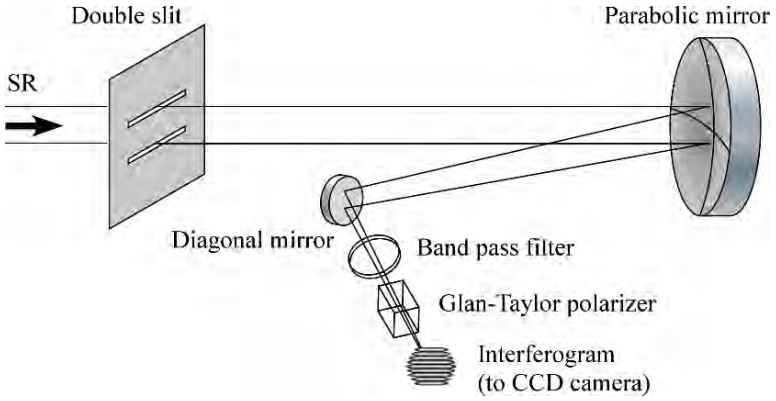


図 6.9 ハーシェル式反射光学系を用いた放射光干渉計(鉛直方向)

蓄積ビームのバンチ長は(３)のストリークカメラで測定する(浜松ホトニクス, C5680)。バンチトレインに沿ったバンチ長の時間変化も観測できるよう，ビームの繰り返し周波数に同期するシンクロスキャンユニット（M5675）と水平掃引を可能にする２時間軸拡張ユニット（M5679）を組み合わせて使用する。新リングと PF リングでは RF 周波数がほぼ同じであるため，現在 PF リングで使用しているものをそのまま流用できる。最速の掃引レンジにおける時間分解能は 2 ps 以下（FWHM）と現行の汎用モデル（C10910，時間分解能：1 ps 以下）よりは劣るが，新リングでのバンチ長は高調波空洞を使用しない場合でも 24 ps 程度（FWHM）であるので十分な性能と言える。色収差による時間分解能の悪化を避けるため，放射光を光電面に結像する際の入力光学系にはオフナー式の反射光学系を使用する[6.12]。（４）は高感度のイメージインテンシファイア（浜松ホトニクス，C4078-01，以下 I.I.）を備えた CCD カメラで，I.I.を構成する光電面と MCP の間に負極性のパルス電圧を印加することで最短 3 ns の高速ゲート動作が可能である。ビーム不安定性や入射に伴うビーム振動の様子をバンチトレインの任意の場所で観測するのに使用する。また，入射ビームからの微弱な放射光でもターン毎に捉えることができるので，入射機器の最適化やコミッショニング初期のビーム調整にも有用である[6.13, 6.14]。なお，最初のベリリウムミラーを透過した X 線はビームライン下流の実験ハッチ内へ導き，アバランシェ・フォトダイオード（APD）を用いたバンチ純度モニターに利用する[6.15]。

もうひとつの診断用ビームラインには，X 線領域の放射光を利用したビームプロファイルモニターを設置する。X 線は可視光よりも回折限界が小さいため，より高分解能なビームプロファイルを得ることができる。この波長領域での結像素子としてはピンホールや屈折レンズ等いくつか考えられるが，現状ではフレネルゾーンプレート（FZP）を第一候補として考えている。FZP とは X 線を透過させる間隙輪帯とブロックする物質輪帯とを交互に同心円状に並べた回折光学素子で，間隙輪帯を透過した X 線が焦点面で互いに同位相で干渉するよう作られているため結像が可能となる。薄いベリリウム窓を介してビームラインに

取り出された X 線は，回折の波長依存性による色収差の影響を抑えるため結晶分光器で単色化されてから FZP に照射される。1 枚の FZP による縮小光学系では検出器側に過度の空間分解能が要求されるため，２枚の FZP を用いて数 10 倍程度の倍率を持つ拡大光学系を構築する。焦点面に X 線 CCD カメラを設置すれば，2 次元の電子ビームプロファイルをほぼリアルタイムで観測できる。この画像を解析して得られる横方向のビームサイズと傾きは，蓄積ビームのエミッタンスとその結合比の常時モニター等に利用される。大気による X 線の吸収を抑えるため，ベリリウム窓以降のビームラインは 10^{-3} Pa 程度の高真空に保つ必要がある。また，可視光ラインと同様，各光学機器を乗せる架台の振動対策やアライメントが重要となる。KEK-ATF のダンピングリングでは，上記の構成でサブミクロンレベルの空間分解能を持つ X 線ビームプロファイルモニターを開発し，6 μm 以下のビームサイズ測定に成功している[6.16]。

6-7. その他のモニター

各ビームラインの基幹チャンネルとその下流部には 4 ブレードタイプの光位置モニターを 1 台ずつ設置し，光軸の安定化やインターロックに利用する。将来的には高速軌道フィードバックへの利用も検討する。蓄積ビームのベータトロンチューンは，PF リングでも採用しているスペクトラムアナライザのトラッキングジェネレータを用いた方法の他，BPM の TBT データや個別バンチフィードバックで副次的に得られるビームスペクトルを利用して測定する。蓄積ビームのフィルパターンは壁電流モニター，あるいは高速電流トランス（FCT）を用いて測定する。BPM の 4 電極の和信号よりもビーム位置やバンチ長に対する依存性が小さく，より正確にバンチ電荷に比例した大きさの信号を得ることができる。得られた個々のバンチ電荷の情報は入射バケット選択システムに送られ，マルチバンチフィルの平滑化やハイブリッドフィルの維持に利用される[6.17]。蓄積電流の測定には，PF リングをはじめ多くの加速器で実績のある Bergoz 社製の直流電流トランス（DCCT）を用いる[6.18]。FCT 及び DCCT の心臓部であるトロイダルコアは，ビームダクトに設けたセラミックブレークの近くに設置し，RF ノイズや周辺磁場をシールドするための専用筐体で覆う必要がある。ビームロスの検出には光ファイバーを用いた高速ロスモニターを採用する[6.19]。これは大口径の光ファイバーをリング全周のビームダクトに沿って敷設しておき，ビームロスで生じた高エネルギーの２次電子がファイバー内を通過したときに放出されるチェレンコフ光をファイバー端に取り付けた光電子増倍管で検出するものである。ビームの損失量をリアルタイムで把握できるだけでなく，信号の時間構造を解析すればおおよそのロスポイントも判断できる。補助的なロスモニターとして，市販の PIN フォトダイオードの利用も考えている。これらは PF リングやコンパクト ERL の運転で十分な使用実績がある。

参考文献

[6.1] https://www.cst.com/Products/CSTPS

[6.2] T. Obina et al., “Global Feedback System for Photon Factory Storage Ring”, in Proceedings of EPAC98, Stockholm, 1998, pp. 1726.

[6.3] http://www.i-tech.si/accelerators-instrumentation/libera-brilliance-plus

[6.4] http://www.aps.anl.gov/epics

[6.5] W.X. Cheng et al., “Characterization of NSLS2 Storage Ring Beam Orbit Stability”, in Proceedings of IBIC2015, Melbourne, 2015, THALA02.

[6.6] W.X. Cheng, “NSLS2 Transverse Feedback System Design”, in Proceedings of BIW10, Santa Fe, 2010, pp. 473.

[6.7] http://www.dimtel.com/products/igp

[6.8] R. Takai et al., “Bunch by Bunch Feedback System using iGp at KEK-PF”, in Proceedings of DIPAC09, Basel, 2009, pp. 59.

[6.9] T. Obina et al., “Suppression of Longitudinal Coupled-bunch Instabilities at the KEK-PF”, in Proceedings of BIW08, Tahoe City, 2008, pp. 120.

[6.10] T. Mitsuhashi, “Spatial Coherency of the Synchrotron Radiation at the Visible Light Region and its Application for the Electron Beam Profile Measurement”, in Proceedings of PAC97, Vancouver, 1997, pp. 766.

[6.11] M.J. Boland et al., “Intensity Imbalance Optical Interferometer Beam Size Monitor”, in Proceedings of IBIC2012, Tsukuba, 2012, pp. 566.

[6.12] T. Obina and T. Mitsuhashi, “Measurement of Bunch Lengthening Effects Using a Streak Camera with Reflective Optics”, in Proceedings of DIPAC07, Venice, 2007, pp. 256.

[6.13] A. Ueda et al., “Investigation of Injection for the Low-emittance Lattice with New 6.25Ω Kicker Magnet System at the Photon Factory”, in Proceedings of EPAC04, Lucerne, 2004, pp. 710.

[6.14] A. Ueda and T. Mitsuhashi, “Optimization of Kicker Pulse Bump by Using a SR Monitor at the Photon Factory”, in Proceedings of PAC05, Knoxville, 2005, pp. 2717.

[6.15] S. Kishimoto, “An Avalanche Photodiode Detector for X-ray Timing Measurements”, Nucl. Instr. and Meth. A309, (1991) 603.

[6.16] H. Sakai et al., “Improvement of Fresnel Zone Plate Beam-profile Monitor and Application to Ultralow Emittance Beam Profile Measurements”, Phys. Rev. ST Accel. Beams 10, (2007) 042801.

[6.17] R. Takai et al., “Test of Hybrid Fill Mode at the Photon Factory Storage Ring”, in Proceedings of IPAC10, Kyoto, 2010, pp. 2564.

[6.18] http://www.bergoz.com

[6.19] T. Obina and Y. Yano, “Optical Fiber Based Beam Loss Monitor for Electron Storage Ring”, in Proceedings of IBIC2013, Oxford, 2013, pp. 638.

７．挿入光源

7-1. はじめに

KEK 放射光は，世界最先端の光源性能を達成可能である。Damping Wiggler（DW）等を設置していない Bare Lattice において, 水平方向の自然エミッタンスは 0.13　nm·rad に達する極低エミッタンスリングである。設計蓄積電流値 500 mA においては Intra Beam Scattering（IBS）の効果で電子ビームの水平方向エミッタンスは 0.31 nm·rad に増大するものの，将来的には，高調波加速空洞を用いることでバンチ長を伸ばして IBS を抑制し，自然エミッタンスに近づける計画である。このような超低エミッタンスリングを用いることで，ナノメートル領域の空間分解能を実現する最先端軟 X 線光源を実現することが可能となる。PF リングに比べて 2 桁程度高い超高分解能により不均質系のサイエンスといった，これまで PF リングでは探索できなかった領域への展開が期待される。また，本計画がもたらす PF リングに比べて 2 桁から 3 桁程度高い輝度の光は，すでに実施されている多岐にわたる放射光利用実験を大幅に進展させる。

薬学や機能生物学，物質材料分野など幅広い分野において，1 マイクロメートル以下のナノメートル領域の微細構造（ナノ構造）が持つ機能に注目が集まっている。放射光をナノ構造に対するプローブとして用いるには，放射光をそのような空間サイズへと集光（ナノフォーカス），あるいは空間制限する必要がある。回折限界を考慮すると光子エネルギー数 eV から数 keV（波長 1 nm から 100 nm）の XUV 領域以上の高エネルギー光子が必要となる[7.1]。集光あるいは空間制限によって光は重なり合い，光強度の損失やノイズ強度に対する信号強度比の低下を引き起こし，測定を困難にする。そのため，空間分解能の向上には放射光を構成する光子の空間位相（光の伝搬方向に垂直方向の位相）を揃えることが重要となる。

放射光はその一部の光子の位相が揃った部分的なコヒーレント光である。光の伝搬方向に垂直な方向（横方向）にコヒーレントな光（回折限界光）の割合を表す指標として coherent fraction という量が使われる。Coherent fraction は，

$$\varsigma = (\sigma_r \sigma_{r'})^2 / (\Sigma_x \Sigma_y \Sigma_{x'} \Sigma_{y'}) \tag{7-1}$$

と表される。ここで，回折限界にある波長λの光の伝搬方向に垂直な方向の大きさをσ_r，角度拡がりを$\sigma_{r'}$とし，電子ビームの大きさ$\sigma_{x,y}$および角度発散$\sigma_{x',y'}$による拡がりを考慮した実効的な放射光の大きさを$\Sigma_{x,y}$，角度拡がりを$\Sigma_{x',y'}$とする。すなわち，式 7-1 は光の伝搬方向に垂直な位置および角度の 4 次元空間における，回折限界にある光が占める空間領域（自然エミッタンス）と，電子ビームの大きさおよび角度拡がりを考慮した放射光が占める空間領域（実効エミッタンス）との比である。

長さLのアンジュレータが生成する放射光ではσ_rと$\sigma_{r'}$は，

$$\sigma_r = \sqrt{2\lambda L} / (4\pi)$$

$$\sigma_{r'} = \sqrt{\lambda/2L} \tag{7-2}$$

で与えられる[7.1, 7.2]。なお，Lは磁石周期長λ_uと周期数N_uを使って，$L = N_u\lambda_u$となる。また，電子ビームサイズ$\sigma_{x,y}$および角度拡がり$\sigma_{x',y'}$は，

$$\sigma_{x,y} = \sqrt{\beta_{x,y}\varepsilon_{x,y} + \left(\eta_{x,y}\frac{o_E}{E}\right)^2}$$

$$\sigma_{x',y'} = \sqrt{\left(1+\alpha_{x,y}^2\right)\varepsilon_{x,y}/\beta_{x,y} + \left(\eta'_{x,y}\frac{o_E}{E}\right)^2} \tag{7-3}$$

となり，実効的な放射光のサイズ$\Sigma_{x,y}$および角度拡がり$\Sigma_{x',y'}$は，それぞれ，

$$\Sigma_{x,y} = \sqrt{\sigma_{x,y}^2 + \sigma_r^2}$$

$$\Sigma_{x',y'} = \sqrt{\sigma_{x',y'}^2 + \sigma_{r'}^2} \tag{7-4}$$

となる。ここで，$\varepsilon_{x,y}$は電子ビームの水平・垂直方向のエミッタンス，$\alpha_{x,y}$および$\beta_{x,y}$は水平・垂直方向の各ツイスパラメータ，ηは分散関数，η'は分散関数の軌道長に対する微分係数，o_E/Eは電子ビームのエネルギー拡がりである。

アンジュレータ放射の，周波数ωを中心とした 0.1%の周波数域に含まれる単位時間当たりの光子数を全光束と呼び，これを$\mathfrak{F}$[photons/s/0.1%b.w.]と書けば，電子ビームのサイズおよび角度拡がりを考慮した実効光束角密度は，式 7-4 の実効光源角度拡がり$\Sigma_{x'}$[mrad]および$\Sigma_{y'}$[mrad]を用いて，

$$\mathfrak{D}[\mathrm{photons/s/mrad^2/0.1\%b.w.}] = \frac{\mathfrak{F}}{2\pi\Sigma_{x'}\Sigma_{y'}} \tag{7-5}$$

となる。実効輝度は，実効光源サイズΣ_x[mm]およびΣ_y[mm]を用いて，

$$\mathfrak{B}[\mathrm{photons/s/mrad^2/mm^2/0.1\%b.w.}] = \frac{\mathfrak{D}}{2\pi\Sigma_x\Sigma_y} = \frac{\mathfrak{F}}{4\pi^2\Sigma_x\Sigma_y\Sigma_{x'}\Sigma_{y'}} \tag{7-6}$$

と書ける。

本計画は長さ 5.6 m の長直線部と長さ 1.2 m の短直線部をそれぞれ 1 箇所ずつ有する区画を 1 セルとして，20 セルで構成する。そのうち 1 セルは入射点に使用され，他の 19 箇所のノーマルセルとは異なる光学関数を有する。本章における計算では，ノーマルセルの長直線部と短直線部における光学関数を用いる。表 7.1 に，偏向部（BPI6）および短直線部，長直線部それぞれの中心位置におけるビームパラメータを示す。

表 7.1　本計画のビームパラメータ。IBS を考慮した場合および無視した場合の，偏向部(BPI6)，短直線部，長直線部それぞれの中心位置でのビームパラメータ。

(v03_68)	IBS あり			IBS なし		
	偏向部	短直線部	長直線部	偏向部	短直線部	長直線部
電子エネルギー E [GeV]	3			3		
蓄積電流 I [mA]	500			500		
エネルギー拡がり σ_E/E	7.9E-04			6.4E-04		
水平サイズ σ_x [μm]	12	21	44	7.8	16	30
水平角度発散 σ'_x[μrad]	29	22	8.1	19	14	5.3
垂直サイズ σ_y [μm]	13	3.3	4.4	13	3.3	4.3
垂直角度発散 σ'_y [μrad]	0.8	2.5	1.9	0.8	2.4	1.8

表 7.2 には表 7.1 のパラメータに合わせて想定した代表的な光源パラメータを示す。UL12N416 および MPW を除いて，広範なスペクトル領域をカバーすることを念頭にパラメータを選んだ標準的なパラメータである。直線部の長さからそれぞれ 0.6 m を差し引いた長さ（長直線部 5 m，短直線部 0.6 m）を磁石列長に使えるものと仮定して周期数を決定している。各挿入光源の最大磁場は，Pure Permanent Magnet 型の磁石列を最小 Gap 値で配置した場合に得られる値である。なお，表 7.2 に示した各光源パラメータは，加速空洞の RF パワーに対する負荷や，ビームライン等への熱負荷，ビームラインの設計，放射光の利用方法などの検討を経て今後さらに最適化を行う。

図 7.1 に，PF リングで稼働中のアンジュレータ U13，PF-AR リングの NW12，SPring-8（NA-mode）の標準アンジュレータ（λ_u=32 mm，N_u=140，L=4.48 m）[7.3]，本計画（実線は IBS の効果を考慮したもの，破線は IBS の効果を無視したもの）の coherent fraction を式 7-1 より光エネルギーに対して計算して比較した結果を示す。本計画において利用を想定する 10 eV から 100 keV 程度の光子エネルギー範囲全般にわたって，PF および PF-AR, SPring-8 の標準アンジュレータいずれよりも高いことがわかる。光子エネルギー1 keV の軟 X 線に注目して現在 KEK で稼働中の PF および PF-AR と比べると，PF では 0.01%オーダー，PF-AR では 0.0001%オーダーであるのに対して，本計画では短直線部で 10%前後，長直線部で 10%を優に超えるなど，おおよそ 3 桁から 5 桁向上することがわかる。このことから，本計画が PF リングに比べて桁違いに高い輝度による放射光プローブが利用可能であることがわかる。現在 PF リングにおいて軟 X 線領域のわずかな coherent fraction を利用したナノ構造に対する先進的な分析実験が試みられている。しかし，輝度の低い光から必要なコヒーレンスを得るには光強度の大部分を切り捨てなければならず，可能な分析手法は非常に限られている。KEK 放射光の高輝度光により，これらの先進的な実験の飛躍的な高分解能化・高速化，測定次元の追加といった発展がもたらされると期待される。

表 7.2　本計画の代表的な光源パラメータ。

	BM	MPW	UL12N 416	UL20N 30 (短直線部)	UL20N 250	UL48N 104	UL160 N31
周期長 λ_u [mm]		120	12	20	20	48	160
周期数 N_u		42	416	30	250	104	31
磁石列長 L [m]		5.0	5.0	0.6	5.0	5.0	5.0
最小 Gap [mm]		12	4	4	4	12	12
(最大)磁場 $B_{(max)}$ [T]	0.68	1.80	0.8	1.13	1.13	0.9	0.5
最大 K 値 K_{max}		20.2	0.9	2.1	2.1	4.0	7.5
臨界エネルギー E_{pc} [keV]	4.1	10.8					
1 次エネルギー $E_{p1}(K_{max})$ [keV]			5.1	1.3	1.3	0.2	0.02
出力 [kW]	0.039 [kW/mrad]	46.5	9.1	2.2	18.2	11.5	3.5

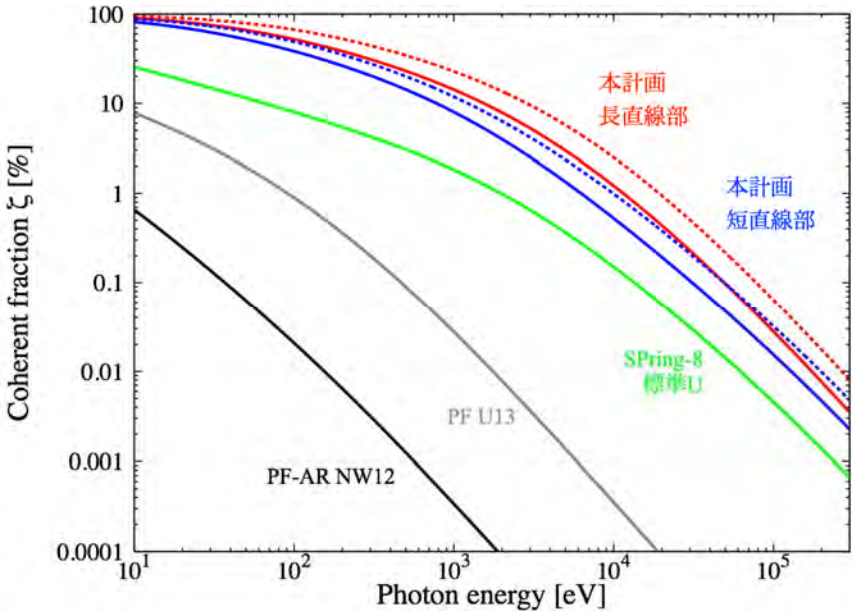


図 7.1　PF リングと既存施設との coherent fraction の比較。PF リング U13（灰色実線），PF-AR リング NW12（黒色実線），SPring-8 標準アンジュレータ（磁石列長 4.48 m）（緑色実線），本計画（実線(破線)は IBS の効果を考慮(無視)した場合）の長直線部に設置した磁石列長 5 m の挿入光源（赤色），短直線部に設置した 0.6 m の挿入光源（青色）それぞれの光子エネルギーに対する coherent fraction。

図 7.2 に，本計画（DW を稼働させない Bare Lattice）で IBS の効果を考慮した場合（赤・青色実線）と無視した場合（赤・青色破線）と，最新の 3GeV リングである NSLS-II（4 台の DW を稼動時）のアンジュレータ EPU49（L~3.8 m）[7.4]，MAX IV（3 台の DW を稼動時）に磁石列長 4 m を仮定したアンジュレータ[7.5]，それぞれに対して式 7-1 より計算した coherent fraction の比較を示す。合わせて示した SPring-8 の標準アンジュレータ（磁石周期長 32 mm，周期数 140，磁石列長 4.48 m）の曲線と比べ，図示した光子エネルギー範囲において 3GeV リングの放射光がより高い coherent fraction を有することがわかる。

3GeV リングで比べると，2 keV 程度を境に低エネルギー側では NSLS-II が，高エネルギー側では MAX IV がわずかに高い。NSLS-II および MAX IV と同程度の強度が，IBS の効果を抑えることで，本計画の短直線部にわずか 0.6 m の磁石列長の挿入光源を設置することで得られることがわかる。また，長直線部においては蓄積ビーム電流 500 mA において想定される IBS の効果を考慮しても同程度に得られ，さらに，IBS を抑制することでさらに高い coherent fraction を実現することができることがわかる。

以上の coherent fraction の議論においては一般的な coherent fraction の式 7-1 を用いた。すなわち，エネルギー拡がりによる coherent fraction の低下の効果を考慮していない。後述する光スペクトルの計算では，エネルギー拡がりの効果を考慮しているが，例えば X 線アンジュレータの輝度スペクトルを比べると，光子エネルギー10 keV 程度以上では SPring-

8 で本計画よりも高い輝度が得られる。本節での coherent fraction に関する議論は，10 keV 程度以下の光子エネルギー領域における一般的なものであることを注記する。

次節以降，まず初めに，広範なスペクトル領域をカバーすることを念頭に置いた挿入光源の光源性能を，硬 X 線領域，軟 X 線領域，VUV 領域，偏向部およびウィグラーに関して述べる。続いて，本計画と他施設との光源性能の比較を行う。そして，さらに高い光源性能を得る可能性に関して言及する。なお，全光束および輝度に関する計算は全て水平偏光に対するものである。

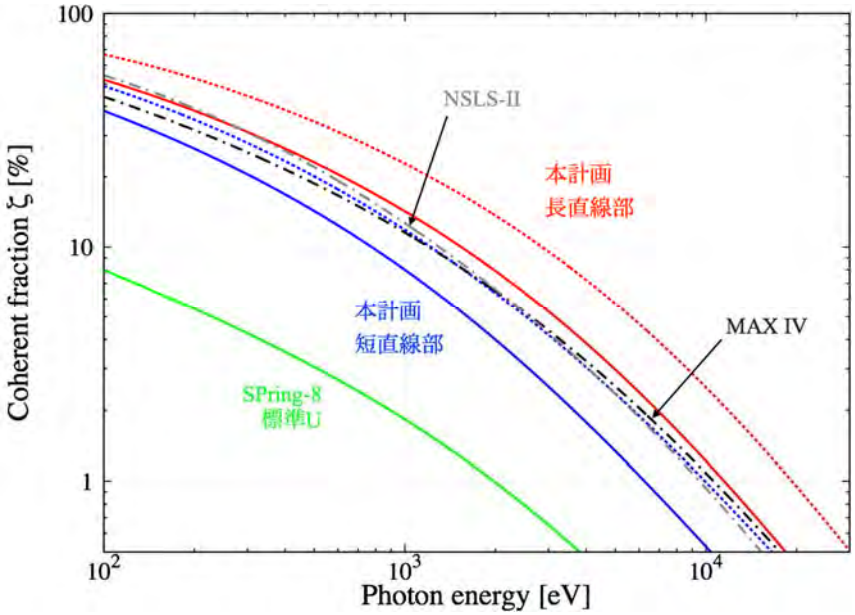


図 7.2　本計画と最新の 3GeV リングとの coherent fraction の比較。SPring-8 標準アンジュレータ（磁石列長 4.48 m）（緑色実線），本計画（実線(破線)は IBS の効果を考慮(無視)した場合）に長直線部に設置した磁石列長 5 m の挿入光源（赤色），短直線部に設置した 0.6 m の挿入光源（青色），MAX IV（DW4 台稼動時）の 4m 挿入光源（黒色一点鎖線），NSLS-II（DW3 台稼働時）EPU49（灰色一点鎖線），それぞれの光子エネルギーに対する coherent fraction。

7-2. X 線アンジュレータ（UL20N30，UL20N250）

本計画の電子ビームサイズは長直線部，短直線部のいずれにおいても小さく，X 線光源用の真空封止アンジュレータはどちらの直線部に設置しても有効な光源となりえる。真空封止アンジュレータは KEK の PF-AR で初めて開発されたものである[7.6]。熱負荷や電子ビーム寿命，電子蓄積リングのインピーダンスへの影響などに関して，今後も検討を進める必要があるが，ダイナミックアパーチャに影響与えない挿入光源の最小 Gap 値は 4 mm 程度と見積もられる。

図 7.3(a)に，本計画の 1.2m 短直線部に磁石列長 0.6 m の X 線挿入光源 UL20N30 および，5.6m 長直線部に磁石列長 5 m の UL20N250 をそれぞれ設置した場合に得られるそれぞれの 1~9 次光までの最大値をつなぎわせた全光束スペクトルを，PF リングで稼働中の SGU01（λ_u=12 mm，N_u=39，L=0.5 m）[7.7]の 1 次光，SGU03（λ_u=18 mm，N_u=26，L=0.5 m）[7.7]の 3 次光，SGU15（λ_u=17.6 mm，N_u=27，L=0.5 m）の 1 次光，SGU17（λ_u=16 mm，N_u=29，L=0.5 m）[7.8]の 5 次光（全て灰色実線），PF-AR リングで稼働中の NW12（λ_u=40 mm，N_u=95，L=3.8 m），NW14-20（λ_u=20 mm，N_u=75，L=1.5 m），NW14-36（λ_u=36 mm，N_u=79，L=2.8 m）の各 1 次光（全て黒色実線）とともに示す。また，図 7.3(b)にはそれぞれの輝度スペクトルを示す。なお破線は IBS の効果を無視した場合のそれぞれの輝度スペクトルである。

図 7.3(a)から，本計画の短直線部挿入光源 UL20N30 は 10 keV 程度以下の領域で PF および PF-AR リングよりも高い光束を有するとともに，長直線部挿入光源 UL20N250 では 30 keV 程度のまでのエネルギー範囲全般にわたって PF および PF-AR リングを凌駕する全光束が得られることがわかる。図 7.3(b)をみると，本計画の短直線部および長直線部いずれにおいても PF および PF-AR に比べて桁違いに高い強度の輝度の放射光の利用が可能であることがわかる。

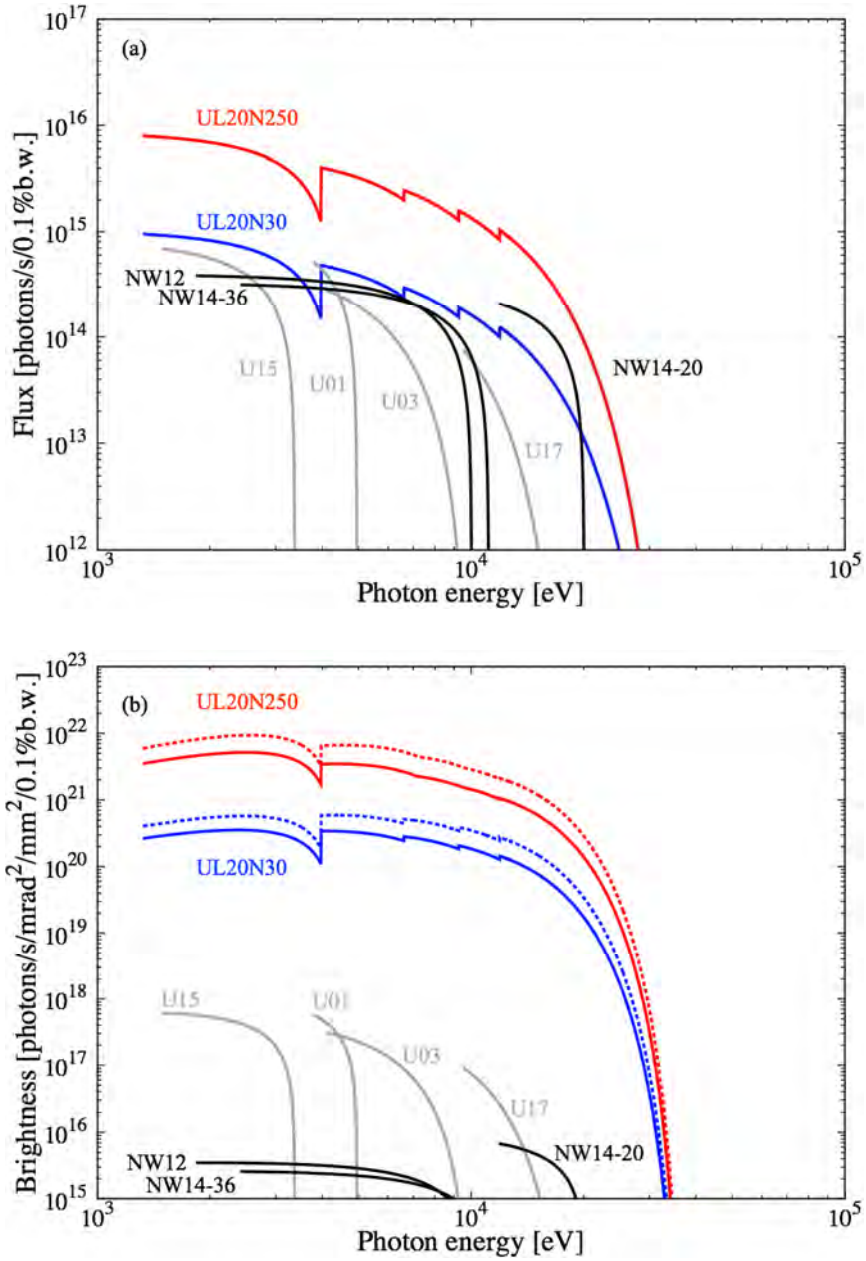


図 7.3 X 線アンジュレータの輝度と光束。本計画の長直線部（青実線）および短直線部（赤実線）に設置したアンジュレータ UL20N250（青色曲線）および UL20N30（赤色曲線）から得られる全光束(a)および輝度スペクトル(b)（1~9 次光，実線(破線)は IBS の効果を考慮(無視)した場合）。灰色実線は PF リングで稼働中の各アンジュレータ（SGU01 の 1 次光，03 の 3 次光，15 の 1 次光，17 の 5 次光），黒色実線は PF-AR のアンジュレータ（NW12，14-20，14-36，全て 1 次光）。

7-3. 軟 X 線可変偏光型アンジュレータ（UL48N104）

軟 X 線領域では可変偏光型アンジュレータを用いることで，左・右円（楕）偏光，縦・横・斜め直線など放射光の偏光状態を切り替えることが可能である。これを用いて，X 線吸収分光（XAFS）や X 線共鳴散乱（XRS）において，偏光状態を様々に切り替えて測定する磁気円二色性（MCD）や磁気線二色性（MLD）などの測定が精力的に行われている。

図 7.4 には，本計画の長直線部にアンジュレータ UL48N104 を設置した場合の全光束および輝度スペクトルを PF リングで稼働中のアンジュレータ U13（λ_u=76 mm，N_u=47，L=3.6 m），U02-1（λ_u=60 mm，N_u=60，L=3.6 m）などとともに示す。図から，U48N104 からは 200 eV から数 keV の広範な領域に渡って PF リングのアンジュレータよりも高い全光束が得られ，なおかつ輝度に関しては 200 eV から 10 keV 程度のさらに広範な範囲にわたって PF に比べて 3 桁程度高い輝度の放射光が得られることがわかる。

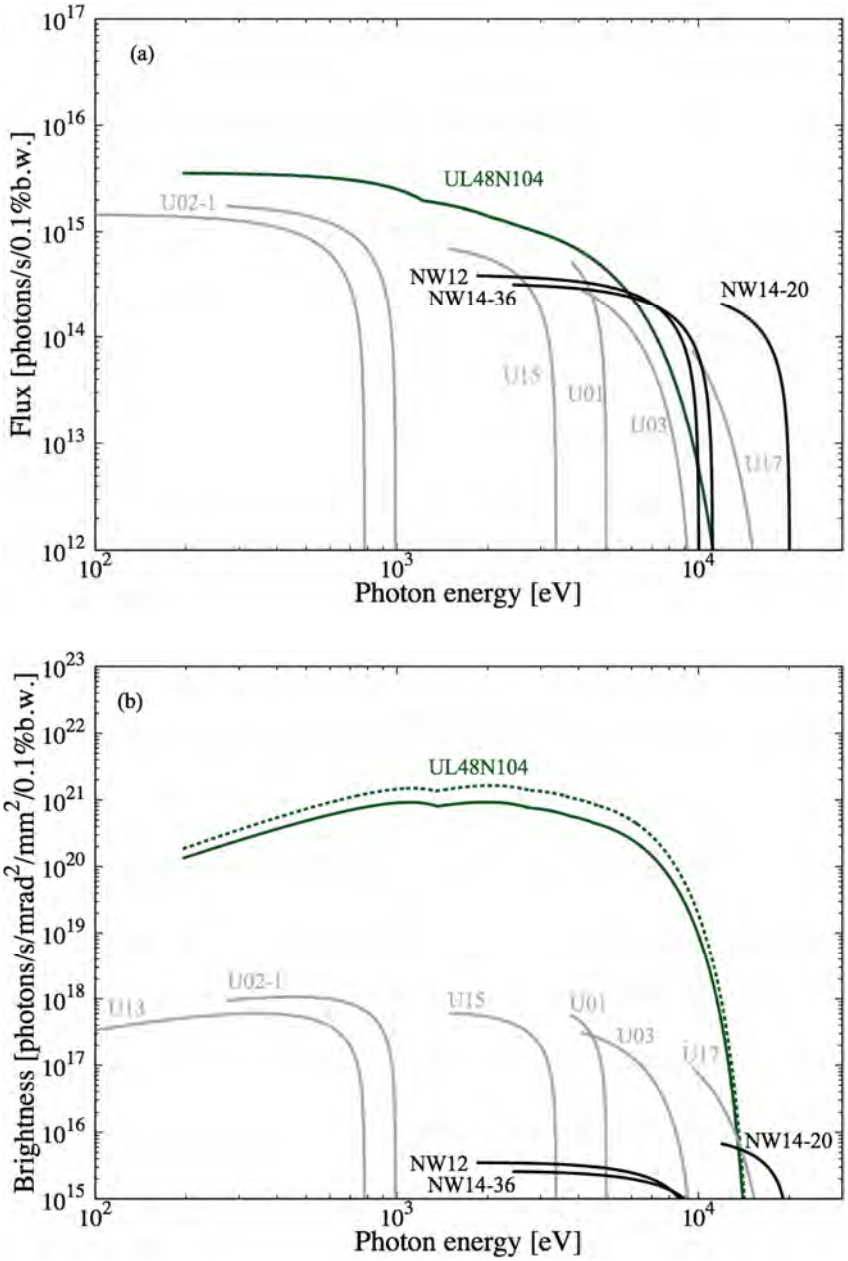


図 7.4 軟 X 線アンジュレータの輝度と光束。本計画の長直線部（青実線）および短直線部（赤実線）に設置したアンジュレータ UL48N104 から得られる全光束(a)および輝度スペクトル(b)（1~9 次光，実線(破線)は IBS の効果を考慮(無視)した場合）。灰色実線は PF リングで稼働中の各アンジュレータ（U02-1 の 1 次光，U13 の 1 次光，U01 の 1 次光，U03 の 3 次光，U15 の 1 次光，U17 の 5 次光），黒色実線は PF-AR のアンジュレータ（NW12，NW 14-20，NW 14-36，全て 1 次光）。

7-4. VUV アンジュレータ（UL160N31）

図 7.5 に本計画の長直線部にアンジュレータ UL160N31 を設置した場合の全光束および輝度スペクトルを PF リングで稼働中のアンジュレータ U13 や U28（λ_u=160 mm, N_u=22, L=3.5 m）などとともに示す。全光束は PF で稼働中の同じ磁石周期長を持つアンジュレータ U28 よりも高く，輝度は 1 桁から 2 桁向上するものと期待できる。また，PF に比べてビームサイズが小さいためギャップを狭くすることができ，高い最大磁場強度が得られるため，結果として同じ磁石周期長の U28 より低いエネルギーまで利用することができることも図から読み取れる。なお，UL48N104 の曲線からわかるように，使用する光子エネルギー範囲を選ぶことでさらに高い全光束や輝度を得ることも可能である。

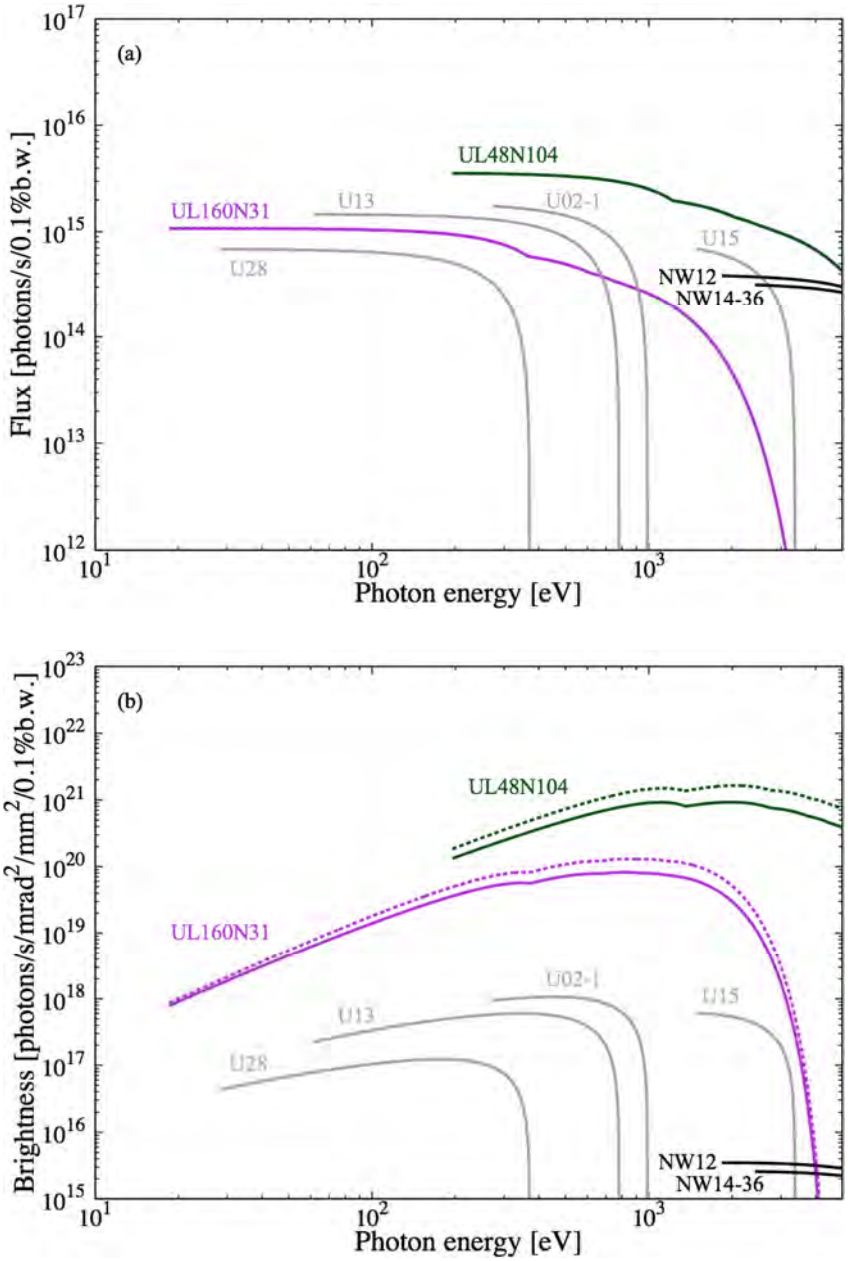


図 7.5　VUV アンジュレータの輝度と光束。本計画の長直線部（青実線）および短直線部（赤実線）に設置したアンジュレータ UL160N31 から得られる全光束(a)および輝度スペクトル(b)（1~9 次光，実線(破線)は IBS の効果を考慮(無視)した場合）。UL48N104 もあわせて示す。灰色実線は PF リングで稼働中の各アンジュレータ（U02-1 の 1 次光，U13 の 1 次光，U15 の 1 次光，U28 の 1 次光），黒色実線は PF-AR のアンジュレータ（NW12，NW14-36，全て 1 次光）。

7-5. 偏向部およびウィグラー

KEK では電子エネルギー6.5 GeV の電子蓄積リング PF-AR も運転し，数十 keV オーダーの高エネルギー光子が硬X線XAFSやイメージング実験などに精力的に利用されている。図 7.6 に示すように，本計画の偏向部（電子エネルギー3 GeV，偏向磁場 0.68 T）の臨界エネルギーは 4.1 keV であり，PF リングの偏向部における臨界エネルギー4.0 keV に比べるとわずかに高いが，PF-AR の偏向部における臨界エネルギー26.4 keV と比べると低く，数十 keV オーダーの硬 X 線領域側で十分な輝度を確保できない。また，短周期アンジュレータ UL20N250 の高次光を使って高エネルギー光子を得る可能性もあるが，広い照射視野を必要とする計測への対応が必要となる。そこで現在，ウィグラーを用いた硬 X 線領域の光の確保を検討している。

図 7.6 に，検討中の多極ウィグラーMPW および超伝導ウィグラーSCW の全光束と輝度をそれぞれ示す。MPW は，PF で稼働中の MPW#5（ピーク磁束密度 1.4 T，臨界エネルギー11 keV，周期長 120 mm，磁極長 60 mm，21 周期）を参考に，Gap を 12 mm としてピーク磁場を 1.8 T と見込み，さらに磁石列長を 2.5 m から本計画の長直線部に合わせて 5 m（42 周期）に伸ばしたものを検討した。SCW として，PF で稼働中の VW#14（ピーク磁場 4.8 T，磁極長 120 mm）の設置を検討したが，この場合，SCW の使用によるエミッタンスの増大を無視することができず，その他の光源の強度低下を引き起こすため，設置にはさらなる検討が必要であることがわかった。SCW の設計検討およびリングへの影響のさらに詳細な評価などが必要ではあるものの，例えば磁極長 30 mm かつ磁極間隔 20 mm へと装置および磁極の小型化が実現できた場合には，ピーク磁束密度 5 T（臨界エネルギー30 keV）の SCW を使用することによるエミッタンスの増大を無視できることがわかっている。ここでは，ピーク磁場 5 T の SCW を長直線部で使用した場合のスペクトルを示す。また比較のため，あわせて PF-AR リングで稼働中の EMPW NE01-W，PF の偏向部，本計画のアンジュレータ UL20N250 も示す。

図から，MPW が 10 keV 強までの高輝度光源となり得ること，SCW を設置できれば，さらに高エネルギーの領域においても高い輝度の光源となり得ることがわかる。なお，MPW に関しては，5 m の磁石列長では RF パワーに対する負荷が大きいため，周期数を減らすことも含めて検討していきたい。

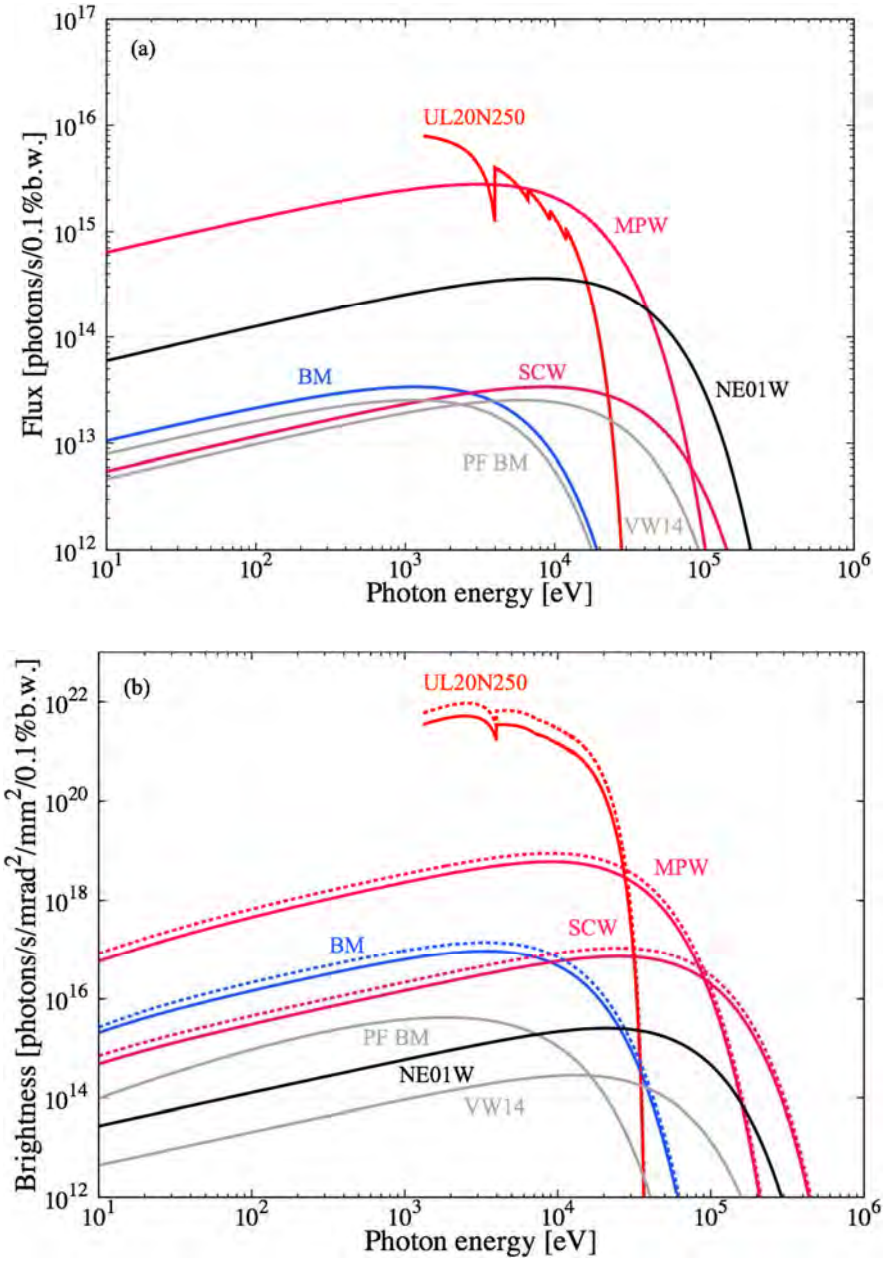


図 7.6 偏向部およびウィグラーからの輝度スペクトル。本計画の偏向部（BM）および長直線に設置した MPW（1.8 T, 42 周期）および SCW（5 T, 1 周期）から得られる全光束(a)および輝度スペクトル(b)（実線(破線)は IBS の効果を考慮(無視)した場合）。本計画のアンジュレータ UL20N250 のスペクトルもあわせて示す。灰色実線はPFリングの偏向部（PF-BM）およびPFで稼働中のMPW05（1.4 T, 21 周期）および SCW VW14（5 T, 1 周期），黒色実線は PF-AR の EMPW NE01（1 T, 21 周期）。

7-6. 本計画の光源性能

7-6-1. PF および PF-AR，SPring-8 との比較

図 7.7 に, 本計画の標準的な光源と, PF リング, PF-AR リング, SPring-8（Non-Achromat モード，電子エネルギー8 GeV，ビーム電流 100 mA，自然エミッタンス 2.4 nm·rad，エネルギー拡がり 0.109%）[7.3]の光源との VUV から X 線領域における輝度スペクトルの比較を示す。なお，本計画の MPW は RF パワーに対する負荷などの点から周期数 42 での稼働は容易ではないが，ここでは参考までに 42 周期 MPW の結果を示す。また，前節で述べた SCW の結果もあわせて示す。SPring-8 の光源としては標準アンジュレータ（λ_u= 32 mm，N_u= 140，L=4.48 m）と BL25SU（λ_u=120 mm，N_u=12×2，L=2.88 m）を示す。光子エネルギー10 keV 程度以下の領域において, SPring-8 の標準アンジュレータおよび BL25SU の輝度および全光束を凌ぐ光が得られることがわかる。また，本計画の短直線部アンジュレータ UL20N30 からは 10 keV 程度以下の領域で SPring-8 の標準アンジュレータに匹敵する輝度の光が得られることも大きな特徴である。

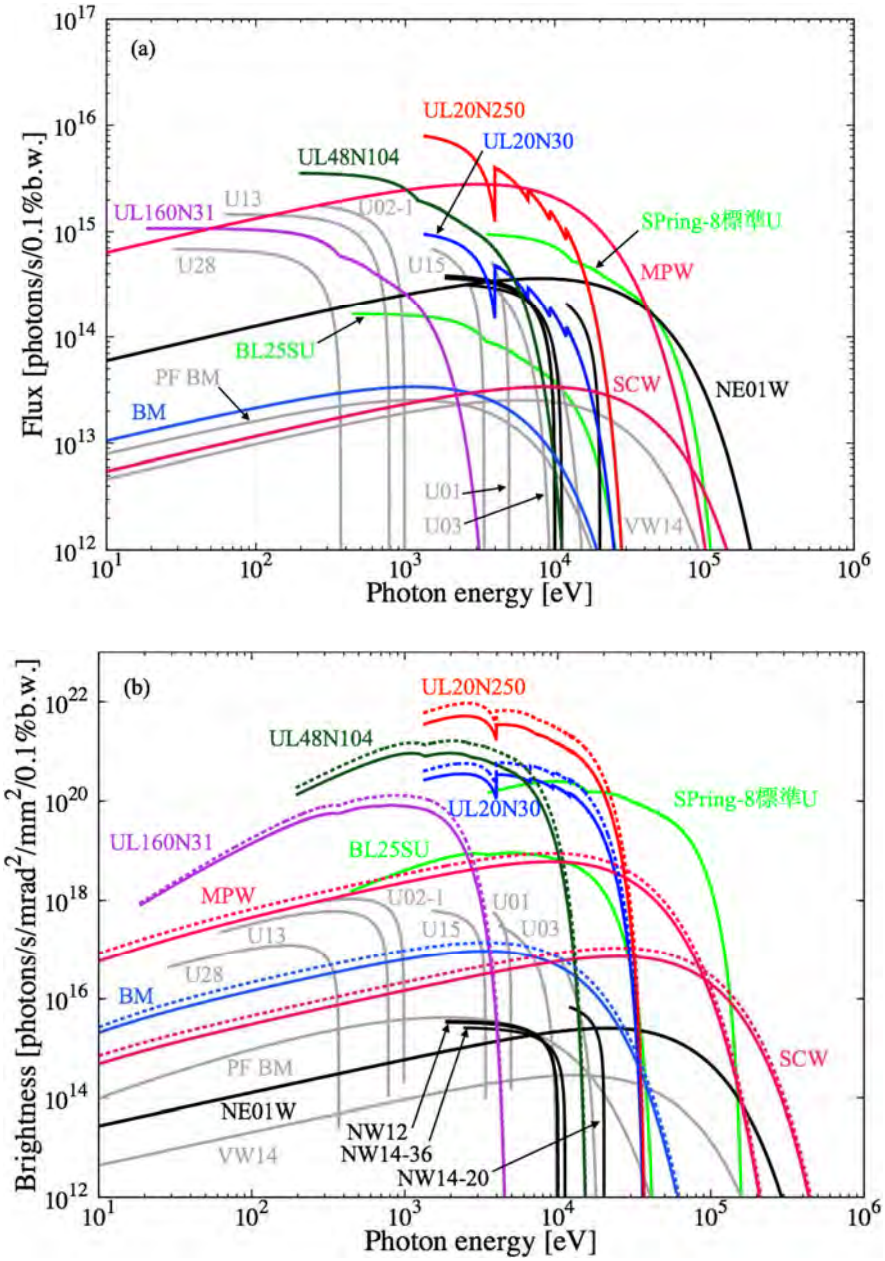


図 7.7　本計画と既存施設との比較。本計画，SPring-8 の標準アンジュレータおよび BL25SU（いずれも緑色実線），PF リング（灰色実線），PF-AR リング（黒色実線）それぞれの光源の全光束スペクトル(a)および輝度スペクトル(b)の比較。破線は IBS 効果を無視した場合。

7-6-2. 最新の 3GeV リング NSLS-II および MAX-IV との比較

図 7.8 に, 本計画と同じ電子エネルギー, ビーム電流で設計されて運転が始まった NSLS-II（3 台の Damping Wiggler を稼働，水平エミッタンス 550 pm·rad，垂直エミッタンス 8 pm·rad）および MAX-IV（4 台の Damping Wiggler を稼働し且つ IBS の効果を無視，水平エミッタンス 263 pm·rad，垂直エミッタンス 8 pm·rad）との比較を示す。NSLS-II の光源として IVU20（λ_u=20 mm，N_u=148，L=3 m）および SCW60（λ_u=60 mm，N_u=17，B=3.5 T）を，MAX-IV の光源として PMU18P5（λ_u=18.5 mm，N_u=205，L=3.8 m）および EPUI38（λ_u=38 mm，N_u=103，L=3.9 m）を，さらに SPring-8 の標準アンジュレータおよび BL25SU を示す。

図から，本計画のアンジュレータは IBS 効果を抑制することで他の最新の 3GeV リングである NSLS-II および MAX-IV を凌ぐ輝度が得られること，また，たとえ IBS 効果があったとしても他の 3GeV リングと同程度の輝度が得られることがわかる。

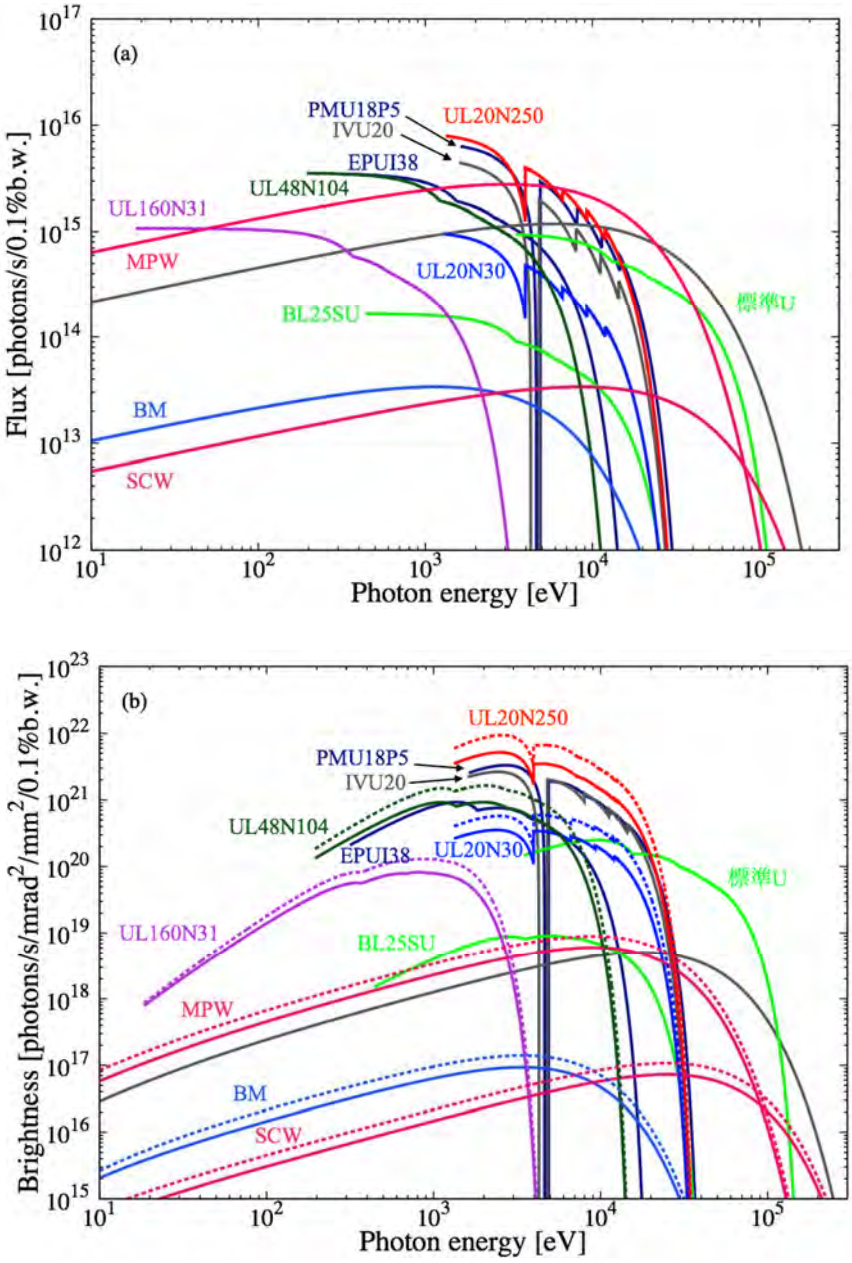


図 7.8　本計画と最新の 3GeV リングとの比較。本計画（破線は IBS 効果を無視した場合），NSLS-II（3 台の Damping Wiggler を稼働した状態）の IVU20 および SCW60，MAX-IV（4 台の Damping Wiggler を稼働し，且つ IBS の効果を無視した状態）の PMU18P5 および EPUI38，それぞれの光源の全光束スペクトル(a)および輝度スペクトル(b)の比較。

7-7. 光源性能のさらなる可能性

7-7-1. 高輝度短周期アンジュレータの可能性（UL12N416）

光エネルギーの利用範囲を絞り込むことで特定の波長において高い輝度を得ることも可能である。図 7.9 に磁石周期 12 mm，磁石長 5.2 m，周期数 416，最小 Gap 値 4 mm とした場合の全光束および輝度スペクトルを示す。図に示すように，IBS 効果を考慮しても10^{22}台の輝度が得られる可能性があることがわかる。

このように，他の光源パラメータに関しても，各ビームライン，各プロジェクトに合わせて検討を続ける。

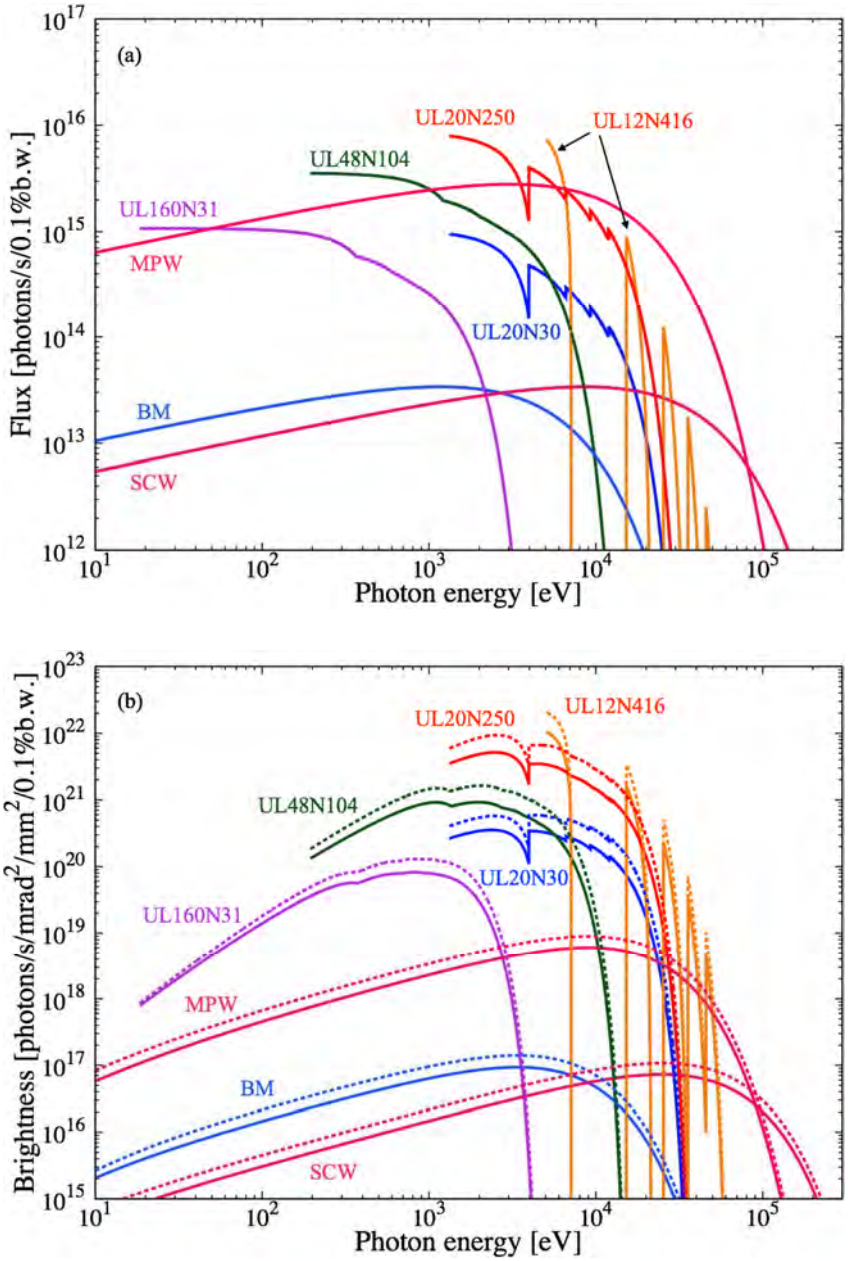


図 7.9　本計画の長直線部に設置した UL12N416 から得られる全光束(a)および輝度スペクトル(b)（実線(破線)は IBS の効果を考慮(無視)した場合）。1~9 次光。

7-7-2. CPMU および SCU の可能性

最新の 3GeV リングである NSLS-II[4]や MAX-IV[5]などの施設では，磁石列部を冷却して磁場強度を増強するタイプのアンジュレータ CPMU や，超伝導電磁石を用いる SCU の検討・開発が進められている。これらのアンジュレータの運用に向けては磁石材料開発，超伝導材料開発，熱負荷対策，磁石列磁場の補正および測定技術の開発などといった様々な開発要素が存在するものの，より短い周期長で高い磁場が実現できることによる光エネルギーの利用可能範囲の高エネルギー領域への拡大という魅力から，精力的な開発が進められている[7.4, 7.5]。図 7.10 に，本計画の長直線部に MAX-IV の CPMU16（λ_u=16 mm，最小 Gap 4.2 mm，冷却温度 140 K，磁場強度 1.17 T），NSLS-II の SCU14（λ_u=14 mm，最小 Gap~5 mm，冷却温度 4 K，磁場強度 1.68 T）および CPMU17（λ_u=17 mm，最小 Gap=5 mm，磁場強度 1.05 T）を長直線部の長さに合わせた周期数にして設置した場合に得られる輝度スペクトルを示す。通常の永久磁石タイプのアンジュレータに比べて短周期（周期数の増加）で高い磁場強度が得られることを反映して，低エネルギー領域までカバーするとともに，特に高エネルギー領域において大きく強度が向上することがわかる。なお，本計画のビーム品質の高さから，他施設においてよりも高い輝度が得られることが予想される。

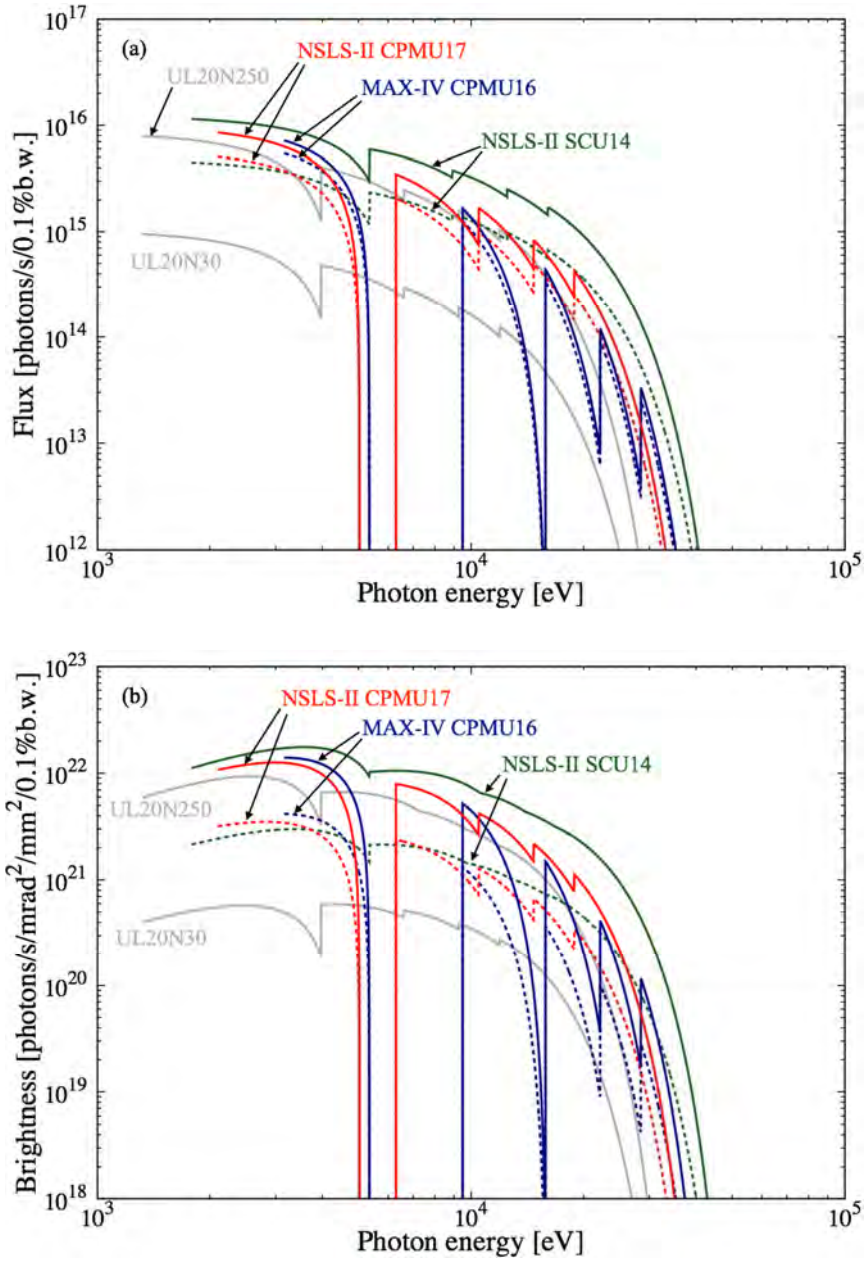


図 7.10 CPMU および SCU のスペクトル。本計画の長直線部（(a)IBS の効果を考慮した場合，(b)IBS の効果を無視した場合）に MAX-IV の CPMU16, NSLS-II の SCU14 および CPMU17 を設置した場合の輝度スペクトルを UL20N250(長直線)および UL20N30(短直線部)と比較。破線は各施設での輝度，実線は本計画の長直線部の長さに合わせて周期数を変更したもの。

7-7-3. 直線部の長さに関して

ラティスの最適化などを通してさらに長い磁石列長の挿入光源が設置可能になれば，さらに高い輝度を得る可能性も残されている。図 7.11 に，長直線部の長さによらずビームのパラメータが変わらないという極端な仮定のもとに，単純に磁石列長（磁石周期数）を変化させた場合にどのように各光源の輝度スペクトル曲線のピーク輝度が変化するかを示す。計算は IBS の効果を無視したリングの長直線部に設置する UL20N250 および UL12N416 に対して行った。破線はエネルギー分散が無い場合の曲線で，磁石周期数の 2 乗で輝度が上昇する場合の曲線である。ピーク輝度は磁石列長の伸長に応じて緩やかに向上することがわかる。また，青色破線で現在の 5.6 m の位置を示す。長直線部の長さを 2~3 m 程度を超えて伸ばす場合，磁石周期数に対する輝度の上昇率は 2 乗の傾きから次第に低下することがわかる。

なお，磁石列長の伸長は挿入光源で消費するパワーを増大させ，加速空洞への負荷やビームラインへの熱負荷などの増大を招くなど，ラティスの設計とともに多くの検討が必要となる。

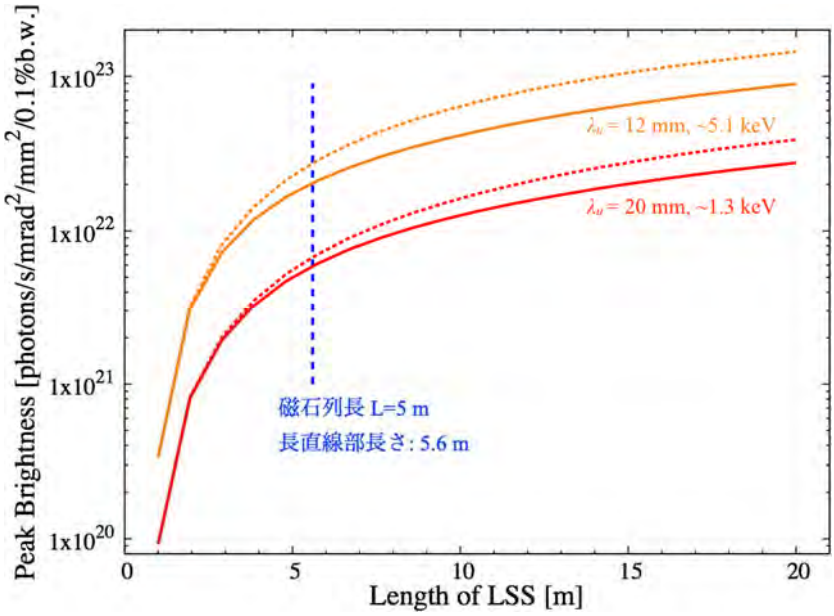


図 7.11 長直線部の長さとピーク輝度の関係。アンジュレータ磁石長 L と輝度の関係。磁石周期長 12 mm と 20 mm に対して，長直線部の長さに合わせて周期数を変更した時のピーク輝度（それぞれ約 5.1 keV および約 1.3 keV）の変化（実線）。破線はエネルギー分散が無い場合の曲線。

参考文献

[7.1] David Attwood, Klaus Halbach and Kwan-Je Kim, Tunable Coherent X-rays, Science vol.228 pp.1265-1272 (1985).

[7.2] Kwan-Je Kim, Characteristics of synchrotron radiation, AIP Conf. Proc., vol.184 pp.565-632 (1989)

[7.3] SPring-8-II Conceptual Design Report, RIKEN SPring-8 Center, (November, 2014). 各種挿入光源の紹介 (http://www.spring8.or.jp/ja/about_us/whats_sp8/facilities/bl/light_source_optics/sources/insertion_device/intro_insertion_devices/).

[7.4] NSLS-II Source Properties and Floor Layout (April 12, 2010) (https://www.bnl.gov/ps/docs/pdf/SourceProperties.pdf).

[7.5] DETAILED DESIGN REPORT ON THE MAX IV FACILITY, MAX IV Facility, First Edition (August, 2010) (https://www.maxlab.lu.se/node/1136).

[7.6] S. Yamamoto, T. Shioya, M.Hara, H. Kitamura, X.W. Zhang, T. Mochizuki, H. Sugiyama, and M. Ando, "Construction of an in‐vacuum type undulator for production of undulator x rays in the 5-25 keV region", Rev. Sci. Instrum., vol. 63 pp.400-403 (1992).

[7.7] S. Yamamoto, K. Tsuchiya, H. Sasaki, T. Aoto, and T. Shioya, "Development of the Short Gap Undulators at the Photon Factory, KEK", AIP Conf. Proc., vol.1234 pp.599-602 (2010).

[7.8] S. Yamamoto, K. Tsuchiya and T. Shioya, "Construction of a Very Short Period Undulator, SGU#17 and the Photon Factory Upgrade", AIP Conf. Proc.,vol. 879 pp.384-387 (2007).

８．放射光ビームライン基幹チャンネル（フロントエンド）

8-1. 概要

加速器光源（偏向磁石または挿入光源）から取り出された放射光は，リングトンネル内にある基幹チャンネルを通り，実験ホールへ取り出される。基幹チャンネルの役割は以下の４つである。

放射光に空間的制限を加え，光軸近傍のユーザーの欲する良質な光だけを切り出し，安全かつ安定に光学系に供給する。

実験ホール側の真空機器の真空悪化を検知し，その影響が蓄積リングに及ばぬよう，基幹チャンネルのゲートバルブを速やかに閉じるという真空保護の役割。

基幹チャンネルのゲートバルブが閉じられている時に，ゲートバルブが放射光の熱で損傷しないようにするためのアブソーバを基幹チャンネルの最上流部に設置している（放射光の熱を吸収する役割）。

蓄積リングに連続で電子を入射する場合に，実験ホール側で放射線強度が高くなる恐れがある場合に基幹チャンネル内の放射線防護シャッター（ビームシャッターと呼ばれている）を閉じることで，実験ホール側の放射線強度を低く抑える役割。また，緊急時には速やかにビームシャッターを閉じて，実験ホール側にいる実験者が被曝することを防ぐ役割（放射線を遮蔽する役割）。

特に基幹チャンネルを構成する各機器は，加速器運転中に人が立ち入ることが絶対に不可能なリングトンネル内に設置されているので，万一，基幹チャンネルが故障した場合には，加速器の運転を止めてから人がトンネルに立ち入って修理することになる。それはすべての放射光ビームラインの運用が停止されてしまうことを意味する。多くのユーザーに影響を与えることを避けるためには，基幹チャンネルの設計，建設において信頼性の高いものを製作することに加え，建設後の運用時にも，普段からメンテナンスを良く行って，予防保守に努めることが重要である。

そして，基幹チャンネルが正常に運用されているかぎりにおいて，実験ホール側に設置されている機器が万一故障した場合においても，その故障対象のビームラインの基幹チャンネルのシャッターとゲートバルブを閉じることで，加速器運転中においても故障を修理することが可能となる。また故障対象以外のビームラインでは，何ら問題なく通常の状態でユーザー実験を継続することが可能である。このように基幹チャンネルが正常に動作し続けることは，蓄積リングの運転を続けることと，ユーザー実験を滞りなく続ける上で，重要である。

8-2. 熱負荷対策

現時点で KEK 放射光の熱負荷を受ける基幹チャンネルの最も過酷な条件と想定しているのが，5m の長さの真空封止短周期アンジュレータ（SGU）からの放射光熱負荷であり，3GeV，500mA でトータル・パワーは 18.2kW が想定されている。この強大な熱負荷を受ける方策としては，現在ＰＦ－AR リングの NW2，NW12，NW14 で採用されている放射光基幹ビームチャンネルの耐熱負荷対策構成要素（具体的には，前置マスク，主マスク，アブソーバ，ＸＹスリット（図 8.1）を原型とし，現在 PF-AR 基幹チャンネルでは放射光が当たる耐熱負荷部分には無酸素銅が使用されているが，それよりも高温強度特性に勝るアルミナ分散銅（GlidCop）を代わりに用いることで，この強大な熱負荷に対応可能である。

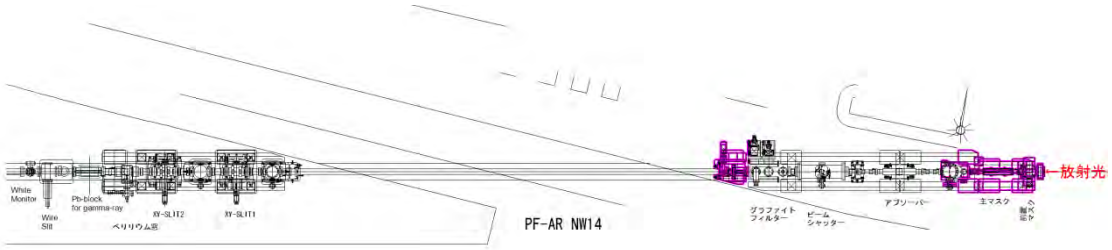


図 8.1 PF-AR NW14 の基幹チャンネル･レイアウト. 放射光の進む向きは右から左である。

基幹チャンネルにおける高熱負荷への対処方法の基本は，斜入射技術を軸とする。単位面積当たりの熱負荷量を軽減するために，受光部を光軸に対して傾けて照射面積を増加させることで対処可能である。しかし，放射光の受光部での反射光強度が急激に増大する恐れがあるので，受光部での反射光を増大させないための表面粗さの設定および増加する反射光を受けるための対策が必要となる。その点では PF-AR の NW2，NW12，NW14 で採用されているアブソーバは，上記の点が十分に考慮された設計となっており，今回の蓄積リング計画に，その基本設計を採用するのに問題が無いことを強調しておく。

また 5m 長の SGU 以外の挿入光源および偏向磁石ビームラインのように，5m長 SGU よりも熱負荷が小さくなる基幹チャンネル部の耐熱負荷対策構成要素については，新規に PF BL-15 のために開発を行った　従来型の機能を損なうことなく，簡潔な構造に機能を集約することで製造コストを低減し，かつ冷却水の取り入れ口を従来の 2 つから 1 つに集約することで，冷却水の監視管理の手間とコストを低減した　Ｖ字型水冷ブロック・アブソーバ（図 8.2），そしてコストのかかる熱間等方圧加圧接合法（HIP 法）を用いないで製造した，低コストかつ冷却効率に優れた新設計水冷マスク（図 8.3）を KEK 放射光の機器を原型とする。このことで，KEK 放射光の基幹チャンネルの安定運用，かつ製造コストと運用コスト，運用の手間の低減が図れると期待される。

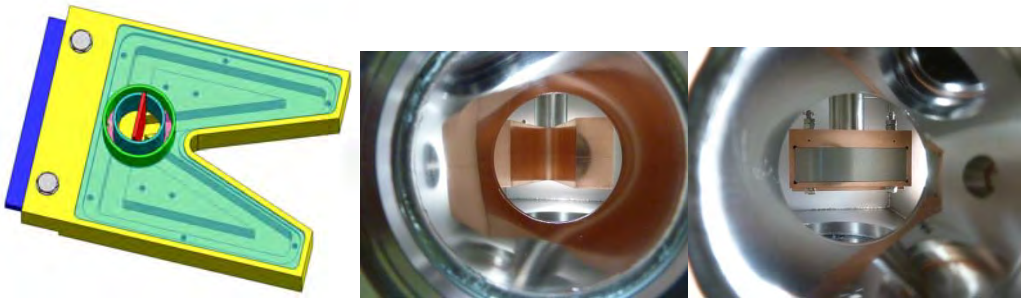


図 8.2　PF BL-15 のアブソーバ。PF BL-15 に採用した V 字型アブソーバの水冷銅ブロック部分の 3D モデル図（左図），V 字型受光部側（中央写真）とその反対部分（右写真）．反対部分（右写真）には下流の放射線を低減するためのヘビイメタルブロック（銀色）がボルト締めで固定してある．

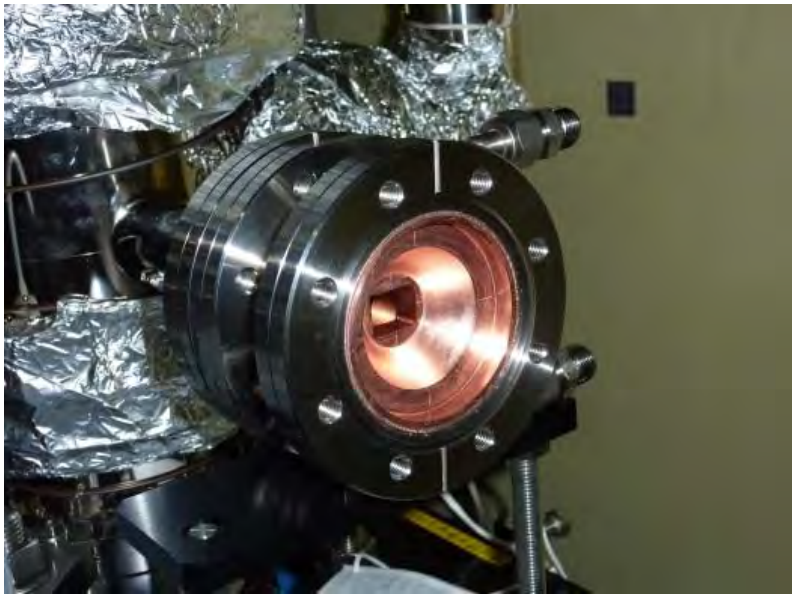


図 8.3　PF BL-15 に採用した基幹チャンネル用　低コスト水冷マスク

なお，基幹チャンネル部に真空を切り離して，硬Ｘ線のみを通過させる窓の役割を持つ水冷ベリリウム窓を設置する際には，ベリリウムを熱損傷から保護するために，硬Ｘ線以外の放射光成分を吸収してベリリウムへの熱負荷を軽減するグラファイト・フィルターを設置することが必要となる。

放射光は発光点からの距離に比例して，水平方向および鉛直方向に広がっていく性質を持っているため，放射光進行方向に垂直な単位面積当たりの放射光からの熱負荷は，発光点からの距離の２乗に反比例する。そのため発光点からの距離が比較的大きい実験ホール側の光学機器よりもさらに距離が短いリングトンネル内の基幹チャンネルは，より激しい熱負荷密度にさらさる。また，より精密な設置精度が要求されることは，発光点に近づけば近づくほど放射光サイズがより小さくなることから明らかである。同様に，KEK 放射光より

も大型の光源加速器においては，基幹チャンネルが設置される発光点からの距離は大きくなるので，熱負荷密度は小さくなる方向になり，熱負荷のハンドリングは楽な方向へ移行する。しかし，建設コストの観点からむやみに光源加速器を大きくすることはできない。よって，基幹チャンネルがより大きな熱負荷密度に対応し，設置精度をより高精度にすることは，KEK 放射光の建設コストを低減するための鍵の一つである。

8-3. 放射線防護

現在，PF リングにおいては，基幹チャンネルの放射線防護シャッターのシャッター・ブロックは旧型のものに関しては 400 mm 厚のステンレス，新型のものは 250 mm 厚のヘビイメタル（タングステンを主成分とした合金，純粋なタングステンの加工が極めて困難なためタングステン合金を採用している。鉛は超高真空に不適合なため基幹チャンネルのブロック材に採用しない。）を採用している。かつて行われていた PF リングの 3 GeV 運転においても，これらの放射線防護シャッターに関して問題は生じなかった。そこで基本的には KEK 放射光 3 GeV 蓄積リングにおいても，現在 PF でのヘビイメタルビームシャッターを基本形と考え，放射光のビームサイズを考慮して，シャッターブロッブのビーム軸に対する断面形状を決定していくことで対応可能である。なおこの放射線防護シャッター・ブロックについては万一シリンダーから外れて脱落した場合でも放射線事故の無いように PF リング運転開始当初からシャッター・ブロックの脱落防止板がブロックの直下に人間の安全防護の観点で備えられてきた。KEK 放射光でもそれを踏襲する。

8-4. 真空防護

基幹チャンネルの真空に要求される機能は多岐にわたる。その理由は以下に集約される。

8-4-1. 蓄積リング真空を保護する役割

ユーザー実験において原子・分子分野および触媒化学分野などにおいて，ガスを利用した実験は多く行われており，通常，実験者サイドでも差動排気を駆使する，コンダクタンスを小さくするためのオリフィスを設けるなどして，上流側にある基幹チャンネルの真空度の悪化を食い止める工夫がなされている。それでも，基幹チャンネル部へのガスの完全な流入の遮断は不可能である。また，実験者側での意図しない真空漏れや，操作の手違いによる急激な脱ガスなども起こり得るので，基幹チャンネル部での真空ポンプの設置ならびに真空計の設置および監視によって，真空度悪化の際には蓄積リングの真空を保護するために，基幹チャンネルのシャッターおよびゲートバルブを閉じる役割を担っている。なおトンネル内に設置されている基幹チャンネル部では，加速器運転時には大強度放射線に弱いメカニカル・ポンプは使用せず，イオンポンプなどの機械的な動作を要しないポンプを使用するの

が一般的である。

8-4-2. ベリリウム窓

硬Ｘ線は，低真空，ヘリウム，大気中の環境下であっても，あまり減衰することがないという特徴を持つ。これは超高真空環境下での実験を必要とする軟Ｘ線，真空紫外線とは大きな違いである。このため硬Ｘ線ビームラインにおいては，蓄積リングが要求する超高真空と真空を切り離し，必要な硬Ｘ線のみを通過させる窓材としてベリリウムを設けることで，それよりも下流では超高真空を要しない環境を得ることを可能とする。超高真空を要しないことは，ビームラインの機器の設計に大きな自由度を与え，使用する材料の制限の大幅な緩和，真空を良くするためのベーキングが必要ないなど，大きなメリットがあり，建設コスト削減と建設期間の短縮に大いなる効果をもたらす。ただしベリリウムの熱負荷による損傷を避けるために，ベリリウムの上流に水冷グラファイト・フィルターを設置し，またベリリウム窓自身も効率の良い水冷機構を設けることは必須となることに留意が必要である。

また，近年では硬Ｘ線ビームラインにおいても，さらに低いエネルギーの軟Ｘ線も利用したいという要望が増加してきているため，あえてベリリウム窓を設置せずに，軟Ｘ線も利用可能なビームラインの建設が増えている。この場合は，ベリリウム窓を設置する代わりに，差動排気を何段かタンデムに設置することで，その下流側では超高真空を要しない設計となっている。ただし，低真空側での予期せぬ真空悪化に備えて，ゲートバルブを遮断する真空度のセット・ポイントを不用意に甘くしない，真空漏れに備えて，要所に真空悪化を緩和するためのバッファー・チャンバーや開口サイズを必要最小限とした水冷マスクをタンデムに設ける，など厳重な管理と細心の注意を払うことが必要となる。

8-5. 設置精度

基幹チャンネルの設置については，これまでの PF と PF-AR での設置を行ってきた背景を説明する必要がある。PF で 1980 年代においては，基幹チャンネルの各構成要素は個別にオートレベルとトランシットを用いて設置されてきた。これは各コンポーネントを独立に測量，設置が必要で，大変な手間と人手，作業時間を要した。この問題を改善しようと試みたのが 1997 年に行われた PF 高輝度化改造に伴うＰＦリング・アーク部の基幹チャンネル改造であり，この時に基幹チャンネルの各構成要素を 1 本のレールの上に設置することで，測量と設置の手間を簡略化し，作業時間の短縮を図ろうとした。しかし，このことは 1 本レール上に設置された各コンポーネントすべての位置合わせをたった 1 本のレールで合わせるという難儀な作業を要し，位置合わせ調整が非常に難しくなるというデメリットが発生した。

そのため近年建設された PF-AR 基幹チャンネルにおいては，反省に基づいて，2 本レール上に各構成要素を設置するという方式に改めた。この 2 本レール方式は，1 本レールに比

べて格段に設置調整が容易になった。この 2 本レール方式は SPring-8 基幹チャンネルの設置でも用いられており，高精度設置が要求される基幹チャンネルの設置では標準的な技法となっている。

また，近年，海外の放射光施設の挿入光源を含めた様々な機器の精密設置にレーザー・トラッカーが用いられるようになってきていることを鑑み，基幹チャンネルの各構成要素の設置にもレーザー・トラッカーが使用可能な機構を取り付けておくことを計画している。

設置精度の観点から，最後に指摘しておく重要事項は架台である。1980 年代の日本の放射光施設において基幹チャンネル，放射光ビームライン機器の架台に対する問題意識と予算の不足から，アングルを切って溶接しただけの簡易的な架台が用いられることが多かった。これは溶接による歪みが残り精度が出ず，床からの振動が減衰せず機器に伝わるなど多くの問題を抱えていた。一方で海外の施設においては架台の重要性が早期から認識されていて，華奢なアングルではなくボックス・セクションを用いた頑丈な架台，定盤のように鋳鉄，花崗岩を架台に用いて精度出しと振動対策を施したものが用いられてきた。近年では，日本でも架台の重要性が認識されて，上記の対策が施されてきている。KEK 放射光においても高輝度低エミッタンス光源であることから，設置精度と振動対策の観点から架台の重要性はより増しており，基幹チャンネルの機器本体だけでなく考慮すべき重要事項であると結論される。

8-6. まとめ

KEK 放射光において，基幹チャンネルは既存の要素技術を上手に組み合わせることで実現可能である。今後の課題としては，各ビームラインの光源の熱負荷の状況に応じて，過不足なく要求するスペックにして，リーズナブルなコストで建設，維持をしていくバランスのとれた設計を実現していくことである。そのためには，各基幹チャンネルの上流に位置する光源である挿入光源グループとマグネットグループ，真空グループ，そして下流に位置するビームライン建設グループとともにスペックの詳細を綿密に詰めていくことによって最適な基幹チャンネルの設計と精密設置を行うための仕組みづくりを行っていくことになる。

9．建物・設備

ここでは，施設の建物及び設備の概要を示す。また，地盤の常時微動の影響を大まかに見積るために，KEK つくばキャンパス内で過去に行われた建物床の振動測定の結果についても触れる。図 9.1 は，建物の概観（鳥瞰図）である。

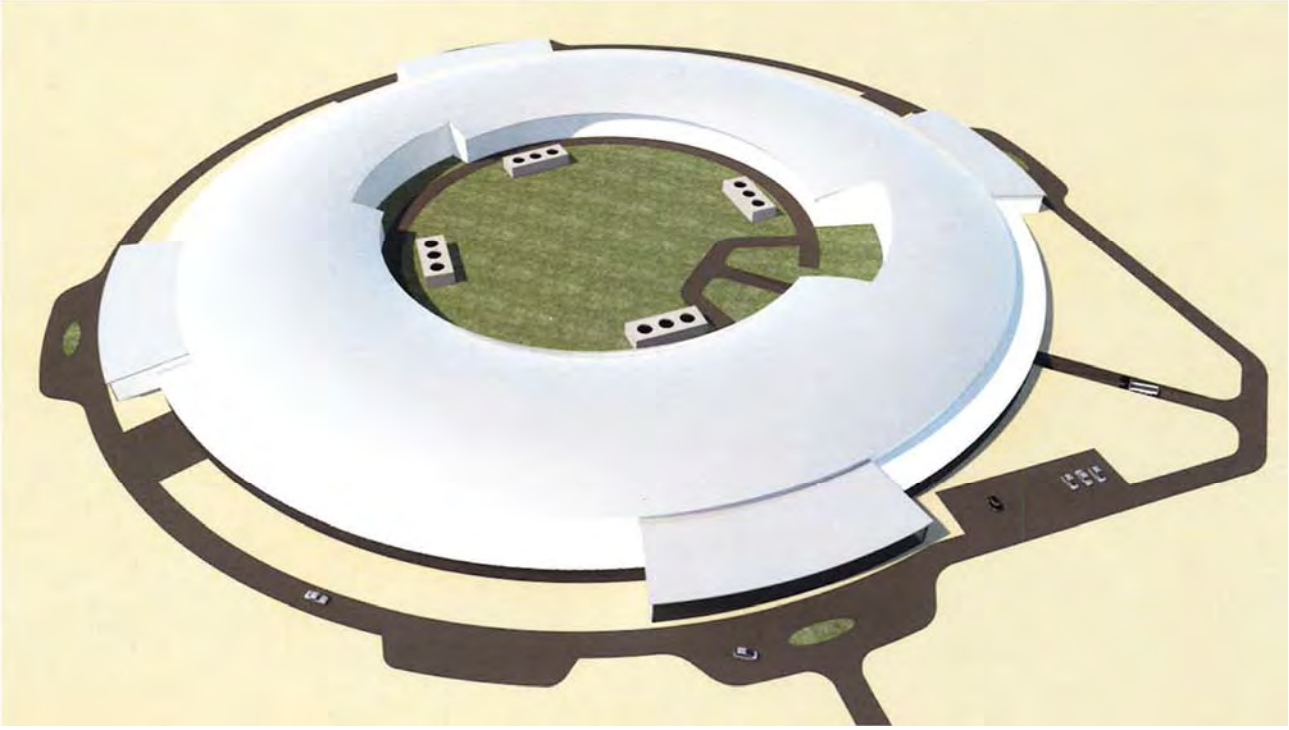


図 9.1　施設建物の概観（鳥瞰図）

9-1. 建物の配置・構成

建物の配置・構成の案を示す。図 9.2 はその平面図である。建物は，光源棟（リングトンネル＋実験ホール），機械棟，保守通路，オフィス，ラボ（外周ラボ，ラボ 1-4）などで構成される。その他，冷却水を外気によって冷却する冷却塔を光源棟内側に置く。

光源棟は周長約 570m の光源リング，入射器（ライナック＋シンクロトロン）及び多数の放射光ビームラインが設置される実験ホールを包含する。図 9.3 に建物の断面図を示す。断面図では，リングトンネル側壁 1m と床のコンクリート厚は躯体 1m 厚＋増し打ちコンクリート厚 40cm，ビームラインの床厚は 60 cm＋増し打ちコンクリート厚 30cm を想定して描いているが，今後の放射線遮蔽計算や振動解析の検討結果やコストパフォーマンス等を踏まえて決定する。これらの床は，地下 30-50 m に存在する N 値（標準貫入試験値）50 以上の層に直接多数の杭（パイル）を通して支持される。実験ホールの床はマットスラブ構造を

採用し，床のコンクリートを厚くして床の剛性を強化する。光源棟は直径 200 m を越える大規模構造であるが，リングトンネルと実験ホールは一体構造にする。ただし，図 9.3 に示されるように，日照，外気温の変化，風雨などによる変形や外からの振動を極力遮断するために，建物の屋根や側壁とは構造的に切り離す。リングや実験ホールと切り離された実験ホール外周は人の移動や物の運搬に使用する。リングトンネルの内側は保守通路を設け，光源リングと入射器用機器のラック類を設置する。図 9.3 には実験ホールとリングの各クレーンも示されているが，実験ホールとリングのクレーンを 1 つの共用クレーンにしてリングトンネルの天井は機器の搬入のために取り外しができるようにする案もある。これとは別に，機器搬入のために光源棟内側と外側を結ぶトンネルが設けられ，機器を搭載したクレーン車等が光源棟内側にアクセスできるようになっている。搬入された機器の多くは，機械棟あるいはリングトンネルなどに最終的に設置されることになる。

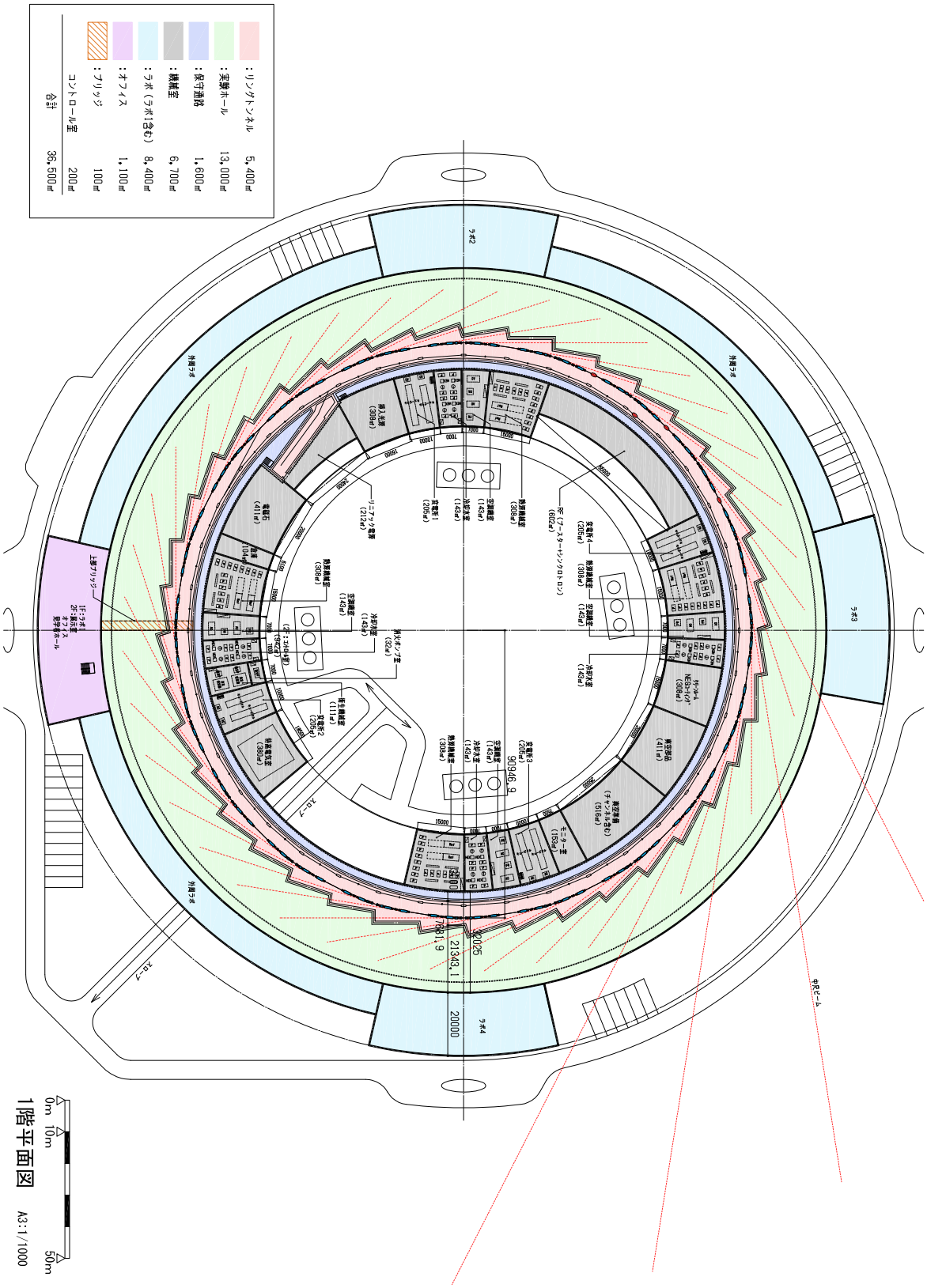

：リングトンネル 5，400㎡
：実験ホール 13，000㎡
：保守通路 1，600㎡
：機械室 6，700㎡
：ラボ（ラボ1含む） 8，400㎡
：オフィス 1，100㎡
：ブリッジ 100㎡
コントロール室 200㎡
合計 36，500㎡
ラボ2
ラボ3
ラボ4
外周ラボ
中央ビーム
上部ブリッジ
1F：ラボ1
2F：事務室
オフィス
実験ホール
20-7
1階平面図
A3：1/1000
0m 10m 50m

図 9.2　建物平面図

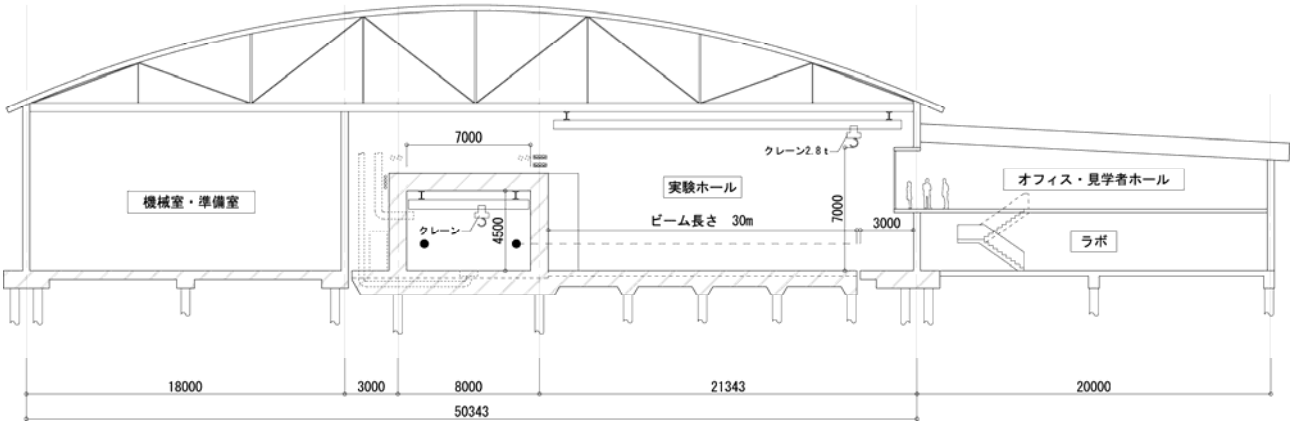


図 9.3 建物断面図

機械棟は，加速器用電磁石及び高周波加速用電源や冷却水などのユーティリティ設備を収納するとともに，大型装置の組立て，性能評価，磁場測定などにも使用する。オフィスとラボは，施設の管理業務や共同利用の運営，試料作成や実験装置の組立てなど放射光実験の準備，実験機器の開発や保守作業などを行うとともに，職員の一部や協力研究者等の居室も提供する。現段階では，キャンパス内での施設配置は確定していないが，つくばキャンパス南側の敷地が候補の 1 つになる（図 9.4）。入射器としては，専用のライナック＋シンクロトロンが有力な案になるが，この敷地では既存電子リニアックを入射器として利用することも可能である。その場合，リング入射点までの入射路は約 200-300 m が想定されていて，大部分が地下のトンネルで光源棟リングトンネルの下を潜り終えてからスロープ勾配約 1/8 で立ち上がり，入射点数メートル手前でリングと同じレベルになってリングと合流することになる。

図 9.4 KEK つくばキャンパス内での施設配置例（円が光源施設）

9-2. 電気・機械設備

9-2-1. 電気設備

電気設備として考慮するものには，特別高圧変電設備，高圧変電設備，装置幹線設備，実験用分電盤設備，建物幹線設備，動力設備，照明・コンセント設備，通信設備，防災設備などがある。設備の設計にあたっては加速器の運転並びに放射光利用実験に適したシステムである事はもちろん，運転コストや環境性にも配慮した設備を目指している。

9-2-1-1. 特別高圧変電設備

現在想定されている KEK 放射光敷地の近くには，図 9.5 に示すように既存の特別高圧変電設備（PS 変電所）がある。現在は変電所の一部しか使用されておらず，この場所の利用が考えられる。ただし，表 9.1 に示すように KEK 放射光用の特別高圧変電設備を PS 変電所内に設置する場合，KEK 放射光敷地内の高圧変電所まで多数の 6.6kV ケーブルを敷設する必要がある。一方，PS 特別高圧変電所を経由して KEK 放射光敷地内に特別高圧変電設備を新たに設置する場合，メンテナンス場所は増えるが，PS 変電所から KEK 放射光敷地内まで 66kV ケーブルのみを敷設すればよく経済的には有利になる。特別高圧変電設備の設置場所に関しては，既存変電所の状況や設備の監視体制なども踏まえて決定することになる。

特別高圧変電システムの形式を表 9.2 に示す。実験系と施設系との 2 系に分離するが，メンテナンスや事故時の対応を考慮すると，予算の許すかぎり冗長化しておく事が望ましい。

図 9.5　既存の特別高圧変電設備（PS 変電所）とその利用

表 9.1 特別高圧変電設備の配置比較

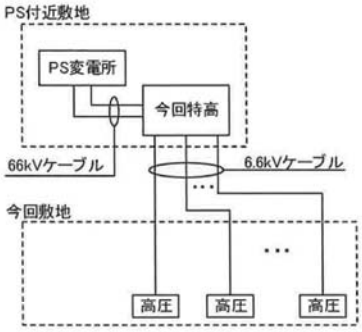
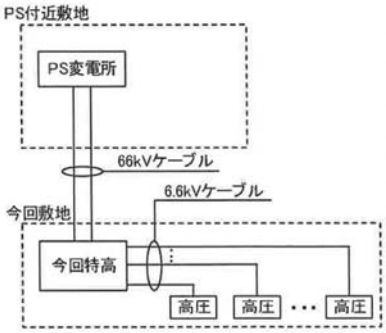
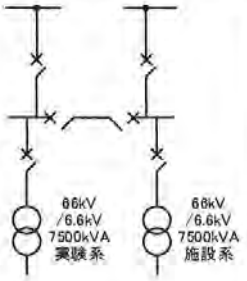
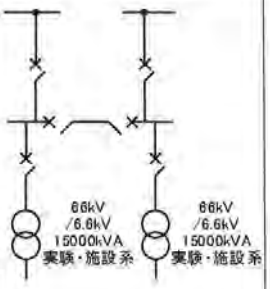
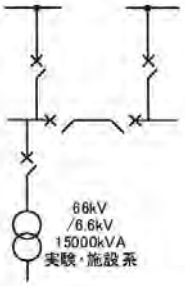
	案Ａ　PS付近	案Ｂ　今回敷地
概要		
メリット	ＰＳ変電所に併設して管理が可能である。	今回変電所までは 66kV ケーブルのみを、構内を通って今回敷地まで敷設すればよい。 今回施設について完結した管理が可能。 コスト的に有利。
デメリット	今回変電所まで 6.6kV ケーブル（変電後であり、本数が相対的に多い）を、構内を通って今回敷地まで敷設する必要がある。 コスト的に不利。	ＫＥＫ全体で見ればメンテナンス場所が増える。
評価	△	○

表 9.2 特別高圧変電設備の形式比較

項目	案① 実験系・施設系分離案	案② 完全二重化案	案③ 実験系・施設系共通案
概要			
メリット	半分の負荷をまかなうトランスがあるため、トランス停止時（メンテナンス・事故等）に施設系のみ冗長化対応できる。	全負荷をまかなうトランスがあるため、トランス停止時（メンテナンス・事故等）に実験系・施設系とも冗長化対応できる。	コストが安い。
デメリット	どちらか１台停止しても、実験は継続できない。	コストが高い。	トランス停止時、施設は停止する。（トランス故障し、交換が必要となると、数か月停止する。）
評価	○ （既存ＫＥＫ施設相当）	○ （コストが許せば最適）	△ （既存施設より劣る）

9-2-1-2. 高圧変電設備

高圧変電設備は建物内側の４ヶ所に設けられた機械室内に設置され，加速器系・実験系共にその当該部分へ電力を供給する。加速器系では各４ヶ所に電磁石用トランスと真空・モニタ制御・挿入光源・基幹チャンネル用のトランスが配置される他，各１ヶ所に RF 用トランスと入射器用トランスが設置される。実験系では，空調機，クレーン，照明・コンセントや研究室用のトランスが設置される。

9-2-1-3. 供給電力

装置への供給電圧としては，三相 400V と 200V，単相 200V と 100V があり，加速器各グループ及びビームライン・実験室からの使用希望電力量の総和は立ち上げ時想定で約 10MW と見積られたが，マージンや重複する部分もあり，今後精査した上で，必要にして充分な容量を決定する必要がある。

9-2-1-4. その他の電気設備

その他に必要となる電気設備としては，電源関係では防災・保守電源用の発電機と電力監視設備が，建物付帯設備としては実験盤，通信設備，接地設備，火災報知設備や外灯などが，さらに安全関連設備としては，放射線管理設備，入退室管理設備などがある。

9-2-2. 機械設備

KEK 放射光は，その性能を十二分に発揮するために高度に安定した運転を目指しており，そのため空調設備および冷却水設備にも高い安定度が求められている。

9-2-2-1. 熱源設備

空調システムや冷却水システムへの冷熱源として，安定度の高いインバーターターボ冷凍機を主体とする。また，冬期の暖房や除湿のための温熱源としてはヒートポンプチラーを使用する。これらの熱源系統は，リングを４つのゾーンに分けて担当するが，共通配管にて接続しメンテナンス時などに相互バックアップが可能なシステムとする。

9-2-2-2. 空調換気設備

加速器トンネルの空調システムは熱源と同様に４つのゾーンに分けられている。トンネル内の設定温度はトンネル各部で異なっていても良いが，安定である事が重要で，温度安定度を±0.1℃以下に保つために，トンネル上部から吸気してトンネル床下から吹き出す方式が提案されている。

実験ホールの空調については温度安定度の要求が±0.5℃以下なので，パッケージ型ではなく空調機方式とし，床面付近で吸気して天井近くのソックダクトから静かに層流として吹き出す方式が検討されている。実験ホール周囲にあるラボはパッケージ空調方式とする。

またビームラインからの可燃性ガス，支燃性ガスとロータリーポンプ排気のために３系統の排気ダクトを整備する。

9-2-2-3. 冷却水設備

冷却水システムは，運転モードや安定度に応じていくつかの系統に分けられる。温度安定度はおおむね±1℃以下であるが，加速器 RF 系など安定度の条件の厳しい系統には別途チラーシステムを設置するなど対策が必要であろう。

9-2-2-4. 給排水設備

給水についてはつくばキャンパス内の既存の井水と市水を本施設に引き込む計画である。井水は PS 変電所南側通り近くを走る共同溝の配管から，市水については PF エネルギーセンターから入射器棟への配管から分岐して使用することが可能である。１日の使用水量は概ね 1000m^3 程度と推定される。また，施設からの生活排水はこれも既存の排水設備を利用する。入射器棟から県道（若森線）北側に排水経路があり，その経路に接続することが可能である。放射線管理区域からの排水は，貯留してチェックした上で一般排水に放流する。図 9.6 に給排水設備の概念図を示す。

9-2-2-5. 消火設備

施設の消火設備は，屋外消火栓及び屋内消火栓を計画する。特別高圧変電設備にはガス消火設備を設置する。

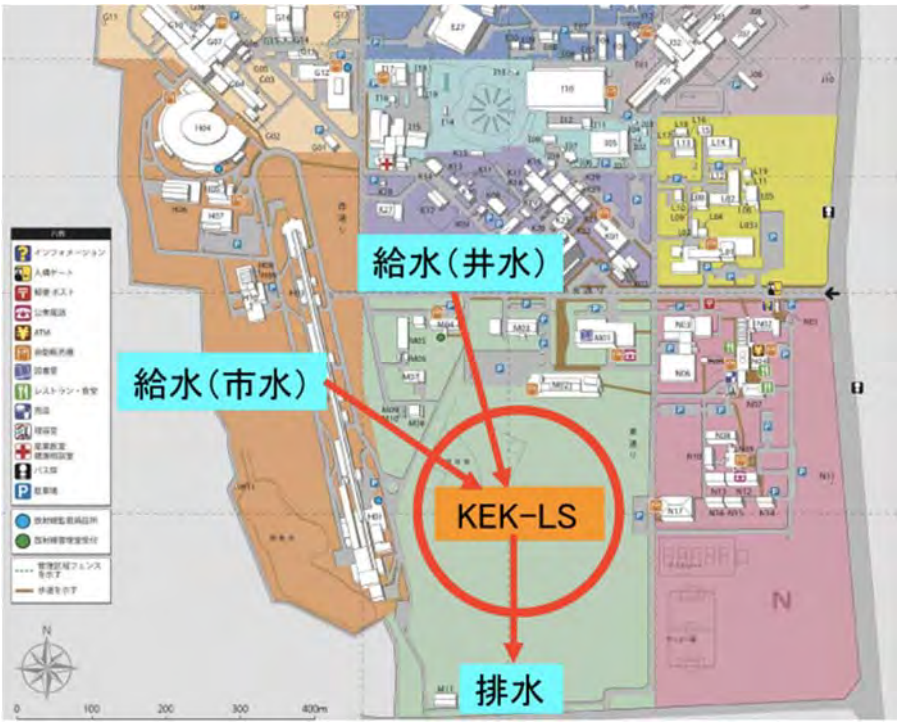


図 9.6　給排水設備

9-3. 建物床の振動測定

本リングのような高輝度光源において光源の高い輝度や小さなビームサイズを有効に利用するために，ビーム位置の高い安定度が要求される。ビーム位置の安定度の要件としては，本リング内での最小の電子ビームサイズは約 3 μm（垂直方向）であるので，その 10%である 0.3 μm 以内にビーム変動を抑えることが 1 つの目安となる。水平方向については最小でも 10 μm 以上なので 1 μm 程度で十分である。ここでは，以前行われたつくばキャンパス内の建物の床振動測定の結果を示し，地盤の常時微動によるビーム変動への影響についても触れる。

まずは, 図 9.7 と図 9.8 につくばキャンパス地下にある KEK-B の 2 カ所の電源棟 D3,D9 での垂直方向の振動測定の結果を SPring-8 の地上 2 カ所での結果と比較して示す[9-1]。それぞれ 2002 年 12 月と 2003 年 6 月の運転停止期間中にサーボ型振動計（東京測振 VSE355G2）によって測定された。図 9.7 は振動のパワースペクトルで，図 9.8 は振動の累積変位である。図 9.7 でわかるように 2 つのピークが見られる。1 つは 3Hz 付近にある交通振動などの人工的な雑音（cultural noise）を原因とする関東ローム層の固有振動ピーク，もう 1 つは 0.2-0.3 Hz 付近にある波浪を源とする深い地層での固有振動ピークである。ただし，後者は数百メートル以上に渡りほぼ同じ位相を持つコヒーレント振動であることから，本施設への影響はほとんどないと言っていい。他方，前者は 2 点間の距離にも依るが，施設内の場所によって位相が異なるインコヒーレントな振動成分を多く含んでいると考えられる。図からもわかるように人工的な振動源が原因なので昼間の方が夜間よりも大きくなる。また，交通振動の影響のために大通りに近い D3 が D9 よりも振動がやや大きい。SPring-8 との比較では，KEK-B では 0.1-50 Hz の帯域で振動の盛り上がりが見られる一方，0.1 Hz 以下では大きな差はないことがわかる。図 9.8 を見ると，KEK-B での振動の累積変位は昼夜の差こそあるものの，1-50 Hz のインコヒーレント振動で 0.1 μm 前後であることがわかる。

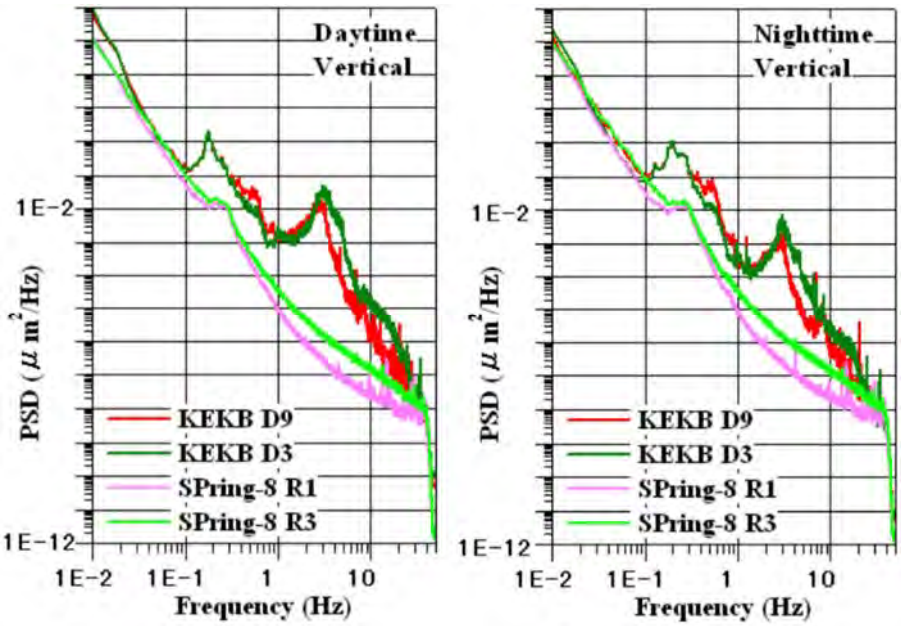


図 9.7 KEK-B と SPring-8 における垂直方向の振動のパワースペクトル測定結果。左は昼間，右は夜間での測定である。

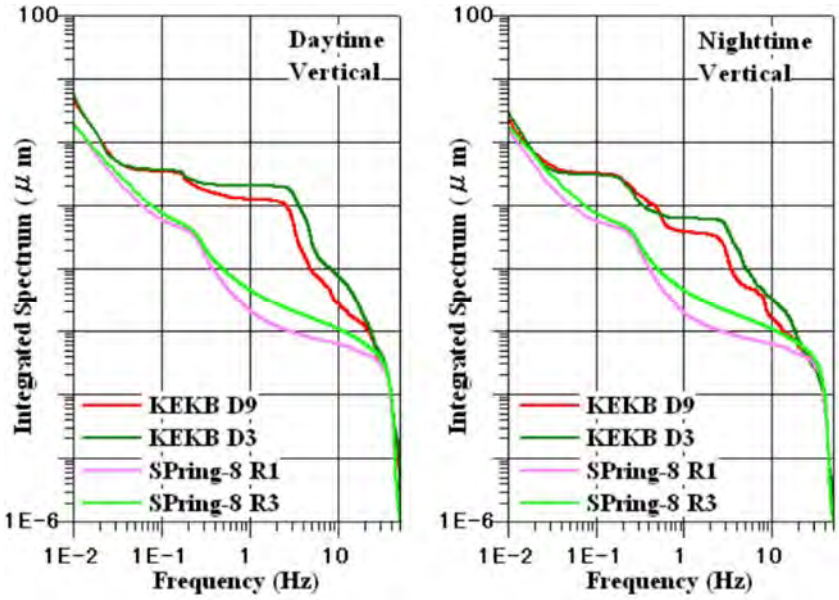


図 9.8 KEK-B と SPring-8 における垂直方向の振動の累積変位。左は昼間，右は夜間での結果である。

図 9.9 には，同じく KEK つくばキャンパスにある ERL 開発棟の床面で 2013 年 3 月 8 日に測定された 3 方向の振動のパワースペクトルとその累積変位を示す。小型サーボ型振動計（東京測振 VSE-15D）で測定された。ここでも波浪を起源とする 0.4 Hz 付近のコヒーレント振動のピークと人工的な振動源による 3 Hz 付近の振動ピークが KEK-B の測定結果と同じように見られる。測定時期やキャンパス内での場所の違いはあるが，振動スペクトルの強度も非常に近いこともわかる。1-100 Hz の振動成分を積分した累積変位はおよそ 0.1 μm 前後であり，これも KEK-B での垂直方向での累積変位の測定結果とおよそ一致していて矛盾はない。

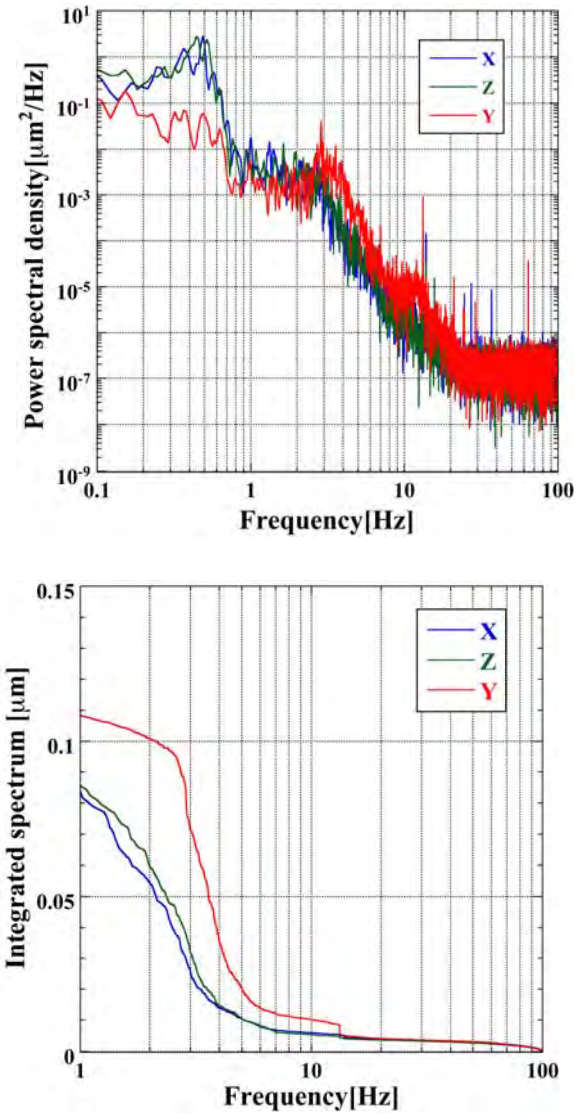


図 9.9 ERL 開発棟の床振動のパワースペクトル（左）と累積変位（右）の測定例。図中の Y は垂直（鉛直）方向の変位，X, Z は床面と平行の 2 方向成分である。

以上の振動測定の結果から，KEK つくばキャンパス内での建物床振動は，時間帯での多少の差はあるが，1 Hz 以上の累積変位において水平・垂直方向共に 0.1 μm 程度であることがわかる。これは, 0.3 μm 以内というビーム位置の安定度の目安を十分に満足している。振動の波長がビームライン光学系の長さやリングのベータトロン振動の波長よりも大きければ，1 Hz 以上の振動成分でもその影響は実質的に小さくなる。1 Hz 以上の振動成分の内，どれだけの割合がリングやビームラインに実効的に有害な振動成分であるかを今後調べていく。また, 建物等の設計によって地盤からの振動を減衰させることも検討する。一方, 床振動はリング電磁石あるいはビームライン機器の架台の共振によって増幅するので，その設計・製作には注意が必要である。ERL 開発棟に建設されたコンパクト ERL（cERL）では構造解析を通して共振周波数が高く振動の増幅度が小さい弧部共通架台を開発した[9.2]。また，PF の放射光ビームラインの一部でも剛性の高い御影石をベースとした架台が採用され, 振動の減少に貢献した[9.3]。このような架台の検討を行うことで建物床振動の架台による増幅率を 1 に近づけることができる。架台の振動増幅がなくても，リング床の振動は電磁石振動を通して主に 4 極磁場の変動によって電子ビーム軌道を揺らし，その軌道変動の大きさは電磁石振動の大きさに対して増幅される。この軌道変動は高速高精度の軌道フィードバックシステムを用いて 0.3 μm 以内に抑える予定である。1 Hz 以下の振動成分については既に述べたように施設全体に渡って位相が揃ったコヒーレント振動が主であるのでビーム変動への影響はほとんどない。さらに低い周波数成分（< 0.1 Hz）は，コヒーレント振動の他に地盤の長期的な変動[9.4]によるものが考えられるが，フィードバックなどの軌道補正や定期的なアライメントの実施などで対応する。この他, 建物内の機械的振動や建物近傍での交通振動などの地盤の常時微動以外の振動や変形に対する評価・対策も，建物や光源・ビームラインの詳細設計と並行して今後進めていく。

9-4. 光源棟の基礎構造と床構造の検討

ここでは, 光源棟建屋の基礎構造及び床構造の検討, 必要な地盤調査などについて検討を行った結果を報告する。基礎構造においては杭基礎と地盤改良による基礎, 床構造においては床梁構造とマットスラブ構造を比較検討する。

9-4-1. 基礎構造の検討

図 9.10 に示す KEK つくばキャンパス内のボーリングデータを見ると，当該敷地の地盤層序は表層 12～13 m 程度の埋土層の下に N 値の高い成田層砂層（Ds2 層）が出現するが，その層厚は 5m 程度であり，その下には N 値の低い成田層粘性土層(Dc2 層)が 20 m 程度堆積する。N 値が 50 程度で安定した下総層群下部礫質土（Dg 層）は，地表から 35 m 程度より下部で出現する。

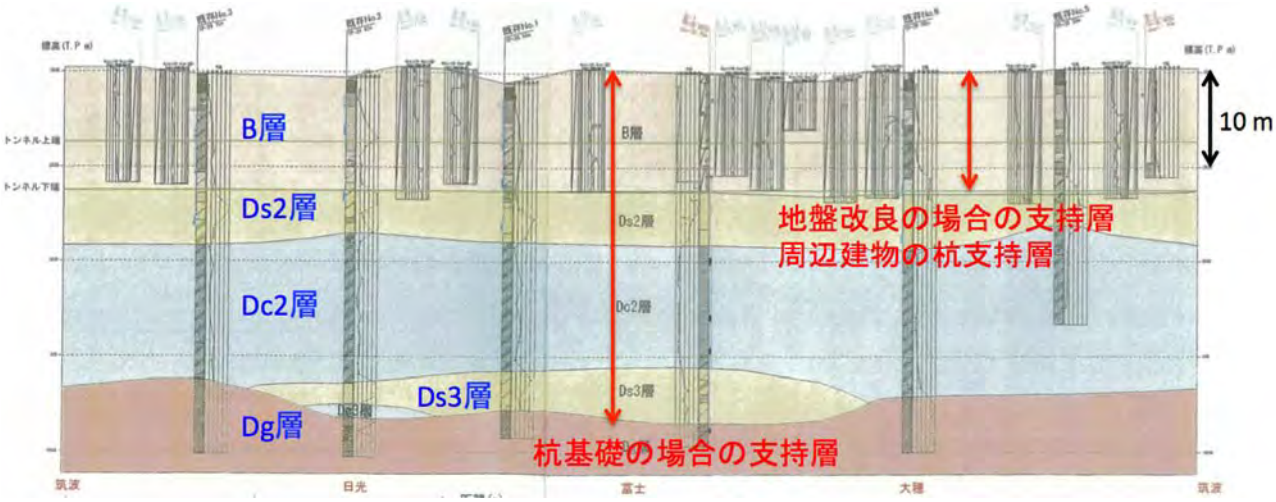


図 9.10　KEK つくばキャンパス内の地盤構成と基礎構造支持層の例

つくばキャンパスの地盤構成をもとにした 2 つの基礎構造に関する検討結果をそれぞれ以下に示す。

(1) 杭基礎

- 比較的軽量な建築物であれば，Ds2 層を支持層とすることが可能である。ただし，Ds2 層は地震により微小ながら沈下する（振動を受けることで締め固められる）と言われている。
- 安定した N 値が発現する Dg 層を支持層とすれば，比較的安定した性状が得られると思われるが，杭長が長くなることにより，杭の変形分は相対的に大きくなる。
- 杭基礎の場合は一般的に，杭先端位置に集中的に荷重が掛かるため，直接基礎に比べて支持地盤の変形が大きくなる傾向にある。岩盤のような支持層であれば変形しないと言えるが，Dg 層は岩盤とは言えないため，支持層といえども若干の変形は生じるものと思われる。
- SACLA の計測結果では，経年の沈下は杭長(=盛土厚)に比例する傾向にある[9.5]。ただし，つくばの地盤構成は概ねフラットであることから，杭長がほぼ同一であれば，建物の沈下量もほぼ一様であると考えられる。

(2) 地盤改良

- Ds2 層を支持層とし，表層である埋土層を地盤改良する。
- 地盤改良は杭基礎と異なり，面として建物を支持することで深さ方向に荷重の広がりを考慮することができること，地盤改良の剛性は杭基礎よりも大きいため，杭基礎よりも沈下しにくいと言える。
- ただし，地震時に Ds2 層が微小ながら沈下した場合には抵抗できない。

・ Dc2 層は比較的年代の古い層であるため，圧密は完了していると思われるが，確認が必要である。

杭基礎の場合の支持層位置の選定，地盤改良の遥択にあたっては，下記条件を考慮して，設計段階で比較検討の上決定する。

・ 加速器トンネル，実験ホール，その他の積載荷重
・ 加速器トンネル，実験ホール，その他の沈下（床の変形）に対する要求性能
・ 地盤調査結果

また，杭・地盤改良に対してコストイメージを算出すると，概略では以下のようになる。

(1) 杭基礎

杭基礎：英国の放射光施設 DIAMOND に準じて，600ϕの杭を@3m×3m で設置するものとする。（L=40m，杭の長期許容先端支持力：約 1000kN/本）

杭工事費：約 600 千円/本 → 約 67 千円/m²

(2) 地盤改良

杭基礎と同程度の地耐力を確保するものとして地盤改良を設定。地盤改良深さは 15m として設定する。

1000kN/本/（3m×3m） → 約 100 kN/m²

杭工事費：約 90 千円/m²

同一の支持力度を確保する前提で算出すると，上述のように杭よりも地盤改良のコストが高くなる。ただし，杭基礎よりも地盤改良の方が鉛直剛性が高まると言えること，マットスラブも点支持から面で支持されることになるため，マットスラブの剛性も相対的に高まるなどのメリットもあるため，設計段階で再度比較検討を行う必要があると考える。

9-4-2. 床構造の検討

床構造としては，実験ホールを床梁構造とする場合，マットスラブ構造とする場合の 2 つのケースが考えられる。図 9.11 に 2 つの床構造を示す。以下の理由により，本計画の光源棟の床構造としては，マットスラブ構造が妥当であると判断する。

- 外部からの振動（交通振動など），内部での振動（重機・クレーン等による振動）に対しては，床の重量効果による抵抗がもっとも有効であるため，床構造の重量を「かせぐ」ことが可能なマットスラブ構造の方が振動に対して有効である。
- 近年では躯体工事のうち，労務単価の上昇に伴い型枠工事費が上昇している。したがって，型枠がほとんど不要なマットスラブ構造の方がコストの面でも合理的である。
- 海外の放射光施設の事例を表 9.3 に示すが，いずれもマットスラブ構造である。

なお，マットスラブ厚については，基礎計画（杭⇔直接基礎）や上部積載荷重，振動に対する要求性能及びコストを総合的に勘案して設計段階で検討を行う必要がある。

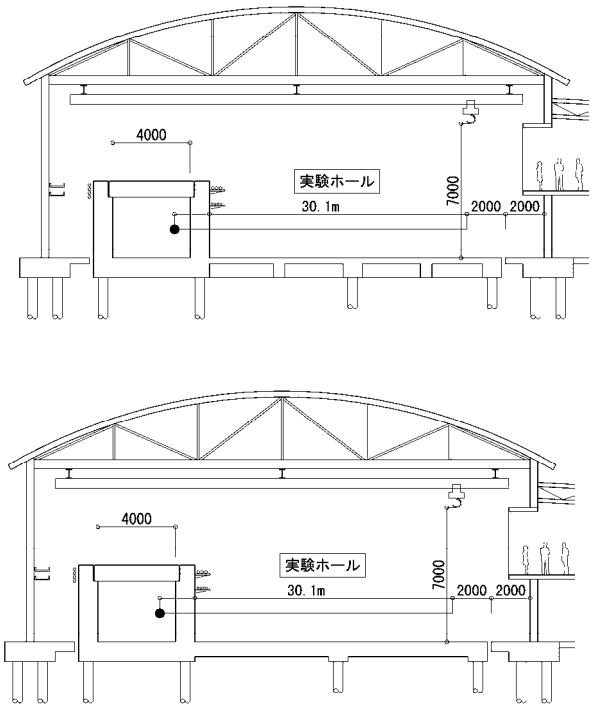


図 9.11　床梁構造（左）とマットスラブ構造（右）

表 9.3　海外放射光施設のコンクリートスラブ厚

放射光施設	加速器トンネル部	実験ホール	備考（床スラブ下の構造）
DIAMOND*1	850mm	600mm	50mm ボイド 杭(600ϕ)@3m
SOLEIL*2	950mm	750mm	50mm ボイド 杭 SR:800ϕ，EH:600ϕ
ALBA*3, *4	1000mm	1000mm	stone（砕石と思われる，1.7m）転圧
PETRA Ⅲ*3	-	500mm+500mm(フ ァイ	old concrete（再生砕石と思われる，2.0m）転圧
ESRF EX2*3	-	350mm	Rollcrete(550mm)
MAX Ⅳ*5	300mm	300mm	Stabilized UGM(300mm)
Sirius*6	900mm	600mm	ソイルセメント(2.7～3.0m)

*1 : ref.[9.6]，*2 : ref.[9.7]，*3 : ref.[9.8]，*4 : ref.[9.9]，*5 : ref.[9.10]，*6 : ref.[9.11]

9-4-3. 床スラブ下のボイドの有効性検討

杭基礎を採用している DIAMOND や SOLEIL ではコンクリート床のマットスラブと地盤の間に 50mm のボイド（空洞）を設けている[9-8]，本計画で杭基礎を採用した場合にこのようなボイドが必要かどうかを検討した。

DIAMOND でマットスラブ下に 50mm のボイドを設けている理由は，地下水変動が大きい（年間 10m オーダーで変動）ことに起因する地盤の膨張・収縮に対する配慮からである[9-6]（SOLEIL におけるボイドの設置理由は不明である）。これに対して，Sirius では計画段階で，DIAMOND タイプの基礎構造と MAX Ⅳタイプの基礎構造の実大実験を行い，DIAMOND タイプでは減衰効果が期待できず，重量効果が大きく振動の減衰が期待できる MAX Ⅳタイプが有効と判断している[9-11]。

以上を考慮すると，本計画で床のマットスラブ下にボイドを設ける必要があるかどうかは，地下水変動が大きいかどうかに依存する。そのため，計画地付近においても地下水変動について既往の資料を確認するか，今後実施する地盤調査において地下水変動を観測することが望ましい。なお，つくば市北郷の国土地理院構内にある地下水観測井戸の観測記録及び GPS の観測記録より，深度 40～200m の帯水層の季節変動に伴うと考えられる地盤変動がある，との報告がある[9-12]。したがって，計画地付近においても地下水変動，場合によっては GPS 等による地盤変動の観測の確認を行って地盤変動の影響を把握した上で，振動に対する性能も合わせて考慮し，基礎・基礎下構造を選定する必要がある。施工面では在来工法で基礎を施工する場合は，基礎下に 50mm の空洞を設けることは難しく，剛性の低い材料を敷設することが現実的と考えられる。または，プレキャストコンクリートを採用することで基礎下のボイドを設ける工法も考えられる。したがって，基礎下にボイドを設ける設計とする場合は，工法も含めて検討が必要である。

9-4-4. 地盤調査計画

本計画にあたり，床の変形ならび振動性状の把握及び上部構造基礎の選定に必要な調査として以下が挙げられる。

(1) 土質調査

- 標準陥入試験(ボーリング)
- 室内土質試験
- PS 検層： 地盤の弾性剛性を確認
- 常時微動測定： 地盤の周期等を確認
- 地下水変動測定： 実施する場合は最低 1 年間は実施する必要あり（季節変動を見る目的)。

(2) 周辺の振動に対する調査

- 交通振動の測定（建設地近傍における既存の測定情報があれば省略可）

(3) 既存施設を用いた振動調査

- KEK つくばキャンパス内の既存建物を用いて，建物外での加振（衝撃加振，トラックの走行など）に対して建物内の 1 階床及び周辺地盤の振動測定を行う。その結果を利用して，マットスラブ厚の違いによる床の応答を解析的検証によって推定することが可能である。

9-4-5. 床構造と上部建屋基礎部の分離・一体化に関する検討

加速器トンネル部, 実験ホール及び周辺施設の躯体の分離/一体の違いについて検討した。まず, 表 9.4 に, 海外の放射光施設の躯体の分離状況についてまとめる。表にある施設では。加速器トンネル部(SR)・実験ホール(EH)と，周辺施設については全て分離されていることが分かる。周辺施設には SR・EH を覆う上部架構（鉄骨造）が含まれるが，周辺施設（車両動線含む）からの振動やクレーンの振動を SR・EH に伝達させないためにも，SR・EH と周辺施設は分離されるのが一般的である。また，SR・EH と周辺施設を分離することにより，基礎形式を用途・要求性能に応じて変えることも可能である。

表 9.4　海外放射光施設の SR 及び EH と周辺の分離/一体化の例

施設名	概要
DIAMOND*1 (UK)	SR と EH は一体。周辺の内側・外側のエリアと SR+EH は分離。 SR+EH：杭基礎　⇔　周辺：直接基礎 床レベルの計測(HLS:Hydrostatic Levelling System)により，外周架構に設置される 29ton クレーンの振動は，外周架構のセンサーで 20μm，EH の外周近傍であるセンサーで 8μm と変位が大きいが, EH 中央部付近のセンサーでは 1μm であり，EH の外端には有害な影響と結論付けている。一方，外周動線上のフォークリフトの走行は，EH に有害な影響を及ぼさないことを確認している（外周架構内のセンサーは 48μm の振動検知)。
SOLEIL*2 (FRANCE)	SR と EH は一体。周辺の内側・外側のエリアと SR+EH は分離。 SR+EH：杭基礎　⇔　周辺：直接基礎
NSLS-Ⅱ*3 (USA)	SR と EH は一体。外周とは分離。
Sirius*4 (BRAZIL)	SR・EH・周辺を全て分離。 （SR・EH 間はスリップバーにより鉛直方向のずれ止めを設けている模様）

*1：ref.[9.6]，　*2：ref.[9.7]，　*3：ref.[9.13]，　*4：ref.[9.11]

次に，SR・EH と周辺施設の基礎構造は分離することを前提にした SR と EH 部の躯体の分離方法について 3 つのケースを検討した結果を以下に示す。

(1) SR・EH を全面一体とした場合

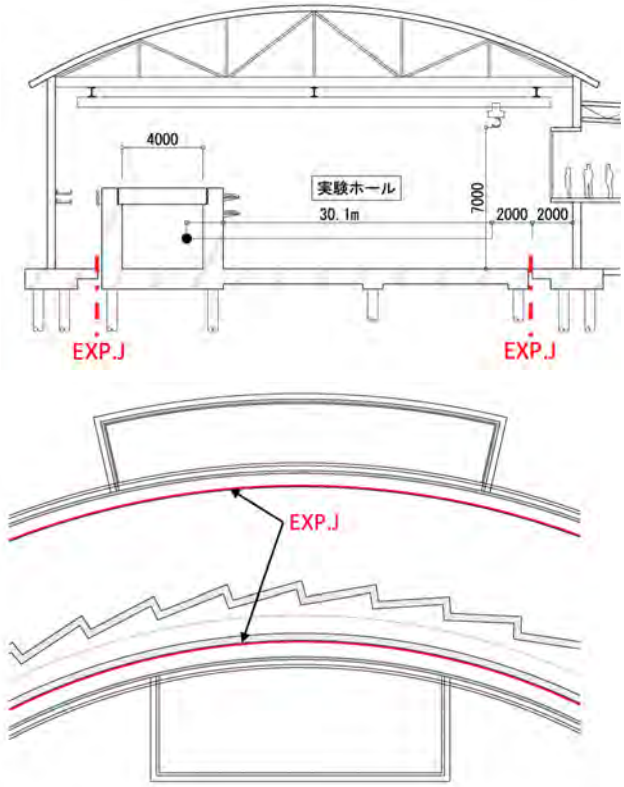


図 9.12　SR・EH を全面一体とした場合の断面図（左）と平面図（右）

本案は, 図 9.12 のように SR･EH 部には全くエキスパンションジョイント(以下, EXP.J) を設けずに一体としている。この場合の特徴を示す。

- SR･EH を一体としているため, 沈下等に対して一体として挙動することが可能である。
- 内部・外部の振動に対して，大きな重量で抵抗することが可能である。
- 周長約 600m の巨大な躯体を一体とするため，コンクリートの乾燥収縮によりひび割れが発生しやすい。特に壁が多く拘束効果の高い SR 部に対して，相対的に剛性の低い EH 部にひび割れが集中しやすい。
- ひび割れを均質に設けるため，誘発目地の設置等，配慮が必要となる。
- コンクリート打設時にコンストラクション・ジョイント（後打部分）を設ける必要があるなど，工期に対して制約が生じる。

(2) SR・EH を一体とするが，EH 内には EXP.J を設ける場合

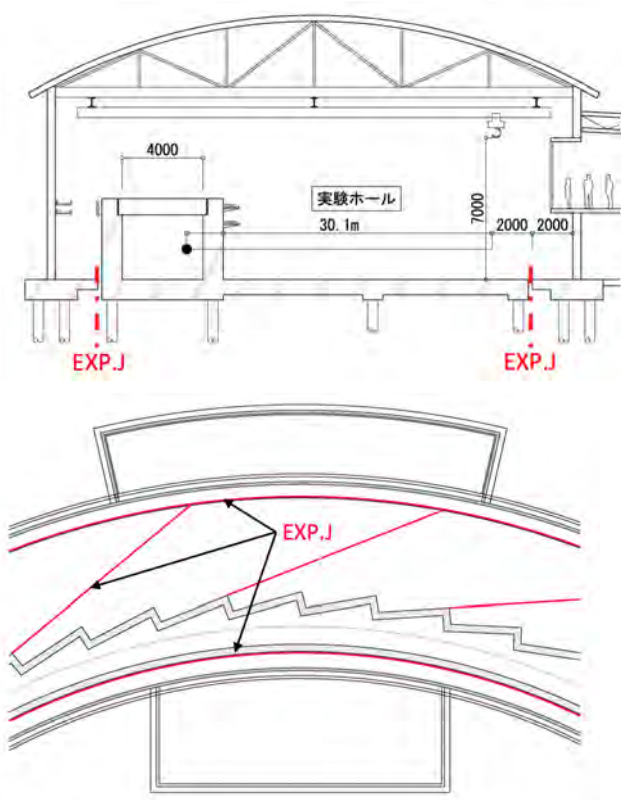


図 9.13　SR・EH を一体として EH 内に EXP.J を設ける場合の断面図（左）と平面図（右）

本案は図 9.13 の右側に示すように，(1)に加えて，ひび割れが発生しやすい EH 邪の円周方向に一定ピッチで EXP.J を設ける案である。

- SR・EH を一体としているため，沈下等に対して一体として挙動することが可能である。
- EH 部は外部からの振動に対して，(1)に比べて重量効果は低減するが，内部からの振動に対しては，EXP.J よりも外側の振動は伝達されにくい（自分の実験エリア以外の領域の振動を拾いにくい）。
- 円周方向の収縮に対しては，EXP.J を設けることでひび割れが発生しにくい。一方，放射方向は長さが短いため，EXP.J を設けなくても乾燥収縮に対しては大きな問題は生じないと考えられる。

(3) SR と EH を分離して EXP.J を設ける場合

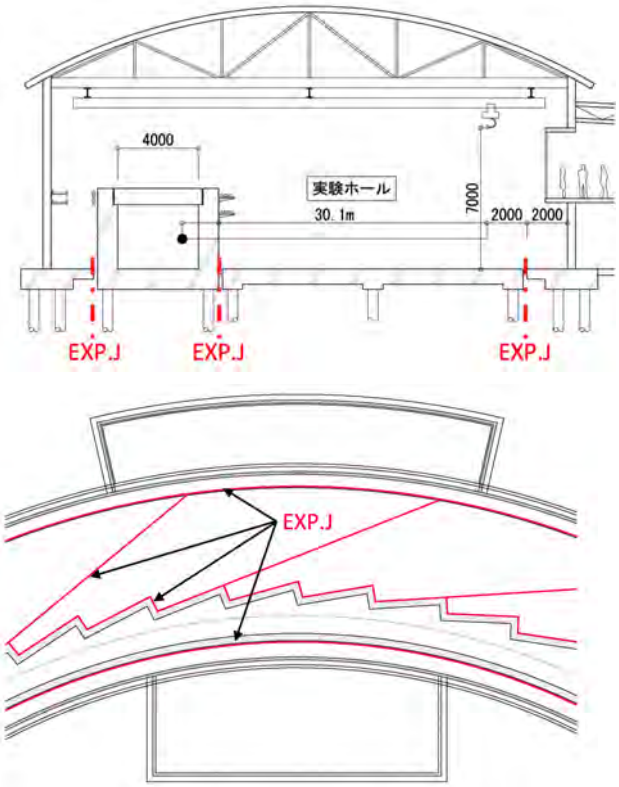


図 9.14　SR と EH を分離して EXP.J を設ける場合の断面図（左）と平面図（右）

本案は図 9.14 に示すように，(2)に加えて，SR と EH の境界部に EXP.J を設ける案である。

- SR と EH を分離することにより，もっとも振動・沈下に対して繊細な SR 部を外的要因から隔離することができる。
- SR と EH で振動・沈下に対する要求性能が異なることが想定されるが，それぞれの部位に応じた設計をすることが可能である。特に，地盤条件が良いとは言えないつくばキャンパスにおいて，例えば SR 部の沈下に対して集中的に沈下対策するなどを行うことが可能になる。
- 放射方向の乾燥収縮についても，EH 部の収縮による影響を SR 部に伝えないようにすることが可能である。
- 場所によって積載荷重が大きく異なる場合，場所ごとに荷重に対応した設計が可能になる。
- EXP.J 部を図 9.15 のようなスリップバーを用いた納まりとすることで，沈下差に対してずれは許容しない（傾斜は許容する）設計をすることができる。

図 9.15　スリップバーを用いた EXP.J 部の構造

設計段階では，各部要求性能を考慮して各案を再度比較検討した上で，総合的な見地に立って最良の手法を採用すべきである。なお，参考までに既存施設の要求性能の例を表 9.5 に示す。

表 9.5　既存放射光施設の要求精度

施設名	概要
DIAMOND*1 (UK)	集中荷重：　5kN 載荷位置：　6μm 以下，　2m 離れた地点：　1μm 以下 短期間の変形 10m あたり 1μm（1 時間あたり），　10m あたり 10μm（1 日あたり） 長期間の変形（1 年あたり）
ESRF*2 (欧州)	2 人歩行（3m 間隔）：　0.5μm 以下 フォークリフト（10m 離れた地点）：　2μm 以下かつ 200nrad 以下 12 時間の温度変化：　2μm 以下かつ 200nrad 以下 外気温 20 度変化：　1μm 以下かつ 100nrad 以下

*1：ref.[9.6]，　*2：ref.[9.8]

参考文献

[9.1] Y. Nakayama et al., Proc. of EPAC2004, Lucerne, Switzerland, pp.1711-1713 (2004).

[9.2] 石井篤,「cERL 弧部共通電磁石架台の構造解析」, KEK Internal Report 2014-8, March 2015.

[9.3] Photon Factory Activity Report 2014, **32**, pp.92-93 (2014).

[9.4] V. Shiltsev, "Space-Time Ground Diffusion: The ATL Law for Accelerators", DESY-MPY, Notkestrasse 85, 22603 Hamburg, Germany.

[9.5] H. Kimura et al., Proc. of IWAA2014, IHEP, China (2014).

[9.6] J. Kay et al., Proc. of MEDSI 2008, CLS, Canada (2008); J. Kay et al., Proc. of IPAC2011, San Sebastian, Spain, pp.562-564 (2011).

[9.7] J. M. Filhol et al., Proc. of EPAC2004, Edinburgh, Scotland, pp.2723-2727 (2006).

[9.8] D. Martin, Proc. of IWAA2012, Fermilab, USA (2012).

[9.9] D. Carles and L. Miralles, Proc. of MEDSI2008, CLS, Canada (2008).

[9.10] M. Eriksson, Proc. of IPAC2016, Busan, Korea, pp.11-15 (2016).

[9.11] R. Newenschwander, Proc. of EPAC2015, Richmond, USA, pp.1308-1312 (2015).

[9.12] 飛田幹男他，測地学会誌，第 50 巻，第 1 号，27-37 頁 (2004).

[9.13] NSLS-II Conceptual Design Report (2006).

８．ビームライン技術

１．はじめに

KEK 放射光は，長年待ち望まれていた超低エミッタンス光源である。本章では、KEK 放射光で得られる高輝度ビームや高コヒーレント光を、安定、安全かつ広範に利用可能にするためのビームライン技術の検討を行う。本 CDR の５章「サイエンスケース」と６章「産業利用」には、KEK 放射光の高輝度性や高コヒーレント性を活かした新しいサイエンスや産業利用の提案が数多く寄せられている。各提案の「（３）必要とされるビームライン・実験設備」に必要なビーム性能がまとめられているが、幅広いビーム性能が要求されている。これらの要求を前提として、ここでは３つの重要なキーワード，すなわち輝度向上によるナノ集光ビーム（空間分解能~10 nm）や，高エネルギー分解能ビーム（ΔE ~10 meV@1 keV），さらには超低エミッタンス光源の最大の特長であるフルコヒーレント光について焦点を絞って検討を進める。

本章の構成は以下のようになっている（数字は節番号）。

１．はじめに
２．ビームライン光学系デザイン
　標準的な硬 X 線（10keV）、軟 X 線（1keV）ビームラインの光学系と性能評価
　（高輝度性を活かした３つのキーワードに沿ったものを検討）
　究極のナノビーム技術で到達可能なビームサイズの検討
　サイズ可変機能、SX-HX ハイブリッド、エラーや振動等の影響の見積
３．光学素子開発
　熱負荷シミュレーションと適切な冷却デザイン
　高剛性／耐振動架台の設計（光学素子やホルダーの小型化、剛体化等）
　振動源の分離（適切な除振台設置、振動伝播抑制等）
　光学素子性能の評価システム
４．ビームライン設備
　熱変動抑制（排熱システム、適切な高精度温調システム等）
　冷却水や液体窒素のダンパー機能、その他のノイズ除去
５．ビーム制御技術
　白色／単色ビームモニタとビーム位置フィードバック
　波面計測モニタと補正制御システム
　環境測定データ収集と各種連携制御

６．ビームライン真空系開発

静的真空コンポーネントの開発、ポンプの除振対策

光学素子表面汚染の除去方法開発

７．インフラ設備

実験ホール床の高剛性化、実験ホール空調設備や排熱系の設計

各種施設供給配管／配線の検討、ユーティリティ施設の検討

８．安全設備

放射線遮蔽とインターロック、集中管理システム

実験系との連携システム

高輝度ビーム利用で課題となってくるのが外的要因による変動の抑制で、特に振動対策と熱負荷対策が重要である。振動対策については、まず仮想光源光学系とコンパクトな最終集光系をベースとした光学系デザインを採用する。仮想光源スリットや発散角制限スリットで、ビームを数ミクロン程度に絞ることで、上流部の変動の影響を下流の最終集光系に伝播しないようにし、また大きなアスペクト比の縮小光学系を組むことで、ビーム位置の変位を最小限にできる。また、最終光学系をコンパクトにして試料と同じステージに搭載することで、光学系と試料位置の相対位置変動を抑えることができ、また小型化により高い表面精度の光学素子の製造が可能になる。また、高コヒーレント光を得るためにはビーム切り出しが必要になるが、発散角制限スリットや仮想光源点で切り出すことにより、効率的かつ安定にフルコヒーレント光が得られる。

光学素子への振動伝播を最小限に抑えるためには、まず土台となる基礎構造や床構造の剛性が一番大事である。設計と構造計算を繰り返すことで、振動特性や変形特性を最小限に抑える検討を実施する。ただし、振動源を完全にゼロにすることはできない。そのため、振動に強い光学素子架台や、小型ホルダー・チェンバーの設計が重要となる。耐振動と言う観点からは、共振点を高周波側に持って行くことが効果的であり、振動計算とテストベンチでの検証を繰り返すことにより、振動の影響を最小限に抑えた設計を実現する。

真空ポンプや空調設備、制御機器等の外部振動源からの変動抑制も重要である。静的な真空ポンプの開発、振動源そのものを離す、あるいは適切に除振することを検討し、光学素子本体への振動流入を抑えることを検討する。外部環境の変化もビーム位置に大きく影響を与えるため、排熱ブースや高精度温調ブースの設置、基礎構造の切り分け等の対策を実施する。

上述のように、光学素子への振動対策を最大限実施するが、それでも完全にはビーム位置の不安定性を排除することができない。そのため、ビーム位置モニタとフィードバック

システムの開発を進める。白色セクションではリング軌道フィードバックシステムと連携することで、光源の不安定性をなるべく取り除き、単色セクションではより精細にビーム位置を制御し、仮想光源点でのビーム変動をサブミクロン以下に抑えるシステムを開発する。以上の対策を取ることで、ナノビームや高コヒーレント光を安定に利用できると考えている。

ビーム位置を制御できるようになったとしても、ビームに起因する熱変形の問題が残る。本章では、「２．光学素子開発」の項で、FEA 解析による熱変形の見積もりを行った。熱変形を完全に抑えることは不可能なので、性能劣化が 20%となる指標、Er(20%)を導入し、その指標をクリアする条件を見積もった。VUV-SX ビームラインではスリット及び多段ミラーにより少しずつ熱負荷を取り除くことしかできないと思われる。特に第一ミラーの熱変形は重大で、現在は液体窒素冷却あるいは直接冷却のミラーシステムの導入を検討している。硬 X 線ビームラインでは分光器第一結晶の熱負荷が一番問題となり、フィルターの活用を検討する必要がある。熱変形を最小限に抑える光学系や光学素子の設計を検討するが、完全に抑えることはできないので、得られたビームから波面計測を行う方法や光学素子表面の変形を光学的に計測することで熱変形の様子を計測する手法についても検討を行う。また、その結果をフィードバックする補正ミラー光学系についても検討する。

標準化あるいはクラス分けも重要ではあるが、まずはビーム利用のニーズに合ったデザインや技術の検討を行う。その検討をもとに具体的な詳細設計に進むことになるが、その際には、標準化やクラス分けを含めて改めて検討を行う。また、振動源や熱源を適切にコントロールするために、全体での運用ルールや最終形を意識した全体設計が非常に重要であることは自明である。以下、各節で設計コンセプトの詳細について述べる。

２．ビームライン光学系デザイン

KEK 放射光は超低エミッタンス光源を目指しており、またエンドステーションでの利用分野ではマイクロ/ナノビーム利用やコヒーレンス利用、高エネルギー分解能実験が重要となっている。特に、マイクロ/ナノ集光ビームの分解能にはエンドステーション直前でのビーム集光光学系が最重要であるが、実用上は（コヒーレンスでなく）ビーム輝度を損なうことなく輸送する技術が必要となる。すなわちビームライン光学系におけるエミッタンス保存性である。

想定されている光源性能に従うと、軟 X 線領域(~1keV)では、ほぼ完全に近いコヒーレンスであり、硬 X 線領域(~10keV)でも十分高いコヒーレンスを有している。しかしながらカップリングを考えると垂直方向では全エネルギー領域で回折限界光源であるといえる。したがって、ビームライン光学系デザインとしては、完全可干渉光学系問題とみなすべきである。完全可干渉ビームに対するエミッタンス保存性は波面の歪みと等価であり、実用上の許容度の目安はレーリーの $\lambda/4$ 則で与えられる。例えば、反射鏡やブラッグ反射結晶のような反射型の光学素子を考えると、たとえばビーム断面 D=1mm, 波長 λ=0.1nm ではスロープエラーと角度安定性の許容範囲は $\Delta\theta<\lambda/4D$~30nrad である。すなわち、角度安定性 0.01 秒以下が要求されることになる。しかもこの安定性は数百 W の熱負荷に対する冷却と両立されなければならない。この安定性は現状の到達点より一桁以上高い。無論、エミッタンスの非等方性を考慮すると、MAX-IV などで行われているように反射鏡のサジタル集光や結晶分光器の水平分散配置によって、この条件を緩和することは可能であるが、すべての場合に当てはまるものではない。また、このような光学機器振動の周波数域は通常～数 100Hz の領域にあり、殆どの利用実験での信号積分時間を考えると、振動はそのままビームエミッタンスの劣化に結びつくと考えるべきである。硬 X 線領域での波面歪みに関しては、Be 窓や屈折レンズ、アッテネータ等の透過型光学素子も考える必要があるが、屈折率を考慮すると反射型に比べスロープエラーに対する許容度は大きく、振動に関してもほとんど問題にならない。

したがって、ビームライン技術としては上に述べた熱歪みと振動条件をできる限り満たすことが望まれる。しかしながら、現状の技術レベルでは極めて困難な目標設定である。さらに、迷光やスペックルを考慮すると、完全な光学系を前提とするのは非常に難しいと考えるべきである。このような場合には、中間結像と beam waist における空間フィルターを組み合わせた光学系の利用が現実的な解法のひとつと考えられる。いわゆる仮想光源の利用である。以下の光学系デザインの検討も、仮想光源スリットあるいは発散角制限スリットの適切な利用を前提として進める。この場合のもう一つの利点として、アダプティブ

光学系との組み合わせによる補正が容易となる。典型的な例として熱負荷による歪みなどでは、歪み自体が緩やかな二次曲面で近似できるような場合が多く、実用性が高いと思われる。また、このような仮想光源スリットや発散角制限スリットによって、部分コヒーレントビームに対しても実験に応じたコヒーレンスの設定が可能になる。

ここではナノビーム，高エネルギー分解能，コヒーレンス利用に焦点を絞り，それらを利用するためのビームライン光学系を、硬Ｘ線，軟Ｘ線領域に分けて検討した。また，サイエンスケースを実現するために必要となるいくつかの特殊な光学系（ビームサイズ可変，軟Ｘ線+硬Ｘ線ハイブリッドビームライン）の検討や，ミラーのスロープエラー（製作誤差，熱負荷，機械振動に起因）および床の振動の影響の見積もりも行った。なお、ここでは代表的なエネルギーを選択し、上記のような超低エミッタンス光源の特徴を活かしたキーワードに沿った検討をしたが、今後具体的なビームライン設計を進める中で、フラックス利用や、その他のエネルギー領域の利用、様々なビームサイズ利用、偏光制御利用等についても詳細検討を進める予定である。また本 CDR では、ビーム性能の見積もりについて、幾何光学近似に基づいた計算で行っている。今後詳細設計を進める上で最終的な像の分解能が問題になる光学系では、波動光学計算を用いた確認が必要となる。

2-1. 硬 X 線ビームラインの光学系デザイン

硬Ｘ線領域(主に 2 keV から 20 keV 程度)のビームラインとしては，二結晶分光器を用いた分光光学系を使用する予定である。本デザインレポートでは，以下の条件のもとで光学系の設計を行う。

(1) 標準的なエネルギーとして 10 keV を選択。周期長 20 mm，周期数 250 のアンジュレータの 7 次光ビークを用いる。

(2) シールド壁の位置を考慮して，最初の光学素子は光源から 30 m 地点に設置する。

(3) 実験ホールの大きさを考慮して，試料位置は光源から 58 m とする。

(4) 分光器前に入射スリットを設置し，後段の適切な仮想光源でのアパーチャー制限と併せて，光源の位置や角度の変動の影響(試料位置での位置変動，強度変動として現れる)を抑制する。

(5) 分光結晶としては，エネルギー範囲から Si111 反射を基本とする。高次光除去についてはミラー反射率を利用して行う（カットオフ調整が必要な場合には、ダブルミラーを利用することを想定する）。

(6) 集光素子としては，より広範な利用を想定し，ミラー光学系を採用する。コート材としてロジウム，反射角は 4 mrad を基本とする。高輝度ビームを活かすため，ミラー長を 100 mm～300 mm 程度とし，ミラー表面形状のエラーの極小化を目指す。

(7) 2 keV までのテンダーX 線領域やコヒーレンスを積極的に活かすため, 窓材や光学素子の数を最小にする（窓材については，硬 X 線領域のみ Be 窓 0.5 mm 厚を想定して設計を行うが, 差動排気システムの採用も検討する)。また, 高エネルギー分解能化, 偏光制御については，四結晶高分解能モノクロや偏光素子を利用することを想定する。

（1）光学系の配置

図 2-1 にビームラインの模式図を示す。いずれも，垂直方向については最上流にスリットを配置し，二結晶分光器に入射するビームの制限を行う。入射スリットを通った発散光を二結晶分光器で分光し，集光光学系へ出射する。分光された単色光は，コヒーレンス利用ビームラインでは直後にスリットを配置して水平方向のビーム制限を行い，発散角を制限する。集光光学素子は，試料直前に K-B 配置のミラーを設置し，試料位置に集光する。このようなシンプルな光学系を採用することで，コヒーレンスをなるべく乱さず試料に照射できるものと考えている。

ナノ集光光学系では，分光器直後に K-B 集光光学系を配置し，一旦仮想光源(Virtual Source)に集光し，仮想光源の開口によって最終的なビームサイズを調整する。この一段階目の集光の縮小率は，ナノ集光光学系(1)の場合は鉛直方向が約 7:1，水平方向が約 3:1 とした。もちろん，縮小率を上げるほど微小なビームが実現可能になるが，発散角が大きくなりすぎて後置集光鏡で受けきれなくなり，縮小率を上げずに仮想光源を絞った場合と同様にビームをロスすることになるので，この程度の縮小率にしている。仮想光源から出射されたビームは，同じく K-B 配置の後置集光鏡により試料位置に集光される。後置集光鏡の位置と大きさは，試料周辺で使える空間をビーム方向で 150 mm 程度（チェンバー末端から試料位置まで）確保することを想定し，最下段の光学素子を 57.7 m，長さを 200 mm とした（後段の縮小率は，鉛直方向が約 30:1，水平方向が約 36:1。したがって全体ではそれぞれ 210:1，108:1 となる)。このような試料空間を確保することで，ほとんどのナノビーム利用実験を展開できるのではないかと考えている。

ナノ集光光学系(2)では，同様の配置をとるが，仮想光源スリット位置の最適化（縮小率は，鉛直方向が 3.7:1，水平方向が 6.2:1)，後段集光鏡の最小化（長さ 100 mm）及び反射角の最大化（6 mrad)，試料空間の極小化（利用可能空間がビーム方向で 50〜70 mm 程度）を行うことでより微小なビームを実現している。後段の縮小率は，鉛直方向が 106:1，水平方向が 73:1 となり，全体としてはそれぞれ 392:1，453:1 となる。後置集光鏡の反射角を最大化するために，ミラーコート材に白金を採用しており，白金吸収端より高エネルギー側の利用は想定していない。また，試料空間も極小なため，利用できる実験はかなり制限され

る。50～100 nm 以下のビームを利用する際には，後置集光系としてフレネルゾーンプレート等の回折格子型の集光素子を利用することも検討している（その際には仮想光源位置の最適化が必要となる）。

高分解能ビームラインでは，分光器直下に（+,-,-,+）配置の Si333 反射を利用した高分解能モノクロ，その下流に集光系を配置している。大規模装置の設置を想定して，試料空間を最大化するため，最下段の光学素子を試料位置から 7 m 手前に配置し，マイクロビーム程度のビーム利用が可能になる光学系デザインとしている（通常のエネルギー分解能でマイ

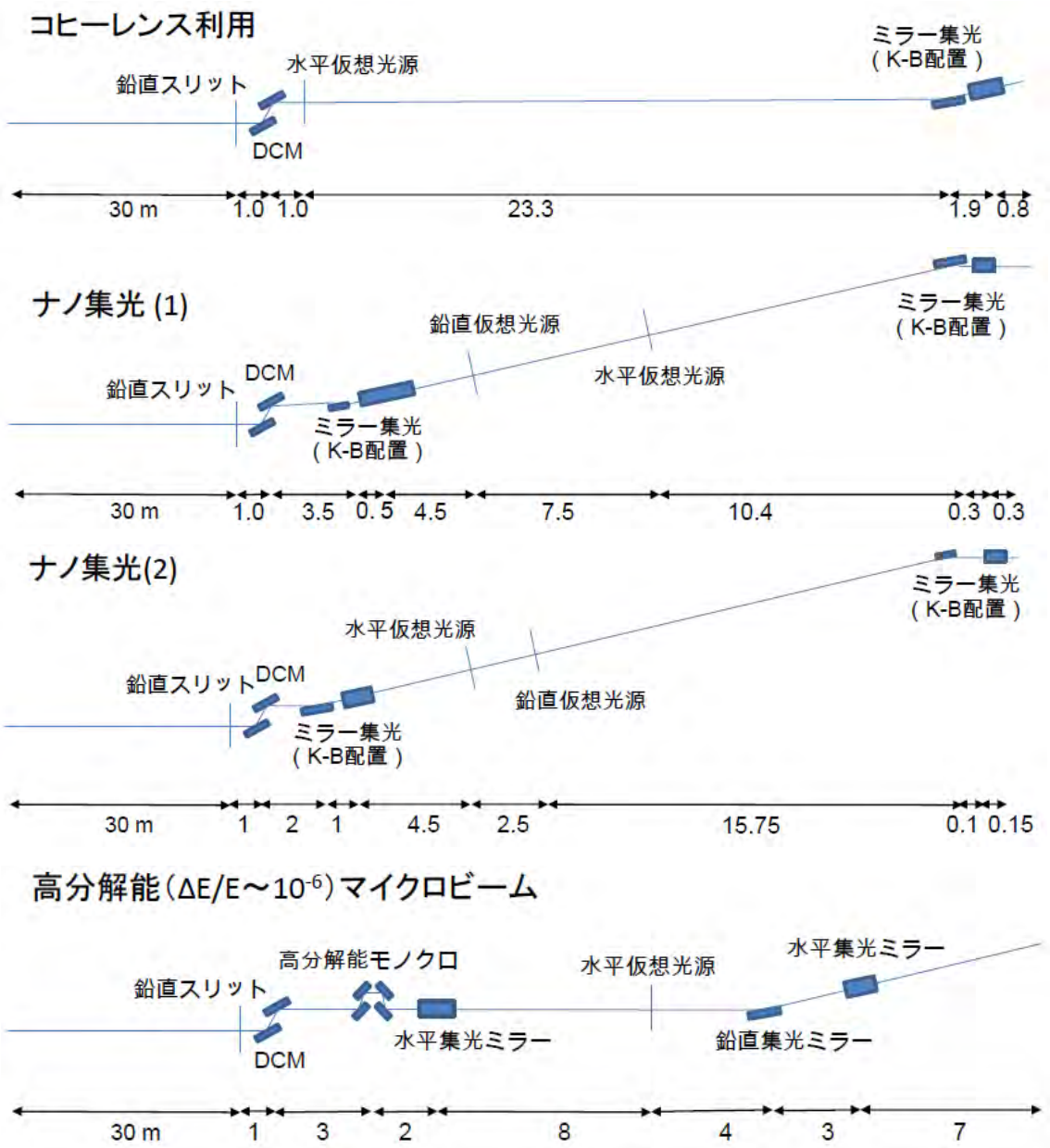


図 2-1: 硬 X 線ビームラインの模式図。

クロビーム利用の場合も同様の光学系デザインが想定される)。高分解能モノクロから出射されたビームは，水平方向のみ一旦仮想光源スリットに集光されて開口制御され，後段の水平集光ミラーで試料位置に再集光される。前段と後段の集光率は，それぞれ 4.5:1，1:1 としている。鉛直方向については入射スリットのみで開口制限し，48 m 位置に設置した鉛直集光ミラー（4.8:1）で試料位置に集光する。

(2) ビーム性能の見積もり

硬 X 線領域におけるビームサイズや発散角，エネルギー分解能の見積もりは，光線追跡法を用いて行った（XOP ver2.4／Shadow VUI ver1.12 による計算)。コヒーレンスの割合については，ここでは光線追跡によって得られたビームサイズと発散角の積を回折限界条件と比較することによって見積もるにとどめた。今後より詳細な検討を行う予定である。フラックスの見積もりに際しては，幾何学的なスループットに加えて，分光器の反射率や回折効率，ミラーの反射率，窓の吸収率等を考慮したが，ミラーの表面精度の情報や熱負荷による表面性能の劣化については，この節では考慮していない。ミラーサイズの極小化によるミラー表面精度の向上や，後段集光鏡の近接化による表面精度の影響の低減などを考えており，熱負荷についても低減するための検討を進めているが，ビームサイズや性能についてファクター程度の悪化の可能性があることに十分な注意が必要である。詳細は 2-5 節で検討する。

図 2-2 にコヒーレンス利用ビームラインでの試料位置でのビームプロファイルを示す。入射スリット及び仮想光源スリットの開口は，図中に示した通りである。集光ミラーの表面形状は非球面を想定しているが，Bimorph ミラーなどの補正機能を装備することで，理想的な表面を高精度に実現できるものと考えている。概ね縮小率から予想される通りのビーム

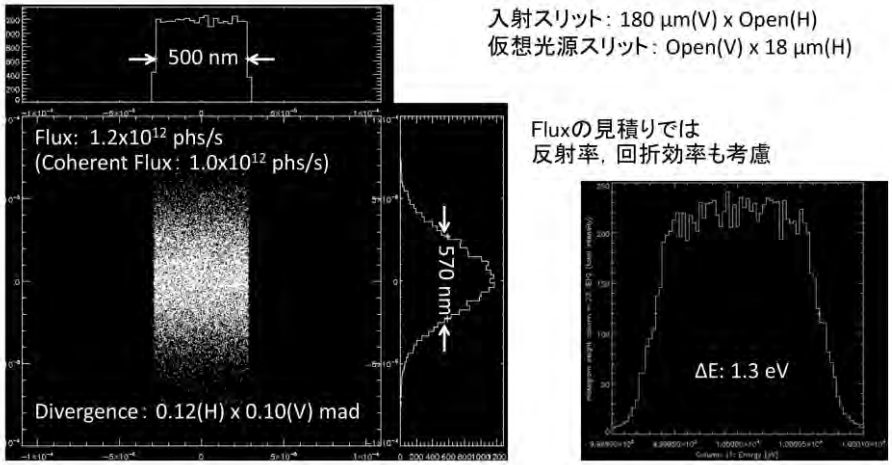


図 2-2: コヒーレンス利用ビームラインにおける試料位置でのビームプロファイル。

サイズが得られており，フラックスは 1.2×10^{12} ph/s 程度，そのうちコヒーレントな成分が 1×10^{12} ph/s 程度と見積もられる。光源点におけるコヒーレント比が 1%程度であり，入射スリット及び仮想光源点で 1/100 の開口制限をかけていることを考えると妥当な見積もりだと思われる。もちろん各光学素子表面性能の悪化や窓材の影響により乱される分を考慮する必要はあるが，かなり高いコヒーレント成分を安定に利用できるものと考えている。

図 2-3 にナノ集光光学系に対する，試料位置でのビームプロファイルを示す。入射スリット及び仮想光源スリットの開口は，同様に図中に示している。鉛直方向の仮想光源におけるビームサイズは，数 μm 程度まで集光されているため，開口制限はせずに後段集光光学系に照射している。これらも概ね縮小率から予想される通りのビームサイズが得られており，フラックスはそれぞれ 1.5×10^{12} ph/s，1.1×10^{12} ph/s 程度と見積もられる。水平方向に関して

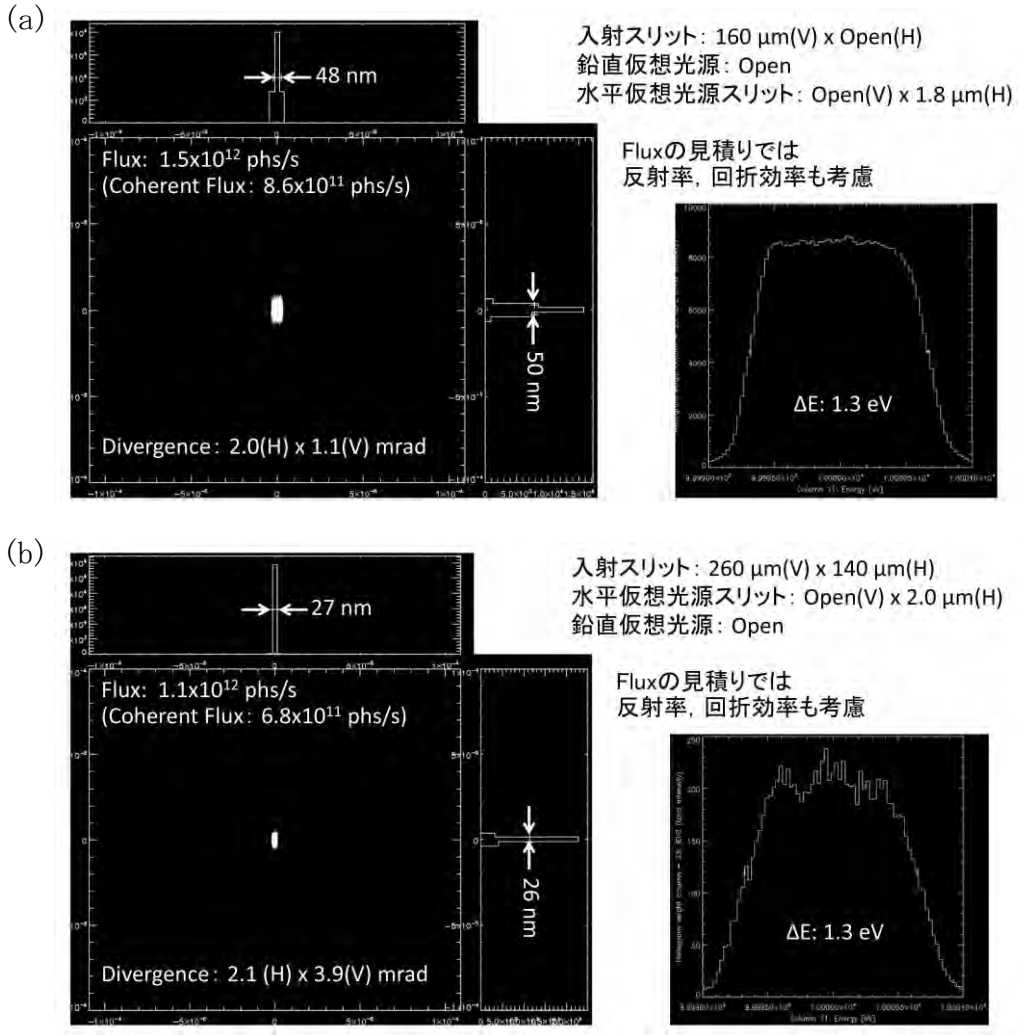


図 2-3: (a) ナノ集光光学系(1)、及び(b)ナノ集光光学系(2)に対する試料位置でのビームプロファイル。

はスリットにより十分コリメートされているので問題無いが，鉛直方向については仮想光源点位置あるいは後段集光光学系でのビーム位置制御が重要である。適切なビームモニタ及びビーム制御システムを装備することで，提案のようなナノビーム利用を十分実現できると考えている。

図 2-4 に高分解能マイクロフォーカスビームラインでの試料位置でのビームプロファイルを示す。Si333 の反射を利用した高分解能モノクロで分光しているため，10 keV でエネルギー分散が 0.0 53eV と，$\Delta E/E = 5.3\times10^{-6}$ のエネルギー分解能となっている。この時のビームサイズは 2 μm 程度，フラックスは 8.7×10^{10} ph/s となり，十分な性能を達成できていると思われる。この光学系でも鉛直方向には数 μm 程度の位置制御が必要であり，同様に適切なビーム制御システムを装備することで解決できるものと考えている。

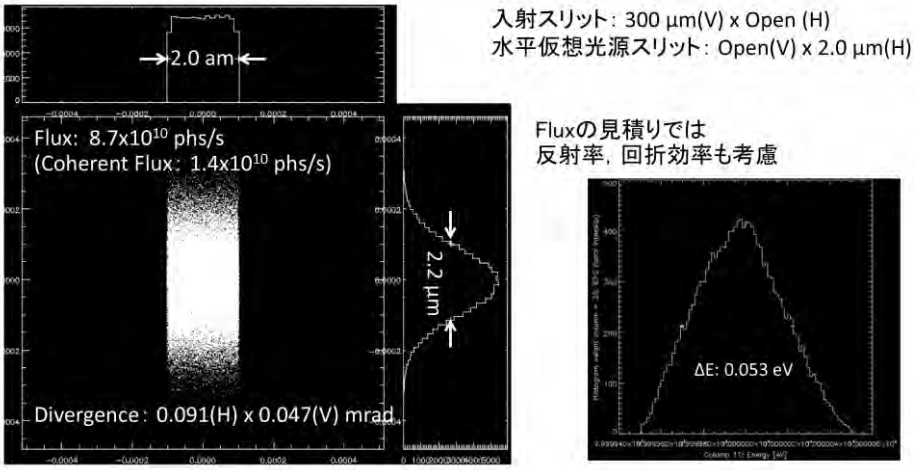


図 2-4: 高分解能マイクロフォーカスビームラインにおける試料位置でのビームプロファイル。

2-2. 空紫外・軟 X 線ビームラインの光学系デザイン

軟 X 線領域(主に 100 eV から 2 keV 程度)のビームラインとしては，斜入射回折格子分光器を用いた分光光学系を使用する予定である。本デザインレポートでは，以下の条件のもとで光学系の設計を行う。

(1) シールド壁の位置を考慮して，最初の光学素子は光源から 30 m 地点に設置する。

(2) 実験ホールの大きさを考慮して，試料位置は光源から 58 m とする。

(3) 入射スリットを設置し，分光器に対する(垂直方向の)仮想光源とする。これによって，エネルギー分解能に大きく寄与する，分光器から見た光源のサイズを制御でき

るし，光源の位置や角度の変動の影響(分解能の悪化や単色化後のエネルギーのずれ)を大幅に抑制することができる。

(4) 高次光対策はミラーの反射率及び回折効率を利用して行う。必要に応じてフィルターを利用することを想定する。

(5) 分光器の長さ(入射スリットから出射スリットまで)は 15 m 前後とし，可変偏角の Monk-Gillieson 型不等刻線間隔平面回折格子分光器[1]を採用する。

（1）光学系の配置

図 2-5 にビームラインの模式図を示す。いずれも，垂直方向については最上流のサジタル(Sagittal)配置の円筒(Cylindrical)鏡によって 5:1 の縮小率で入射スリット(Entrance Slit)に集光し，分光器に対する仮想光源とする。入射スリットを通った発散光をトロイダル(Toroidal)鏡もしくはサジタル配置の円筒(Cylindrical)鏡によって出射スリット(Exit Slit)付近へ向けて収束光にし，平面(Plane)鏡で偏角を決めたのちに不等刻線間隔平面回折格子(VLSPG)に照射する。VLSPG によって波長分散された軟 X 線を出射スリットで切り出すことで単色化する。波長掃引は，VLSPG の一軸回転のみで行えるが，広い波長範囲で分解能と強度を保つために，平面鏡を同期回転させて VLSPG における偏角を最適な値に設定する。なお，平面鏡は並進と回転を同時に行うことで常に VLSPG の中心に軟 X 線を照射する必要があるが，この二つの動きは，軸外しの一軸回転で代用できる。出射スリットを抜けた単色光は，簡易集光光学系ではトロイダル鏡によって，ナノ集光光学系では K-B(Kirkpatrick-Baez)配置の楕円(Elliptical)鏡によって試料位置に集光される。垂直方向の縮小率は簡易集光，ナノ集光それぞれについて，1:1，785:15 (=52:1)である。なお，垂直方向については出射スリットが第 2 の仮想光源となるが，ナノ集光光学系においては，後置鏡の縮小率を稼ぐために，分光器の全長を 14 m としている。

水平方向については，分光器とは独立に集光が可能なので，簡易集光光学系においては入射スリット下流のトロイダル鏡，ナノ集光光学系においては上流から 2 枚目の楕円(Elliptical)鏡によって，一旦，水平方向の仮想光源(Horizontal Virtual Source)に集光し，仮想光源の開口によって最終的なビームサイズを調整する。この一段階目の集光の縮小率は，簡易集光光学系の場合は 5:2，ナノ集光光学系の場合は 44:6.5 とした。もちろん，縮小率を上げるほど微小なビームが実現可能になるが，発散角が大きくなりすぎて後置集光鏡で受けきれなくなり，縮小率を上げずに仮想光源を絞った場合と同様にビームをロスすることになるので，この程度の縮小率にしている。また，楕円鏡ではなく円筒鏡を用いた場合でも，水平方向の仮想光源における多少のビーム強度のロスに目をつぶれば，試料位置では同程度の集光サイズが期待できる。仮想光源からの発散した軟 X 線は，簡易集光光学系で

はトロイダル鏡，ナノ集光光学系では楕円鏡によって試料位置に集光される。この二段目の集光の水平方向の縮小率は，簡易集光，ナノ集光に対してそれぞれ，4.5:3，232:3 である。したがって，ビームライン全体としての水平方向の縮小率は，それぞれ 198:19.5 (= 10.2:1)，7192:10.5 (= 685:1)となる。

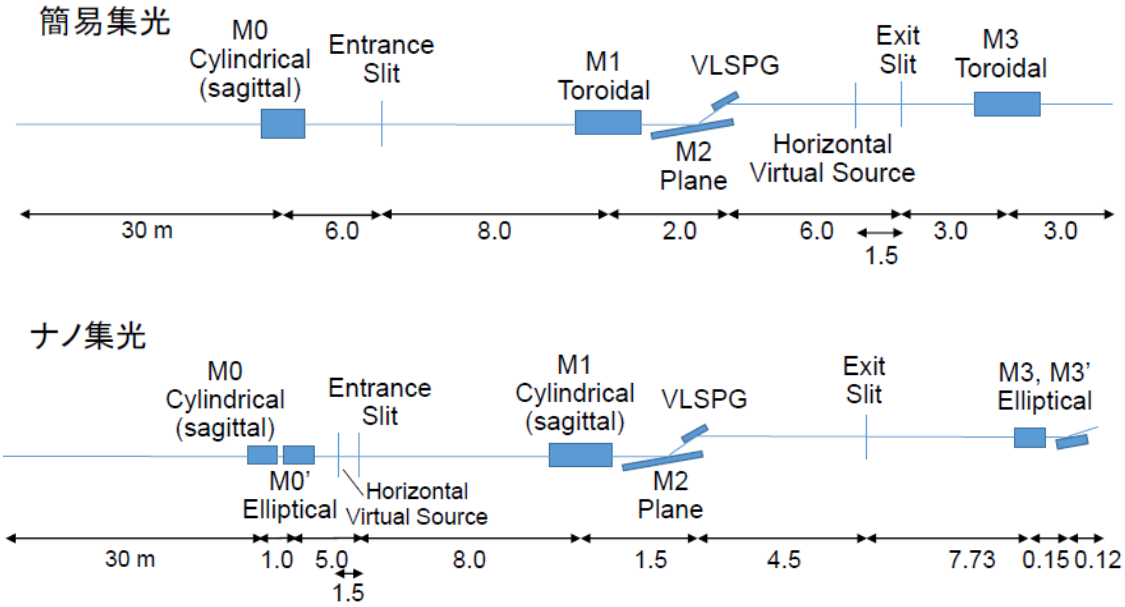


図 2-5: 簡易的な集光(上)および K-B 光学系による集光(下)を採用した軟 X 線ビームラインの模式図。

なお，ナノ集光光学系で前置鏡を 2 枚に分割したのは，一つには第 2 ミラーを楕円鏡とすることによって水平方向の仮想光源への集光特性をよくするためであるが，その他にも垂直方向と水平方向の集光を別のミラーにすることによって調整の自由度が高まることや，高い精度が要求される楕円鏡を第 2 ミラーとすることで熱負荷を軽減できることなどのメリットがある。

(2) 分光器の設計とエネルギー分解能の見積もり

本デザインレポートでは，標準分光器と高分解能分光器の二種類の設計を行い，それぞれ 1 keV において 50 meV, 10 meV の分解能を目標とする。分光器のパラメータの最適化は，以下の手順にしたがって行った[1]。なお，回折格子の刻線密度 N は，$N = N_0 (1 + a_1 x + a_2 x^2 + a_3 x^3)$ と定義する(x は回折格子上の光軸方向の位置で，中心を 0 とする)。

(1) エネルギー($E1$, $E2$)と対応する偏角($2K1$, $2K2$)の組み合わせを 2 組選び，それらにおいて defocus 収差がゼロになるように，a_1, および M1 のサジタル方向の曲率半径ρを決める。

(2) $E1, E2$ 以外のエネルギーについては, defocus 収差がゼロになるように偏角を決める。

(3) エネルギー($E3$)を選び，そこで coma 収差がゼロになるように a_2 を決める。

(4) エネルギー($E4$)を選び，そこで spherical 収差がゼロになるように a_3 を決める。

表 2-1，2-2 に，全長 16 m の分光器(簡易集光光学系で採用したもの)について，最適化に用いたパラメータをと最適化の結果を示す。なお，標準分光器では 3 種類の回折格子に対して同じρになっているので，回折格子を切り替えるだけで広いエネルギー範囲がカバーできる。一方，高分解能分光器の場合は，回折格子によって異なるρになっており，回折格子を切り替えて用いるためには円筒鏡も切り替えることになるが，ここに示したのは異なる分解能を有するいくつかの設計例であり，これらを切り替えて利用するという意味ではない。

表 2-1: 標準分光器(全長 16 m)の最適化パラメータ

溝本数 N_0(l/mm)	600	1000	1800
E1(eV)[defocus=0]	300	500	900
E2(eV)[defocus=0]	1200	2000	3600
E3(eV)[coma=0]	600	1000	1800
E4(eV)[spherical=0]	600	1000	1800
2K1(deg)	174.3	174.3	174.3
2K2(deg)	176.8	176.8	176.8
ρ (m)	1.3907E-01	1.3907E-01	1.3907E-01
a_1(mm^{-1})	-3.3238E-04	-3.3238E-04	-3.3238E-04
a_2(mm^{-2})	8.2785E-08	8.2785E-08	8.2785E-08
a_3(mm^{-3})	-2.4243E-11	-2.4243E-11	-2.4243E-11

表 2-2: 高分解能分光器(全長 16 m)の最適化パラメータ

溝本数 N_0(l/mm)	2400	1800	1200
E1(eV)[defocus=0]	500	500	500
E2(eV)[defocus=0]	1000	1000	1000
E3(eV)[coma=0]	750	750	750
E4(eV)[spherical=0]	750	750	750
2K1(deg)	172.9	173.3	174.3
2K2(deg)	174.85	175.1	175.9
ρ (m)	1.2998E-01	1.3595E-01	1.3528E-01
a_1(mm^{-1})	-3.3119E-04	-3.3140E-04	-3.3085E-04
a_2(mm^{-2})	8.2013E-08	8.2202E-08	8.1950E-08
a_3(mm^{-3})	-1.8348E-11	-1.9546E-11	-1.9641E-11

次にこれらの分光器に対して分解能の見積もりを行う。光源としては長直線部に設置された長さ 5 m のアンジュレータを仮定し, 入射スリット開口と回折格子のスロープエラーは標準分光器についてはそれぞれ 5 μm, 0.25 μrad, 高分解能分光器については 2.5 μm, 0.1 μrad

とした。平面回折格子に対するスロープエラーとして，0.25 μrad は比較的小さいが，通常の業者から入手可能と考えられる。一方，0.1 μrad は現時点では若干挑戦的な値であろう。なお，スロープエラーの影響が最もシビアなのは回折格子なので，ここでは円筒鏡と平面鏡のスロープエラーは考慮していない。また，分解能の見積もりにおいては，(仮想)光源サイズや収差はもちろん，回折格子の照射面積も考慮している。出射スリットの開口は，それぞれのエネルギーにおいて分解能と強度のバランスが最適になるように設定するものとする[1]。

図 2-6 に標準分光器に対して見積もった分解能(スロープエラーによって決まる分解能と，それも含めた全体の分解能)を示す。目標とした 50 meV @ 1 keV を達成できるとともに，3 種類の回折格子を切り替えることで，250-2000 eV の範囲にわたって E/ΔE = 20,000 以上の分解能が実現できている。

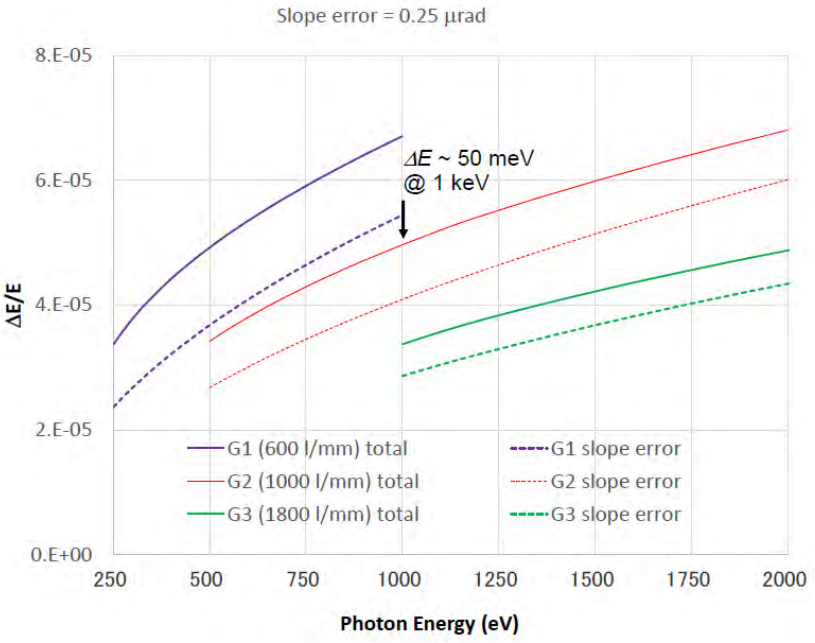


図 2-6: 標準分光器(全長 16 m)に対するエネルギー分解能の見積もり。

同様に高分解能分光器に対して見積もった分解能を図 2-7 に示す。1 keV における分解能に着目すると，2400 l/mm の回折格子を用いた場合に，目標としている 10 meV がぎりぎり達成できている。ただし，スロープエラーによる制限がかなり厳しくなっており，このような高分解能は，0.1 μrad という値が実現して初めて達成可能である。

また，ナノ集光光学系で採用した，全長が 14 m の分光器についても，同様に分解能の見積もりを行った。回折格子分光器は，入射スリット開口が同じであれば，基本的には全長が長い方が高分解能を実現できる(ただし，スロープエラーの影響は，基本的に一定である)

が，ここでは全長 14 m でも 16 m の場合と同程度の分解能が得られるように，縮小率を調整している(具体的には，入射スリットから円筒鏡までの距離に対して，そこから出射スリットまでの距離を短く設定している)。表 2-3 に最適化に用いたパラメータと最適化の結果を，図 2-8、図 2-9 にエネルギー分解能の見積もりを示すが，いずれも全長 16 m の場合と大差ないことがわかる。なお，分光器をはじめとする光学系全体のパラメータは，様々な条件を考慮して決めていくものであり，ここ示したのはあくまでも一例である。

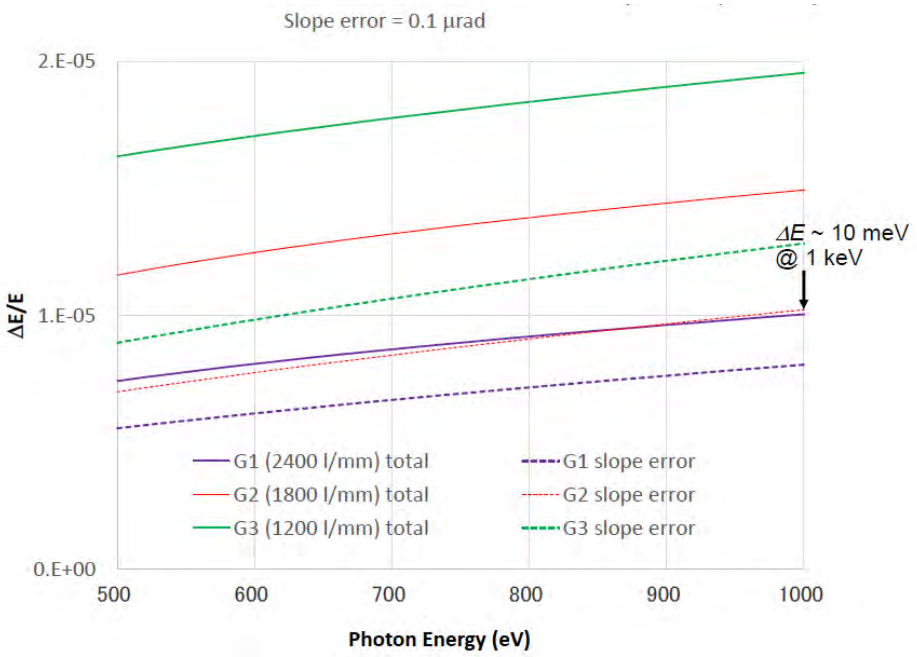


図 2-7: 高分解能分光器(全長 16 m)に対するエネルギー分解能の見積もり。

表 2-3: 全長 14 m の分光器に対する最適化パラメータ

	標準分光器			高分解能分光器		
N_0(l/mm)	600	1000	1800	2400	1800	1200
E1(eV)	300	500	900	500	500	500
E2(eV)	1200	2000	3600	1000	1000	1000
E3(eV)	600	1000	1800	750	750	750
E4(eV)	600	1000	1800	750	750	750
2*K*1(deg)	174.3	174.3	174.3	172.9	173.3	174.3
2*K*2(deg)	176.8	176.8	176.8	174.85	175.1	175.9
ρ (m)	1.1914E-1	1.1914E-1	1.1914E-1	1.1032E-1	1.1609E-1	1.1544E-1
a_1(mm^{-1})	-4.4318E-4	-4.4318E-4	-4.4318E-4	-4.4158E-4	-4.4186E-4	-4.4113E-4
a_2(mm^{-2})	1.4717E-7	1.4717E-7	1.4717E-7	1.4580E-7	1.4614E-7	1.4569E-7
a_3(mm^{-3})	-5.404E-11	-5.404E-11	-5.404E-11	-4.330E-11	-4.550E-11	-4.564E-11

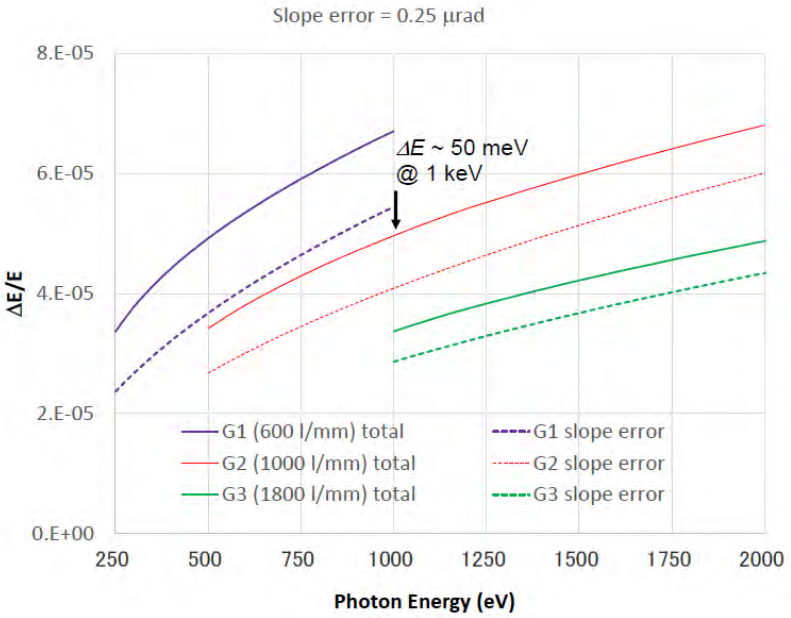


図 2-8: 標準分光器(全長 14 m)に対するエネルギー分解能の見積もり。

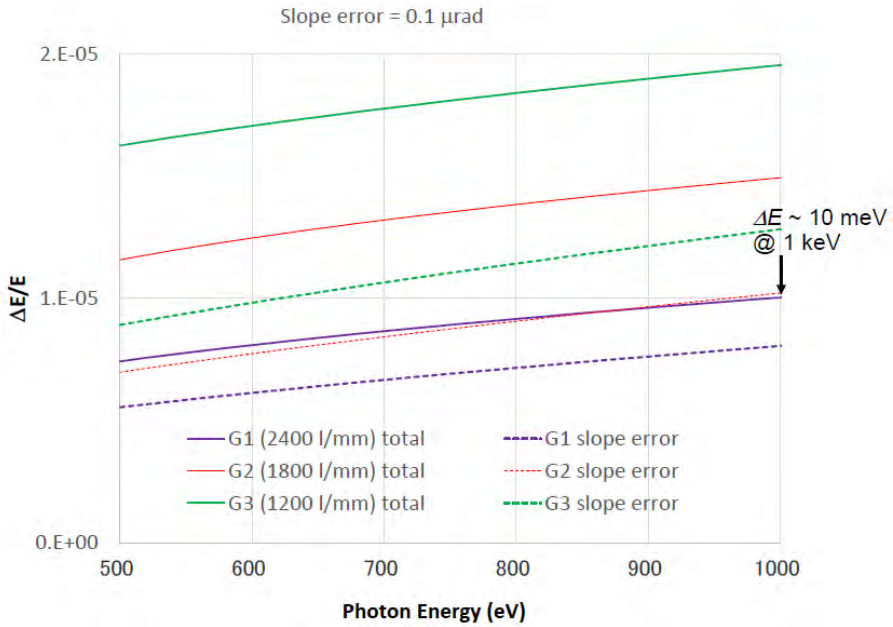


図 2-9: 高分解能分光器(全長 14 m)に対するエネルギー分解能の見積もり。

(3) ビームサイズの見積もり

試料位置におけるビームサイズは，光線追跡法を用いて行った。特にナノビームを目指す場合，本来は波動光学の計算も必要になるが，ここでは光線追跡によって得られたビームサイズと発散角の積が，回折限界条件を下回っていないことを確認するにとどめた。また，分光器としては標準分光器を用い，回折格子に対するスロープエラー(0.25 μrad)のみを考慮した。したがって，特に楕円鏡の製作精度によって，ビームサイズが大きくなる可能性があることに十分な注意が必要である(具体的には 2-5 節で検討する)。フラックスの見積もりに際しては，幾何学的なスループットに加えて，ミラーの反射率および回折格子の回折効率と反射率を全て考慮した。ただし，ミラーの面粗さは考慮していない。なお，取り込み角は水平 60 μrad，垂直 80 μrad とした。

図 2-10 に簡易集光光学系に対する，試料位置でのビームプロファイルを示す。入射，出射スリット，および水平方向の仮想光源の開口は，図中に示した通りである。おおむね縮小率から予想される通りのビームサイズが得られている。フラックスは 3×10^{12} ph/s 程度，そのうちコヒーレントな成分は 2×10^{11} ph/s 程度である。光源点におけるコヒーレント比が 10%程度であることを考えると，コヒーレントフラックスが若干低いように思えるが，これは主に，回折格子のスロープエラーによって像が拡がるためと考えられる。

ナノ集光光学系を用いた場合のビームプロファイルを図 2-11 に示す。ビームサイズはσ値で示しているが, 半値全幅(FWHM)に換算して 50 nm程度のビームサイズが実現している。水平方向の仮想光源を，その位置でのビームサイズより大幅に絞っていることと，ミラーが 1 枚多いために反射率によるロスが増えることによって，フラックスは 1.7×10^{11} ph/s 程度まで減少している。

文献

[1] K.Amemiya and T.Ohta, J. Synchrotron Rad. **11**, 171 (2004).

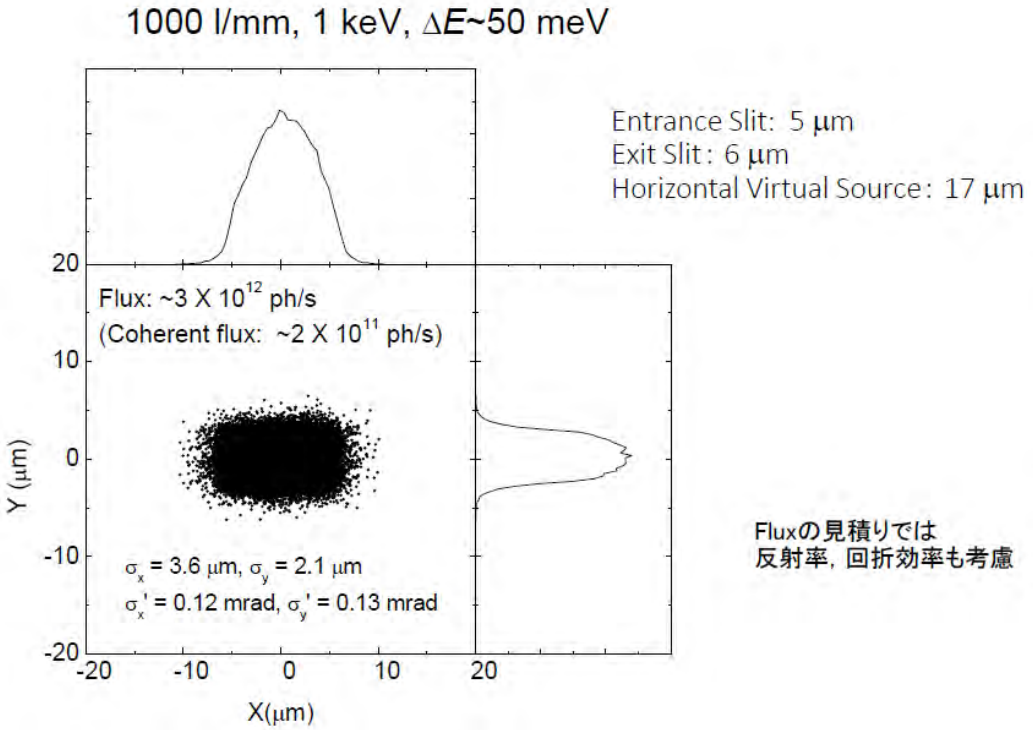


図 2-10: 簡易集光光学系に対する試料位置でのビームプロファイル。

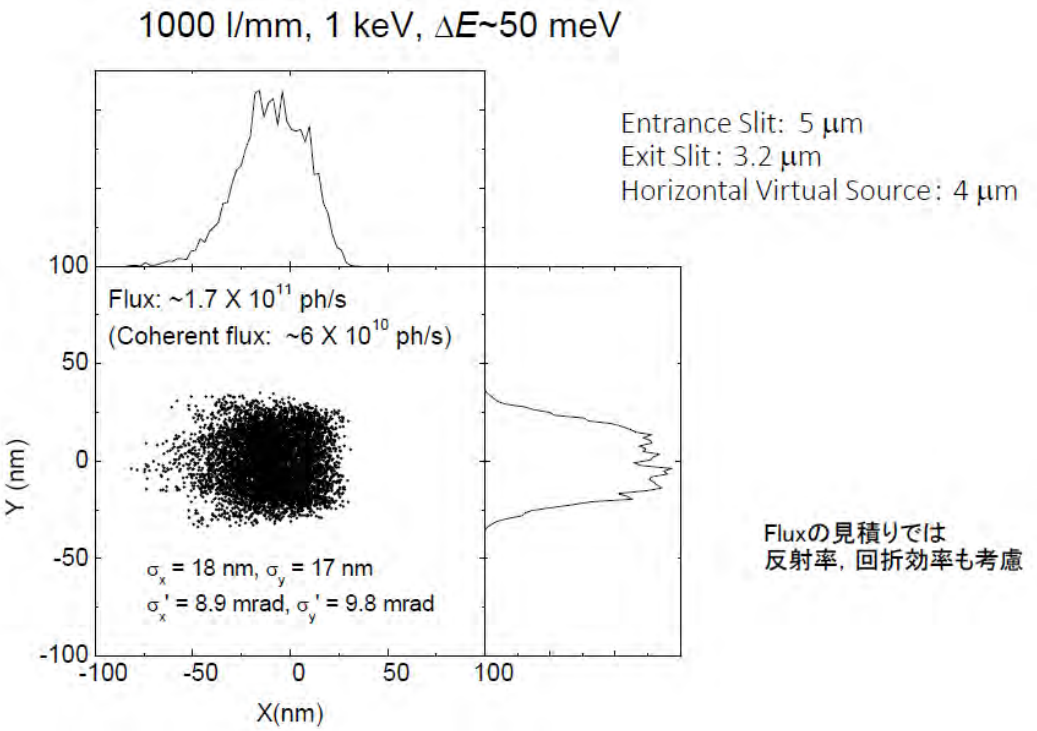


図 2-11: ナノ集光光学系に対する試料位置でのビームプロファイル。

2-3.　マイクロ・ナノ集光ビームを達成するための光学系と光学素子

マイクロ・ナノ集光ビームの実現には高輝度光源が必須とされている。これはビームサイズ（空間分解能）の問題ではなく、光学系における輝度保存則によりビームサイズと強度を両立させるには光源輝度の向上が不可欠であるからである。低エミッタンス高輝度光源により、真に実用的なマイクロ・ナノ集光ビームの実現が期待できる。現在 X 線集光ビームの分解能は既に 100nm を超えており、10nm 程度の集光ビームサイズが達成された例もある。理論上は 1nm の集光ビームサイズも可能である。しかしながら、放射光実験に望まれる波長可変光学系ではそのような高分解能を達成するのは難しく、当面 10nm が限界であろう。さらに、100nm 程度の分解能であっても、実用技術とするためには振動だけでなく温度ドリフト等に対処するための nm レベルでの位置制御･安定化技術の開発が不可欠である。また、放射光施設としては光学素子のオフライン評価設備だけでなく、ビームラインでの実条件下での光学素子性能評価技術を実用化する必要もある。

ここでは X 線マイクロビーム・ナノビーム生成の現状を述べるとともに数年後を目途として達成可能な技術予測を考える。また、実際のマイクロビーム応用に必要な技術開発について考える。さらに極限的なマイクロビームとして、1nm レベルの分解能が達成可能な光学系について考察する。X 線のエネルギー領域は、硬 X 線（~10keV）と軟 X 線(~1 keV)を想定する。なお、結像 X 線顕微鏡等に利用されるような拡大結像光学系、結晶を用いた X 線の拡大縮小光学系等に関してはここでは取り扱わない。

(1) X 線集光光学系と光源輝度

マイクロ・ナノ集光光学系でも単純な分解能に関しては高輝度光源が不可欠とは言えない。分解能（集光ビームサイズ）そのものは単に光学系と光学素子の性能だけで決められる。しかしながら実際のマイクロビーム実験では光源の性能がもっとも重要となっている。一般にマイクロビーム集光光学系は図 2-12 に示すように光源を縮小して結像する形式である。この結果、光源サイズ Sa と集光光学系で受ける角度広がり θa に対して、集光点における集光像サイズ Sb と集光ビームの角度広がり（収束角）θb には、幾何光学的結像条件により倍率 M に対して、

$$M = \frac{Sb}{Sa} = \frac{b}{a} = \frac{\sin\frac{\theta a}{2}}{\sin\frac{\theta b}{2}}$$ （アッベの正弦条件）　　（式 2-1）

が成立する。

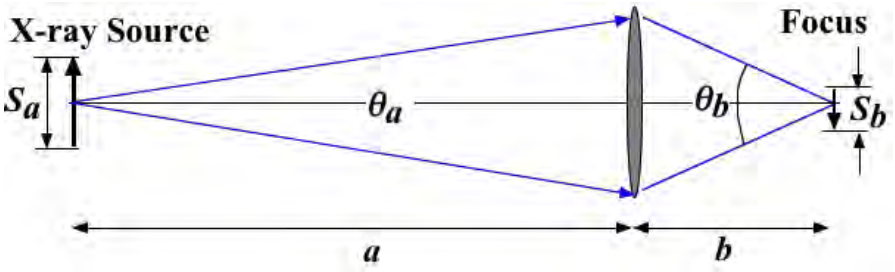


図 2-12：集光結像光学系におけるエミッタンスと倍率

この結果、完全な結像光学系では幾何光学の範囲内で、次式で表されるエミッタンス保存則が成立する。

$$Sa \sin\theta a = Sb \sin\theta b \qquad \text{(式 2-2)}$$

X線領域では光学素子の数値開口（*NA*, Numerical Aperture）が小さく、$\sin\theta \sim \theta$が成立している。さらに光学素子での損失を無視すると、集光光学系が受光しているビーム強度 I を用いて、粒子数の保存則から理想結像光学系における輝度の保存則が成立する。

$$I/(Sa\theta a) = I/(Sb\theta b) \qquad \text{(式 2-3)}$$

すなわち、マイクロビーム集光光学系によってビーム輝度が向上するのではなく、集光ビームの収束角が光源の角度広がりより大きくなるために光源に比べて単位面積あたりの光子数が増加するのである（ビーム集光光学系によるフラックス密度向上）。しかしながら、後述するように X 線領域では光学定数による収束角（Numerical Aperture）の上限がある。このため、集光ビームの強度を得るためには光源での輝度が不可欠になる。
集光ビームサイズには光源の大きさと光学系の倍率（縮小率）で決められる幾何光学的サイズだけでなく、光学素子の *NA* と X 線波長で決められる回折限界があり、例えば円形開口の場合の回折限界ビームサイズは後述するように、

$$\Delta = 0.61\frac{\lambda}{NA} \qquad \text{(式 2-4)}$$

である。実際の集光ビームサイズはこの回折限界ビームサイズと幾何光学上の集光ビームサイズのコンボリューションになる（ビームプロファイルにガウス関数型を仮定すると、この場合実際のビームサイズは回折限界ビームサイズのおよそ 1.4 倍になる)。幾何光学上の集光ビームサイズを回折限界より小さくしても効率が下がるだけで、あまり意味が無い。すなわち実用的な意味での回折限界集光ビームとは、幾何光学的ビームサイズが回折限界ビームサイズより大きくない条件とするのが妥当であろう。上式は、この条件での集光光学系における X 線の固有エミッタンスが$(\Delta/2)NA \sim 0.3\lambda$に相当することを示している（一般に使われている固有エミッタンスの定義、$\lambda/(4\pi)$、と異なるが、これは実際の X 線光学系がガウス光学系でないためである)。

マイクロビーム利用実験が出来るということは、集光前の通常の実験条件下でのビーム強度と同じものが回折限界分解能のマイクロ・ナノビーム集光条件でも使えるということに対応していると考えられる。X 線集光光学系を用いて回折限界の集光を行った場合の光源からの全放射に対する光学系で集光可能なフラックスの比は光源のエミッタンスに対する X 線の固有エミッタンスの比に対応している。したがって、光源のエミッタンス（電子ビームのエミッタンスではなく、放射 X 線の波長を考慮した光源としての実効エミッタンス）が 0.3nmrad であれば、軟 X 線である 1keV（波長 1.24nm）まではほぼ全部の放射を回折限界分解能マイクロビームに集光可能であり、10keV（波長 0.124nm）の硬 X 線に対しても全フラックスの 10%程度が回折限界分解能のビームに集光可能である。もし実効エミッタンス 0.1nmrad が達成出来れば、X 線領域まで放射の大部分を回折限界の集光ビームに集めることが可能である。このような低エミッタンス光源の実現がマイクロ・ナノ集光ビームを実用的なものにするために必要な条件である。

(2) マイクロビーム集光光学系の現状と個々の光学系の特性

一般的にＸ線や軟Ｘ線を集光結像する目的では反射鏡が使われている。たとえば軟Ｘ線分光器における入射スリットへの結像に使われるのは、多くの場合全反射球面鏡である。また、同じ目的で円筒面やトロイダル面全反射鏡を用いたサジタル集光光学系が使われることもある。しかしながら現状では通常の球面や弾性変形による円筒面/トロイダル鏡での X 線集光像は、幾何光学収差や弾性ベンドの実用精度により、10μm 程度が限界であり、マイクロビームやいわゆるナノビーム集光には非球面全反射鏡やフレネルゾーンプレートのような光学素子が必要になる。

硬Ｘ線領域では現時点でＸ線精密集光結像に用いられている光学系には次のようなものがある。

(a) 全反射鏡：二個の平面楕円（放物面）を直交配置した光学系（いわゆる非球面鏡

Kirkpatrick-Baez 配置、Franks ダブルミラー光学系）がほとんどである。理想的な鏡面形状は回転楕円や回転放物面になるが、加工技術と形状計測技術の限界により、実用的な集光光学系には至っていない。

(b) 多層膜反射鏡：全反射鏡と同じくナノビーム集光には非球面が必要になるが、全反射鏡に比べると（視射角が大きくなるため）幾何光学収差の影響が小さい。また、高エネルギーの集光が容易になる。全反射鏡と同様に非球面鏡直交配置（KB 配置）光学系が用いられることが多い。

(c) フレネルゾーンプレート（FZP）：同心円の回折格子による回折型の集光結像光学素子であり、高精度のものはほとんど電子線リソグラフィーの手法で製作されている。通常は透過配置で使われるが、全反射鏡や基板のブラッグ反射を利用した反射型の回折光学素子として用いられる場合もある。

(d) 屈折レンズ：基本的には可視光のレンズと同様であるが、X 線領域では屈折率が 1 より小さくなるため、集光には凹レンズが用いられる点が異なる。厳密な屈折レンズ面形状は回転楕円であるが、通常は球面あるいは回転放物面で近似され、この場合一段のレンズでは数値開口が非常に小さくなってしまうため多段のレンズ（compound refractive lens）配置で使われている。軟 X 線領域では吸収損失が大きく実用的な光学素子とは言えないが、硬 X 線（特に高エネルギー領域）では優れた特性を持つ。

(e) 多層膜ラウエレンズ（MLL）：非常にアスペクト比の大きいゾーンプレートと考えることも出来るが、ゾーンにおける回折を多層膜反射鏡と同じように多層膜として回折現象が主体となる条件で使用する光学素子である。平面（二次元型）のレンズを二枚直交配置させて二次元集光を行うものと、軸対称（三次元構造）として一枚で二次元集光を行うものがある。軸対称の場合、界面形状は理想的には回転楕円になるが、円錐で近似する場合（tapered MLL）や、単純に基板だけを taper とする場合（tilted MLL）もある。

(f) X 線ガイドチューブ：一回反射と多段反射型に分けられるが、一回反射型は基本的に全反射鏡と同じである。多段反射型は導波管の一種であり、集光結像ではなくビーム成形の光学系と考えられる。

これに対して軟 X 線領域では、吸収が大きくなるため屈折レンズが難しい。また視射角の大きい軟 X 線領域では直交配置全反射等の光学系では幾何学的収差が大きくなるために、FZP が主に使われている。さらに長波長の VUV 領域では軸対称多層膜直入射鏡が主体となっている。

現在での硬 X 線集光ビームサイズとしては、非球面全反射鏡で 40nm 程度[1]、 電子線描画 FZP で 25nm[2]が達成されている。また、屈折レンズでも 50nm 程度の集光サイズが得られている[3]。今日では 100nm 程度の集光ビームサイズは比較的容易に達成可能である。現

状での硬 X 線領域での集光ビームサイズとしては非球面多層膜鏡直交配置光学系による 20keV での 7nm x 8nm 集光[4]、および軸対称 MLL による 8keV での 5nm 集光[5]がもっとも優れたものと思われる。また、軟 X 線領域でも、集光ビームサイズの直接測定ではないが、電子線描画 FZP による結像顕微鏡の解像度からすくなくとも 20nm 程度の分解能が既に達成されていると考えられている[6]。

しかしながら、現状では 100nm レベルの集光ビームを実際の放射光実験装置に適用するに至っているとは言い難い。主な問題点は、振動、温度ドリフト等の安定性と光学素子自体の放射線耐性・経時変化である。また、10nm 以下の集光に成功した例はあるものの、多層膜反射鏡や MLL のような Volume 光学素子では理想的な条件は単一エネルギーに制限されるという問題があり、エネルギー可変が基本であるような一般的な放射光ビームラインで実用化するには問題がある。全反射鏡にも色収差は存在するが、一般的な使用範囲では大きな問題にはならないので、広い波長で固定焦点として利用できるという特性があり、放射光ビームラインに最適とされている。ただし、全反射鏡光学系では回折限界分解能が波長に比例して変化するという問題がある。これに対して FZP では、焦点距離は波長に反比例して変化するが、回折限界分解能は波長に依存せず一定（ほぼ最外線幅相当）になるという特長がある。

以下に主な光学系の特性を表にまとめて示す。

表 2-4: 各種光学系/光学素子の特性

	硬Ｘ線	軟Ｘ線	現状の分解能
全反射鏡（KB 配置）	◎	△注１	36nm x 48 nm ＠15keV
多層膜鏡（KB 配置）	○	△注１	7 nm x 8 nm ＠20keV
フレネルゾーンプレート	○注２	◎	25nm ＠8keV ~20nm ＠707eV
屈折レンズ	○	X	47nm x55 nm ＠21keV
多層膜ラウエレンズ （1D-MLL の交差配置）	○	△	25nm x 27 nm[7] ＠12keV
多層膜ラウエレンズ （2D 軸対称 MLL）	○注４	△	~5nm ＠8 keV（注３）

注１：非球面 KB 配置は回転楕円と異なり近似解であるため幾何学収差が存在し、視射角が大きくなると収差が大きくなる。そのため軟 X 線や VUV には適さない。回転楕円や放物面光学系の場合は厳密解であり、軟 X 線領域でもほぼ理想的な集光が可能である。

注２：FZP の収差は硬 X 線領域のほうが小さいが、電子線リソグラフィーで作成する FZP では高アスペクト比が難しいために、高エネルギー領域で実用的な限界がある。高エネルギー領域では多層膜 FZP のような手法を考える必要がある。

注３：このビームサイズは far-field image から位相回復法で推定した値であるため、実

質的なビームサイズとは異なる可能性が指摘されている。最近の報告から推定される実際の空間分解能は 50nm 程度と思われる[8]。

注４：MLL は厳密な三次元構造では単一波長に限定されるが、近似的な解としてはある程度の波長可変性を持つ。しかしながら、nm レベルの分解能を達成するには波長可変性を失うことになる。

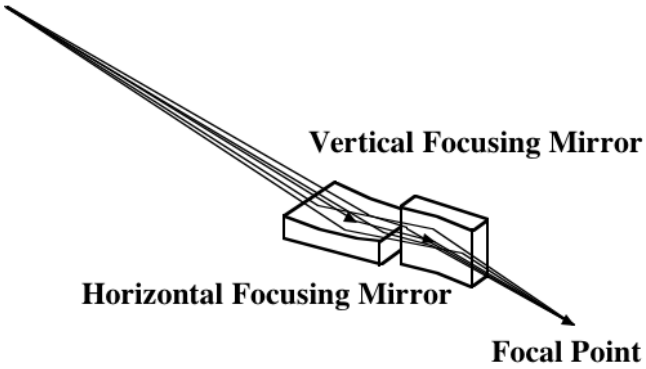


図 2-13：平面楕円鏡を用いた直交配置光学系（KB 配置）の概念図。縦横それぞれ独立集光して、二次元集光スポットを生成する。水平垂直独立に集光させるので非点収差がなく、楕円面を用いることにより球面収差も除去される。現在硬 X 線領域のマイクロビーム集光光学系としてもっとも広く使われているが、回転楕円面のような厳密解でないため、幾何光学収差により硬 X 線でも 1nm 集光は難しい。軟 X 線ナノビームには不適切である。回転楕円を二枚の平面楕円の交差配置で近似したことによる幾何光学的収差量は近似的に$\Delta \sim 2f\theta\,(NA1)(NA2)$である。ここで f は焦点距離、θ は視射角、$NA1$, $NA2$ はそれぞれのミラーの数値開口である。

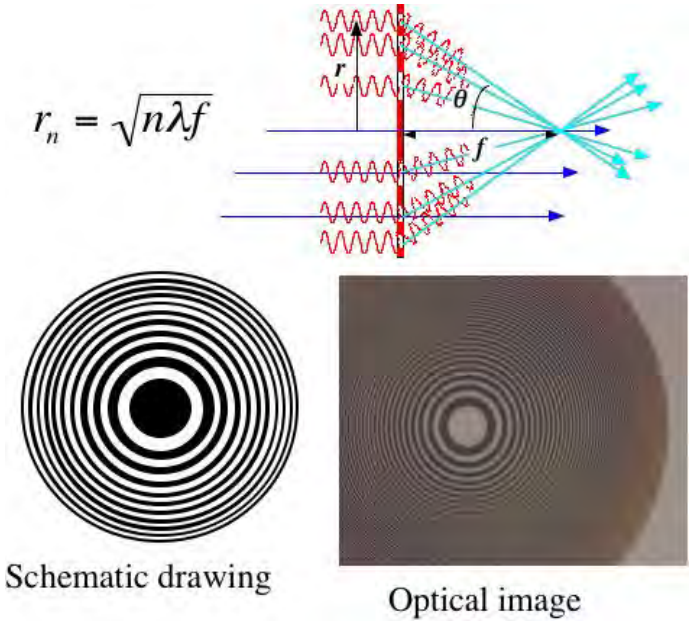


図 2-14：Fresnel zone plate の概念図。ゾーンの式は球面収差項を無視したものである。

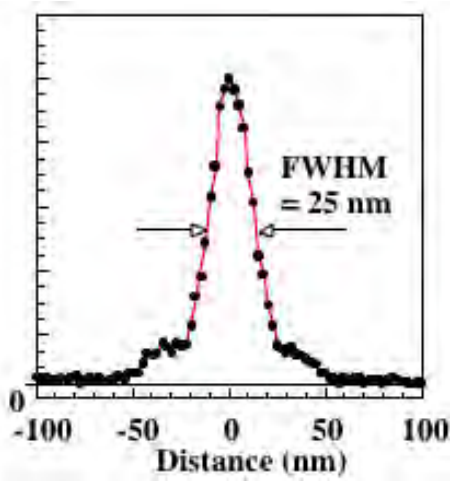


図 2-15：電子線描画 FZP による集光スポットの実測例。最外線幅 25 nm の FZP を用いて、暗視野ナイフエッジ法により測定。X 線エネルギー8keV。

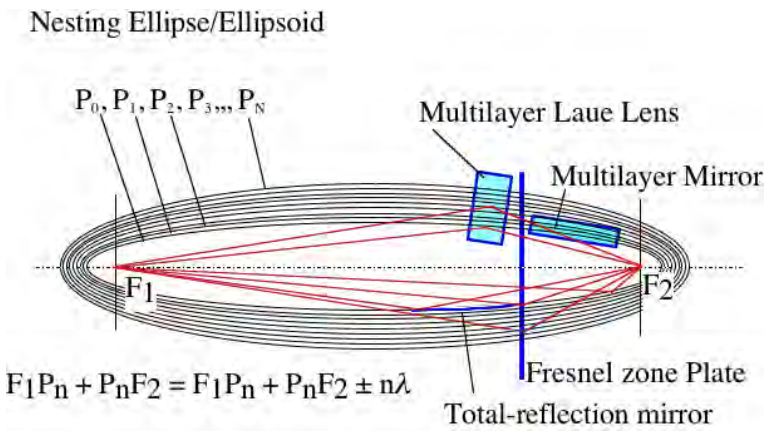


図 2-16：各種集光光学系を統一的に示す概念図。楕円（回転楕円）は二つの焦点からの距離の和が一定になる理想的な集光条件である。それぞれの楕円は光路差が波長の整数倍になる。全反射鏡光学系では回転楕円が厳密解となり、反射の際の位相ジャンプを無視すれば、全反射臨界波長までの全領域で回折限界分解能が得られる。MLL や MM は三次元構造になるため、厳密に条件を満たすのは単一波長（とその高次光）になる。FZP も厳密解では単一波長であるが、球面収差が無視できる条件内では波長可変になり、広いエネルギー範囲で回折限界分解能が達成可能である。

(3) 一般的な光学系の理論限界

レーリーの回折限界分解能：

光学素子に入射する波が完全な平面波と仮定しても、有限の開口に制限された波面は角度分散を持つことになり、たとえ光学素子が幾何光学的に無収差であっても集光スポットは有限のサイズになる。これがレーリーの回折限界分解能であり、円形開口に対しては、$\Delta = 0.61\lambda/NA$ である。ここで NA は集光ビームの角度広がり（半角）θにより $NA=\sin\theta$で定義される Numerical Aperture である。なた、矩形開口では辺に沿った方向に対して、$\Delta = 0.5\lambda/NA$ となる。可視光領域では屈折レンズや反射鏡によって十分に大きい角度で偏向させることが出来るので、実用上も $NA \sim 1$ が可能である。このため光学顕微鏡の限界分解能は波長と同程度になる。これに対して X 線領域では NA を大きくすることが本質的に難しい。よく知られているようにX線の屈折率は自由電子近似を仮定すると、次式で表される。

$$n = 1 - \delta$$

$$\delta = 1.35 \times 10^{-4}\rho(\mathrm{g/cm^3})[\lambda(\mathrm{nm})]^2 \qquad (式 2\text{-}5)$$

ここから全反射臨界角 $\theta c \gg \sqrt{2\delta}$ が得られる。この臨界角が波長に比例し、定数が物質の電子密度で決められることから、全反射鏡光学系での理論分解能限界が決められる。平面楕

円直交配置のような軸外し全反射光学系の場合、近似的に

$$\Delta \approx \frac{\lambda}{\theta c} \approx \frac{60nm}{\sqrt{\rho}} \qquad \text{(式 2-6)}$$

すなわち、物質の電子密度に限界があるため、KB 配置の全反射光学系の回折限界分解能は15nm 程度である。さらに二枚鏡の配置と縮小率を考えると実用的な二次元集光の限界は25nm 程度と考えられる。

同様に、X線導波管においても分解能は10nm程度となることが示されている[9]。さらに、屈折レンズやFZPの理論分解能も基本的には同じ式で表され、回折限界分解能は10nm程度になることがわかっている[10, 11]。この10nm限界を超えて理論上1nm程度までの集光が可能な光学系に関しては後述する。

FZP の収差：

すべての幾何光学的な収差に関しての一般的な記述は難しく、あまり意味が無いが、FZP の球面収差は簡単な解析解で示され、また実用上も重要である。

倍率が非常に小さい縮小結像光学系である集光ビーム応用の場合、FZP のゾーン境界を表す式は、

$$r_n^2 + f^2 = (n\lambda/2 + f)^2 \qquad \text{(式 2-7)}$$

書き換えると、

$$r_n^2 = n\lambda f + n^2\lambda^2/4 \qquad \text{(式 2-8)}$$

である。一般的なゾーン形式、$r_n^2 = n\lambda f$、と比較することにより、この右辺第二項が球面収差に相当することがわかる。レーリーの$\lambda/4$ 則を基準として球面収差の許容範囲を決めると、たとえば次の式

$$N^2 < 2f/\lambda \qquad \text{(式 2-9)}$$

が得られる[12]。ここで N は全ゾーン数である。すなわち、FZP で回折限界の集光ビームサイズを得るためにはゾーンプレートのゾーン数に制限が与えられる。また、与えられたゾ

ーンプレートで考えると、回折限界分解能が得られる X 線波長の上限が決められることになる。
また、FZP で回折限界集光を実現するときに重要なもうひとつの収差が色収差である。この問題はよく知られているように、入射光の相対的バンド幅$\lambda/\Delta\lambda$と全ゾーン数 N との関係として、

$$N < \lambda/\Delta\lambda \qquad (式 2\text{-}10)$$

とされている。すなわち色収差が無視できるためには、ゾーン数が波長分解能より小さくなければならない。

(4) 100nm-10nm 領域のマイクロビーム実用化と必要な技術開発

図 2-17 にこの 30 年間での硬X線領域マイクロビーム分解能（集光ビームサイズ）の進歩を示すが、大体 10 年で一桁の速度で分解能が向上し続けている。これを単純に外挿すると、2025 年に 1nm 分解能が達成されるという見通しが得られる。しかながら、現在知られている波長可変光学系である全反射集光鏡や FZP、屈折レンズでは 10nm 程度の分解能が理論限界であることに注意する必要がある(屈折レンズは硬 X 線のみであり、軟 X 線は困難)。また、現在 100nm 程度のマイクロビームが実用化されているように見えるが、実際の放射光実験での利用にはまだ不十分なところが多く、技術開発課題となっている。これからの実用レベルのマイクロビームを考えると、分解能 100nm~10nm 程度までをターゲットにして、これを定常的に利用可能とするための技術開発がもっとも重要である。

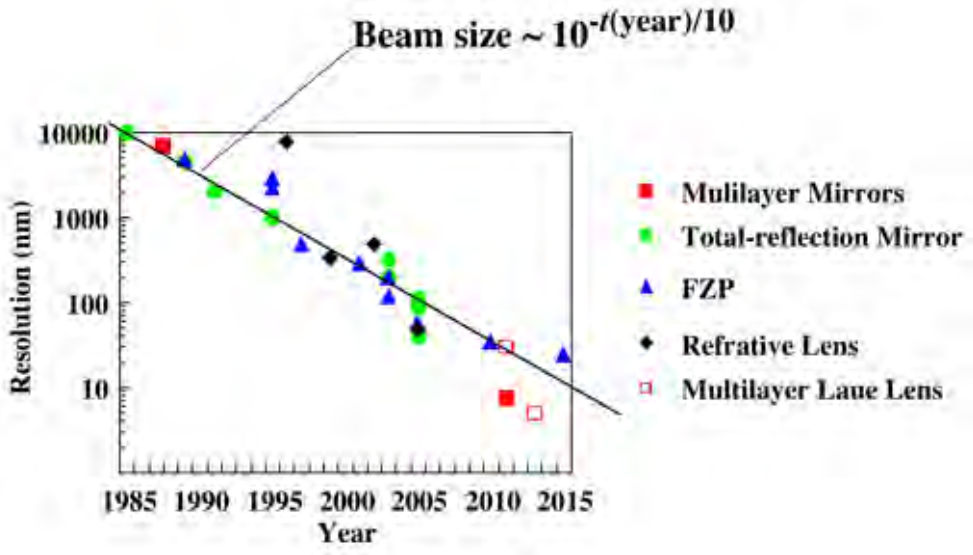


図 2-17：X線マイクロビーム分解能向上の歴史。

マイクロビーム実用化に当たっての現状の課題は、

(a) 光学素子の耐性、

(b) ドリフトを補正する位置制御技術、

(c) at wavelength での光学素子評価法、

である。

また、放射光施設側に要求される技術として、

(d) off-line での光学素子評価技術の確立、

(e) 波面補正技術、

がある。

光学素子の耐性として、本質的な放射線照射ダメージによる損傷と経年変化による劣化が考えられる。また、不可逆過程ではないが、軟 X 線の場合カーボン付着による C K 吸収端領域での劣化が大きな問題である。硬 X 線領域でも反射鏡表面のカーボン汚染は表面粗さの増大による散乱光の原因になることがあり、無視することは出来ない。たとえば SPring-8 でも初期には FZP がわずか数日の使用で破壊されるという状況にあったが、FZP 基板の改良と使用環境（真空、He 雰囲気）等の改善により現在では長寿命(10 倍～100 倍)が達成されている。全反射ミラーも同様に初期には反射コートの剥離が多くみられたが、これも真空あるいは He 置換による長寿命化と反射面再コートによるリサイクルプロセスにより比較的安定に利用できるようになっている。第四世代光源はコヒーレンス度が高く集光に適しているが、そのＸ線照射量自体は第三世代放射光である SPring-8 等と大きく変わることは無いので、現在の技術でもおそらく可能かもしれない。しかしながら、マイクロビーム技術が一般的になると予想される第四世代放射光ではよりいっそうの耐放射線性が求められることになるだろう。カーボン汚染に関しては、オゾンアッシングによる洗浄が有効であるが[13]、これからのビームラインでは光学素子を取り外すことなく on-line でのアッシングによるカーボン汚染クリーニングが出来ることが望ましい。

これに対して、位置安定性の問題はより深刻である。例えば 100nm の X 線ビームサイズを考えると、その位置安定性（試料との相互位置安定性）は少なくとも 100nm よりずっと良い必要がある。光学素子や試料の振動を 100nm 以下にするだけでなく、長期的な（測定時間内での）位置ずれも防ぐ必要がある。長時間の安定性でもっとも大きな問題は温度安定化である。経験的には、１℃の変動は１μm 程度の位置ずれに相当することがわかっている。単純には位置安定性 10nm には 0.01℃の温度安定性が必要となる。このような高精度温度制御を実験装置全体に行うのは不可能に近い。たとえ温度制御が可能であっても実験者が頻繁に入退室するような実験ハッチを安定に保つのは不可能である。したがって、加速

器と実験ホール全体の精密空調や実験ハッチのエアロック等だけでなく、光学素子と試料間相互の位置計測とフィードバック制御によるビームの安定化が不可欠になる。また、装置自体を温度変化に対して鈍感にする設計手法も重要になる。現在のレーザー干渉計による測長では精度 1nm 程度が既に達成されている。これとピエゾアクチュエータを組み合わせた位置制御はすでに FZP を用いた走査型顕微鏡で実用化されている例もある。この手法を全反射ミラー等の多軸制御に拡張するとともに一般の放射光実験装置に組み込める 1nm レベルの位置制御安定化技術を開発する必要がある。

光学素子とくに反射鏡に関しては、納入されたものが仕様を満たしているのかどうかを検査する目的で、さらには理想形状との誤差がどのようなものであるかをあらかじめ調べる目的で、レーザー干渉計等の形状測定装置、非接触表面粗さ計、AFM 等の表面計測機器を施設内で随時利用できる体制を整えておくべきである。このようないわゆる Mirror Metrology Lab に関してはそれ自体に共同利用施設としての側面をもたせることも考えられる。

光学素子単体の性能が得られているかどうかは、レーザー干渉計等によるオフライン計測だけでは必ずしも十分ではない。また集光特性に問題があるような時には光学素子に入射する前段での波面収差を含めた光学系全体の評価を実際に使う波長で確かめる必要がある。このようなビームラインにおける on-line at-wavelength での評価法をどのビームラインでも容易に出来るように確立する必要がある。計測方法としてはフーコーナイフエッジテストによる幾何光学収差計測[14]、ビームプロファイルからの位相回復法による波面再構成[15]、回折格子によるタルボ自己像計による far-field での波面計測法などが考えられる。

究極のマイクロビームの実現には、このようにして得られた幾何学的収差や波面収差に対して補償光学系を組み込むことによる収差補正が必要になる。この収差補正はピエゾアクチュエータによる deformable mirror を用いた手法[16]や透過型マスクを用いる手法などが開発されているが、いずれも試行的段階であり、実用レベルの手法とするにはこれからの R&D が必要である。

以上の問題の対策については別章で述べる。

(5) 10nm-1nm レベルの分解能を達成するための光学系の可能性と理論限界

上述のように単純な光学系（KB 配置全反射鏡、FZP、屈折レンズ等）の理論限界は 10nm 程度であることがわかっている。この限界は物質の電子密度で決まる屈折率によってビーム偏向角が制限されていることによるものである。従って何らかの方法で偏向角を大きくして高い *NA* が得られれば、より高分解能が可能になる。*NA* を大きくする方法には、今のと

ころ多段の光学素子と三次元(Volume 型)の光学素子のふたつが考えられている。

多段光学系による高 *NA* 化の代表的な例が、ウォルターミラーと呼ばれている回転楕円と回転双曲面の組み合わせ光学系である。例えば、図 2-18 に示すような完全軸対称回転楕円鏡光学系では、*NA* は全反射臨界角の二倍になり、レーリーの分解能限界は、

$$\Delta = 0.61\frac{\lambda}{2\theta c} \approx \frac{20nm}{\sqrt{\rho}} \qquad \text{(式 2-11)}$$

と表される。金や白金等の重元素反射面を用いれば、$\sqrt{r} \sim 4$ が可能であり、回折限界能分解能は理論上 5nm 以下になる。ここでさらに図 2-19 に示す Wolter-I 型のような二回反射の結像光学系では *NA* はさらに二倍になり、分解能限界は$\Delta \sim 0.61\lambda/(4\theta c)$となる。したがって、理論上の回折限界分解能はおよそ 2.5nm になる（厳密には、輪帯開口であるため Rayleigh の定義での回折限界分解能はこれより小さくなる)。これをさらに進めて、４段の反射光学系（回転楕円+回転双曲面+回転双曲面+回転双曲面）を考えると、理論上の分解能限界は約 1nm に達する。このような４回反射ミラーの作成は試みられてはいるが、現状での光学性能は理想から遙かに遠い。

軸対称全反射鏡のもうひとつの問題点は輪帯開口である。このため、アンジュレータ放射のような指向性の高い光源と組み合わせた場合、光学素子が受光出来る範囲は強度の弱い周辺部の一部になってしまう。この問題を解決する方法として、前置光学系によるビーム成型が考えられる。このような光学系と光学素子の開発は既に進められており[17]、理論上は軟 X 線領域でも全反射鏡光学系により 10nm を切る集光ビームが可能とされている。

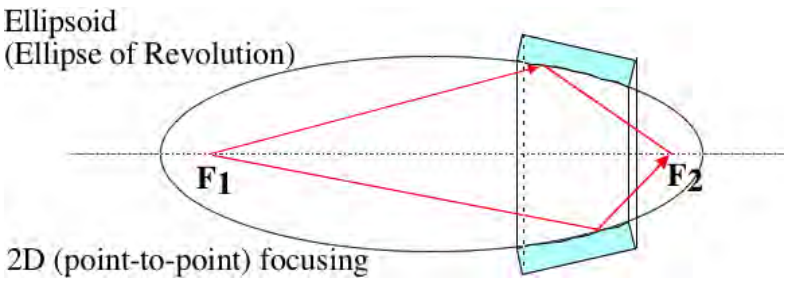


図 2-18:回転楕円集光鏡の概念図。光線は点光源 F1 を出て、回転楕円面の内面で反射され、F2 に集光される。

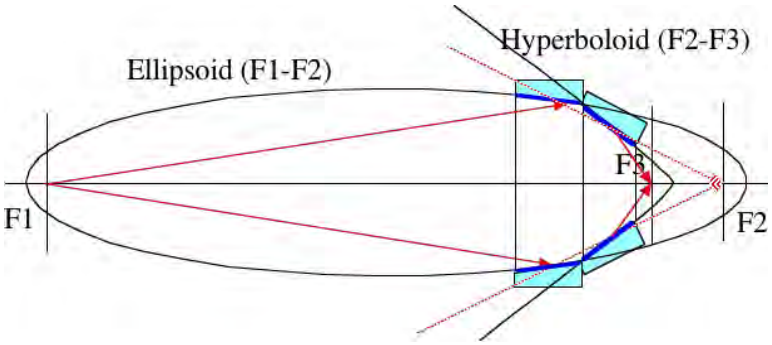


図 2-19：Wolter-I 型結像光学系の概念図。回転楕円鏡の内面と回転双曲面鏡の内面により順次反射集光される。

同様に、屈折レンズの場合も単体の屈折レンズの回折限界は 10nm 程度であるが、図 2-20 に示すように多段のレンズで順次集光することにより偏向角を大きくすることが可能である。このタイプのレンズは詳細な数値計算が行われた例があり、単純な回転放物面レンズを用いた場合でもレンズサイズを徐々に縮小していくこと（Adiabatic Focusing）により計算上 2nm の集光ビームサイズが達成可能とされている[18]。多段の屈折レンズにより全反射臨界角の限界を超える光学系も試みられてはいるが[19]、光学特性は理想からはるかに隔たっているのが現状である。

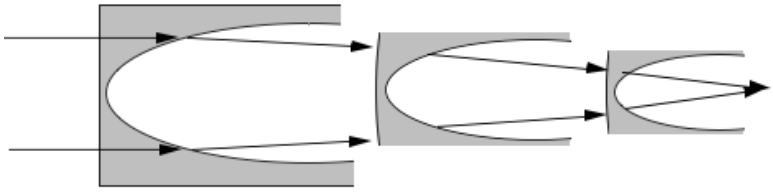


図 2-20： Sequential focusing by series of refractive lens.

偏向角を大きくするもうひとつの方法である三次元の(Volume)光学素子に関しては、非球面多層膜反射鏡のブラッグ反射を利用する光学素子と非常にアスペクト比の大きい FZP におけるラウエ反射を利用する軸対称 Multilayer Laue lens が開発中である。

現状ではこのふたつが 10nm 集光を実現している。とくに多層膜非球面鏡 KB 配置ではナイフエッジテストにより 10nm を切る集光ビームサイズが確認されており、現状でもっとも高性能な光学系と考えられる。しかしながら、これらの光学系は三次元構造の回折を利用しているため、原則として波長可変性が無い。このため一般的な放射光実験に適用するには問題がある。MLL の場合は近似的には多少の波長可変性を持つ。とくに一次元 MLL では(開口やゾーン数に強い制限を与える場合であるが）入射角の調整により波長可変光学系が可

能である。ただし、この一次元 MLL の直交配置には幾何光学収差が存在するため、二次元集光では軸対称 MLL にくらべると一般に限界分解能が低い。

このように多段の光学系や三次元 Volume 光学素子を用いることにより、理論上は 1nm 集光が可能である。さらに、多層膜集光鏡や MLL の *NA* の限界は多層膜の周期長にほぼ等しいので、1nm 分解能を超える集光ビームサイズも可能であることになる。しかしながら、ここまでの理論は理想的な界面や表面を前提としている。実際の光学素子作成にあたっては、多層膜非球面鏡や MLL では任意形状の非球面界面を生成する必要があるが、たとえ一原子層の制御が可能であったとしても原子サイズ以下に界面を制御することは出来ない。この人工的に制御可能な界面精度の制限にレーリーの$\lambda/4$ 則（理論分解能限界を達成するために許容される波面誤差は 1/4 波長以内）を適用することによって、光学素子による集光ビームサイズの理論限界Δが得られる。例えば軸対称光学系の場合、

$$\Delta = 0.61 \times 4d \qquad \text{（式 2-12）}$$

KB 配置のような非軸対称光学系では、

$$\Delta \sim 8\ d \qquad \text{（式 2-13）}$$

と考えられる。ここで、dは多層膜を形成する原子の平均直径である。原子の平均直径は元素のよって異なり、結合状態にも依存するので、正確な数値ではないが、だいたい 0.2nm 程度と考えれば妥当であろう。この場合、理論分解能限界は 1.6nm~0.5nm となる。さらに多段の屈折レンズや全反射鏡光学系であっても、表面加工精度限界が単一原子サイズであることと波面誤差に単純な加法性を仮定すると同じ理論限界になる。すなわち、現在知られている光学系と光学素子の作成方法に限っては集光ビームサイズ 1nm 程度が限界と考えられる。別の表現では、技術的進歩によっては現在知られている光学系を用いた場合でも 1nm 分解能に到達する可能性はある。

文献

[1] H. Mimura, et al, Jpn. J. Appl. Phys. **44**, L539 (2005).

[2] A. Takeuchi, et al, Jpn. J. Appl. Phys. **54**, 092401 (2015).

[3] C. Schrör, et al, Appl. Phys. Lett. **94**, 054802 (2005).

[4] K. Yamauchi, et al, J. Phys.: CM **23**, 394206 (2011).

[5] F. Döring, et al, Opt. Express **21**, 19311 (2013).

[6] W. Chao, et al, Opt. Express **17**, 17699 (2009).

[7] H. Yan, et al., Opt. Express **19**, 15069 (2011).

[8] M. Osterhoff et al, Appl. Cryst. **48**, 116 (2015).

[9] C. Bergemann et al, Phys. Rev. Lett. **91**, 204801 (2003).

[10] Y. Suzuki, Jpn. J. Appl. Phys. 43, 7311 (2004).

[11] K. Evans-Lutterodt et al, Opt. Express. **11**, 919 (2003).

[12] Y. Suzuki and H. Toda, Advanced Tomographic Methods in Materials Research and Engineering, ed. John Banhart, Oxford University Press, (2008), Sec. 7.1.

[13] 恒川、鈴木、クリーンテクノロジー　13, No3 36 (2003).

[14] A. Takeuchi, et al, Nucl. Instrum. Meth. A**467-467**, 302 (2001).

[15] H. Yumoto, et al, Rev. Sci. Instrum. **77**, 063712 (2006).

[16] T. Kimura, et al, Jpn. J. Appl. Phys. **48**, 072503 (2009).

[17] H. Motoyama and H. Mimura, J. Phys. B **48**, 244002 (2015)..

[18] C. Schrör, B. Lengeler, Phys. Rev. Lett. **94**, 054802 (2005).

[19] K. Evans-Lutterodt, et al. Phys. Rev. Lett. **99**, 134801 (2007).

2-4.軟 X 線・硬 X 線ハイブリッドビームラインの検討

KEK 放射光の特長の一つは，主に電子状態を観察するのに適した軟 X 線と，構造を決定するのに適した硬 X 線の両方において，高輝度なビームが得られることである。もちろん，軟 X 線と硬 X 線それぞれのビームラインにおいて同じ試料に対する実験を行うだけでも極めて有用であるが，KEK 放射光の特長をさらに活かし，同じ試料位置において軟 X 線と硬 X 線の両方が利用できるビームラインでサイエンスを展開するという提案が数多くなされている。ここでは，そのような要望を満たす，軟 X 線・硬 X 線ハイブリッドビームラインの検討を行う。

すでに述べた通り，分光器としては軟 X 線領域では斜入射回折格子分光器，硬 X 線領域では二結晶分光器が適している。現在，PF の BL-2 において，これら二つのタイプの分光器を統合し，30 eV – 4 keV という広いエネルギー範囲をカバーするビームラインが稼働中である。そこで本デザインレポートでは，PF の BL-2 のコンセプトを採用し，軟 X 線・硬 X 線両方において高輝度なビームが得られるビームラインを設計する。

図 2-21 にビームラインの模式図を示す。2-2 節で検討した，軟 X 線領域におけるナノ集光ビームラインを基本とするが，不等刻線間隔回折格子(VLSPG)の下流に二結晶分光器(DCM)を配置している。軟 X 線ビームラインにおいては，M2 によって跳ね上げられたビームは回折格子によって分散され，そのなかで必要な波長のみを出射スリット(Exit Slit)で切り出しているが，この時ビームの高さは M2 に照射される前と比べて 17 mm 高くなっている。従って，DCM の二枚の結晶の配置を，ビームの高さが 17 mm 高くなるように設定すれば，軟 X 線利用時(DCM を横に退避)と硬 X 線利用時(M2 を横に退避)とで，光軸を全く同じにすることができる。なお，DCM には集光機能がないため，硬 X 線利用時に垂直方向のフォーカスがうまくいかないと思うかもしれないが，本デザインレポートで採用している Monk-Gillieson 型の斜入射分光器は，VLSPG を通さない場合でも，入射スリット(Entrance Slit)の下流の集光鏡(M1)によって，垂直方向のビームがほぼ出射スリット位置(厳密には出射スリットの約 50 mm 上流)に集光されるので，以下に示す通り大きな問題にはならない。

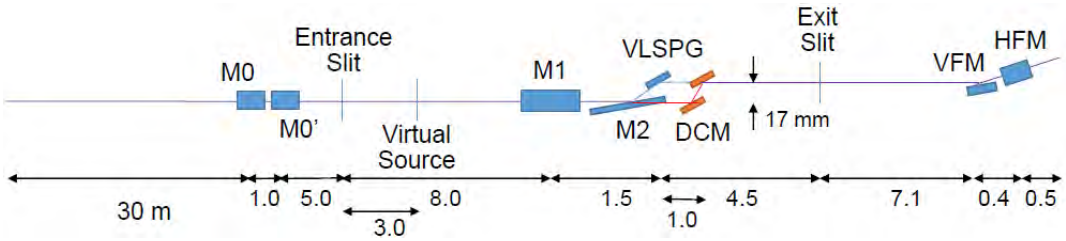


図 2-21: 軟 X 線・硬 X 線ハイブリッドビームラインの模式図。軟 X 線利用時には二結晶分光器(DCM)を横に退避し，硬 X 線利用時には平面鏡(M2)を横に退避する。

光学素子のパラメータを表 2-5 にまとめる。ここで，ミラーの入射角とコート材に注意が必要である。同じミラーを使って軟 X 線と硬 X 線の両方を反射させるためには当然，よりエネルギーの高い硬 X 線領域に合わせてこれらを設定するべきであるが，あまり入射角を浅くすると発散角の大きい軟 X 線領域において取りこぼしが多くなる。ここでは比較的要望の強い，300 eV – 10 keV をカバーすることを想定して，10 keV で十分な反射率が得られることを目指し，Pt コート，入射角 0.4 度を採用する。この条件であれば，300 eV – 2 keV および 3 – 10 keV において，75%以上の反射率が得られる。残念ながら 2 – 3 keV の間では，Pt の吸収端のために反射率が著しく低下するが，ここではこれで妥協する。なお，2 – 3 keV 領域が必要な場合には例えば Ni コートを用いることが考えられる。

表 2-5: 軟 X 線・硬 X 線ハイブリッドビームラインの光学素子のパラメータ

名称	形状	長さ	入射角	コート	R	ρ
M0	Cylindrical (sagittal)	300 mm	0.4 deg	Pt	∞	69.81 mm
M0’	Cylindrical	300 mm	0.4 deg	Pt	1821 m	∞
M1	Cylindrical (sagittal)	150 mm	0.4 deg	Pt	∞	47.66 mm
M2	Plane	310 mm	0-4 deg	Au	∞	∞
VLSPG	Plane	100 mm	0-8 deg	Au	∞	∞
VFM	Elliptical	300 mm	0.4 deg	Pt	—	∞
HFM	Elliptical	300 mm	0.4 deg	Pt	∞	—

図 2-22 と図 2-23 にそれぞれ，軟 X 線領域，硬 X 線領域における試料位置でのビームプロファイルの計算結果を示す。300 eV – 10 keV の範囲を一台のアンジュレータでカバーすることは難しいので，便宜上，硬 X 線，軟 X 線領域それぞれ，2-1, 2-2 節で仮定したのと同じアンジュレータを用いている。したがって，例えば 2 台の短いアンジュレータをタンデムに配置した場合には，得られるフラックスは見積もられた値よりも小さくなることに注意が必要である。計算結果を見ると，軟 X 線・硬 X 線いずれも，サブミクロン程度のスポットサイズが得られている。なお，2-1, 2-2 節で検討したナノ集光光学系に比べてスポットサイズが大きいのは，縮小率をあまり高くしていないからであるが，これは，例えば軟 X 線領域におけるナノ集光光学系のままで，入射角だけを 0.4 度入射にしてしまうと，ビームの取り込み角が大幅に減少し，回折限界に達してしまうことによって，縮小率の割にはスポットサイズが小さくできないからである。なお，軟 X 線領域では出射スリットにおいて垂直方向に波長分散した X 線が得られるため，垂直方向の強度分布はフラットになっており，

それを反映して試料位置でもほぼフラットな像が得られるのに対し，硬 X 線領域では単純な反射光になるため，出射スリットおよび試料位置において垂直方向に分布が見られる。そういったビーム形状の違いを反映して FWHM は異なっているが，基本的には試料位置でのビームサイズは水平仮想光源と出射スリットの開口によって決まっている。なお，硬 X 線領域におけるエネルギー分散は 10 keV で 2.5 eV, 5 keV で 0.98 eV と見積もられた。10 keV での値は 2-1 節で得られたものに比べて 2 倍程度大きいが，これは DCM への入射ビームが垂直方向に収束光になっており，しかも M0 の縮小率のために光源からの発散ビームよりも収束角がきつくなっているためと考えられる。

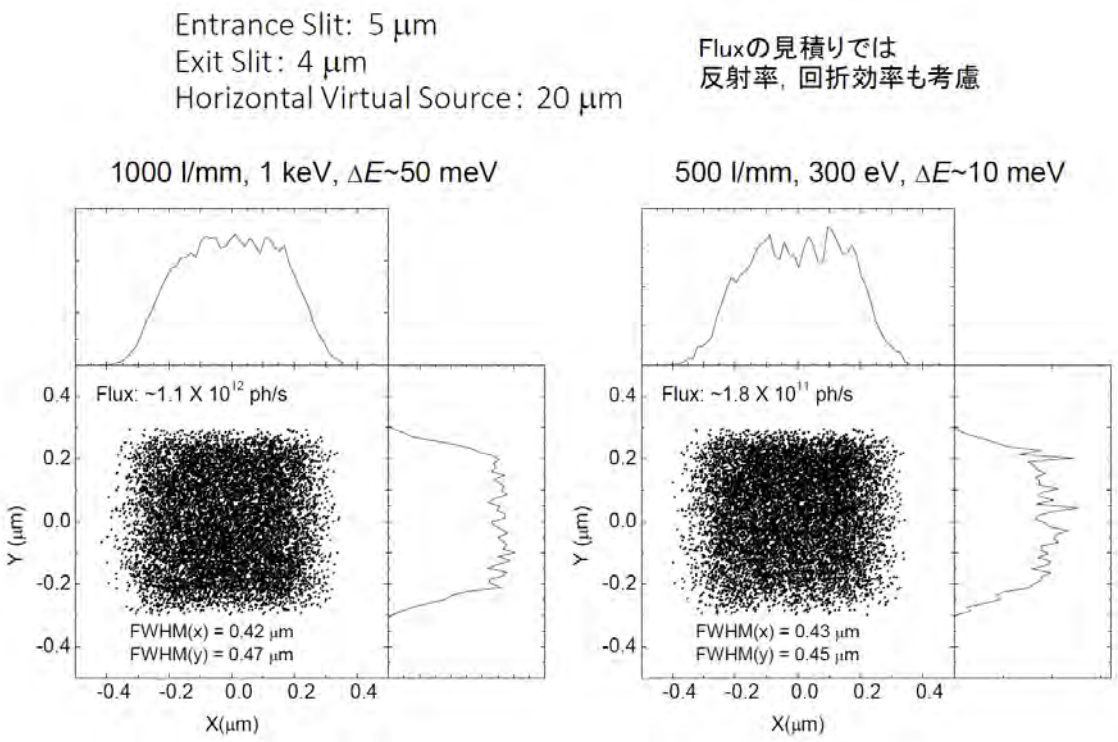


図 2-22: 軟 X 線モードにおける試料位置でのビームプロファイル(1 keV および 300 eV)。

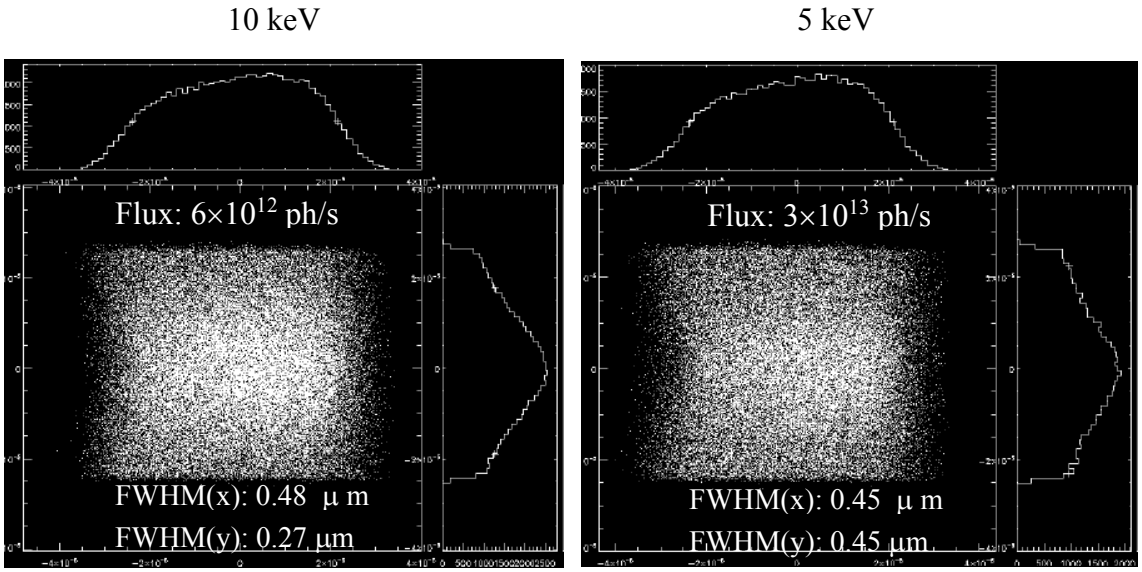


図 2-23: 硬 X 線モードにおける試料位置でのビームプロファイル(10 および 5 keV)

2-5.　スポットサイズ可変ビームラインの検討

様々なサイエンスケースにおいて，微小なビームだけでなく，同じ位置でビームサイズを可変にしてほしいという要望がある。典型的には 100 μm から 1 μm 程度の間で連続可変という要望であるが，中には数 10 nm から数 100 μm という，4 桁にもおよぶ変化を希望するケースもある。ここでは，スポットサイズを可変にできるビームライン光学系の可能性を検討する。

まず単純に考えられるのは，試料位置への集光ミラーにベント機構を導入して曲率半径を可変とすることである。もちろん，ミラーを思い通りにベントすることさえできればスポットサイズは自由に変えられるが，実際には様々な困難が予想される。考えられる問題点は以下の通りである。

(1) 微小ビームを実現するには非球面形状(多くの場合楕円形状)が必要になるので，少なくとも微小スポットに対応する曲率半径では正確な形状が要求される。

(2) 微小スポットを実現するためには焦点距離が短い(曲率半径が小さい)ミラーが必要となり，ベントが困難になることがありうる。

(3) ベントすることによってミラーの入射角や位置が変わるとスポットの位置が変化するので，調整に注意が必要である。

例えば，自然な状態では焦点距離の短い正確な楕円形状であるミラーを用意し，そこからベント機構によって曲率半径を変えていくという方法が考えられるが，そのような方法でどれだけ再現性良く形状を制御できるか，どこまで曲率半径を変化させられるか，慎重な検討が必要である。

もう一つの単純な可能性は，集光ミラーを切り換え式にすることであるが，この場合スポットサイズは離散的にしか変化させられないし，ミラーの枚数分だけミラー自身とホルダーのコストがかかることになる。

ここでは別の可能性として，仮想光源への集光ミラーにベント機構を導入する方法を検討する。仮想光源のある集光光学系では，前段のミラーによって一旦ビームを集光し，そこでビームを適切な大きさに成形して仮想光源としたあとで，後段のミラー(例えば楕円鏡)によって試料位置へ集光する。この際，後段の集光ミラーの収差やスロープエラーが十分に小さければ，試料位置におけるビームサイズは，仮想光源のサイズ，および後段のミラーの縮小率で決まる。ごく単純には，仮想光源におけるビームサイズを故意に大きくしておけば，仮想光源の開口によって試料位置でのビームサイズを自由に変えられるが，この場合，試料位置で微小ビームを得るために仮想光源を絞ると，大幅にビームをロスすることになってしまう。これではあまり意味がないので，ここでは，仮想光源への集光を行う

前段のミラーの曲率を可変とする。この方法の利点は以下の通りである。

(1) 必要なビームサイズに合わせて仮想光源の開口を設定し，それに合わせて前段のミラーの曲率半径を変化させることによって，ビーム強度のロスを最小限に抑えることができる。

(2) 後段の集光光学系は通常，高い縮小率になっているため，仮想光源のサイズは試料位置のスポットサイズよりも大きい。したがって，前段の集光ミラーの形状には，それほど高い精度は要求されないことが多い。

(3) ベント機構によって正確なミラー形状が得られない場合にも，仮想光源によってビームを成形するので，試料位置におけるビーム形状は保たれる(もちろんビーム強度は若干ロスすることになる)。

(4) 前段の集光ミラーは曲率半径が比較的大きくベントしやすい場合が多い。

このような光学系の有効性を確認するために，硬 X 線領域のビームラインの一例として図 2-24 に示すような光学系を設計した。なお，本来は第一ミラーの上流に二結晶分光器があるが，光線追跡上は影響を与えないので省略している。

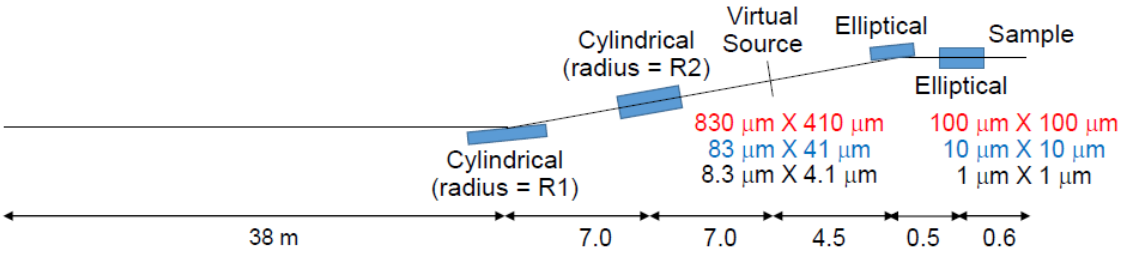


図 2-24: スポットサイズ可変ビームラインのレイアウト例。ミラーの入射角は全て 4 mrad とした。仮想光源の開口と試料位置におけるスポットサイズの組み合わせを黒，青，赤で示す。

光源からの発散光は，二枚のベント機構付き円筒(Cylindrical)鏡によって仮想光源(Virtual Source)に集光される。仮想光源で成形されたビームは二枚の楕円(Elliptical)鏡によって試料位置に集光される。後段の集光光学系の縮小率は，8.3:1 (水平)および 4.1:1 (垂直)である。したがって，仮想光源の開口を 8.3 μm (h.) × 4.1 μm (v.)に設定することによって，試料(Sample)位置において 1 μm (h.) × 1 μm (v.)のビームが得られる。

ここで，二枚の円筒鏡の曲率半径を変化させることによって，仮想光源におけるビームサイズを制御する。この原理を図 2-25 に模式的に示す。垂直方向については，Side view に示すように，前段集光の焦点を上流にずらしていくことによって，仮想光源におけるビームサイズを大きくする。どこまでビームサイズが大きくなるかは，ビームの発散角に依存するが，ここでは例として，5 m 直線部に周期長 20 mm のアンジュレータを設置し，そこか

ら得られる 10 keV の X 線を利用することを想定している。その場合，図 2-25 に示すように前段集光ミラーの曲率半径(R1)を本来の値である 5120 m から 4700 m, 2400 m と変化させることで，仮想光源における垂直方向のビームサイズを約 5μm, 50 μm, 500 μm と大きくすることができる。一方，水平方向に関しては，同じように焦点を上流にずらしてしまうと，ビームの発散角が大きくなりすぎ，後段のミラーで受けきれなくなるので，垂直方向とは逆に，焦点を下流にずらしていくことによって仮想光源におけるビームサイズを大きくする。図 2-25 に示すように前段集光ミラーの曲率半径(R2)を本来の値である 3030 m から 3400 m, 10000 m と変化させることで，仮想光源における垂直方向のビームサイズを約 10 μm, 100 μm, 1000 μm と大きくすることができる。このようにして仮想光源において大きくなったビームを適切な大きさに成形し，試料位置に再集光することで望みのビームサイズを得ることができる。

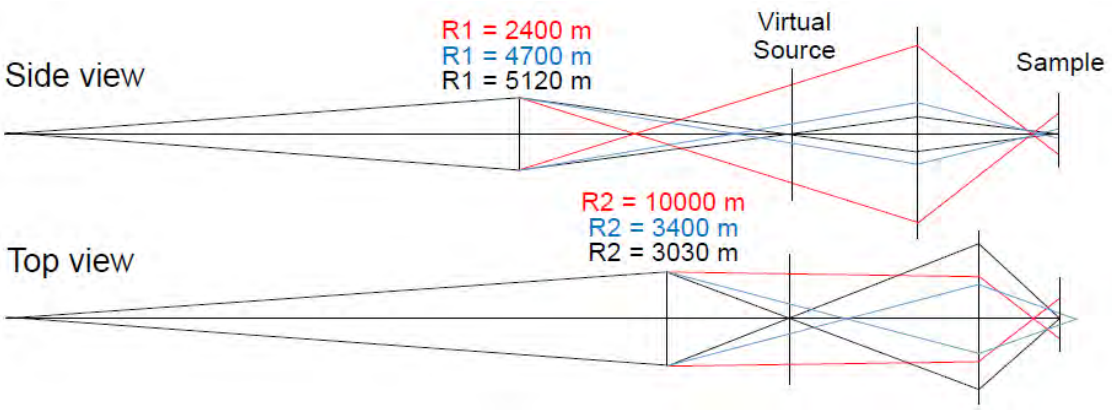


図 2-25: 円筒鏡の曲率半径を変化させることによるビームサイズ制御の模式図。黒，青，赤のラインがそれぞれ，1μm, 10 μm, 100 μm のビームサイズに対応する。

図 2-26 に光線追跡法によって見積もった，試料位置におけるビームサイズを示す。上記のように，ミラーの曲率半径と仮想光源の開口を変化させることによって，ビームサイズを 1μm, 10 μm, 100 μm と制御できることがわかる。なお，幾何学的スループットの違いは仮想光源におけるビームのロスによるものである。1 μm の場合にビーム強度のロスが大きいのは，光源サイズと前段の集光ミラーの縮小率で決まる仮想光源におけるスポットサイズが，それほど小さくはないので，1/4 程度までビームを削る必要がある(これは可変スポットサイズにしなくても同様である)ためである。また，スポットサイズ 10 μm, 100 μm においても，ビームの均一性をある程度確保するために仮想光源におけるスポットサイズが開口よりも十分大きくなるように曲率半径を設定しているため，1/2 程度のビーム強度のロスがある。

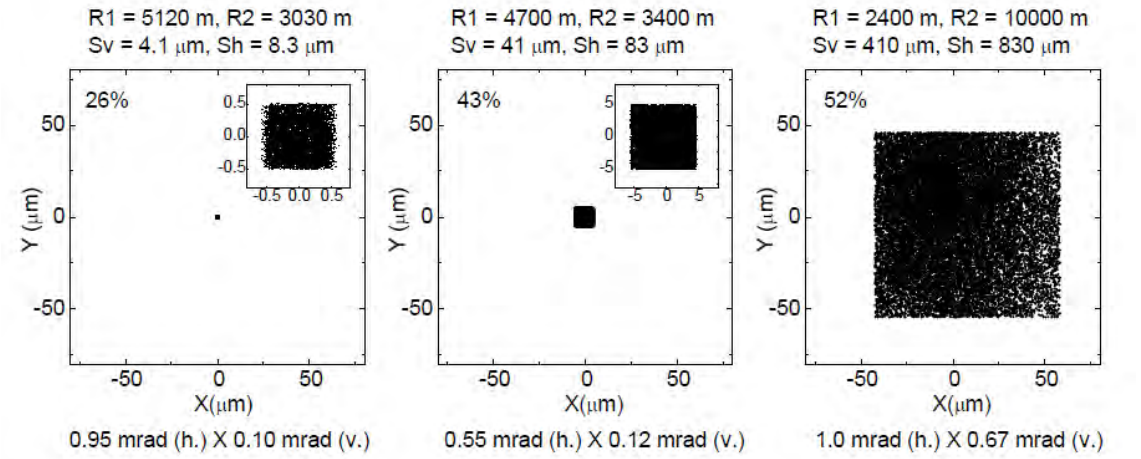


図 2-26: 光線追跡法によって見積もった，試料位置におけるビームサイズと発散角。前段集光ミラーの曲率半径，仮想光源の開口，幾何学的スループットも示した。

今後，この方法が本当に適用可能かどうか，ベント機構も含めた詳細の検討を行うとともに，より小さいビームサイズまで可変にできるかどうかを検討する予定である。また，軟 X 線領域(回折格子分光器)では，分光器によって垂直方向のビームが分光器の出射スリットに集光され，スリットへの集光とスリットの開口がエネルギー分解能を決めてしまうので，ビームサイズの制御に対する自由度が少なくなる(集光光学系のために自由に使える距離が短い)。水平方向はここで検討したものと同様の方法が使えるが，垂直方向についてはさらなる検討が必要である。

2-6.　ミラーのスロープエラーおよび機械的振動の影響

ここまでの計算はすべて，理想的なミラー形状を仮定している(回折格子のスロープエラーを除く)。本節では，実際に起こり得る様々なエラー(製作時のスロープエラー，熱負荷による変形，機械的振動による角度変動)が，ビームサイズやエネルギー分解能，フラックスにどのような影響を与えるかを検討する。なお，熱負荷による変形や機械的振動による角度変動は，近似的にミラー製作時のスロープエラーと同等なので，以下ではミラーのスロープエラーのみを扱う。

(1) 硬 X 線ビームライン(ナノ集光光学系)

まず，2-1 節の図 2-1 の上から 2 番目に示した，硬 X 線領域のナノ集光光学系(1)について検討を行う。このビームラインは上流から，二結晶分光器，K-B 光学系(上流)，仮想光源，K-B 光学系(下流)からなる。水平仮想光源の開口は 2-1 節と同様に 1.8 μm とするが，ここでは垂直仮想光源の開口も 1.5 μm に制限する(2-1 節では全開としていた)。図 2-27 に，二結晶分光器の第 1 分光結晶のスロープエラーの影響を示す。白色 X 線をダイレクトに受けるため，熱負荷が圧倒的に大きい光学素子である。ここで，スロープエラーは凹面モデルおよび凸面モデルを用いて近似し，結晶面の長手方向全体の rms 値として定義する(硬 X 線ビームラインについて，以下同様)。ただし，凹面と凸面で目立った違いは見られなかったので，結果は凹面モデルに対するもののみを示す。図 2-27 に試料位置におけるビームサイズ，フラックス，エネルギー分解能を示す。エラーがない場合を 1 としてプロットした。下流に仮想光源があるので，ビームサイズにはほとんど影響せず，フラックスのみが低下することがわかる。また，エネルギー分解能については，確かに第一分光結晶後では入射角の変化によってエネルギー広がりが大きくなるが，入射角がずれた成分(結果的にエネルギーがずれる)は，第 2 結晶への入射角が第 1 結晶と異なるため，ブラッグ反射を起こしにくくなる。したがって結果的に，エネルギーが広がった成分は下流に到達しないため，試料位置での分解能はほとんど変化しないと理解できる。なお，フラックスの低下は，下流の仮想光源におけるビームサイズの広がりが主な原因である。この結果から，性能(この場合はフラックス)が 20%低下するスロープエラーを Er(20%)と定義すると，Er(20%) = 4.2 μrad 程度になる。

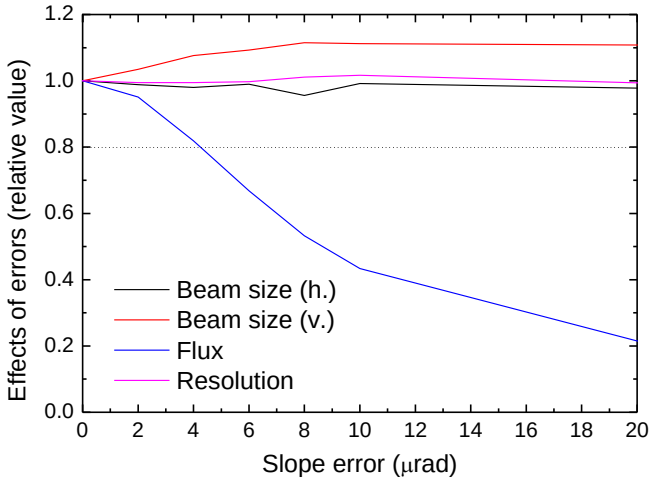


図 2-27: 第一分光結晶のスロープエラーの影響。

次に上流側の K-B 光学系に対するスロープエラーの影響を図 2-28 に示す。下流に仮想光源があるため，試料位置でのビームサイズはさほど変化しないが，フラックスは低下する。同様に Er(20%)を見積もると，縦振り，横振りミラーそれぞれに対して 0.10, 0.70 μrad となる。

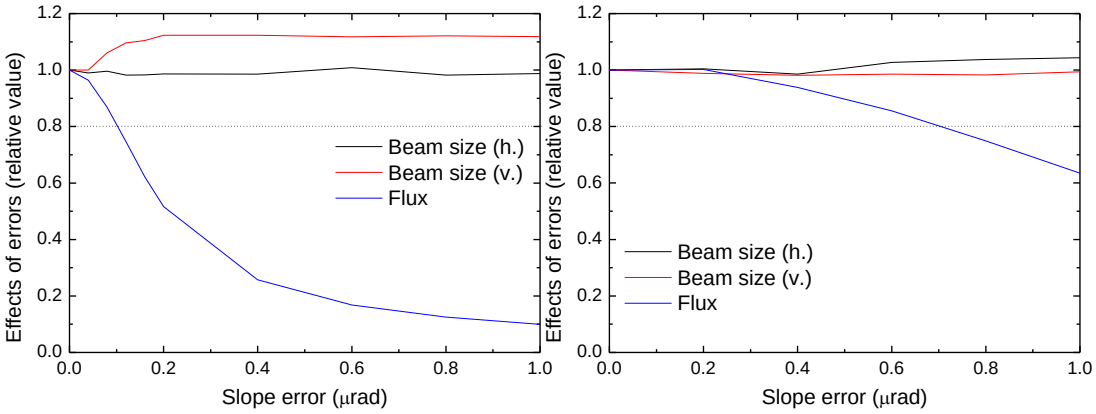


図 2-28: K-B 光学系(上流)の縦振り(左)，横振り(右)ミラーに対するスロープエラーの影響。

最後に下流側の K-B 光学系に対するスロープエラーの影響を見積もる。この光学系は，仮想光源で切り出したビームを試料位置に集光するものであり，光学系の下流にスリット等はないため，スロープエラーの影響は直接ビームサイズの増大として現れる。この影響は単純に距離から見積もることができ，焦点位置までの距離を r，スロープエラーを s とす

ると 2sr となる。ただし，最終的なビームサイズは，本来のビームサイズとエラーによる広がりのコンボリューションになる。このようにして見積もったビームサイズを図 2-29 に示す。これまでと同様に，性能(ビームサイズ)が 20%悪化する時のスロープエラーを Er(20%)とすると，縦振り，横振りミラーに対してそれぞれ，0.012, 0.023 μrad となる。

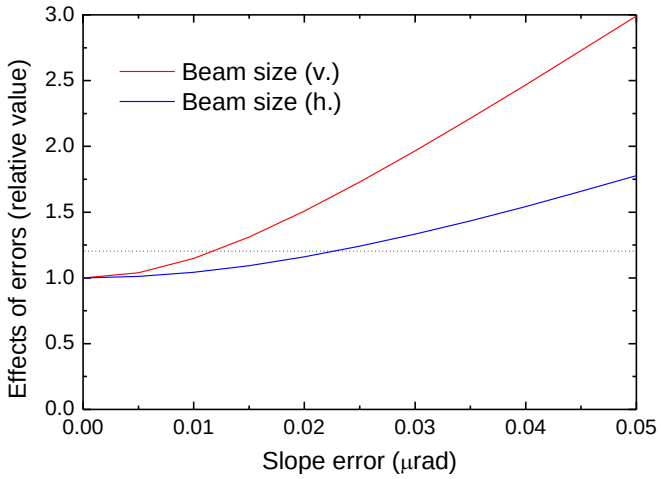


図 2-29: K-B 光学系(下流)に対するスロープエラーの影響。

(2)　軟 X 線ビームライン(簡易集光光学系)

次に 2-2 節の図 2-5 の上段に示した，軟 X 線ビームライン(簡易集光)について検討を行う。このビームラインは上流から，M0: 円筒鏡(サジタル集光)，入射スリット，M1: トロイダル鏡，M2: 平面鏡，VLSPG: 平面回折格子，水平仮想光源，M3: トロイダル鏡の順に並んでいる。これらのうち，M1 のサジタル方向および M2, VLSPG のタンジェンシャル方向のエラーはエネルギー分解能に影響を与えるが，M0 のサジタル方向のエラーについては，入射スリットがあるため，エネルギー分解能への影響は小さいと考えられる。なお，軟 X 線領域では，スロープエラーは 2σ制限をかけたガウス分布の乱数を用いてミラーの局所的な角度を変化させることでシミュレートする。

図 2-30 に M0, M1 のサジタル方向のスロープエラーの影響を示す。予想通り，M0 のエラーはエネルギー分解能にはあまり影響せず，もっぱらフラックスの低下として現れる。一方，M1 は逆に主にエネルギー分解能に影響する。M0, M1 それぞれ，影響の大きい要素に対して Er(20%)を見積もると，13, 28 μrad になる。続いて，タンジェンシャル方向のエラーの影響を図 2-31 に示す。これは水平仮想光源における像の広がりになるので，試料位置でのフラックスの低下につながる。Er(20%)は M0, M1 に対してそれぞれ，1.0, 0.64 μrad となる。

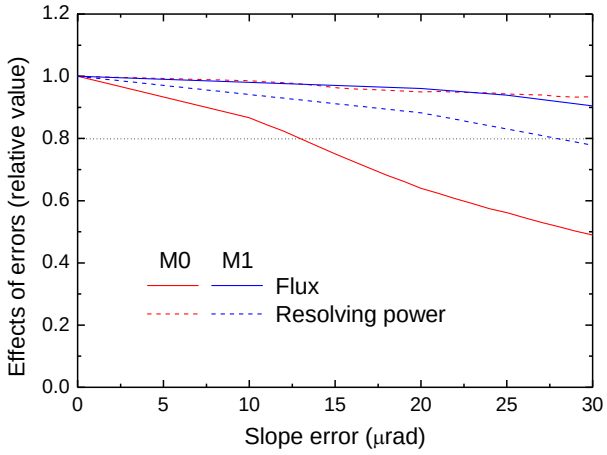


図 2-30: M0, M1 のサジタル方向のスロープエラーの影響。

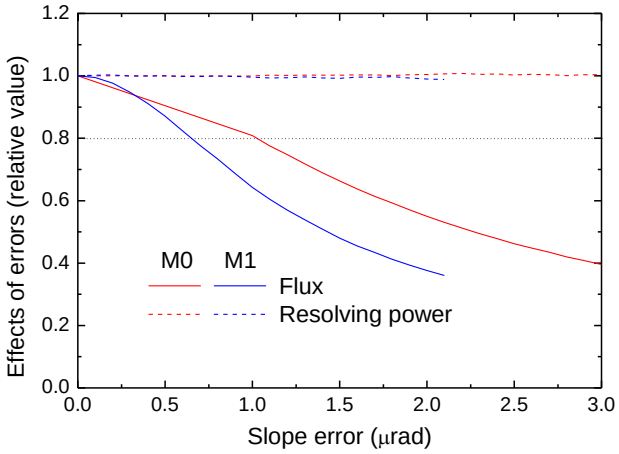


図 2-31: M0, M1 のタンジェンシャル方向のスロープエラーの影響。

図 2-32 に，M2, VLSPG に対するスロープエラーの影響を示す。サジタル方向はエネルギー分解能には影響しないが，水平仮想光源点における像の広がりを生じるために試料位置でのフラックスの低下につながる。一方，タンジェンシャル方向はエネルギー分解能に大きく影響する。同様にして Er(20%)を求めると，サジタル方向は M2, VLSPG それぞれ 22, 18 μrad，タンジェンシャル方向は 0.29, 0.32 μrad となる。なお，回折格子のスロープエラーは 0.25 μrad で設計しているので，その時の分解能を 1 としてプロットした。

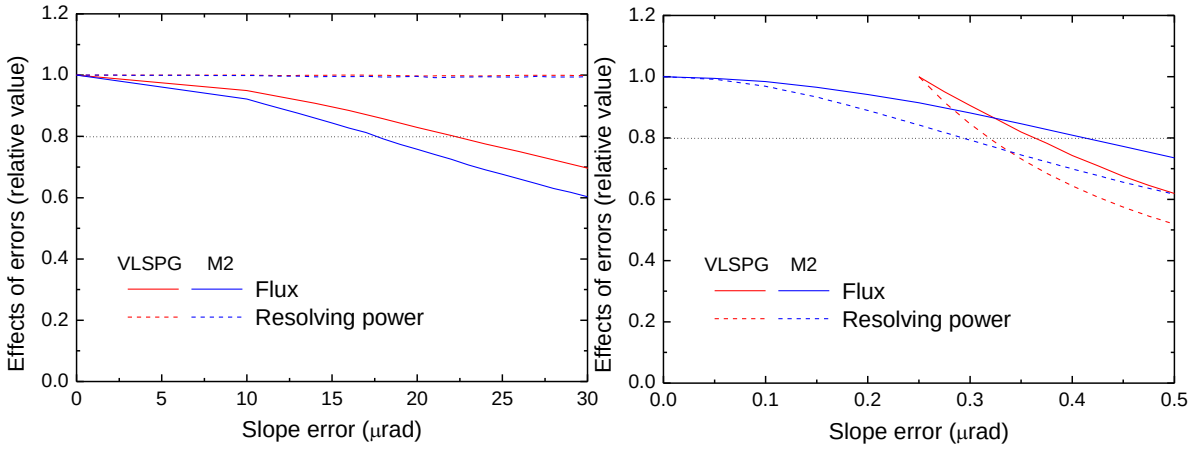


図 2-32: M2, VLSPG のサジタル(左)およびタンジェンシャル(右)方向のスロープエラーの影響

最後に M3 のスロープエラーの影響を見積もる。焦点位置までの距離を r，スロープエラーを s とするとタンジェンシャル方向については上記の通り 2sr となるが，サジタル方向については sin θ (θは入射角：この光学系では 1°)をかける必要がある。このようにして求めたエラーの影響(ビームサイズの増大)を図 2-33 に示す。Er(20%)はそれぞれ，13, 0.4 μrad である。

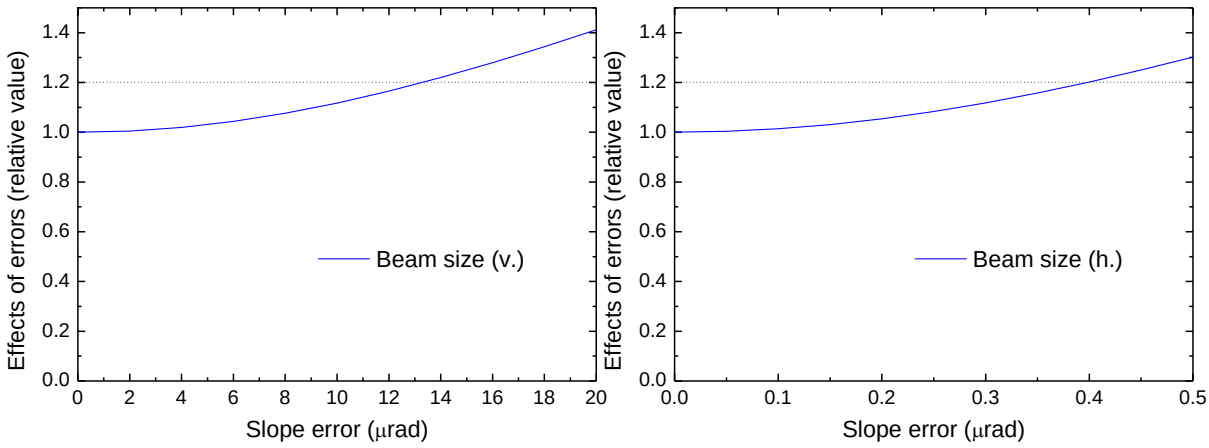


図 2-33: M3 に対するサジタル(左)およびタンジェンシャル(右)方向のスロープエラーの影響

(3)　軟 X 線ビームライン(ナノ集光光学系)

最後に，同じ軟 X 線でもスロープエラーの影響がよりシビアになると思われるナノ集光光学系について検討を行う。2-2 節の図 2-5 下段に示すように，このビームラインは上流から，M0: 円筒鏡(サジタル集光)，M0’: 楕円鏡，入射スリット，水平仮想光源，M1: トロイダル鏡，M2: 平面鏡，VLSPG: 平面回折格子， M3, M3’:楕円鏡(K-B 配置)の順に並んでいる。ここで，入射スリットと出射スリットの間にある光学素子については，主にエネルギー分解能に影響するが，その影響は簡易集光光学系と大差ないと考えられるのでここでは検討しない。

図 2-34 に M0, M0’に対するスロープエラーの影響を示す。サジタル方向については，M0, M0’それぞれ Er(20%) = 11, 12 μrad と見積もられる。タンジェンシャル方向も同様に，0.66 μrad, 0.78 μrad である。これらの値は，簡易集光光学系の M0 と比べて，大きくは異なっていない。

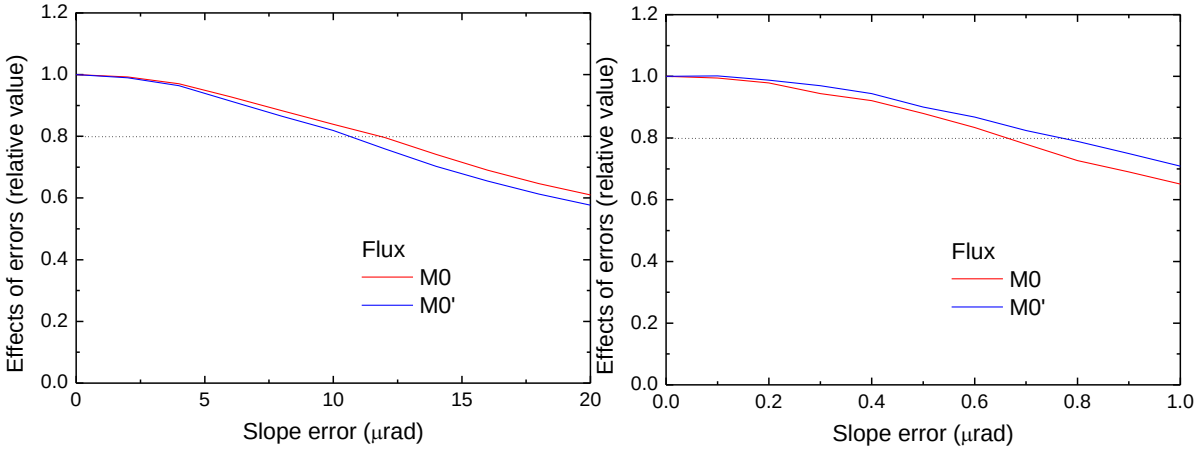


図 2-34: M0 および M0’に対するサジタル(左)およびタンジェンシャル(右)方向のスロープエラーの影響

続いて図 2-35 に，試料位置での集光サイズを決める M3 および M3’に対するスロープエラーの影響を示す。Er(20%)はそれぞれ，0.022, 0.047 μrad と見積もられる。試料までの距離が硬 X 線の光学系よりも短いために Er(20%)は若干大きな値になっているが，それでもかなりの精度が要求される。

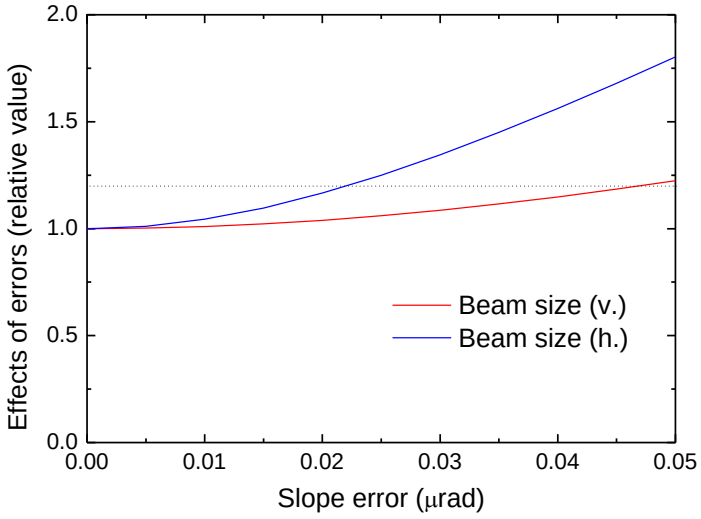


図 2-35: K-B 光学系(M3, M3')に対するスロープエラーの影響。

以上の検討によって見積もった Er(20%)，すなわち性能が 20%低下するスロープエラーを表 2-6 にまとめる。これは，ミラー製作上の精度の目安となると同時に，熱負荷によるミラーの変形および機械的振動などによるミラーの角度変動の抑制に対する目安でもある。

表 2-6: 性能が 20%低下するスロープエラー，Er(20%)

硬 X 線(ナノ集光)		軟 X 線(簡易集光)		軟 X 線(ナノ集光)	
光学素子	Er(20%)	光学素子	Er(20%)	光学素子	Er(20%)
第 1 結晶	4.2 μrad	M0(sagittal) (tangential)	13 μrad 1.0 μrad	M0(sagittal) (tangential)	11 μrad 0.66 μrad
K-B(上流) 縦振り	0.1 μrad	M1(sagittal) (tangential)	28 μrad 0.64 μrad	M0'(sagittal) (tangential)	12 μrad 0.78 μrad
K-B(上流) 横振り	0.7 μrad	M2(sagittal) (tangential)	22 μrad 0.29 μrad	M3 (tangential)	0.022 μrad
K-B(下流) 縦振り	0.012 μrad	VLSPG(sagittal) (tangential)	18 μrad 0.32 μrad	M3' (tangential)	0.047 μrad
K-B(下流) 縦振り	0.023 μrad	M3(sagittal) (tangential)	13 μrad 0.4 μrad		

2-7.　床振動の影響の検討

ここでは床の振動，特に，位置によって位相の違う「インコヒーレント」な振動の影響を検討する。これは言い換えれば，ビームライン上の異なる位置の間の相対的な位置が変動した場合の影響を見積もることになる。最終的には，様々なビームラインの様々な位置について検討を行う必要があるが，まずは代表的なものとして，軟 X 線領域のナノ集光光学系(2-2 節の図 2-5 下段)について，垂直方向の相対変位(振動)の影響を見積もることにする。

(1) 光源－ビームライン間

まず，0 m 地点にある光源点の垂直方向の位置が，30 m 以降のビームライン全体に対して変動(振動)した場合の影響を見積もる。ここで，振動はガウス分布とし，その大きさを σ 値で示す。この場合，実効的には光源点が垂直方向に大きくなるため，入射スリットにおけるビームサイズが増大し，そこを通過するビームのフラックスが減少する。入射スリットより上流のエラーがエネルギー分解能にほとんど影響しないのは，ミラー(M0, M0')のスロープエラーの影響で確認した通りである。図 2-36 に，このような振動の影響を示す。前節と同様に性能が 20%低下する振動の大きさを Er(20%)と定義すると，Er(20%) = 10 μm となる。図 2-36 には，光源の角度変動の影響もあわせて示す。これもフラックスの低下となって現れ，Er(20%) = 11 μrad である。

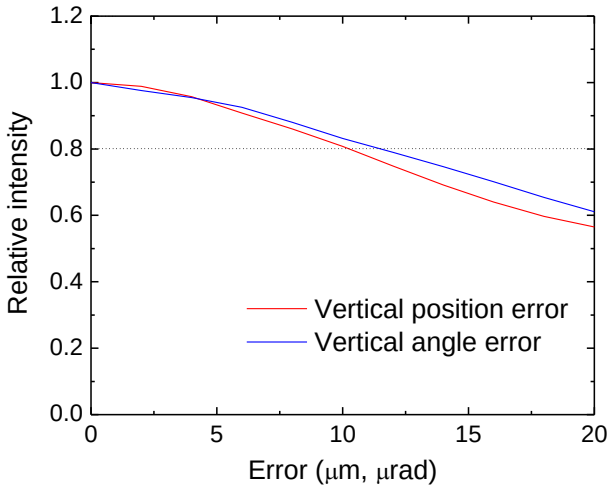


図 2-36：光源点とビームラインの間の相対位置および角度変動の，フラックスに対する影響。

(2) 入射スリット－分光器間

次に，入射スリットと分光器(M1 以降)の間の相対変位の影響を図 2-37 に示す。これは，入射スリット開口が大きくなったことに相当し，分解能の低下をもたらす。入射スリッ

トの開口が 5 μm である割に，振動の影響が比較的小さく感じられる。これは，このビームラインの設計では，エネルギー分解能が主に回折格子のスロープエラー(0.25 μrad)によって決まっているためである。Er(20%)は同様に，7.3 μm と見積もられる。

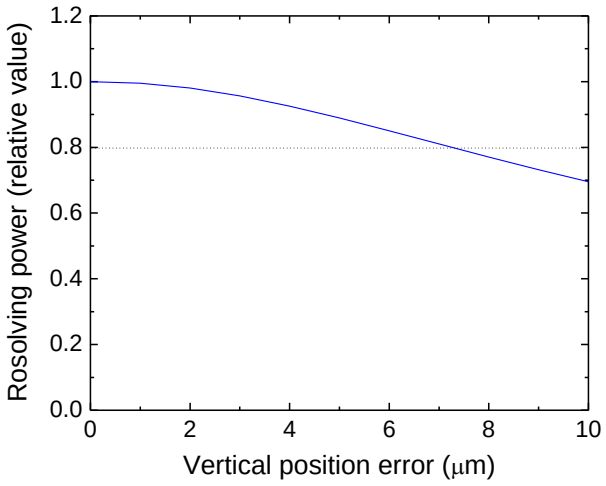


図 2-37: 入射スリットと分光器の間の相対位置変動のエネルギー分解能に対する影響。

(3) 出射スリットーK-B 集光系間

最後に，出射スリット(K-B 集光系に対する垂直方向の仮想光源)と K-B 集光系の間の相対変位の影響を見積もる。この際，K-B 集光系と試料の相対位置は変動しないとする。このような変位(振動)は，仮想光源の開口が大きくなったことに相当し，ビームサイズの増大をもたらす(図 2-38)。Er(20%) = 0.68 μm と見積もられる。ここで，振動の大きさの割にビームサイズへの影響が小さいのは，集光系が縮小光学系であるために出射スリット(仮想光源)における変動が試料位置では縮小率の分だけ小さくなるからである。なお，集光ミラーに対して試料の位置が変動すると，そのまま(縮小率による軽減なしに)ビームサイズの増大につながるので，図 2-38 に比べてはるかに影響が大きくなる。したがって当然，K-B 集光系と試料は一体になるように設計すべきである。

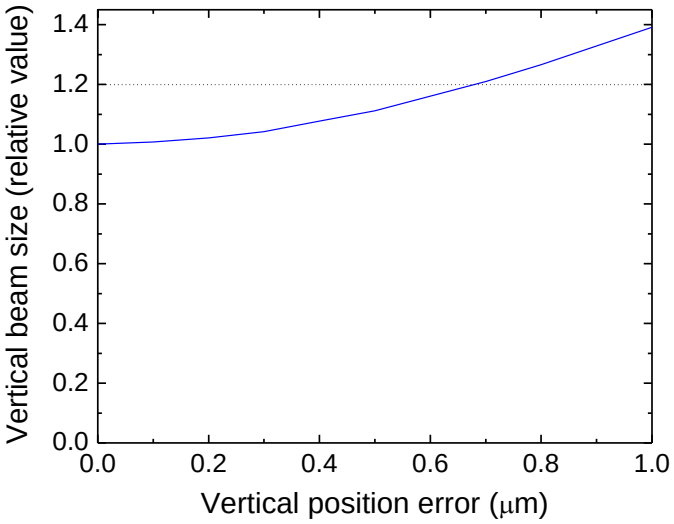


図 2-38: 出射スリットと K-B 集光系(試料を含む)の間の相対位置変動の，ビームサイズに対する影響。

以上，一例ではあるが，床(地盤)の振動として比較的大きいと考えられる，垂直方向の振動の影響を見積もった。特に，ナノ集光において影響の大きい，仮想光源と K-B 集光系の間の相対変位(図 2-37)について，変位(インコヒーレント振動)をサブミクロン程度に抑えることが重要であることがわかる。この結果は逆に，50 nm 集光をするために床振動を 50 nm 以下に抑える必要はない，とも言える。KEK つくばキャンパスにおける地盤自体の振動の実測結果は，上記の条件(振動がサブミクロン程度以下)を満たしており，建屋や架台によって地盤の振動を不用意に増幅しないように注意すれば，ナノ集光は十分可能であると考えられる。もちろん，K-B 集光系と試料の間の相対変位に関しては，集光レベル以下の変動(振動)に抑える必要があるが，これは集光ミラー(仮想光源は含まない)と試料の間を一体にすることで実現できると考えられる。なお，これは地盤とは関係ないが，空調やポンプなどの機械的な振動源の影響を抑える必要があるのは当然である(抑制の目安については前節で検討した)。

３．光学素子開発

設計されたビームラインの分光・集光性能を実現するためには、もともとの光学素子の表面精度の向上とともに、放射光の熱負荷により生じるミラーや分光結晶のスロープエラーの低減、乱れた波面の補正機能、及びそれら光学素子の振動を抑制するホルダや架台の設計が重要である。本章では、熱負荷の影響の評価と対策、振動抑制対策、及び光学素子表面精度の評価システムの検討について述べる。

3-1.　光学素子に対する熱負荷評価及び冷却方法の検討

KEK 放射光計画では、例として VUV (UL160N31)、軟 X 線 (U48N104)、硬 X 線 (UL20N250) の 3 種類の 5 m 級アンジュレータが想定されている。加速エネルギーや蓄積電流値、挿入光源の長さについて、現在の PF リングとほぼ変わらないため、全放射パワーは同等となる。しかし，加速エネルギーが 2 割ほど高くなるため，全放射パワーは 1.5 倍程度，パワー密度は 2 倍程度に大きくなる。加えてエミッタンスが二桁程度小さくなることで，集光サイズが格段に小さくなり，コヒーレンスのような光の質への要求も厳しいものになる。そのため，光学素子性能への要求を満たすよう熱負荷による歪みを極小に抑えこむ必要がある。これまでの PF リングでの経験から、硬 X 線・軟 X 線ともに分光器通過後の単色光の熱負荷についてはほぼ無視できるものと考え、ここでは白色光を受けるミラー・結晶面のスロープエラーについて検討する。前章で示したスロープエラー Er(20%) を考慮すると、ビームライン性能に影響を与えないスロープエラーは、硬 X 線ビームラインの第 1 結晶では 1 μrad、軟 X 線ビームラインの M0 (M0’)・M1・M2 はサジタル方向に数～10 μrad、タンジェンシャル方向に 0.3～1.0 μrad 程度となる。これらのミラーで熱負荷を受け止める冷却機構として、大きく分けて以下の３種類を検討する。

(1)　水による間接冷却。
(2)　液体窒素による間接冷却。
(3)　水による直接冷却。

上記のいずれにおいても、ミラー母材や分光結晶には、(a) 高い熱伝導率と低い線膨張係数、(b) 高いヤング率 (保持により歪まない)、(c) 大型で良質な材料が安価で入手可能、といった性質が要求される。

(1) はミラーや分光結晶に接触する銅ブロックを水冷する方式であり、現在の PF のほとんどのビームラインがこの方式である。(2) は銅ブロックを液体窒素で冷却するもので、BL-15

や BL-17 などの二結晶分光器がこの方式である。実験ホール広域にわたる液体窒素循環機構がない限り、個別のビームライン脇に液体窒素発生・循環装置を設置する必要がある。一方で、シリコンの線膨張係数が-148°C 付近でゼロとなるため、スロープエラーは非常に小さく抑えることが可能になる。このことについては、以下の節で詳しく検討する。

一方、(3) はミラーや結晶本体に刻んだ水路 (チャンネル) に冷却水を循環させるもので、現在の PF BL-3 や AR-NE1 の分光結晶でマイクロチャンネル水冷方式が採用されている。世界では、Advanced Light Source のアンジュレータビームライン 11.0 を始めとして MAX-IV、Diamond 等の顕微／コヒーレンス利用ビームラインの白色光ミラーに数 mm の溝によるチャンネル水冷が採用されている。一方で、PF では過去にトラブルにより冷却水が停止、その後再起動し、温度が急激に変化したために直接冷却のシリコン結晶が割れて冷却水が真空チャンバーに漏れ出すという事故も発生している。Advanced Light Source 11.0 の直接水冷ミラーは GlidCop (銅) 材を使用しているためにこのような事故は考えにくい。しかし、銅の線膨張係数はシリコンのそれよりも一桁近く大きいため、この機構をそのまま採用しても以下の節で検討する極限条件でのスロープエラーを十分小さくすることはできない。

以上の理由から，ここではすべて間接冷却（1）および（2）について検討する。以下，硬 X 線ビームラインの熱負荷除去フィルター，二結晶分光器の第一結晶，軟 X 線ビームラインの入射スリット，軟 X 線ビームラインのミラーを取り上げ，KEK 放射光の低エミッタンスビームの性能を発揮するための光学素子について具体的に述べる。

（1）熱負荷除去フィルター

熱負荷を低減する重要な方法のひとつとして，フィルターの使用が考えられる。これは主に 4 keV 以上の光を利用する硬 X 線アンジュレータ（UL20N250）ビームラインにおいては特に重要で，分光器第一結晶の熱負荷を大きく低減させることができる。一方で、テンダーX 線領域や軟 X 線領域ではフィルターの使用は制限される（熱負荷の低減と透過率による強度損失のバランスによって、薄めのフィルターを適用する場合もある）。

PF では，熱負荷を低減させるフィルターとしてグラファイトやベリリウムなどが使われてきた。材質に要求される性質は（a）高い熱伝導率，（b）化学的に安定で蒸気圧が無視できるほど低い，あるいは融点が高い，（c）軽元素で構成されている，などである。ここではフィルター材として，熱伝導率が 400～2000 W/m/K と非常に高く，線膨張係数が 1×10^{-6} /K と非常に低い CVD ダイヤモンドを検討する。KEK 放射光で光の性能を十分生かすためには，余計な回折線や密度ムラを排除しなければならない。そのため，このダイヤモンドフィルターには表面粗さ 100 nm 以下，粒径 1 μm であることが要求される。

実際の使用条件で熱負荷除去フィルターがどのような熱負荷・応力にさらされるかを，

シミュレーションにより評価した。フィルターは光源からマスクを通過後，二結晶分光器前に挿入されるものとし，フィルターの保持・冷却機構にはこれまでBeフィルターで使われているものと同じ水冷銅ブロック構造を採用した。フィルターの材質はCVDダイヤモンド，形状はφ4 mmのディスク状で，φ2 mmが受光面となっており，銅ブロックにロウ付けされているものとする。表 3-1 に，今回のシミュレーションの条件を示す。放射パワーはSPECTRAを用いて計算し，有限要素法計算はANSYSとAutodesk Simulation Mechanicalを併用して行っている。これは以降の項でも同様である。

表 3-1：フィルターのシミュレーション条件。

アンジュレータ	UL20N250
想定エネルギー	10 keV
K値	1.997（7次光）
マスク開口	50×37.8 μrad
光源からの距離	20 m
フィルターサイズ	φ4 × t0.25 mm
フットプリント	1.00×0.75 mm^2
熱負荷	110.3 W/mm^2
冷却水流量	10 ℓ/min.
冷却熱伝達	0.013 W/mm^2K

図3-1に，以上の条件でのシミュレーション結果を示す。照射域がもっとも温度が高く，121.5℃まで上昇する。銅ブロックを挟みこむようにして保持する実際の保持条件を考慮して拘束条件を入れ，図3-1(a) の温度を用いて変形と応力を計算すると，図3-1(b-e) のようになった。金属のように延性をもつ材料の場合はフォン＝ミーゼス応力を用いて破壊条件を検討するが，セラミックのように脆い材料の場合は主応力を用いる。ここでは主応力を用いるのが適当であると考えられる。

図3-1のシミュレーション結果では，フィルター表面と銅ブロック表面は「結合」，すなわち，熱も応力や歪みもすべてロスなく伝わることを仮定している。実際には，ここに熱接触抵抗が存在する。表 3-2 に，フィルター・銅ブロック接合面の熱接触抵抗を考慮した場合のシミュレーション結果をまとめた。ロウ付けにより接合された面の熱接触抵抗を求めることは難しいため，ある程度広い範囲で検討を行っている。

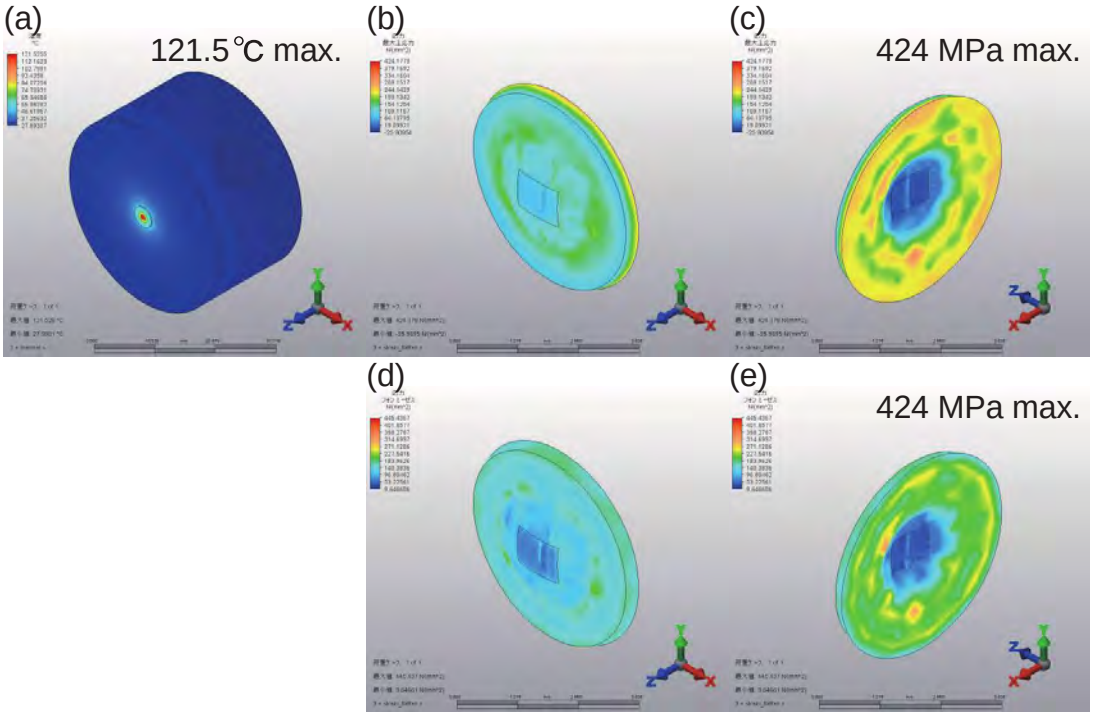


図 3-1：フィルターのシミュレーション結果。(a) 銅ブロックとフィルターの温度分布。(b) フィルター表面，および (c) 裏面の主応力分布。(d) フィルター表面，および (e) 裏面のフォン＝ミーゼス応力分布。

表 3-2：フィルターのシミュレーション結果の熱接触抵抗依存性。

熱接触抵抗 [Kmm²/W]	最高温度 [℃]	最大主応力 [MPa]	フォン＝ミーゼス応力 [MPa]
0	121.5	424	445
10	176.0	965	877
30	210.4	1509	1175
100	237.8	1946	1534
300	249.4	2129	1685

ビームライン真空中で使用する限り，温度上昇そのものはダイヤモンドにとって問題ない範囲に収まっている。CVD ダイヤモンドの耐力は，400～1000 MPa の範囲でさまざまな値が報告されている。熱接触抵抗が高い場合は，破壊することが予想される。図 3-1(c) および (e) を見ると，銅ブロックとの接合面に応力が集中している。CVD ダイヤモンドと銅の線膨張係数は 1 桁以上異なるため，中央の照射域での熱変形による応力よりも，銅ブロックとの熱変形の不整合による応力が効いていると考えられる。今後，変形・応力を逃す接合部形状の検討や，CVD ダイヤモンドと銅の中間程度の線膨張係数をもつ材料を間に挟むといった，応力を減らす工夫を検討する。

(2) 二結晶分光器

フィルターを通して熱負荷を軽減することにより，二結晶分光器の結晶歪みを抑えることができるはずである。このことを確かめるため，二結晶分光器の第一結晶についてシミュレーションを行った。結晶や銅ブロックの形状はPFのBL-15などで用いられている液体窒素冷却方式のものをそのまま踏襲している。液体窒素は銅ブロック内の内径8 mmのパイプ内を 2.5 ℓ/min.で流れるものとし，乱流とみなして計算している。光源やマスクの条件は前項と同じで，そのほかの条件は表3-3のとおりである。フィルターにより，熱負荷は4割ほど低減されている。

表3-3：第一結晶のシミュレーション条件。

	フィルターあり	フィルターなし
想定エネルギー	10 keV	
結晶面	Si(111)	
主軸角	11.4°	
結晶サイズ	40×50×40 mm^3	
フットプリント	1.5×6.0 mm^2	
熱負荷	14.4 W/mm^2	23.5 W/mm^2
液体窒素流量	2.5 ℓ/min.	
冷却熱伝達	0.00236 W/mm^2K	

まず，結晶と銅ブロックの間の熱接触抵抗を考えない場合の定常到達温度と結晶歪みを図3-2に示す。図3-2(b) および (d) を見て分かるとおり，液体窒素付近の温度ではシリコンは負の線膨張係数をもつため，結晶は凹む。ただし-148℃付近を境に線膨張係数は正に転じるため，それ以上に温度が上がるフィルターなしの場合には，照射域が凸に変形している。

得られた面直方向の変形量から，タンジェンシャル方向（Xとする）のRMSスロープエラーを $\mathrm{D}q_X = \sqrt{\int \left(\frac{dz}{dx}\right)^2 dx\,dy}$，サジタル方向（Y とする）を $\mathrm{D}q_Y = \sqrt{\int \left(\frac{dz}{dy}\right)^2 dx\,dy}$ として計算できる。積分範囲は光照射域のみ，あるいは結晶面全体をとりうる。計算結果を表 3-4 にまとめる。

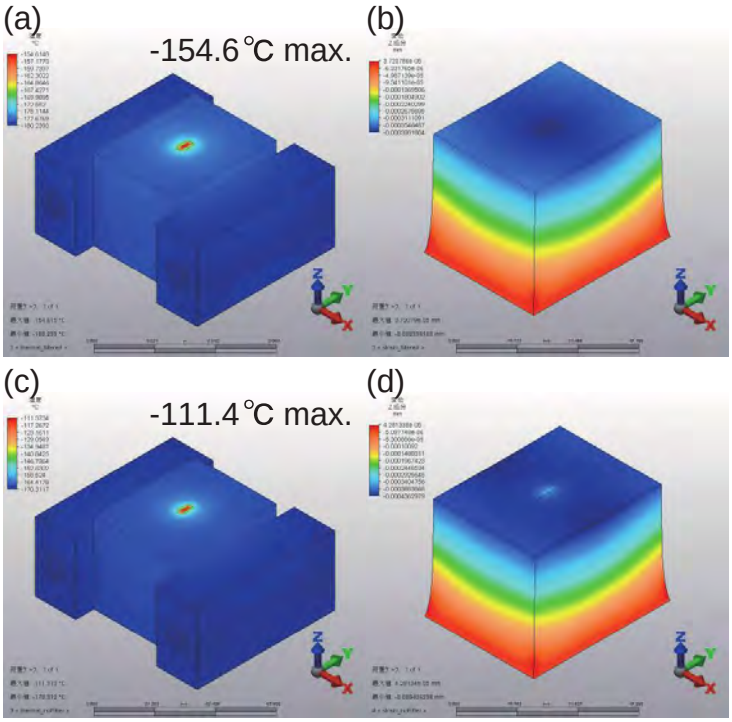


図 3-2：(a，b) フィルターあり，および (c，d) フィルターなしの場合の二結晶分光器の到達温度と面直方向の変形量。

表 3-4：第一結晶におけるフィルターの効果。

	最高温度 [℃]	光照射域のみ		結晶面全体	
		Tangential error [μrad]	Sagital error [μrad]	Tangential error [μrad]	Sagital error [μrad]
フィルターあり	-154.6	1.68	0.450	0.770	1.48
フィルターなし	-111.6	22.8	17.0	2.04	1.67

RMS での評価であるので，光照射域のみの値よりも結晶全面の値は大幅に低くなる。10 keV での Si(111)の回折幅は 37 μrad，前章でビームライン全体の性能として検討した Er(20%)は 4.2 μrad である。フィルターを用いて熱負荷を低減することで，要求を満たす結晶面を実現することができると言える。

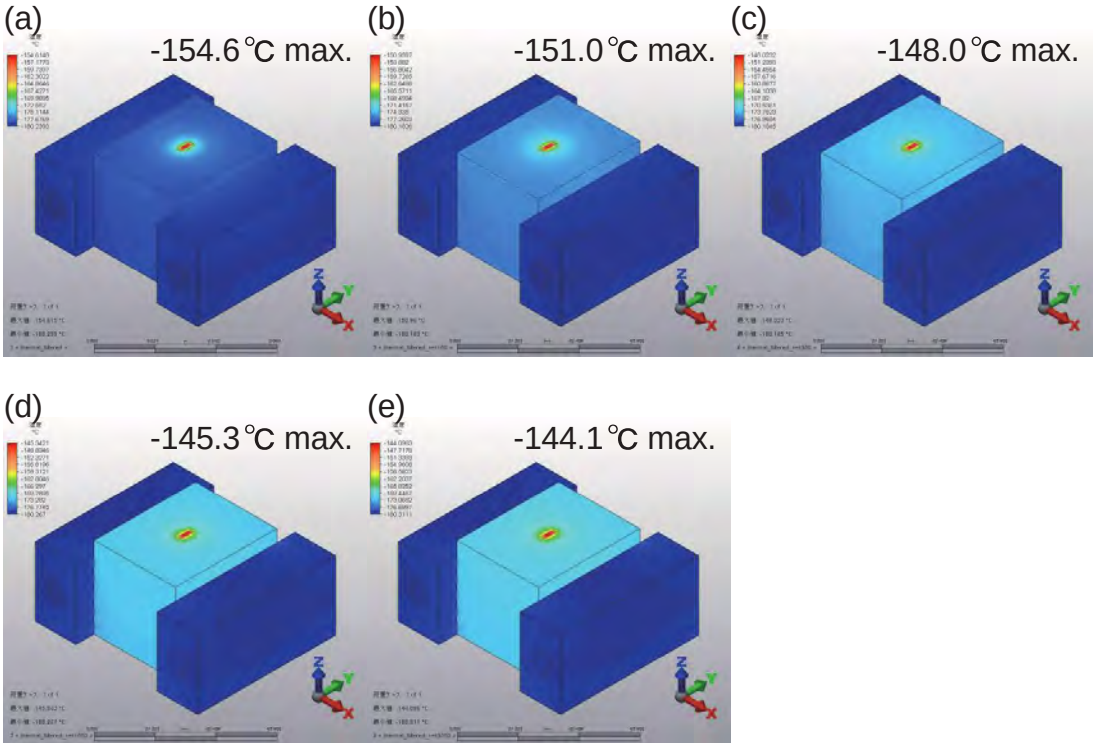


図 3-3：結晶の到達温度の熱接触抵抗依存性。(a) 0 Kmm^2/W, (b) 100 Kmm^2/W, (c) 300 Kmm^2/W, (d) 1000 Kmm^2/W, (e) 3000 Kmm^2/W。

表 3-5：結晶の温度上昇および RMS スロープエラーの熱接触抵抗依存性。

熱接触抵抗 [Kmm^2/W]	最高温度 [℃]	光照射域のみ		結晶面全体	
		Tangential error [μrad]	Sagital error [μrad]	Tangential error [μrad]	Sagital error [μrad]
0	-154.6	1.68	0.450	0.770	1.48
100	-151.0	2.70	1.42	0.712	1.53
300	-148.0	3.56	2.29	0.635	1.50
1000	-145.3	4.39	3.11	0.526	1.30
3000	-144.1	4.79	3.49	0.539	1.26

ここでも，結晶と銅ブロックの間には熱接触抵抗が存在する。押し付けによる接触面の熱接触抵抗は，部材間に挟み込む媒質や部材表面処理，押し付け圧力に応じて何桁も変わりうることに注意が必要である。ここでは熱接触抵抗の影響の傾向を評価するため，「比較的ずさんな条件」まで含めて考えられる範囲をカバーするシミュレーションを行った。到達温度の結果を図 3-3，RMS スロープエラーを表 3-5 に示す。熱接触抵抗が高いほど，結晶本体の温度が上昇していく。温度が上昇することで光照射域のスロープエラーは Er(20%) の 4.2 μrad を満たさなくなる。結晶面全体のスロープエラーがむしろ改善しているのは，

結晶全体が均一になる方向に働いていることに加え，線膨張係数がゼロとなる-148℃に近づくことで却って変形が小さくなっているためと考えられる。

以上のことから，硬 X 線ビームラインにおいては，フィルターを用いることと熱接触抵抗を低く抑えることで，光の性能を悪化させない光学系が実現できるとわかった。今後，PF の既設のビームラインでの温度上昇サーベイなどを通して，実際の構造における熱接触抵抗の評価やその低減の方法について検討を行っていく。

(3) 入射スリット

軟 X 線領域ではフィルターを用いることができないので，軟 X 線アンジュレータ UL48N104 は最もミラーやスリットに対する熱負荷が大きい光源であると考えられる。SX 簡易集光（図 2-5）ビームラインを想定し，SPECTRA を用いて軟 X 線アンジュレータの光を計算した。光源点から 36m 地点にある入射スリット上の熱負荷分布は，図 3-4 のようになる。

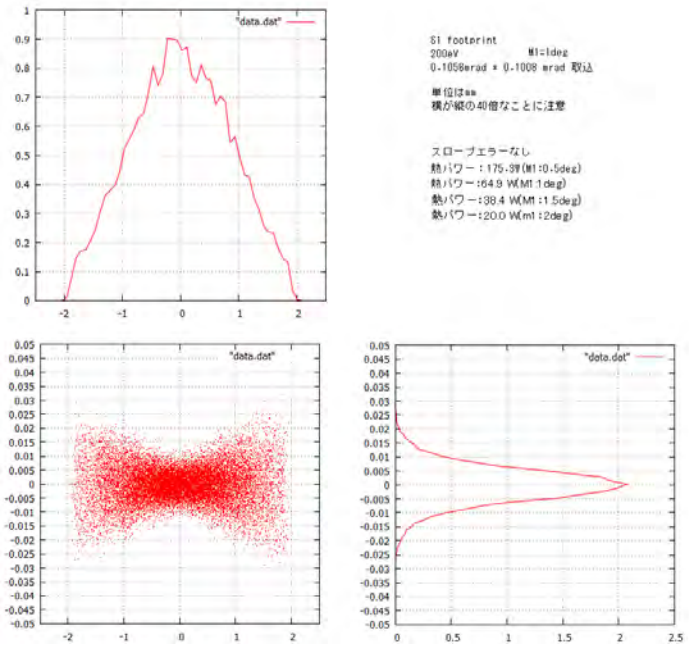


図 3-4：UL48N104 において 200 eV（K=4），マスク開口 100×100 μrad，M0 入射角 1° とした場合の入射スリット上での熱負荷分布。

UL48N104 では，200 eV 程度の比較的低いエネルギーにした場合に K 値が大きくなり，熱負荷が大きくなる。この光を余すことなく受けられるよう，マスク開口は 100×100 μrad とする。また，スリットに到達する熱負荷は上流にある M0 の入射角に依存するが，ここでは最も熱負荷の大きい場合として入射角 0.5° としたときの熱負荷を採用する。以上の条件では，4×0.02 mm^2 に 175.3 W の熱負荷が投じられる。さらに「最悪のケース」として，光

軸がわずかにずれるなどしてスリットの片刃の端ですべての熱負荷を受けてしまう状況を想定する。

以上の条件で，入射スリットの温度上昇のシミュレーションを行った。PF を始めとする国内の軟 X 線ビームラインで広く用いられているデザインのスリット刃・スリットホルダに対し，各種材料のスリット刃を採用した場合の計算結果を表 3-6 に示す。まず，シミュレーション結果の最低温度が 70℃程度と比較的高いことから，従来の形状では熱負荷が取りきれていないことが分かる。また，軟 X 線・硬 X 線問わず多くのビームラインで比較的よく用いられているタンタルやステンレス（SUS）では，熱伝導率が低いためにスリット刃が溶けてしまうほど温度上昇することが分かる。銅を用いると温度が上がりにくいが，融点が低いこと，また線膨張係数が比較的大きいことも問題となる。スリット刃には，熱伝導率・融点・線膨張係数のバランスがよいタングステンを採用することが適切である。

表 3-6：各種スリット刃材料の物性と，最悪のケースのシミュレーション結果。

		Ta	SUS	Cu	Invar	W	Mo
密度［g/cc］		16.69	8.00	8.90	8.125	19.25	10.28
熱伝導率［W/m/K］		57.5	16.2	391	13	173	138
比熱［J/kg/K］		140	500	385	510	133	250
線膨張係数［10^{-6} /K］		6.3	17.3	17.7	1.6	4.5	4.8
最悪のケースの到達温度［℃］	Max.	3214	11064	575	13754	1153	1414
	Min.	68	67	70	67	69	68

以上の結果を踏まえ，スリット刃・ホルダについて，スリットホルダの冷却水配管を内径 4 mm として 1 ℓ/min. の冷却水を流す構造とし，スリット刃材料はタングステンとする設計を提案する。図 3-5 に，設計形状とシミュレーション結果を示す。最大で温度は 757.9℃まで上昇する。

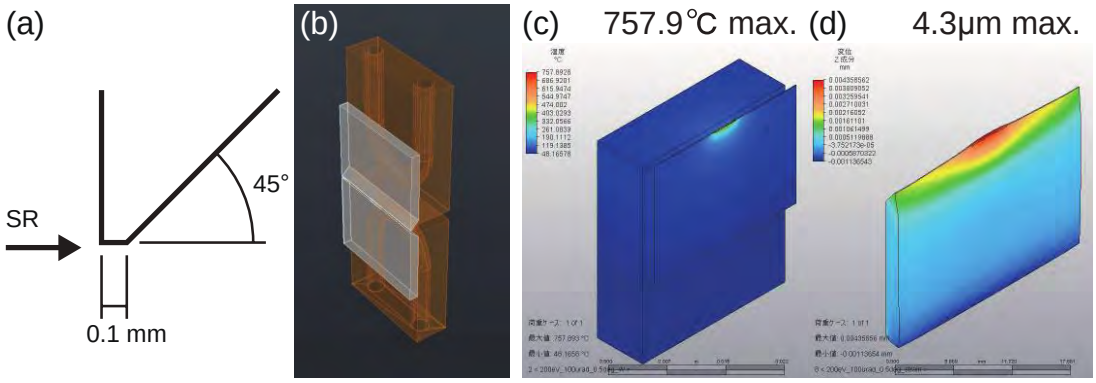


図 3-5：(a) スリット刃形状。(b) 新しく提案するスリットホルダ形状。(c，d) 想定される最悪の場合の温度上昇と変形。

次に，図 3-5 の条件で熱接触抵抗を変化させた場合の結果を表 3-7 に示す。熱接触抵抗が低く抑えられている限りにおいて，ここで想定する最悪の場合でも耐えるスリットが設計できたと考えられる。また，実使用状態としてスリット開口 5 μm を想定し，考えられる限りもっとも熱負荷が高い状態として 200 eV (K 値で 4 程度)，マスク開口を 100 μrad，M0 の入射角を 0.5° としたケース，比較的熱負荷が低い状態として 1 keV (K 値で 1.25)，マスク開口を 50 μrad，M0 の入射角を 1.5° としたケースの結果についても，表 3-7 に併せて示した。熱負荷が大きい場合は数 μm の変形が避けられないため，スリットの実開口は下流の光強度でモニタしながらコントロールすべきである。

エネルギー，すなわちアンジュレータのギャップに応じて必要なマスク開口は変わるので，できる限りマスクで熱負荷を止められるようマスク開口を制御することも有効であると考えられる。また，ここで想定した熱負荷を実際に受けた場合には，スリットが溶けることはないものの，相当大きなアウトガスが予想される。慎重な光焼き出しが必要であると言える。

表 3-7:新しいスリットホルダ形状での温度上昇及びスリット刃変形と,その熱接触抵抗依存性。

	最悪のケース		200 eV, 100 μrad		1 keV, 50 μrad	
熱接触抵抗 [Kmm^2/W]	最高温度 [℃]	変形量 [μm]	最高温度 [℃]	変形量 [μm]	最高温度 [℃]	変形量 [μm]
0	758	4.36	331	1.82	33	0.0385
100	1274	10.2	373	2.88	34	0.0561
300	1383	13.2	403	3.70	35	0.0719
1000	1669	21.7	464	5.52	36	0.103
3000	2266	39.8	547	5.04	37	0.147

(4) 全反射ミラー：極限条件での低スロープエラーの実現

続いて，熱負荷の大きい軟 X 線アンジュレータ UL48N104 を利用するビームラインの M0・M1・M2 に対してシミュレーションを行った結果を述べる。UL48N104 で得られる全エネルギー域 (200～2 keV) で光を余すことなく利用するには，縦横 100 μrad のマスク開口が必要で，M0 直前のトータル熱負荷は 122 W となる。種々の条件での検討を行ったが，この条件でサジタル方向に数～10 μrad，タンジェンシャル方向に 0.3～1.0 μrad の低スロープエラーを実現することはできなかった。そこで，KEK 放射光でサイエンスケースのフラッグシップとなると考えられるコヒーレンス利用を軸に検討することとした。KEK 放射光の 5 m 直線部で 1 keV におけるコヒーレント比は 20 %前後と見積もられている。より低いエネルギーではコヒーレント比がさらに向上するものの，試料を透過しにくくなることや，回折

限界を与える波長が長くなることから，コヒーレンス実験のメリットは逆に弱くなると考えられる。そのため 1 keV（K 値 1.25）を想定し，多少の光強度をロスしてでもエネルギー分解能・コヒーレンスにおいて極限の性能を発揮するための低スロープエラーを実現することには大いに意義がある。このことから，マスク開口を縦横 50 μrad に制限した場合のシミュレーションを行った。前項で検討した入射スリットは全開としている。この場合の全熱負荷は 30 W 程度となり，1 keV においては 90 %以上の光束を拾うことができるが，より低いエネルギーでは 7 割程度の強度をロスすることになる。

表 3-8：低スロープエラー光学系のシミュレーション条件。

	M0	M1	M2
光源からの距離	30 m	44 m	46 m
入射角	1.5°	2.0°	2.0°
入熱	14.9 W	3.99 W	1.67 W
照射範囲	1.5×57 mm^2	2×66 mm^2	1.8×42 mm^2
発熱密度	0.174 W/mm^2	0.030 W/mm^2	0.022 W/mm^2
母材	Si	Si	Si
表面処理	Au	Au	Au
サイズ	L300×H30×T20 mm^3	L300×H30×T20 mm^3	L150×H30×T20 mm^3
冷却機構	液体窒素・間接	冷却水・間接	冷却水・間接
流量	0.5 ℓ/min.	0.5 ℓ/min.	0.5 ℓ/min.
冷却熱伝達	0.002 W/mm^2K	0.004 W/mm^2K	0.004 W/mm^2K

各種ミラーの条件を表 3-8 に示した。想定した光学系は SX 簡易集光（図 2-5）であり，M0 を液体窒素間接冷却，M1・M2 は従来の間接水冷としている。液体窒素または冷却水は銅ブロック内の内径 4 mm のパイプ内を 0.5 ℓ/min. で流れるものとし，乱流とみなして計算している。まず，シリコン母材と銅ブロックの間の熱接触抵抗を考えない場合の定常到達温度とミラー歪みを図 3-6 に示す。常温では温度上昇によってミラーは凸に，液体窒素付近の温度では凹に変形する。

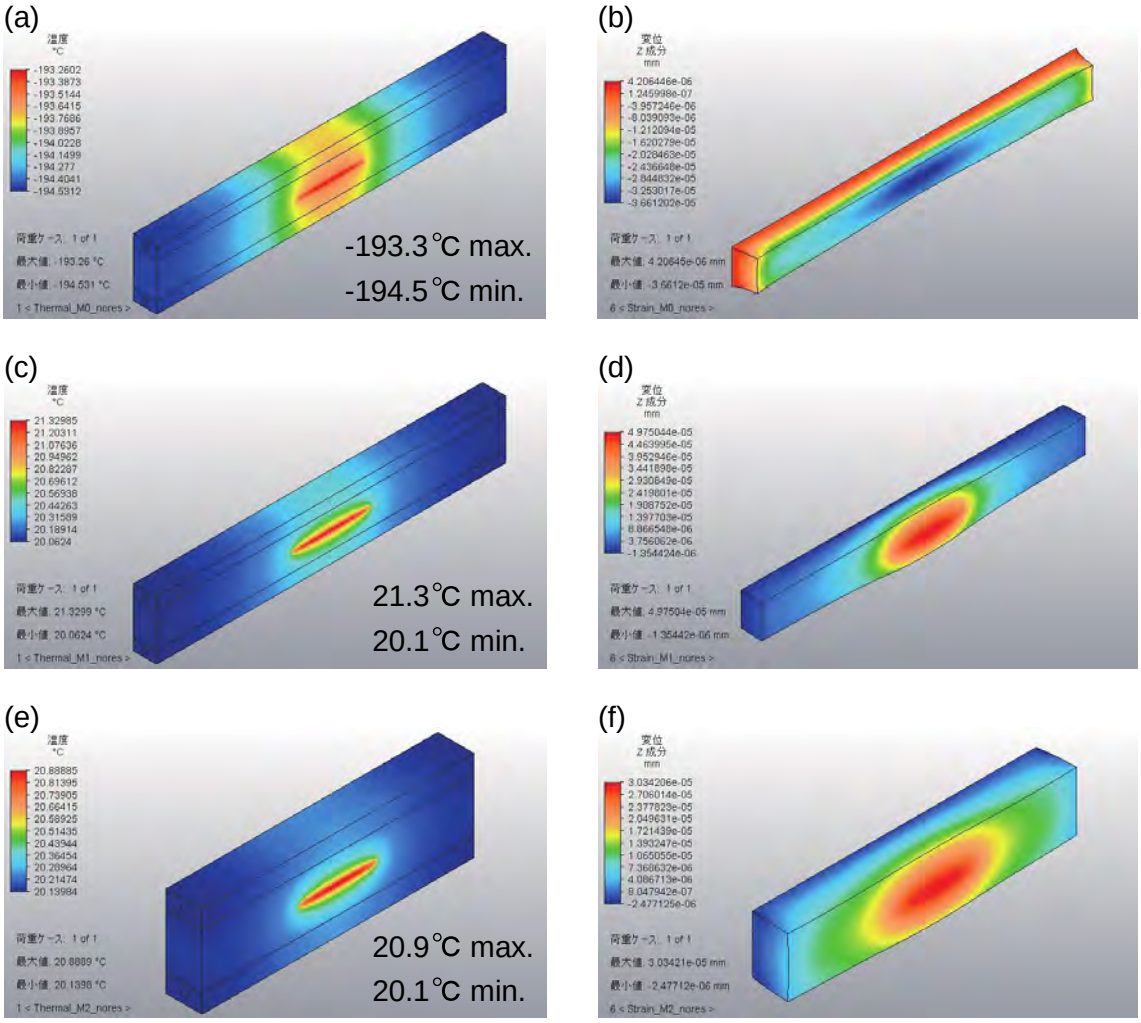


図 3-6：(a，b) M0，(c，d) M1，(e，f) M2 の定常到達温度およびミラー歪み。

次に，M0 においてシリコン・銅ブロックの間の熱接触抵抗が温度の結果をどのように変えるかを図 3-7 に示す。熱接触抵抗により，ミラー本体の温度が上昇することが分かる。これらの計算を M1・M2 についても行い，二結晶分光器の場合と同様に RMS スロープエラーを求めた。結果を表 3-9 から表 3-11 に示す。

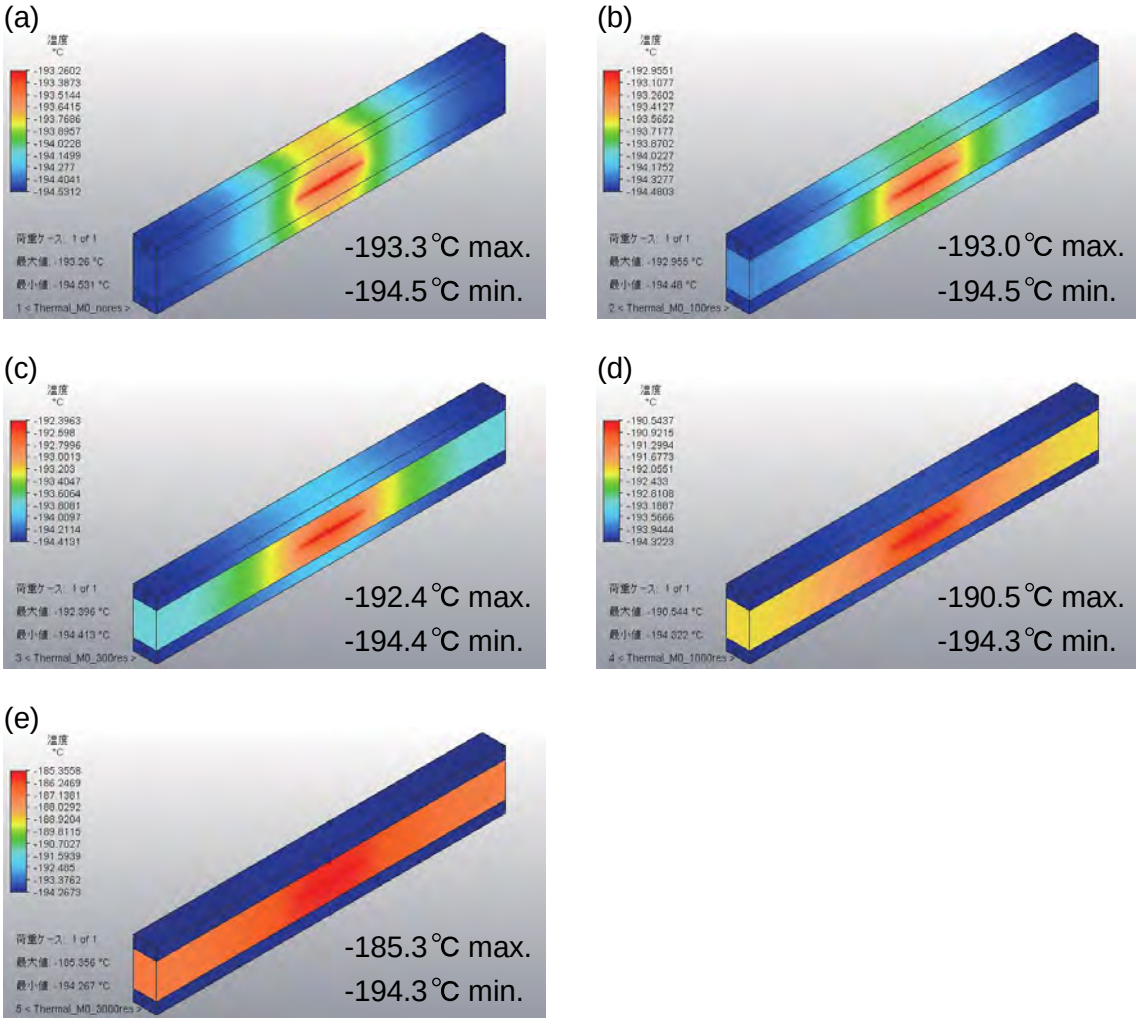


図 3-7：熱接触抵抗を変化させた際の MO の定常到達温度。(a) 0 Kmm^2/W, (b) 100 Kmm^2/W, (c) 300 Kmm^2/W, (d) 1000 Kmm^2/W, (e) 3000 Kmm^2/W。

表 3-9：熱負荷により生じる MO の RMS スロープエラー。

MO	光照射域		ミラー全面	
熱接触抵抗 [Kmm^2/W]	Tangential error [μrad]	Sagital error [μrad]	Tangential error [μrad]	Sagital error [μrad]
0	0.076	0.15	0.32	0.21
100	0.081	0.16	0.36	0.24
300	0.089	0.18	0.44	0.30
1000	0.12	0.20	0.72	0.51
3000	0.19	0.18	1.6	1.2

表 3-10：熱負荷により生じる M1 の RMS スロープエラー。

M1	光照射範囲のみ		ミラー全面	
熱接触抵抗 [Kmm²/W]	Tangential error［μrad］	Sagital error［μrad］	Tangential error［μrad］	Sagital error［μrad］
0	0.44	0.71	0.68	0.32
100	0.45	0.83	0.72	0.40
300	0.46	0.99	0.79	0.51
1000	0.49	1.3	1.1	0.77
3000	0.58	1.5	1.8	1.2

表 3-11：熱負荷により生じる M2 の RMS スロープエラー。

M2	光照射範囲のみ		ミラー全面	
熱接触抵抗 [Kmm²/W]	Tangential error［μrad］	Sagital error［μrad］	Tangential error［μrad］	Sagital error［μrad］
0	0.31	0.51	0.52	0.29
100	0.31	0.58	0.54	0.36
300	0.32	0.65	0.60	0.46
1000	0.34	0.75	0.80	0.72
3000	0.41	0.82	1.4	1.4

以上のスロープエラーの結果を検討する。全てにおいて，タンジェンシャル方向で要求を満たすようならば自然とサジタル方向の要求も満たされる傾向にある。M0 の 1.0 μrad（タンジェンシャル）および 13 μrad（サジタル），M1 の 0.64 μrad（タンジェンシャル），および 28 μrad（サジタル）という要求は満たせている。ここでは入射スリットは全開としたが，たとえば高いエネルギー分解能を実現する際には，入射スリットを狭めるので M1・M2 への熱負荷はさらに低減される。そのため，M2 の 0.29 μrad（タンジェンシャル）という要求もほぼ満たしていると言える。ここではマスク開口を 50 μrad としたが，どれだけ開口を拡げることができるかについては今後検討する。

一方，液体窒素冷却機構に必要な循環装置を全ビームラインに配置するのは，初期投資・消費電力・マンパワーの各方面から現実的とは言えない。仮に M0 を間接水冷とした場合の結果を図 3-8，表 3-12 に示す。

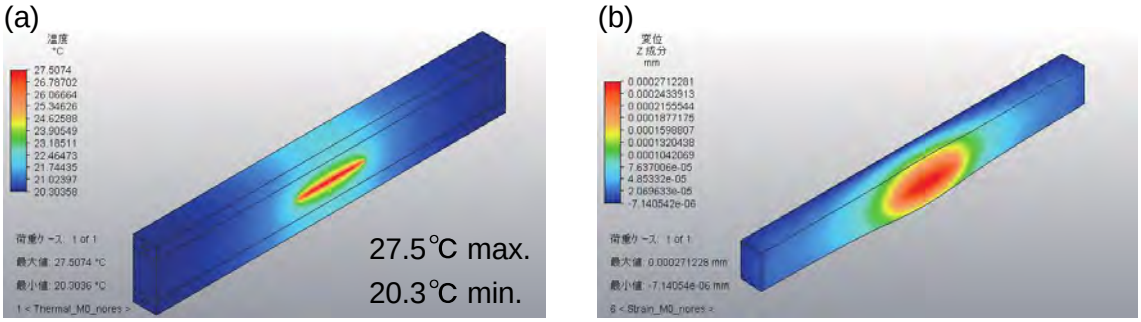


図 3-8：間接水冷とした場合の MO の定常到達温度およびミラー歪み。

表 3-12：間接水冷とした場合の MO のスロープエラー。

MO	光照射範囲のみ		ミラー全面	
熱接触抵抗 [Kmm²/W]	Tangential error [μrad]	Sagital error [μrad]	Tangential error [μrad]	Sagital error [μrad]
0	2.7	4.3	3.6	1.8
100	2.7	4.0	3.8	2.2
300	2.8	5.9	4.3	2.8
1000	3.0	7.5	5.6	4.2
3000	3.6	9.2	9.3	6.7

シリコンの線膨張係数は常温では低温よりもずっと大きい。そのため，温度上昇度合いは液体窒素冷却の場合の数倍であるのに対し，スロープエラーは 30 倍程度に大きくなる。ただし，MO は水平反射配置であるのでエネルギー分解能に影響するのは主にサジタル方向であり，サジタル方向のスロープエラーは上記の条件（13 μrad 以下）を満たしている。そのため，エネルギー分解能が重要であってトータル光強度やコヒーレンスをさほど要求しない場合には，このマスク制限下であれば MO を間接水冷としても許容される。

以上の結果はすべて間接冷却であり，シリコン母材と銅ブロックの間の熱接触抵抗をいかに低減できるかでスロープエラーの値は大きく変わる。ミラーと銅ブロックを強く接触させれば熱接触抵抗は下がるが，ミラーを変形させないように注意が必要である。今後，モデル系を用いた実験をするなどして，ミラーを安定に保持しつつ低い熱接触抵抗を実現する機構の開発に取り組む。具体的には，ミラー母材と銅ブロックの間に Au フォイル，グラファイトシートなどを挟み込んで熱接触抵抗がどう変わるかを検討する。硬 X 線ビームラインの場合にはベーキング・超高真空を要求されないので，これまで二結晶分光器などで広く使われている In シートの利用も考えられる。

(5) 全反射ミラー：どれだけのスロープエラーを許容するか？

前項で検討した軟 X 線アンジュレータ UL48N104 で，広いエネルギー領域で余すことなく光を受けられるようにマスク開口を縦横 100 μrad とすると，1 keV における熱負荷は最大でトータル 122 W である。さらに熱負荷の大きくなる 200 eV（K 値 4 程度）であっても全熱量は 410 W 程度であり，現行 PF の軟 X 線アンジュレータ BL-13（トータル 131 W @250 eV）と比較してそれほど大きい熱負荷ではない。シミュレーションのテストケースとして，BL-13 の M1・M2 のスロープエラーを計算したところ，いずれも無視できないレベルであることが分かった。BL-13 で実際に，水平直線偏光モード（高い熱負荷）では計算上のエネルギー分解能が得られておらず，円偏光モード（低い熱負荷）へ切り替えるとエネルギー分解能が向上することが分かっている。これまでは「スロープエラーの影響を考慮せずに使用していた」というだけのことである。ただし，円偏光を用いると直線偏光に比べて熱負荷が低減できるのは KEK 放射光でも同様であり，究極の性能を実現しようとする際には一考に値する。

スロープエラーは熱負荷に依存し，熱負荷はマスクやスリットを用いれば光強度と引き換えに低減できる。逆に，光強度を得るためにマスクやスリットの開口を大きくしたり，ミラー入射角を小さくして反射率を向上させたりすれば，より下流へ大きな熱負荷が伝搬する。以上のことから，「KEK 放射光の 5 m 挿入光源部において，すべてのエネルギー領域で，光源からの光を余すことなく分光・集光し，各光学素子のスロープエラーがすべて無視できて，光強度・エネルギー分解能・コヒーレンス・集光特性のすべてで限界の性能を発揮する」ような理想の光学系は存在しないと考えるべきである。以下，熱負荷とスロープエラーの観点から考えた利用ケースごとの指針を提案する。

光強度を何よりも重視するならば，各種スロープエラーはその大きさを評価するにとどめ，極限のエネルギー分解能や集光特性が得られないことを許容すべきである。それでも，たとえば軟 X 線吸収分光の自然幅に対して許容できる程度のエネルギー分解能（$E/\Delta E > 5000$），数十～百 μm 程度の集光サイズは得られるものと予想される。

極限のエネルギー分解能を目指すには，スロープエラーを極限まで低下させねばならない。軟 X 線ビームラインでは上で検討したようにマスクと入射スリットを用い，硬 X 線ビームラインではフィルター・入射スリット・高分解能モノクロを用いる。ターゲットとする吸収端・エネルギー領域を限定し，光強度をロスしてでも熱負荷を低減できるようにマスク開口やミラー反射角を決定することも必要である。

コヒーレンス利用においては，測定精度・測定時間を決定づけるのはトータル光強度ではなくコヒーレントフラックスである。最終的に光の「芯」だけを利用するので，前項の例，あるいはそれ以上に上流部のマスク開口を小さくし，下流への熱負荷をできる限り低

減すべきである。同じアンジュレータであれば低エネルギーほど大きな発散をもつので，低エネルギーほどマスク開口制限による強度ロスが大きくなる。そのため，ビームライン光学系をコヒーレンス利用に最適化する場合には，VUV～SX あるいはテンダーX 線～硬 X 線といった広いエネルギー域における多目的利用は得策とは言えない。可動マスク等を用いて利用に応じて開口を調整し，コヒーレンス利用をしない場合には多少のスロープエラーを許容する，といった運用は可能である。

ナノ集光を目指す場合，仮想光源点より上流部のミラー・分光器におけるスロープエラーをある程度許容し，仮想光源点より下流において理想的な光学系を構築することを目標とすべきである。光強度重視の場合と同様，想定される分光・散乱実験に影響しない程度のエネルギー分解能は十分に得られると予想される。上流部のスロープエラーにより仮想光源点への集光が甘くなることが予想されるが，これは光強度ロスと引き換えに下流の光軸・光強度がより安定する方向へ寄与する。

3-2.　光学素子の振動を抑制する設計の検討

（1）光学素子に求められる振動特性

KEK 放射光の集光特性に影響を与えないビームライン光学系を実現するには，各素子のインコヒーレントな振動をサブミクロン程度に抑えることが目標となることは前章ですでに述べた。ここでは，ミラーや分光器といった光学素子の架台・ホルダ等について検討する。

構造物の振動は，ばねと剛体から成る調和振動子の組み合わせで考えることができる（図 3-9）。この調和振動子の固有振動数は $\nu_0 = \sqrt{k/M}$ である。ある周波数 ω の振動による床の変位 u に対して，構造物の変位を x とすると，この調和振動子における振動の伝達率は $T = \frac{|x|}{|u|} = \frac{1}{1 - \nu^2/\nu_0^2}$ と書ける。構造物が堅く固定されており，十分軽い（$k >> M$）場合は $\nu_0 \to \infty$ となって伝達率 $T = 1$，すなわち床と構造物はコヒーレントに剛体として振舞う。

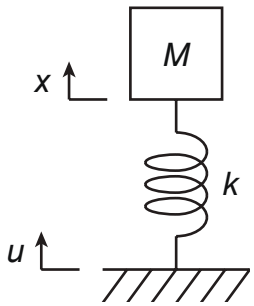


図 3-9：調和振動子。

ミラー架台は床に対して，さらにミラーホルダは架台に対して，上記の調和振動子としてぶら下がっていると考えればよい。ナノ集光光学系の最下流部を除く大部分のビームライン光学系は，床に対して剛体的に繋がっていることが理想である。ミラーそのものの重量や形状は決まっているので，ミラーホルダに対して架台は十分な慣性質量と剛性をもち，架台はその重量にくらべて十分な強度で床に固定されていればよいことになる。一方，これまでの PF の多くの光学系では，ミラーホルダを細い柱で支えたり，架台下部を細い高さ調整ねじで支えたりする構造となっている。これらの細い構造は，定数の低いばねとして作用し，系の振動特性を悪化させるため避けなければならない。

図 3-10 に，KEK-PF の実験ホール床で計測した床振動のパワースペクトルを示す。つくば市を含む関東一円の表層地盤である関東ローム層には 2〜3 Hz の固有振動があり，地盤は近隣の道路交通などの影響により比較的日較差の大きな振動を生ずる。地震波の速度が 1〜10 km/sec であることを考慮すれば，2〜3 Hz の振動の波長は km 程度であり，施設全体が剛体的に振動するモードであると言える。一方，放射光実験ホール内には各種粗引きポンプ・チラー・電源といった震動源が多数存在する。これらのモーターやファンからくる振動は 50 Hz，100 Hz といった AC 電源と連動した大きな振動を生む。一方，100 Hz を超えると振幅は桁で小さくなる。震動源の筐体を含む多くの構造物が，100 Hz 以上での剛性が高くないために外界へ伝わりづらいためと考えられる。KEK 放射光の実験ホール床は PF に比べ強固な設計となるが，この特性がどこまで改善するか、という話であって，傾向は変わらないものと考えられる。以上のことから，各種光学素子に求められる振動特性の目標を「100 Hz 以下の周波数域において，床に対し剛体的に振舞うこと」と定義する。

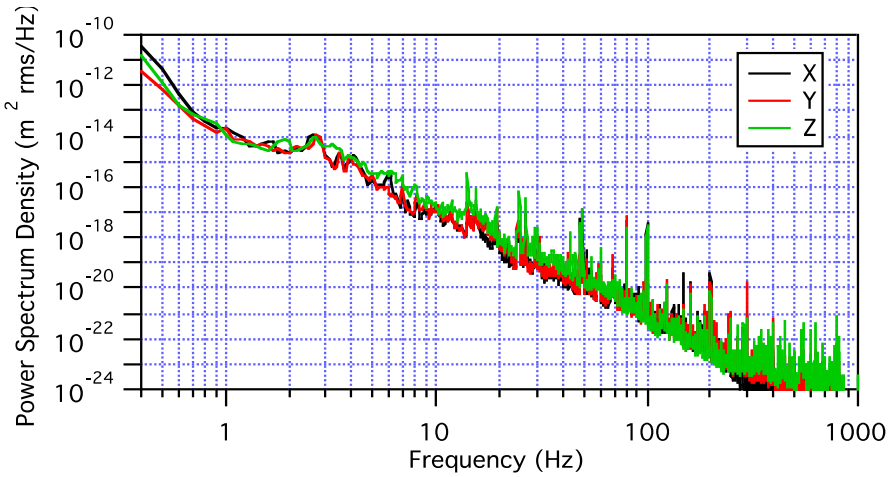


図 3-10：KEK-PF の実験ホール床で計測した床振動のパワースペクトル。

(2) 必要な振動対策

上記の目標を満たす光学系の構造として，ミラー架台をグラナイトとし，その高さはミラーホルダ形状と真空チャンバー形状の許す限り高い位置まで及ぶものとする。また，架台上の構造物はなるべく小さく軽く設計する。一方，真空チャンバーは一般的にその重量にくらべ肉薄であり，十分な剛性を得ることは不可能である。そのため，すでに広く知られているように，ミラーホルダ構造は真空チャンバーと切り離されている必要がある。以下，いくつかの具体的な構造物について，Autodesk Simulation Mechanical を用いて振動特性をシミュレーションした結果について述べる。

グラナイト架台はできる限りコンクリートまたはエポキシ樹脂等で床に固定することが望ましいが，位置調整機構を必要とする場合もある。既存のビームラインの架台（KEK-PF BL-15A M3）を参考に，460×460×707 mm^3 のグラナイト架台を床に直接固定した場合，および各種寸法の調整脚が取り付けられた場合の振動のシミュレーションの様子を図 3-11 に，最低固有モード振動数を表 3-13 に示す。150×150×40 mm^3 程度の広くて薄い調整脚であれば，振動特性に大きな影響は及ぼさないと考えられる。

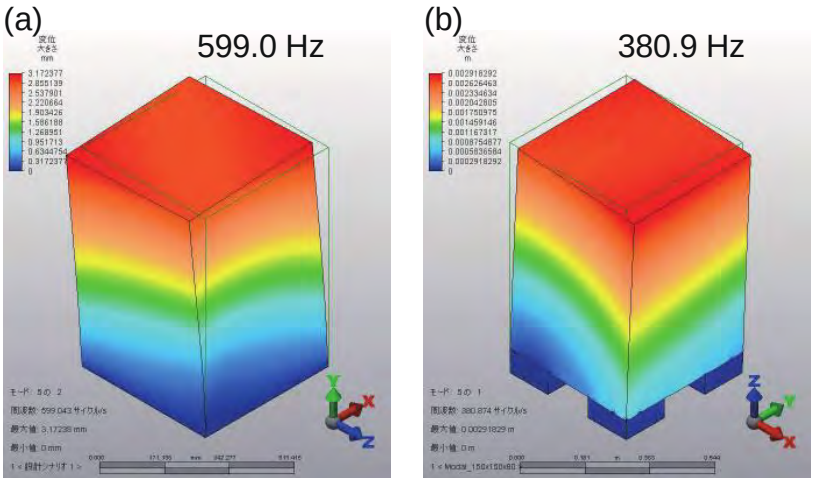


図 3-11：グラナイト架台の最低固有モード。(a) 直接固定の場合。(b) 150×150×80 mm^3 の調整脚ありの場合。

表 3-13：グラナイト架台の最低固有モード周波数。

脚の条件	最低固有モード
なし	599.0 Hz
150×150×40 mm^3	439.7 Hz
150×150×80 mm^3	380.9 Hz
50×50×40 mm^3	232.1 Hz
50×50×80 mm^3	121.4 Hz

続いて，ミラーホルダについて検討する。超高真空・ベーキングを要求しない硬 X 線ビームラインの場合には，真空対応ステージを用いるなどしてミラー駆動機構を真空チャンバー内に収めることができる。一方，軟 X 線ビームラインの場合には炭素汚染の問題などから真空対応ステージの使用は必ずしも望ましくない。その場合，駆動ステージを真空外に配置して，ベローズとロッド脚を介してミラーホルダを保持することになる。まず，既存のビームラインのミラーホルダ（KEK-PF BL-2 M4）を参考に，どのようにすればホルダ部分の振動特性を改善できるかを検討した。ミラー長は 300 mm であり，ホルダそのものはこれ以上の小型化は難しい。そのため，図 3-12(a)のようにホルダを支える脚に着目する。既存のデザインは直径 40 mm，長さ 275 mm のロッド脚 2 本で支えられており，ロッド脚を太くする（40→60 mm），脚を短くする（275→150 mm），脚の本数を増やす（2→4）といった対策が考えられる。これらの構造についてシミュレーションした結果，特に周波数の低い振動モードを図 3-12(b-d)に，それらの周波数を表 3-14 に示す。いずれの対策も，各モードの周波数が 2 倍程度に高くなって振動特性が改善していることが分かる。できるだけ構造を複雑にせずに振動特性を改善するという点においては，脚を短くするという対策が最も有効であると言える。

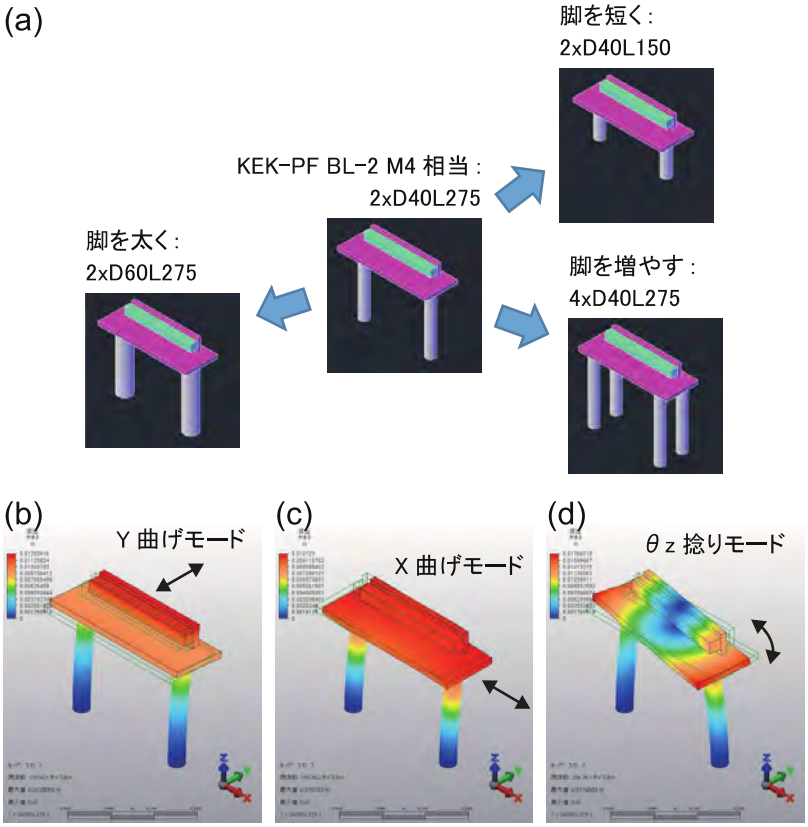


図 3-12：(a) ミラーおよびホルダの振動特性改善の検討。(b-d) 比較的周波数の低いミラーホルダの固有振動モード。

表 3-14：ミラーホルダの各固有振動モードの周波数。

	Y 曲げモード [Hz]	X 曲げモード [Hz]	θz 捻りモード [Hz]
2XD40L275	115.6	194.0	254.4
2XD40L150	258.4	436.3	506.5
2XD60L275	244.3	338.7	450.8
4XD40L275	259.3	238.4	370.3

そのほか，ポンプやチラーの振動が床に伝わらないためには，十分柔らかいばねを用いればよい。これは，柔らかいゴムやエラストマーの防振材を床とポンプやチラーの間に入れることで実現できる。

ナノ集光光学系の最下流から試料ステージまわりについては，床の振動を減衰させる必要がある。走査型プローブ顕微鏡や電子顕微鏡などで一般的に用いられる柔らかいばねやエアサスのような除振機構は，0.5～2 Hz 程度に共振点をもつ。そのため，2～3 Hz の床振動を却って増幅するか，そうでなくとも剛体的に振動している光源・光学系から切り離してしまうことになる。ここで用いる除振機構は，10～20 Hz 程度に共振周波数をもつように設計すべきである。具体的には，グラナイトやハニカム構造の光学定盤と，柔らかいゴムやエラストマーの防振材でこれを実現できる。除振機構上のコンポーネントは，定盤に対して剛体的であればよいわけであるから，最低共振モードがおおむね 150～200 Hz 以上となるよう小さく・軽く設計すべきである。

3-3. 光学素子表面精度の評価システム

多くの第三世代放射光施設では，施設内に併設された専用のラボ，あるいは近隣のラボで光学素子の表面計測が行われている。これらは long trace profiler (LTP)，nanometer optical component measuring (NOM) などと呼ばれ，いずれもペンタプリズムあるいはペンタゴンミラーを用いた走査型の傾斜角計測 (deflectometry) により行われている [1-5]。図 3-13 に走査型傾斜角計測の概念図を示す。走査型傾斜角計測では，得られる傾斜角を積分することで表面形状を得る。ペンタプリズム（あるいはミラー）を走査することで，300 mm 以上の測定領域に対し表面計測が可能であり，最近では表面粗さでサブ nm，スロープエラーで 0.05 μrad 程度の RMS 精度での計測が可能になっている。また，研磨後の裸のミラーの状態だけでなく，水平反射・垂直反射のホルダにマウントした状態での計測が重要であることも指摘されている [6]。KEK 放射光では，跳ね上げあるいは横振りミラーをホルダにマウントした状態で計測できる表面計測ラボを施設に併設し，ミラーの面精度評価を行う。

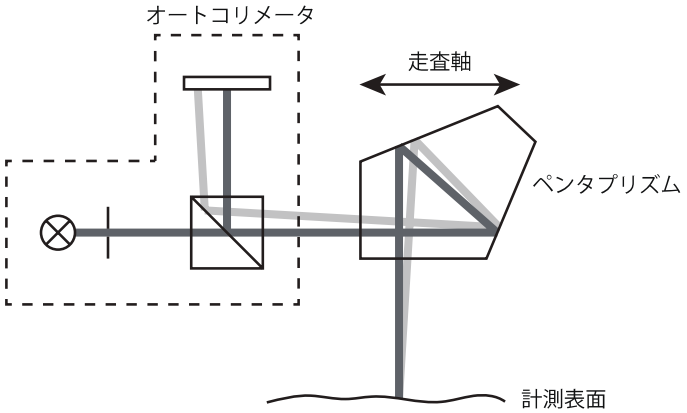


図 3-13：走査型傾斜計測の概念図。

走査型表面傾斜角計測装置のオートコリメータは ELCOMAT3000，あるいはそれ以上の性能のものを用いる。図 3-14 に示すように，走査するプリズム（あるいはミラー）方向を変えることで，跳ね上げミラー設置状態と横振りミラー設置状態の観測を可能とする。

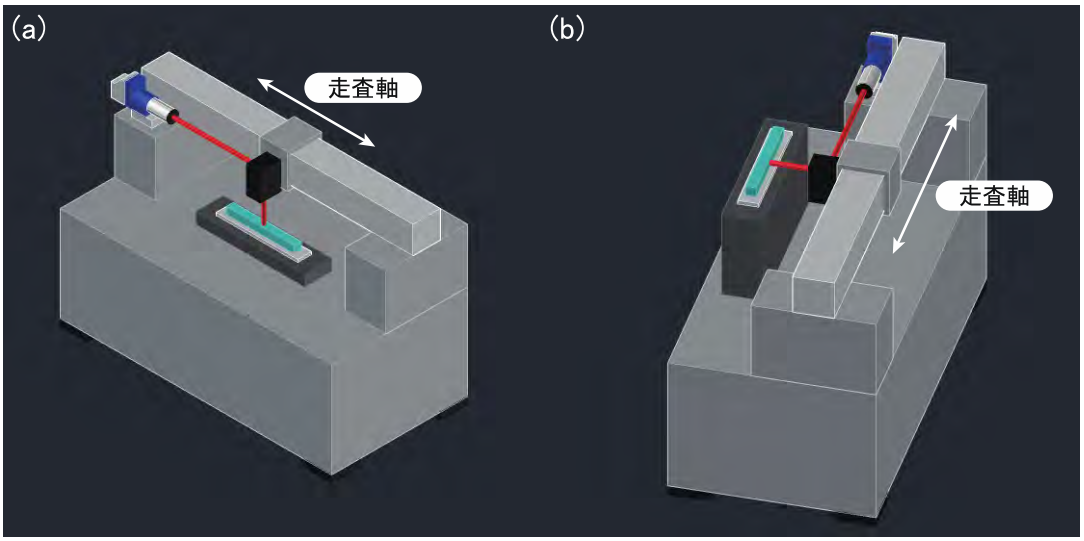


図 3-14：(a) 跳ね上げミラー，および (b) 横振りミラーの走査型傾斜計測による表面計測の概念図。

表面計測ラボの概念図を図 3-15 に示す。図 3-14 の装置のほか，150 mm 程度の視野を迅速に計測可能なフィゾー干渉計型の計測器（Zygo Verifire シリーズまたは同等以上の性能のもの）を設置し，汎用的な計測に用いる。これらの計測器は ISO6（クラス 1000）水準のクリーンルームに設置し，室温を 0.1℃以内の範囲で制御する。傾斜角計測の装置は，クリーンルーム内でさらにブースあるいはエンクロージャに収めることで，測定環境の温度変

化を 0.03℃以内に抑える。クリーンルーム前室には計測器を遠隔制御するための PC を整備し，できる限りクリーンルーム内に作業者がとどまることなく計測を行える環境を整える。

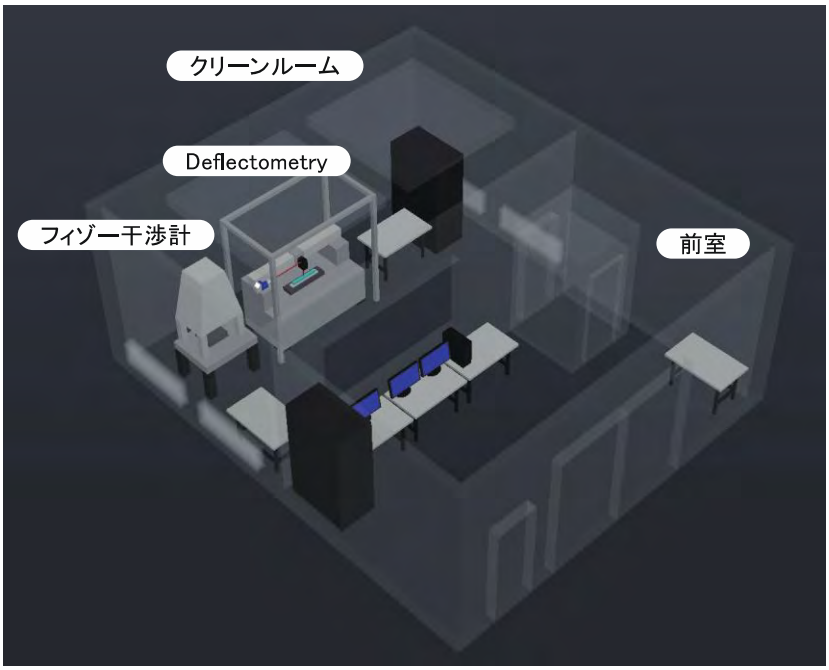


図 3-15：表面計測ラボの概念図。

[1] R. D. Geckeler *et al.*, Proc. SPIE 4779, 1 (2002).

[2] F. Siewert *et al.*, Nucl. Instr. Meth. A **616**, 119 (2010).

[3] V. V. Yashchuk *et al.*, Nucl. Instr. Meth. A **616**, 212 (2010).

[4] S. G. Alcock *et al.*, Nucl. Instr. Meth. A **616**, 224 (2010).

[5] Y. Senba *et al.*, Nucl. Instr. Meth. A **616**, 237 (2010).

[6] F. Siewert *et al.*, Opt. EXpress **20**, 4525 (2012).

４．ビームライン設備

KEK 放射光計画で想定される高輝度ビームを実効的に利用するためには、ビームラインの光学系や実験装置のみならず、それらを取り囲む光学ハッチや実験ハッチ、そして冷却水、液体窒素などの冷媒配管、ガス配管、さらには電力供給などにおいても細心の注意を払う必要がある。ここでは、それらビームラインに付随する共通の設備についての検討ポイントをリストする。詳細設計は今後順次進める予定である。

4-1.　光学・実験ハッチおよび恒温ブース

(1) 構造設計

ビームライン光学系、および実験装置の周辺を取り囲む光学ハッチ、および実験ハッチは、放射線防護を第一の目的としているが、光学系および実験装置周辺の環境(温度、振動、騒音)を制御する上でも重要な働きを持つ。また、放射線防護を必要としない VUV/SX のビームラインの実験装置においても、その周辺の環境を制御するために、恒温ブースなどで取り囲むことは重要である。

これらハッチおよびブースは大型で重量のあるものが殆どであり、それらが振動をしてしまうと、いくら光学系等を実験ホール床に強固に固定していても床を通じて光学系に振動が伝達してしまい、ビームの変動へと繋がる。従って、ハッチおよびブースは出来るだけ高い固有振動数を持つような剛性の高い構造として設計する必要がある。今後適切な振動モデルを仮定し、振動解析を行うことで、実験ホール床への影響を最小化するような構造設計を進める予定である。

ビームライン光学素子や装置などのメンテ作業も考慮に入れる必要がある。ビームライン傍で移動を伴うような作業をしても、実験ホール床に振動を与えないよう、エアパッドを利用した移動方法なども検討したい。

(2) ハッチ／ブース内の温度制御

ナノビーム、マイクロビームを取り扱う光学系、および実験装置は、その周辺温度が極力一定である必要がある。そのためハッチおよびブース内部の温度を精密に制御する必要があり、±0.1 度で制御することを目標とする。このために、ハッチのサイズに合わせた十分な出力の精密温調装置、及びソックスダクトによりハッチ内へ温調された空気を均一かつ静かに送り込む仕組みを検討している（実験ホールの空調制御が重要であり、±0.5 度の温度安定性を目標としている)。さらに厳密な温度安定性を要求するビームラインではハッチ

壁面に断熱材を貼ることを検討する[1]。Photon Factory でも微小集光ビームラインである BL-1A では実験ハッチ内の回折計をビニール製の恒温ブースで覆い、そのブースに精密温調された空気を送り込むことで、±0.1 度の温度安定性を実現しており(図 4-2)、これらの経験を活かす。また、発熱を伴うような装置(コントローラ、電源、チラー、ポンプなど)はハッチ内には設置しないようにする必要がある。このような発熱を伴う装置はハッチ外に出しても実験ホールに露出させては、実験ホール内の温度不安定性を引き起こす原因となる。さらにビームラインによっては実験時の試料調製でも発熱を伴う装置を使用する可能性がある。これらを別途隔離して温度制御をする収納キャビンやコントロールキャビンなどを整備し、直接実験ホール外に排気するような構造を検討している。また、モーター等の発熱が多く、且つハッチ内に置かざるを得ないものについては、冷却水で除熱するなどの対策を取る。

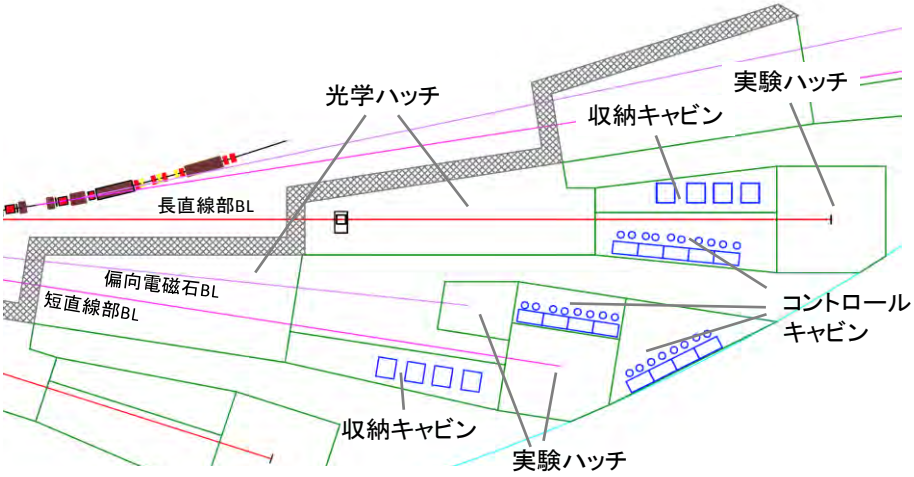


図 4-1：硬 X 線ビームラインにおけるハッチ、キャビンの配置例。光学機器および測定機器を収納する光学/実験ハッチは精密な温調を行う他、排熱を伴う制御機器やユーザーの実験操作環境もキャビンとして囲み温度制御することで熱を実験ホールに排出しないようにする。

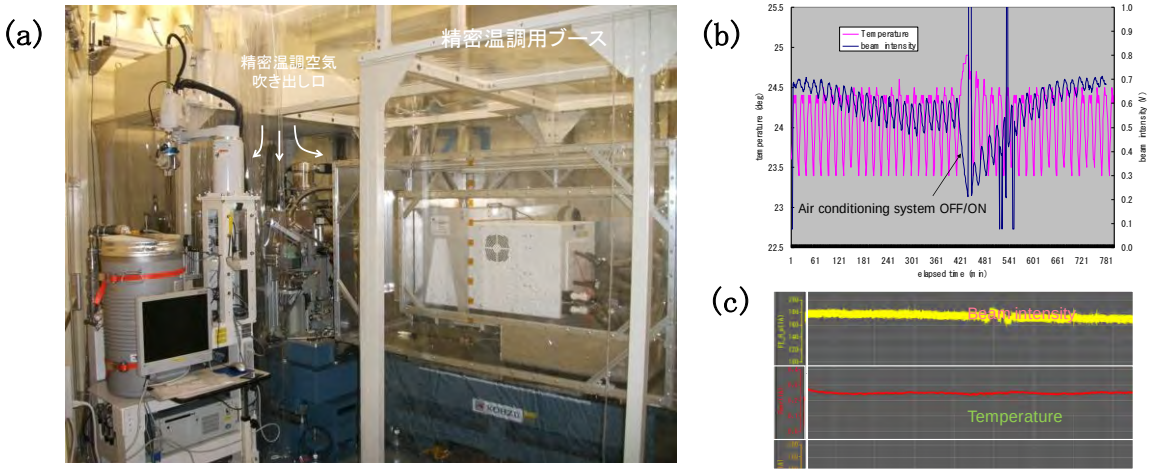


図 4-2：BL-1A における回折計周辺の精密温度制御。(a)BL-1A 回折計を覆う精密温度制御システム、(b, c) 回折計周辺の温度とビーム強度の変化(b: 導入前、c: 導入後)。

4-2. 液体窒素、冷却水、各種ガスの利用

(1) 液体窒素の供給について

ほどんどの長直線部ビームラインでは、液体窒素冷却型のミラーや分光器を採用する可能性がある。また、タンパク質 X 線結晶構造解析用ビームラインを始めとして、多くのビームラインでは実験でも多量の液体窒素を消費する。このため、各ビームラインに安定かつ安全に液体窒素を供給する必要があり、大型の液体窒素 CE から各ビームラインに共通配管を通って分配する共通ラインを設けることが望ましい。液体窒素共通ラインによる多量の液体窒素の安定供給が確立すれば、液体窒素冷却型分光器への液体窒素の供給 RI Research Instruments 社が製造販売する Cryo cooler[2]のような冷凍機を必要とせず多量の熱を処理すること出来る装置を採用することが可能となる。Cryo cooler は冷凍機を使用しないことから振動や騒音を発生することがなく、ビームライン光学系の安定化にとって極めて効果的である。この場合、まず施設の共通の液体窒素ラインから各ビームラインに液体窒素を分取し、Cryo cooler へと供給する。Cryo cooler ではこれを冷媒として更に分光器との間を閉経路で液体窒素を循環させることとなる。閉経路の液体窒素の循環にはポンプが用いられるが、その脈流により光学系に振動が生じないよう、送水ポンプで用いられるエアダンパーをヘリウムガスで置き換えたような装置を経路に挿入するなどの工夫が必要となるだろう。

また、他の実験系への液体窒素供給も共通の液体窒素ラインから気液分離器を通じて行う。気液分離器を置くことで、経路内で気化した窒素は常時速やかに経路外へと放出される。

これによって配管内は常時液体窒素で満たされ、バルブを開けると速やかに液体窒素を供給することができる。これは供給開始時の液体窒素の突発的な気化による実験装置への振動の伝達などを避けるなどのメリットがある。

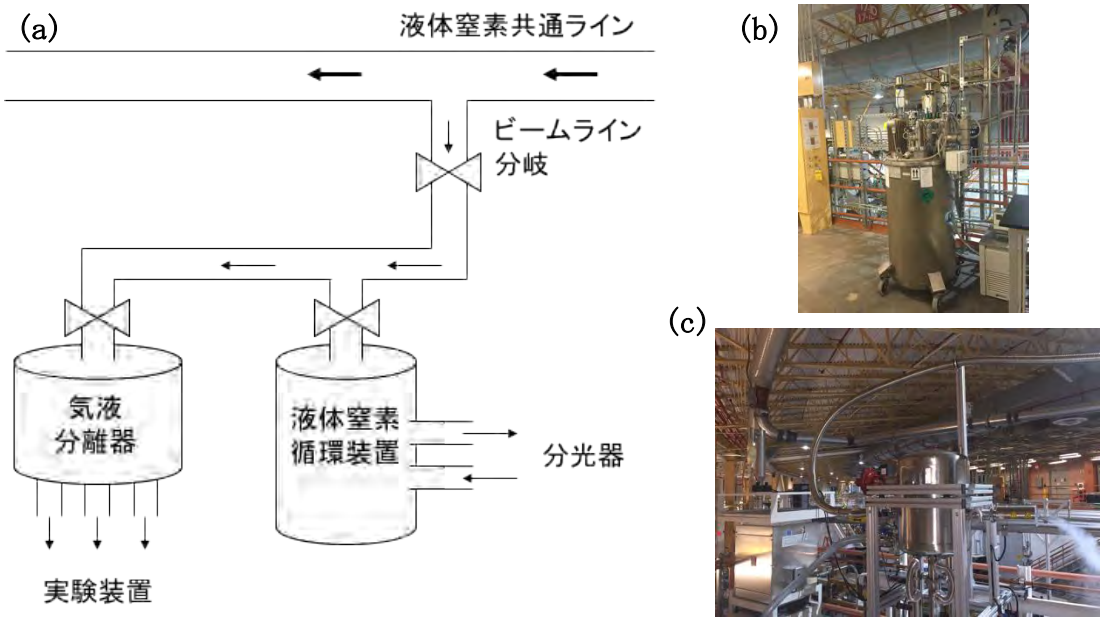


図 4-3：ビームラインでの液体窒素供給

(a) 概念図 ，(b) RI Research Instruments 社の Cryo cooler，(c) 気液分離器

(b, c は NSLS-II のビームライン AMX/FMX で使用されているもの)

(2) 冷媒およびガス配管

ビームラインでは上述の液体窒素の他、冷却水や各種ガス(圧縮空気、ヘリウム、窒素等)が必要であり、これらは施設の共通供給源から各ビームラインに分取される。これらの配管は通常、ハッチなどの建造物もしくは床に設置されたサポート等に固定されるが、その固定にも緩衝材を用いるなどの工夫が必要である（図 4-4)。

また、冷却水についてはその脈流による装置への振動を防ぐために、経路にゴム配管やエアダンパーなどの設置も検討する必要があるだろう[3]。

図 4-4：緩衝材付き配管サポート (NSLS-II AMX)

4-3.　電力供給

各ビームラインへの電力供給は、ビームライン毎に十分な量の電力が供給出来る分電盤を設置する。電気的なノイズが測定器の信号に乗ることのないよう電力配線は他の配線とは隔てた専用のラックを用いる。

[1] H. Ohashi *et al*. *Journal of Physics: Conference Series*, **425**, 52018 (2013)

[2] http://research-instruments.de/frontend/products-cryo-cooler

[3] D.J.Wang *et al. Proceedings of 2005 Particle Accelerator Conference, Knoxville, Tennessee*, 1102-1104 (2005)

５． ビーム制御技術

KEK 放射光リングで生み出される高輝度･高コヒーレント光を十分に生かした実験を行うためには、いかにしてビームを劣化させずに試料位置まで導けるかが重要となる。考慮すべき要素としては、光学素子もしくは試料位置でのビーム位置安定性制御、波面制御などのビーム特性制御、光源アンジュレータと分光器の同期制御などの統合ビームラインシステム制御などがあげられる。また、これらの情報を実験装置にフィードバックあるいは協調制御できるよう、実験装置制御にも容易に組み込めるような共通仕様設計にしておく必要がある。本章では、これらの項目において必要となる個々の技術について列挙し、先行技術開発として現 PF リングで行っているシステム開発の現状を踏まえつつ、KEK 放射光の運転において必要な技術を検討する。

5-1. ビーム位置安定性制御

KEK 放射光リングからの高輝度光を集光すると、簡易的な集光光学系でも、ビームサイズはミクロン～サブミクロンオーダーとなる。また、仮想光源システムと最終集光光学系を組み合わせたナノ集光ビームラインではビームサイズは10～50nm(将来的にはnmオーダー)と見積もられている。これはミリメートル～サブミリメートルのオーダーで運用している現 PF リングと較べて 3 桁以上小さい値であり、それに伴って許容されるビーム照射位置の誤差も小さなものが要求される。また、光源リングのビーム位置モニタと、ビームラインでのビーム位置モニタは、その設置位置の関係から特に出射角度がずれた場合のビーム変動はビームラインのモニタの方がとらえやすい。従って、ビームラインで精密に測定したビーム位置情報をどのようにして電子リングの軌道フィードバックに取り込むのかも重要な開発要素である。また、ビーム位置モニタリングシステムはビームの波面や形状を乱さないことが重要であり、特に透過型の素子をモニタとして使用する際にはその材質や設置方法を十分に検討しなくてはいけない。本節では、主に電子リング軌道の揺れを検知し、光源制御にフィードバックするための白色ビームポジションモニタシステムと、ビームラインの光学系や実験ホールの振動によるビームの揺れを検知し、集光位置（簡易光学系では試料位置、ナノ集光光学系では仮想光源位置）でのビーム位置安定性を確保するための制御システムに関して記述する。

(1) 白色ビームポジションモニタ

光源電子リングはフィードバックシステムにより安定な軌道が保たれるように制御されているが、環境温度の変化やフィードバックシステム自身による軌道制御誤差の蓄積等に

よりごくわずかな軌道のドリフト等が現 PF リングでは観測されている。このドリフト量は現行の PF 電子リング軌道モニタではとらえられるかどうかの微少量ではあるが、ビームライン下流のビーム位置モニタでは比較的大きな値となる。特にビーム出射角が変動した場合が問題で、電子リングの位置モニタで微少量の傾斜をどれだけ精密に測定できるかということになるが、精度が足りなければ過小評価される可能性もある。ビームラインで仮想光源システムを採用する場合、要求される白色ビームの安定度は前段集光ミラーでの照射位置安定性であり、ビームサイズの 10%程度を許容誤差とすると位置安定度は数十～百ミクロンと見積もられる。そこで、光源点から数十メートル離れたビームライン側で精密ビーム位置モニタを設置することでビーム軌道の変位を正確に捉えるアプローチを考える。まず、ビーム位置モニタの配置に関しては、最低限位置と傾斜を常時観測できるように 2 台以上のビーム位置モニタを設置、もしくは同等機能を有するビーム位置モニタを開発する必要がある。白色モニタによるビーム出射方向測定精度としては、ターゲットが仮想光源点への集光ミラーでの位置ずれなので、ミラーの精度やミラー自身の補正機構との兼ね合いとなるが、水平垂直方向の位置ずれに関しては 10 ミクロン以上、傾きに関しては 10 マイクロラジアン以上の測定精度は最低限必要であり、新システムの目標値としてはこれの 1/10 程度で、より高確度、高レートでの測定技術を開発する。

本システムで必要なビーム位置モニタは光源からの出射ビームそのものを評価する必要があるため、分光器やミラーよりも上流のいわゆる白色区間に設置することが必須である。ただしこの領域は熱負荷も高くなるため、ビーム位置モニタの精度と共に耐久性にも注意しつつ機種選定を行う必要がある。ビーム位置モニタにはいくつかのタイプがあるが、多くのものは金属をビーム外周に接触させ、光電効果による電流をとらえるものである。たとえばワイヤー形状のタンタルやタングステンを使用するタイプではワイヤーを細く（～数十ミクロン）することで分解能の向上が可能であるが、その反面熱には弱く、放射光の白色モニタとしては適さない。ワイヤーの素材をカーボンなどにする方法もあるが、ワイヤー形状ではどうしても材料の熱膨張により分解能が落ちるなどの可能性がある。一方でブレード形状のタイプでは、比較的冷却機構も取り付けやすく、比較的熱に対する耐久性は強いが、それでもブレード面に入射するタイプは熱負荷が大きくなりすぎる。そこで、現 PF の BL-1A や BL-15A で採用しているタイプでは、放射光をブレードの端面に照射し、見かけの断面積を小さくしつつ、熱負荷にも耐えられる仕様となっている（図 5-1）。このタイプのものは、ビームから見ると針のような形状となるため、複雑な空間分布をもつアンジュレータ光の最適な部分を狙って挿入することができる。また、このビーム位置モニタを 2 台使用した際も断面積が小さいが故に、1 台目のブレードの影を避けて 2 台目のブレードを挿入することも容易である。新光源においてもこのタイプの白色ビーム位置モニタ

を使用して十分なビーム位置変動情報が引き出せるかの R&D を行っている。このモニタを用いた際の現状での精度は測定レート 5Hz で約 10 ミクロンである。現状のシステムでも機器のノイズ対策やアンプの適切な選定によりもう一桁の精度向上は可能であると判断している。従って、この垂直ブレードタイプのビーム位置モニタを基準に開発を進める（図 5-2）。

図 5-1：BL-1A, 15A の白色 BPM（FMB Berlin 社製）

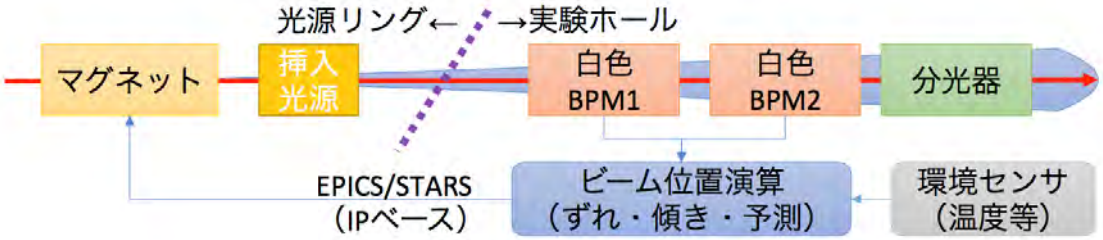


図 5-2：白色 BPM によるビーム補正概略

（2）光源連携フィードバックシステム

ビームライン側で精密なビーム位置変動測定が可能となれば、そのデータを光源電子リングにフィードバックすることにより、ユーザー実験に影響が出る前にビーム軌道を補正することが可能になる。2 台の白色ビーム位置モニタから得られる信号は各ブレードからの電流値であるため、合計 8 つの電流信号をリアルタイムに演算することで、ビームの位置情報に変換する。高速の AD 変換器を搭載した PLC 等を使用することで、演算サイクルは 150 マイクロ秒程度まで高速化可能である。実際の使用では伝達システムやフィードバックシステムの応答速度もあるためここまで高速性は求められないが、その分計測確度を高めることができる。ビームライン側から光源側への信号伝達はそれぞれがどのような制御システムを採用するかによって考慮する必要がある。現 PF ではビームライン側が STARS、光源側が EPICS と違うシステムを採用しているが、それぞれのシステム間を接続するためのブリッジクライアントはすでに開発されており、現行のシステムにおいても情報伝達に支障は無い。ただし、早い時間周期でフィードバックをかける必要が出てきた場合は、現行の

TCP/IP による通信ではレイテンシが 50 ミリ秒程度と、通信網がボトルネックとなる可能性があり、将来的には拡張する可能性も検討する必要がある。たとえば 1kHz 程度のデータ伝達が必要ということであればビームラインで演算したデータを分配し、STARS と EPICS で同時に書き込むという方法も考えられる。その場合はビームライン側から光源側に直接アクセスできるようなファイバーなどの通信経路をあらかじめ敷設しておく必要がある。

(3) 後段ビーム位置高速制御システム

白色ビーム位置モニタは主に光源電子リングの変動を検知するものであるが、ビームライン光学素子の熱膨張や振動によるビーム位置の補正システムも同様に必須のシステムである。このシステムは基本的にビームの集光点での位置変動を補正するものであり、試料位置や仮想光源位置での鉛直／水平方向、及びビーム上下流方向（集光位置のズレ）の位置変動を想定する。

まず、補正を行うにはビームの変動値を測定する必要があるが、理想的には集光点直前にビーム位置モニタを置き、精密計測を行うことになる。KEK 放射光では集光点前であってもビームサイズがミクロンオーダーであるため、サブミクロンオーダーの精度の高い位置測定が求められる。例えば高エネルギー領域であれば数ミクロンのダイヤモンドブレードを使用した透過型ビーム位置モニタが利用できるが、市販品ではブレードギャップが 5 ミクロン程度であり、狭ギャップのビーム位置モニタを開発するか、モニタの設置位置を上流側に寄せて対処できるかの検討が必要であるが、このあたりは各ビームライン光学系に依存するのでケースバイケースとなるであろう。白色ビーム位置モニタと同様にこちらも計測系は AD 変換と演算が必要であるが、こちらの場合は高速化する実験に対応するためにできるだけ高速にフィードバックをかけておく必要があり、たとえば XAFS 実験では数ミリ秒のデータサンプリングを要求されることから、フィードバックサイクルはそれより 1 桁下のサブミリ秒オーダーが目標値である。また、フィードバックをかけてビーム軌道を動

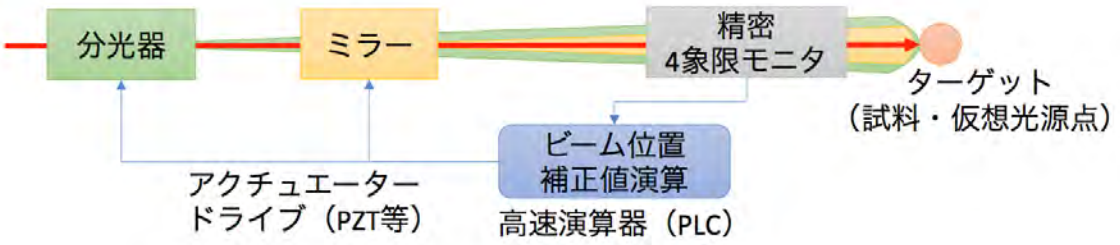


図 5-3：照射位置モニタによる精密・高速ビーム補正概略。

かすためには、ミラーや分光器などどこかの光学素子にビームを振るための機構をあらかじめ用意しておかなくてはいけない。どの素子でビームを振るかにもよるが、オーダーとしては 0.数秒の補正値となることと、高速駆動のため、ピエゾアクチュエーターによる駆動方式を現実解として考えている（図 5-3）。

先行 R&D を行っている BL-15A では、ブレードギャップ 6 ミクロンのダイヤモンド透過型ビーム位置モニタと高速 PLC（制御サイクル 1kHz 以上）を組み合わせたシステムをテストしており、現状で 20 ミクロンのビームを使用した際に、分光器を動かしても 1.5 ミクロン以下の位置変動に押さえ込むことに成功している（図 5-4）。

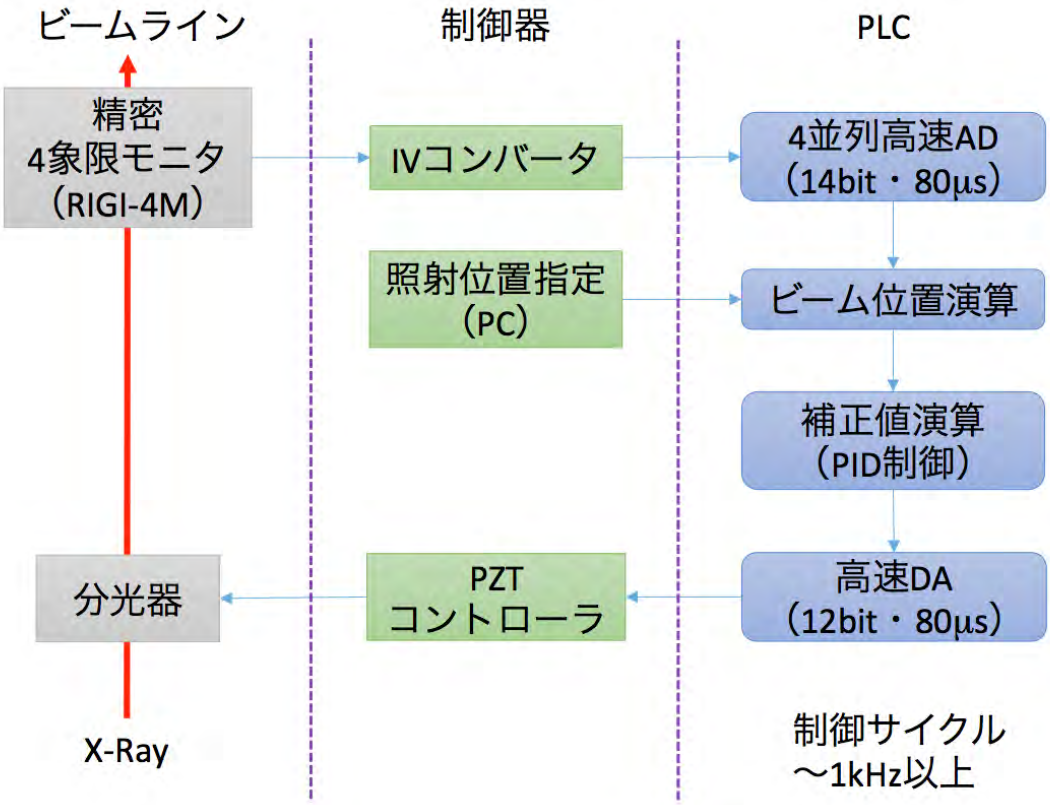


図 5-4：BL-15A における PLC と分光器 dθ 用 PZT を用いた高速ビーム補正システム

5-2. 環境測定データとの連携システム

実験ホールには環境測定用の温湿度センサーや、振動センサーなど種種のセンサーシステムが導入される想定となっている。これらのデータは一元的に集約され、必要とするシステムから随時アクセス可能になるようなシステムの構想が進んでいる。当然このシステムをビーム制御に取り込むことで、さらなるビームの安定化につなげることができる。たとえば実験ホール内の温度分布データがあれば、温度が変動した際にビームラインのコンポーネントがどのように影響を受けるのか、またその動きをキャンセルするにはどの程度

の大きさの制御が必要かを事前に測定しておくことで、フィードフォワード制御が可能になり、ビーム軌道が乱れる前に先回りしてビームを制御することで、より安定なビームを供給することが可能になる。また、フィードフォワードで対処できない、地震などの突発的な揺れなどに対しては上記のフィードバックシステムで対応するため、この 2 段のシステムを効果的に運用することが重要となる（図 5-2)。

5-3. ビーム特性制御

KEK 放射光の特徴の一つは回折限界光でのユーザー実験となっている。つまりは光源からのコヒーレント光をいかに効率よく試料まで届けられるかということになる。ビームラインにはミラーなどの光学素子が存在するため、その表面形状誤差によっては波面が乱れ、コヒーレント比は低くなり、集光形状も設計からずれてしまう。そこで、ビームの波面や形状を随時測定し、それを元にビームの補正を行うためのシステムが有効であると考えられる。本節では主に X 線ビーム波面のリアルタイム測定と補正システム、および X 線ビーム形状のリアルタイム測定と補正システムについて記述する。

ビーム波面や形状の乱れを引き起こす原因の一つはミラー表面の誤差によるものであり、これはそもそもミラーが持っている加工時の形状誤差と実際にビームを照射した際の熱分布等によって生じる形状歪み等が考えられる。このような誤差を補正するためには歪んでしまったミラーの形状をミラー全面にわたって精密にとらえる測定手法と、そのデータを元にミラー形状を物理的に組成するシステムを組み合わせる必要がある。波面計測に関してはミラーの対面に干渉計を設置する方法や透過型回折格子を用いる方法などが各施設で提案されており、実際のビームライン設計にあわせて適切な選択を行う必要がある。ビームの補正に関しては多素子のバイモルフミラーを想定している。使用するミラーの長さ、目標とする表面形状への許容誤差に応じて適切な素子数を選択する。また制御システムには安定した電圧出力が必要であり、温度ドリフト等を考慮した高圧電源システムを組み込む必要がある（図 5-5)。

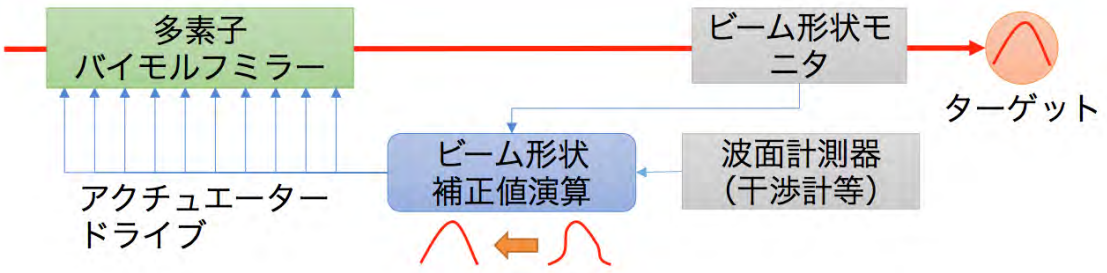


図 5-5：ビーム形状・波面補正概略

5-4. 統合ビームライン制御

アンジュレータ光源と分光器を組み合わせて単色 X 線による実験を行うビームラインは多く、特に XAFS などのエネルギースキャンが必要な実験においては、アンジュレータ光源と分光器の両方を最適な状態に設定しないと光源特性を生かした実験ができない。これは偏向電磁石光源の場合は分光器のみ駆動すればよかったが、アンジュレータ光源の場合は、光源からのエネルギースペクトルがピーク状となっており、分光器のみを駆動するとビーム強度や集光形状に影響が出るためである。本節では主にアンジュレータ光源と分光器の同時制御システムについて記述する。

(1) 光源・分光器連携制御システム

分光器とアンジュレータをどの程度協調駆動させないといけないかは、アンジュレータの設計や実験の要求するビーム性能に大きく依存する。たとえば現 PF の BL-15A では周期長 17mm、全長 50cm の短周期アンジュレータを用いてエネルギースキャンを伴う XAFS 実験を行っているが、XAFS 実験が要求するエネルギースキャン幅は 1~1.5keV であり、それに対してアンジュレータスペクトルのピーク幅は半値で 150eV 程度しかない。このような条件下では分光器だけを動かすと 1 つのデータを測定する際に 1 桁以上強度が変化し、集光特性も変化してしまう。従って分光器を動かすと同時にアンジュレータギャップも駆動してそれぞれのエネルギーを一致させる機構が必要である。

(2) BL-15A での R&D

現 PF の BL-15A では 2013 年の建設段階から将来的にこのような問題が発生することを想定し、アンジュレータギャップの動きに分光器が自動追従するシステムの開発を行ってきた。方式としては、BL-15A に導入されている計算結合型分光器のモーター制御コントローラに従来の単機能なパルスコントローラではなく、NC 装置などに使用されるモーションコントローラを採用し、分光器のすべてのモーターをソフトウェア制御することでこの機能を実現している。マスターとなる信号は光源アンジュレータに設置されたギャップ計測用のエンコーダ信号であり、これをハードワイヤーでビームラインに設置したモーションコントローラに入力している。モーションコントローラ内では入力されたギャップ情報を元に、現在のアンジュレータスペクトルのピークエネルギー値を計算する。その際にはあらかじめ測定してモーションコントローラに入力しておいたギャップ値とピークエネルギー値の関係式を利用する。計算されたピークエネルギー値から分光器の各軸（BL-15A 型分光器の場合は合計 6 軸）の理想位置を計算し、移動命令を出す。この際に分光されたビームは定位置出射を保つように各軸の動作スピードはリアルタイムに制御され、エネルギー変更

動作中でもビームの出射方向は維持される。このようなシステムを構築し、基本的にはアンジュレータのギャップを駆動するだけで自動的に分光器が追従して連続的に分光光を取り出すことに成功した。

（3）KEK 放射光での連携制御システム

上記の BL-15A でのシステムはたとえば On the fly 方式の連続 XAFS 測定システムなどには有効であるが、多くの場合は分光器側をマスターとしてアンジュレータギャップを追従させる方式の方が望まれる。理想的なことをいえば、状況によりアンジュレータと分光器どちらもマスターになれるシステムがよい。NSLS-II の例を挙げると、アンジュレータと分光器の制御システムのそれぞれモーションコントローラを導入し、それらを光ファイバーで接続している。2 つのモーションコントローラは見かけ上 1 つのコントローラとして動作し、より複雑な要求に対しても柔軟な対応が可能である。これを実現するためにはアンジュレータの設計段階からこのような用途を想定しておく必要があり、光源側とビームライン側で十分な協力体制を構築しておくことが重要である。

６．真空系開発

KEK 放射光計画では高輝度光源の低エミッタンスを活かしたナノビーム、マイクロビーム利用が予定されている。そこで、ビームライン最上流部と真空紫外軟 X 線ビームラインについては振動を全く発生しないスパッターイオンポンプ、非蒸発ゲッター（non-evaporable getter, NEG）ポンプのみでビームラインや実験装置の真空の維持を行うことが望ましい。KEK 放射光施設が現 PF と PF-AR の後継機であることを考えると、現在 PF、PF-AR で稼働している真空機器を可能な限り再利用することも望まれる。一方で、建設コストの削減と真空維持労力の低減が求められていることから、高排気速度長寿命低コスト NEG ポンプの開発、高排気速度長寿命低コスト NEG コーティングの開発が重要である。また、ビームライン建設とメンテナンスの労力低減の観点から、真空紫外軟 X 線用ビームラインおよび X 線ビームラインの真空システム、真空ポンプの防振システム、排熱対策、放射線対策、光学素子の炭素汚染除去法の標準化も望まれる。本節では各項目について具体的に記述する。

6-1. 高排気速度長寿命低コスト非蒸発ゲッター（NEG）ポンプの開発

真空紫外軟 X 線ビームラインでは蓄積リングの真空に悪影響を及ぼさないようにするとともに、光学素子の炭素汚染を防ぐために 10^{-8} Pa 台の超高真空に維持する必要がある。一方、表面研究用超高真空装置でも、残留ガスによる試料表面の汚染を防ぐため、1×10^{-8} Pa 程度の超高真空が望まれる。非蒸発ゲッター（NEG）ポンプは、超高真空中で蒸発を使わずに反応性の高い清浄表面を作製し（活性化）、室温において残留気体を吸着させて排気する真空ポンプである。金属（M）を NEG 材料として使用した場合、$M + O_2 \rightarrow MO$、$M + N_2 \rightarrow MN$、$M + CO_2 \rightarrow MO + MC$、$M + CO \rightarrow MO + MC$、$M + H_2O \rightarrow MH$（バルク）$+ MO$、$M + H_2 \rightarrow MH$（バルク）などの吸着反応により、$O_2$、$N_2$、CO、$CO_2$、$H_2O$、$H_2$ などを排気できる。NEG ポンプはエネルギー消費が極めて少ない、活性気体に対して大きな排気速度を持つ、振動・騒音を生じない、油をまったく使用しないといった利点を持つので、ビームラインや超高真空装置の圧力を 10^{-8} Pa 台に維持する目的には適している。実際我々は、PF の BL-13A/B においては 13 台以上の NEG ポンプを使用し、その有効性を確認している（図 6-1）。

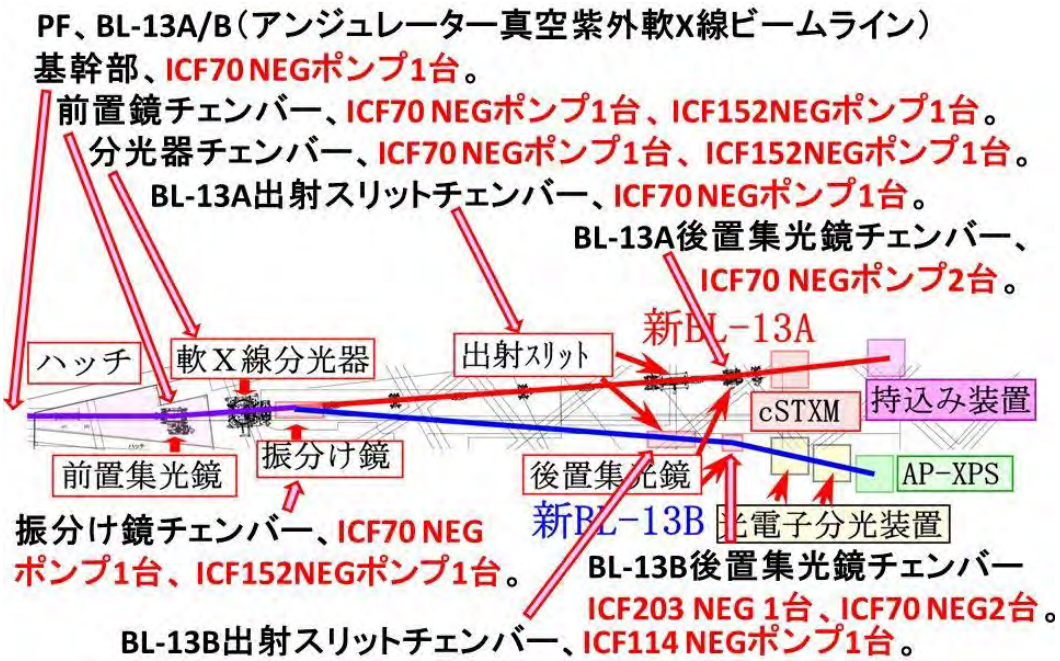


図 6-1：PF の BL-13A/B における NEG ポンプ使用例。

（1）現在の超高真空維持用真空ポンプの問題と NEG ポンプの開発

現在の BL-13 以外の PF の真空紫外軟 X 線ビームラインではスパッターイオンポンプ、チタンサブリメーションポンプが 10^{-8} Pa 台の超高真空維持に使われている。しかしながら、スパッターイオンポンプは 60 L/s の排気速度の機種でも制御電源・ケーブル込みで 100 万円程度、600 L/s の排気速度の機種で 200 万円程度、チタンサブリメーションポンプは制御電源・ケーブル込みで 60 万円程度と高価である。また、スパッターイオンポンプは強い磁場を発生させる、スパッタリングで炭化水素を生じる、非常に重いといった問題もある。一方、チタンサブリメーションポンプはチタンの昇華を伴うのでビームラインや超高真空装置内部をチタンで汚染する恐れがあり、最近の放射光施設では使用されない傾向にある。一方、市販の NEG ポンプも 100 L/s の排気速度の機種で 45 万円程度、1000 L/s の排気速度の機種で 133 万円程度（制御電源・ケーブル別）と高価である。KEK 放射光施設建設においてはコスト削減も重要であるので、我々は低コストで高い排気速度を実現できる NEG ポンプを開発した。

我々が開発した ICF70 マウント NEG ポンプを図 6-2 に示す（特許出願中[1]）。本 NEG ポンプを 400℃、30 分加熱で活性化した場合の排気速度を実測し、市販品に劣らない性能を示すことを確認した（表 6-1）[2]。また、本 NEG ポンプはヒーターユニットと NEG モジュールから構成されているので、希望する排気速度の NEG ポンプを低コストで製作できる（図 6-3）。本 NEG ポンプは蓄積リングにも利用可能である。

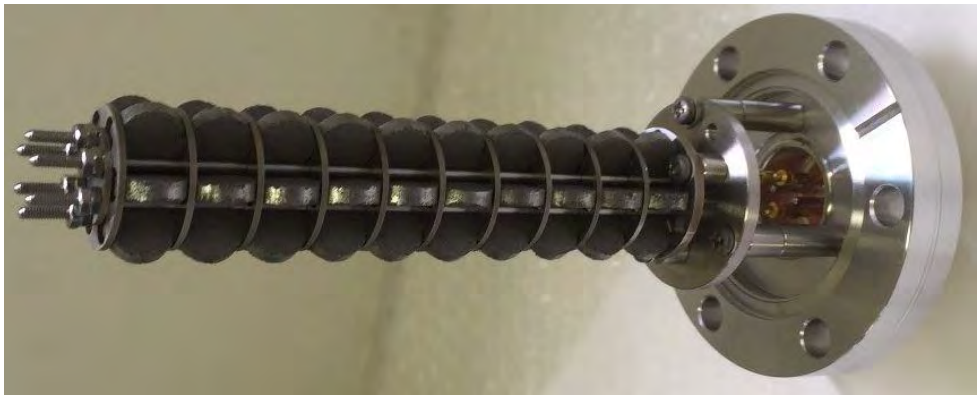


図 6-2：ICF70 マウント NEG ポンプ。

表 6-1：ICF70 マウント NEG ポンプの 400℃、30 分加熱で活性化した場合の排気速度[2]

気体	H_2	N_2	CO	CO_2
排気速度（L/s）	140–130	200–140	190–130	35–17

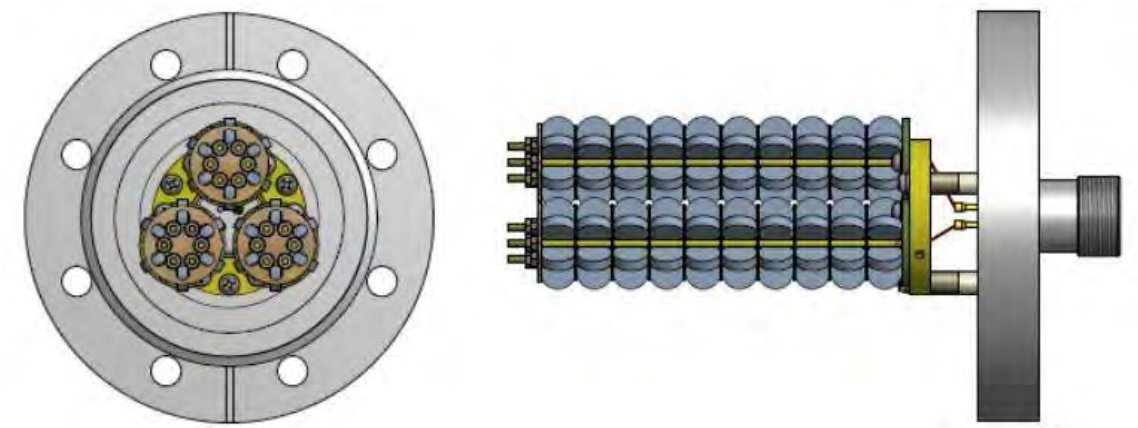


図 6-3：ICF114 マウント NEG ポンプ。

また、ICF70NEG ポンプの活性化は 1 回あたり 3A×20V×30 分程度であるので、電源としては出力電圧 0～36V、出力電流 0～3A の定電圧電源（たとえば、松定プレシジョン、超低ノイズ直流電源、PL-36-3、消費電力 200W、6.2kg）とケーブルを用意すればよい。電源は NEG ポンプの活性時のみ使用するので､1 台の電源を切り替えて使用することも可能である。このように本 NEG ポンプでは電源コストと電源設置スペースも大幅に節約できる。

（2）NEG ポンプの開発の今後の課題

NEG ポンプ開発の今後の課題は、NEG ピルからのダストの発生を抑制すること、大気圧開放と活性化を繰り返しても排気速度が低下しないようにすること、製造コストを削減することの 3 点である。現在、これらの課題を解決するために研究を進めている。

[1] 間瀬一彦、菊地貴司「非蒸発型ゲッターポンプ」（出願番号：特願 2015-233674、出願日 2015 年 11 月 30 日）

[2] H. Kodama, S. Ohno, M. Tanaka, M. Tanaka, K. K. Okudaira, K. Mase, T. Kikuchi, J. Vac. Sci. Technol. A **34,** 051601 (2016).

6-2. 高排気速度長寿命低コスト非蒸発ゲッター（NEG）コーティングの開発

MAX-IV などの最先端の放射光蓄積リングでは真空ダクトの内壁に、Ti-Zr-V 合金などの NEG 材料をコーティングし、ベーキングにより活性化して、高排気速度を実現している[3]。しかしながら、従来の NEG コーティングには活性化と大気圧開放を繰り返すと排気性能が低下するという問題がある。そこで我々は高排気速度を持ちながら、活性化と大気圧開放を繰り返しても排気性能が低下しない NEG コーティング法の開発を進めている。光学素子用チェンバーの内壁の表面積は大きいので、NEG コーティングできれば大きな排気速度を実現できると期待される。また、蓄積リングの真空ダクトなどへの応用も期待できる。

[3] O. B. Malyshev, K. J. Middleman, J. S. Colligon, and R. Valizadeh, J. Vac. Sci. Technol. A **27,** 321 (2009);

6-3. 真空紫外軟 X 線ビームライン用標準真空システム

本節では、ナノビーム、マイクロビーム利用に対応した真空紫外軟 X 線ビームラインの真空ポンプ、真空計、真空コンポーネントを提案する。

真空紫外軟 X 線ビームラインでは蓄積リングの真空に悪影響を及ぼさないようにするとともに、光学素子の炭素汚染を防ぐために、炭化水素を含まない 10^{-7} ~10^{-8} Pa 程度の超高真空に維持する必要がある。一般に、真空装置の到達圧力は

$$p = \frac{q \times A + Q_L}{S} \tag{1}$$

で与えられる。ここで、q は真空装置内の平均ガス放出率、A は真空装置内の全表面積、Q_L は全リーク量、S は真空ポンプの排気速度である。したがって、振動の全くない真空ポンプのみで 10^{-8} Pa 台の超高真空に維持するためには

(1) 真空装置内の平均ガス放出率（q）を 10^{-10} Pa･m･s^{-1} 台程度に小さくする。このため、真空チェンバーの内壁と真空内金属部品は原則としては電解研磨あるいは化学研磨後、純水洗浄仕上げとする。ベアリング、ベローズは特級エタノールで超音波洗浄する。真空チェンバー内は完全オイルフリーとして、固体潤滑剤を使用する。また真空チェンバーは 100℃~150℃に数十時間ベーキングして表面に吸着している水分子、炭化水素分子を排気できる仕様とする。

(2) 超高真空装置内の全表面積（A）を小さくする。

(3) NEG ポンプなど、超高真空領域で高い排気速度（S）を持つ真空ポンプで排気する。

(4) 全リーク量（Q_L）は 1×10^{-11} Pa･m^3･s^{-1} 以下にする。

を実現すればよい。したがって、$A = 10$ m^2、$q = 5\times10^{-10}$ Pa･m･s^{-1}、$S = 0.5$ m^3･s^{-1}、$Q_L = 1\times10^{-11}$ Pa･m^3･s^{-1} なら $p = 1\times10^{-8}$ Pa の超高真空を実現できる。我々はすでに PF の BL-13 において、真空紫外軟 X 線ビームライン全体を 1×10^{-8} Pa 以下の超高真空に保つ技術を確立している[4]。KEK 放射光施設では低コスト、省労力、無振動で真空紫外軟 X 線ビームライン全体を 10^{-7}～10^{-8} Pa の超高真空に維持する技術を導入することを提案する。

[4] A. Toyoshima, H. Tanaka, T. Kikuchi, K. Amemiya and K. Mase, J. Vac. Soc. Jpn. **54,** 580 (2011).

（1）真空紫外軟 X 線ビームラインの真空排気システム

PF の真空紫外軟 X 線ビームラインにおける標準的な真空排気システムを図 6-4 に示す。PF では油回転ポンプが使用されているが、第 3 世代以降の放射光施設では、スクロールポンプあるいは多段ルーツ型ポンプといったドライポンプを使用することが一般的である。磁気浮上型ターボ分子ポンプは完全オイルフリー、取り付け方向の自由度が大きい、振動が小さい、メンテナンスコストが小さい、地震に対して耐性があるという理由から日本の放射光施設では広く使用されている。また、停電/故障時には真空チェンバーとターボ分子ポンプの間のゲートバルブとターボ分子ポンプと油回転ポンプ（ドライポンプ）の間のアングルバルブを自動で閉めて、排気システム中の気体が真空チェンバーに逆流しないようにインターロック機構を持たせている。また、ビームライン最上流部と最下流部に複数の差動排気部を設け、スパッターイオンポンプ、NEG ポンプを効率的に配置することで、大気突入などの不慮の事故に対応している。ユーザービームタイム中は真空チェンバーとターボ分子ポンプの間のゲートバルブを閉じて、スパッターイオンポンプと NEG ポンプのみでビームラインを排気することにより、無振動、無排熱、省エネルギーでビームラインの真空を 10^{-7}～10^{-8} Pa に保つことができる。本真空排気システムは KEK 放射光施設においても適用可能であるが、コスト削減のために、PF で開発した NEG ポンプを採用することを考

えている。KEK 放射光の標準的な真空紫外軟 X 線ビームラインに設置する真空ポンプの例を表 6-2 に示す。

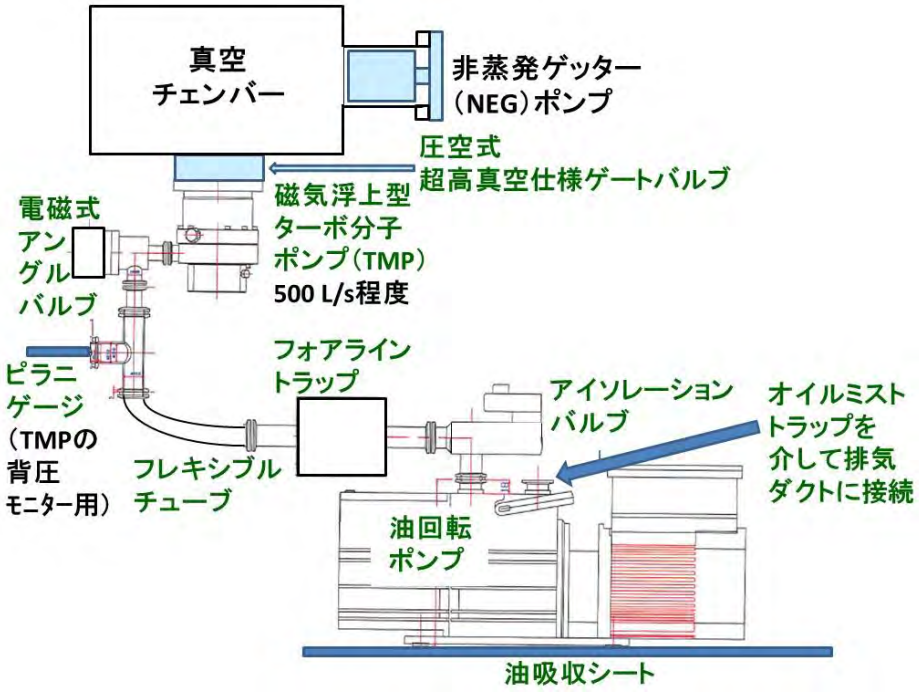


図 6-4 : PF の BL-13 で使用されている真空排気システムの例。油回転ポンプを使用しているが、フォアライントラップとアイソレーションバルブを設置して、超高真空チェンバーへの油蒸気の拡散を防いでいる。

表 6-2 : KEK 放射光の標準的な真空紫外軟 X 線ビームラインに設置する真空ポンプ、真空計、真空機器の案。コスト削減のため、ドライポンプの代わりにマグネットカップリング式油回転ポンプを使用する可能性もある。

	ドライポンプ	ターボ分子ポンプ	NEG ポンプ	スパッターイオンポンプ	ピラニ真空計	冷陰極電離真空計	酸素導入
差動排気	○	○	○	○	○	○	
熱負荷除去鏡	○	○	○		○	○	○
前置集光鏡	○	○	○		○	○	○
入射スリット			○		○	○	
分光器	○	○	○		○	○	○
分岐鏡	○	○	○		○	○	○
BBS			○		○	○	
出射スリット			○		○	○	
後置集光鏡	○	○	○		○	○	○
光量モニター			○		○	○	

（2）真空紫外軟 X 線ビームラインの真空計測システム

真空紫外軟 X 線ビームライン標準真空システムにおいて利用される真空計は、1×10^{3} Pa から 1×10^{-8} Pa まで計測できること、複数の接点出力が使用できること、集中監視が可能なこと、大気突入などの不慮の事故が起きてもフィラメントが焼損しないことが求められる。既存の PF、PF-AR ではこれらを考慮し、ピラニ真空計と冷陰極電離真空計を組み合わせて 1×10^{3} Pa から 1×10^{-8} Pa まで計測できる自動レンジ真空計を使用している。これまでほぼトラブルなく運営できていること、低コストであること、既存品を再利用できることから、KEK 放射光においても同様の真空計測システムで対応予定である（表 6-2 参照）。

（3）その他の真空紫外軟 X 線ビームラインの真空コンポーネント

既存の PF、PF-AR の真空紫外軟 X 線ビームラインでは、超高真空仕様ゲートバルブ、超高真空仕様オールメタルアングルバルブ、ターボ分子ポンプインターロックシステム、後述する光学素子洗浄用酸素導入など多数の真空コンポーネントが使われている。いずれもこれまでほぼトラブルなく運営できていること、低コストであること、既存品を再利用できることから、KEK 放射光においても同様の真空コンポーネントで対応予定である（表 6-2 参照）。

6-4. 硬 X 線ビームライン用標準真空システム

硬Ｘ線は透過率が高く、前述の通りフィルターも適用可能であり、光学素子の炭素汚染に対する要求も厳しくないため、超高真空状態である蓄積リングと基幹チャンネルをベリリウムなどの窓材で分離しビームラインを低真空から高真空状態にすることができる。光学機器は真空リークによる蓄積リングへの影響や、耐ベーキング性能のことを考えずに設計できる。一方で、硬Ｘ線と軟Ｘ線の境界付近の 2～6 keV 付近のエネルギーでは、透過率やフィルターの問題から、蓄積リングと真空的に直結した窓無しのビームラインが望ましい。この場合は、窓の替わりに差動排気システムを積極的に導入し、光学機器の設計の自由度を保ちつつ蓄積リングの真空悪化を回避するという方策がとられる。

（1）硬 X 線ビームラインの真空排気システム

既存の PF、PF-AR の硬 X 線ビームラインでは、粗排気にスクロールポンプや多段ルーツポンプ等のドライポンプ、高真空領域の排気に磁気浮上型のターボ分子ポンプを用いている。この真空排気システムは広く放射光施設の硬 X 線ビームラインで使用されてきた、高信頼かつ低コストの排気システムである。そこで、KEK 放射光においても同様の真空排気システムを採用することを提案する。ただし、ドライポンプ、磁気浮上型ターボ分子ポンプ

の振動が光学素子に伝達しないように、ミラーチェンバーと排気チェンバー間、および排気チェンバーとターボ分子ポンプ間に防振ダンパーを設置する。また、スパッターイオンポンプが気体を溜め込みすぎて排気速度が低下したときに、排気速度を回復できるようにスパッターイオンポンプを 150℃程度にベーキングできる仕様にしておく。KEK 放射光の標準的な硬 X 線ビームラインに設置する真空ポンプの例を表 6-3 に示す。

表 6-3 : KEK 放射光の窓無しの硬 X 線ビームラインに設置する真空ポンプ、真空計、真空機器の案。酸素導入は炭素汚染除去の要望がある場合のみに設置する。

	ドライポンプ	ターボ分子ポンプ	NEG ポンプ	スパッターイオンポンプ	ピラニ真空計	冷陰極電離真空計	酸素導入
差動排気	○	○	○	○	○	○	
BBS	○	○	○	○	○	○	
水冷可動 4 象限	○	○	○	○	○	○	
ワイヤモニター			○	○	○	○	
差動排気				○			
分光器	○	○		○	○	○	△
DDS				○	○	○	
KB ミラー	○	○		○	○	○	△

(2) 硬 X 線ビームラインの真空計測システム

既存の PF、PF-AR では、ピラニ真空計と冷陰極電離真空計を組み合わせて 1×10^{3} Pa から 1×10^{-7} Pa まで計測できる自動レンジ真空計を使用している。これまでほぼトラブルなく運営できていること、低コストであること、既存品を再利用できることから、KEK 放射光においても同様の真空計測システムを提案する（表 6-3 参照）。

(3) 差動排気システム

PF の BL-1A 、BL-15 など 2 keV～6 keV の硬 X 線が利用できるビームラインでは、差動排気システムを利用して窓無し（蓄積リングと真空的に直結した状態）で運用されている。硬 X 線ビームラインで用いられている通常の液体窒素冷却式分光器の直上流に差動排気システムが設けられており、冷却配管継ぎ手から窒素がリークする可能性も想定したものとなっている。差動排気システムはコンダクタンスの小さな配管やオリフィス、バッファーチャンバーを多段に設置したものとなっており、ビームラインの真空悪化が蓄積リングに影響しないよう設計されている。これまでほぼトラブルなく運営できていること、低コストであること、既存品を再利用できることから、KEK 放射光においても同様の差動排気システムを考えている。

6-5. ビームライン最上流部の真空コンポーネント

本節では、ビームライン最上流部に設置する真空コンポーネントを検討する。

（1）差動排気システム

真空紫外軟 X 線ビームラインでは第一光学素子の炭素汚染を除去するために、第一光学素子チェンバーに 10^{-5} Pa 程度の酸素を導入することを計画している。また、硬 X 線ビームラインではベリリウム窓の損傷等によりビームラインの真空が急激に悪化する可能性がある。そこで、遮蔽壁貫通管の直下流に差動排気チェンバーを設置することを提案する。遮蔽壁貫通管の内径が 30 mm、長さが 1200 mm 程度の場合、差動排気チェンバーに 500 L/s のターボ分子ポンプ、1000 L/s の NEG ポンプ、400 L/s のスパッターイオンポンプを設置すれば、光源基幹部は 10^{-8} Pa 台の真空を維持できる。また、KEK 放射光 3GeV リングではエミッタンスが小さいことから光も細く、細い真空配管を用いることができるので差動排気システムを導入して、下流部の真空が悪化したときにゲートバルブを閉めるインターロックシステムを導入しておけば光源基幹部の真空悪化を避けることができる。

（2）水冷可動四象限

KEK 放射光 3GeV リングでは PF 2.5 GeV リングより熱負荷が増大し、かつ放射範囲が集中する。光学素子本体の熱負荷の問題については別項に譲るが、ビームライン基幹チャンネル部においては必要な光の範囲外の光を遮り、余分な熱負荷を除去することが重要である。PF の BL-13 では図 6-5 に示すような 0.2%ベリリウム銅合金製水冷可動四象限を設置して余分な熱負荷を除去している[5]。本水冷可動四象限は、真空内に動作部分がなく、異種金属接合部もないことから低コストでありながら信頼性が高い。また、コンダクタンスが小さいのでビームラインで大気突入が起きても、基幹チャンネル部の真空悪化を低減できる。KEK 放射光 3GeV リングでは加速器室壁外付近でのビーム垂直な面での面積当たりのパワーが PF2.5GeV リングの 2 倍程度と見込んでいるため、水冷可動四象限の受光面を 2 倍程度傾けることで対処できる。また KEK 放射光 3GeV リングでは、偏向電磁石による電子軌道曲率が緩やかになることから光源から加速器室を出てくるまでの距離が大幅に伸びるため、アパーチャーを大きくとる必要がある。そのため、大型になると予想されるが、既存技術の応用で十分対処可能である。

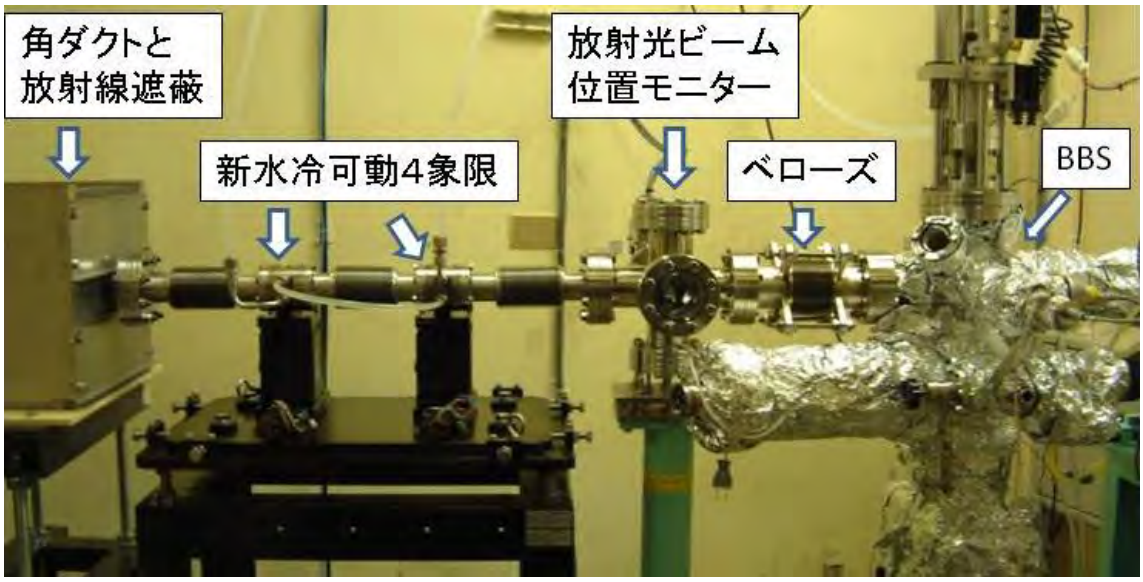


図 6-5：PF の BL-13 で使用されている水冷可動四象限[5]。

[5] H. Tanaka, T. Kikuchi, A. Toyoshima, Y. Nagatani, T. Kosuge, K. Mase, F. Watanabe, and H. Nishiguchi, J. Vac. Soc. Jpn. **54,** 481 (2011).

6-6. 真空ポンプの防振、排熱対策、放射線対策

ビームライン最上流部および真空紫外軟 X 線ビームラインでは、光学素子の振動を避けるためにユーザービームタイム中は無振動の NEG ポンプ、スパッターイオンポンプのみでビームラインの真空を維持する。しかしながら、硬 X 線ビームラインおよびエンドステーションにおいて、ユーザービームタイム中にドライポンプ、ターボ分子ポンプなどの振動を伴う真空ポンプを使用することは避けられない。そこで本節では真空ポンプの振動が光学素子に伝達しないような防振システムを提案する。また、真空ポンプの排熱は局所的な室温の上昇を招き、光学素子の不安定化や空調コストの増大を招く。そこで、真空ポンプの排熱対策についても提案する。ケーブルおよび真空機器の放射線対策についても記述する。

（1）真空ポンプの防振

現在の PF の走査透過 X 線顕微鏡（STXM）装置ではドライポンプ等を、α ゲル防振材を介して台車に載せ、床への振動伝達を低減している（図 6-6）。また、ターボ分子ポンプとドライポンプの間のフレキシブルチューブに除振錘を接続することで大きな振動を切り離している。さらに、ターボ分子ポンプとチェンバーの間に α ゲル防振材と溶接ベローズを

利用した防振ダンパーを設置することでチェンバーの振動を低減している。KEK 放射光においても同様の手法に基づく防振対策を行う。

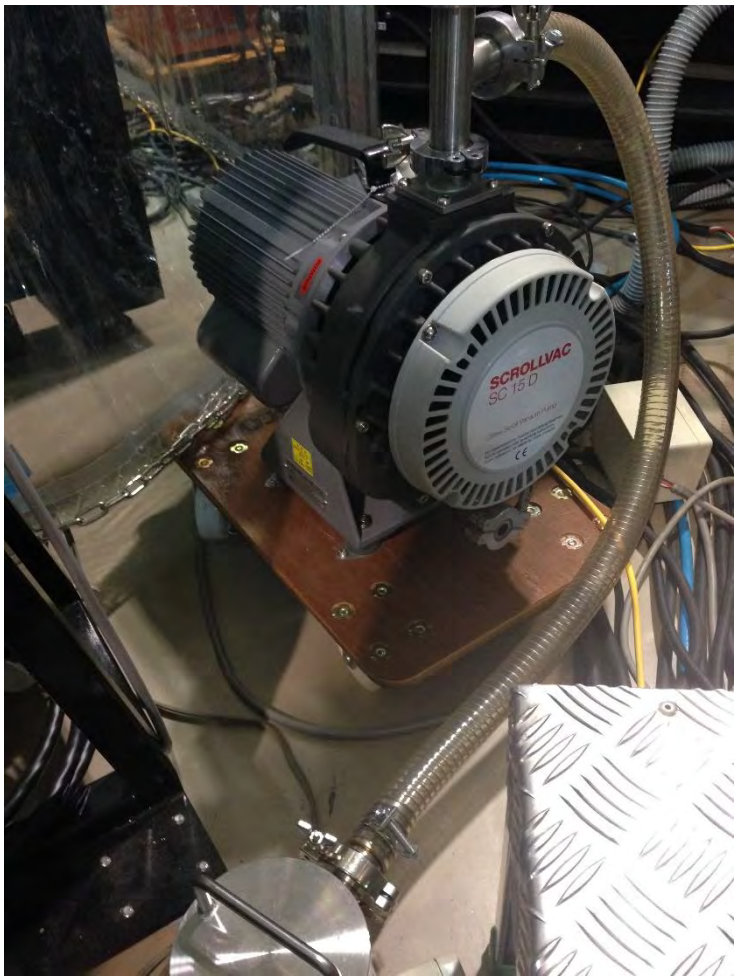


図 6-6：PF の STXM 装置で使用されているドライポンプの防振システム。台車の上に防振ゴムを介してスクロールポンプを設置している。

（2）ポンプの排熱対策

真空ポンプは通常運転時の使用電力が小さい機種を選定する。放射線防護ハッチには排熱ファンを設置して、ハッチ内が一定温度に保たれるように調整する。必要に応じて、冷却水を用いたラジエーターを使ってハッチ内を冷却する。温度が安定しない場合はハッチ内全体をやや高温に保つことにより安定化を図る。放射線防護ハッチ外の光学素子チェンバーは塩化ビニルフードで覆って温度を一定に保つ。ターボ分子ポンプ、ドライポンプ等は必ず塩化ビニルフードの外に設置して光学素子チェンバーの温度上昇を防ぐ。

（3）放射線対策

遮蔽壁貫通管を通過し光学素子で散乱されたエネルギーの高い放射光（硬 X 線）は、ケーブルや真空機器を損傷させる。このため、遮蔽壁貫通管は必要最小限の大きさにするとともに、放射線防護ハッチ内に設置するケーブルや真空機器は耐放射線性が高い製品を使用する。

6-7. 光学素子の炭素汚染除去法

光学素子の炭素汚染は炭素 K 吸収端における光量の大幅な低下をもたらすため、様々な炭素汚染除去法が開発されてきた。PF では 10^{-2} Pa～10^{-4} Pa の酸素導入下で光学素子に非分光放射光を照射するという簡便な *In-situ* 光学素子炭素汚染除去法を開発し、ビームラインのすべての光学素子の炭素汚染を除去することに成功している[6]。本手法は低コストで技術的に確立しており、労力もほとんどかからないことから KEK 放射光においても採用する。

[6] A. Toyoshima, T. Kikuchi, H. Tanaka, J. Adachi, K. Mase, and K. Amemiya, J. Synchrotron Rad. **19,** 722 (2012).

（1）光学素子の炭素汚染の現状

ビームラインに設置された光学素子に放射光を当てると、チャンバー内に残存した炭化水素と光電子が反応して、光学素子表面にグラファイト状の炭素が堆積し、反射率が低下する（図 6-7）。とくに炭素 K 吸収端と呼ばれる 280-330 eV の光エネルギー範囲での反射率の低下が深刻であり、放射光利用実験の妨げになる。従来の光学素子の炭素汚染除去は、光学素子を大気中に取り出して再蒸着、もしくはオゾン洗浄を行う方法が主流であった。しかし、いずれの方法でも超高真空チェンバーの大気圧開放、光学素子の取り外し、炭素汚染除去、再設置、真空排気、ベーキング、光学素子の再調整などの作業を行う必要があり、コストと労力が非常に大きいという問題があった。また、大気圧開放のときにチェンバー内に有機分子が侵入するため、炭素汚染除去後も一定量の炭素汚染が残るという問題もあった。

図 6-7：光学素子の炭素汚染（中央の黒い線）。

（2）光学素子の炭素汚染除去法

光学素子の炭素汚染を最小に抑えるためには、炭素汚染の元である残留炭化水素分圧を極限まで下げる必要がある。そのため、PF の BL-13 では、

(1) 真超高真空装置内面および真空内金属部品はすべて電解研磨を行ったのち、純水洗浄を行なう。

(2) 電解研磨できないベアリング、ベローズ等は特級エタノールで超音波洗浄する。

(3) 真空チェンバー内で潤滑油は全く使用せず、必要な場合は固体潤滑剤のみ使用する。

(4) 真空排気は、油を全く使用しない磁気浮上型ターボ分子ポンプ、非蒸発ゲッター（NEG）ポンプ、スパッターイオンポンプで排気する。油回転ポンプを使用する場合はフォアライントラップを設置して、真空チェンバーへの油蒸気の拡散を防ぐ。

という対策をとっている[4]。しかしながら、大気中での光学素子への有機分子の付着、真空チェンバーを大気開放したときの有機分子の侵入を完全に防止することはできない。

そこで我々は、10^{-2} Pa～10^{-4} Pa の酸素を導入しながら、光学素子に非分光放射光を照射して、ビームラインのすべての光学素子の炭素汚染を短時間でほぼ完全に除去する手法を開発した。炭素汚染除去前後の炭素 K 吸収端におけるビームライン最下流での光量を図 5.8 に示す[6]。光照射後に炭素 K 吸収端の光量が顕著に増加していることが確認できる。KEK 放射光では光量が増大するため、炭素汚染除去は 1 時間以下で終了できると予想される。

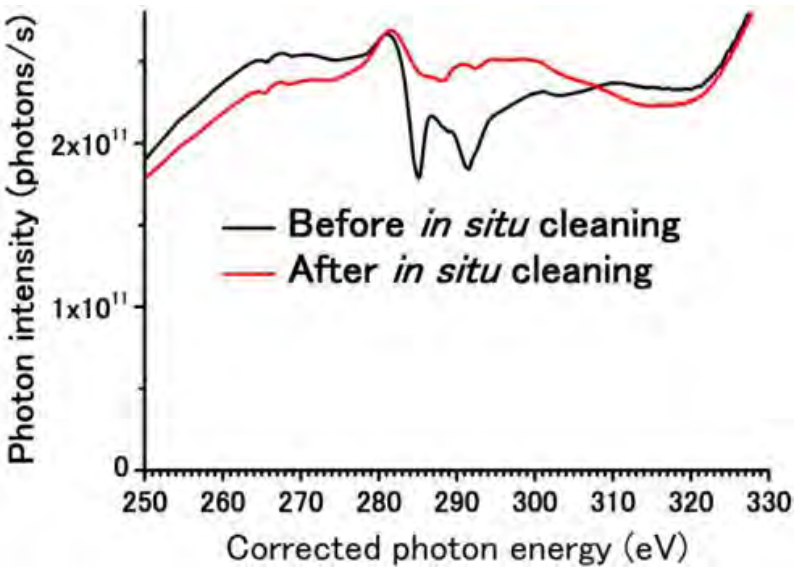


図 6-8: 炭素汚染除去前後の炭素 K 吸収端における放射光量[6]。

(3)　光学素子の炭素汚染防止法

ビームライン光学素子のうち回折格子より上流側に設置される光学素子は常に非分光放射光に照射されている。したがって、光学素子チャンバーを 1×10^{-8} Pa 程度まで排気したのち、~10^{-7} Pa 台の酸素を常時導入して運用することで回折格子より上流の光学素子の炭素汚染を防止することができる。この手法を導入すれば回折格子より上流については炭素汚染除去の必要さえなくなり一層の労力削減を実現できる。

７．インフラ施設

KEK 放射光計画では高輝度光源の低エミッタンス性能を活かしたナノビーム、マイクロビーム利用が予定されている。効率よく放射光実験を進めるための周辺環境だけでなく、極小ビームを安定的に扱うための建屋構造（振動対策）、安定な空調、冷却水、寒剤、液体 He 再利用システム、可燃性/不燃性排ガス処理、電気設備等のほか、安全確保にも気を配る必要がある。オンサイトに必要な準備室の床面積など、現在調査を進めている。本節では各項目についての検討状況を記述する。

7-1. 実験ホール床構造

現在の PF 実験ホールは、床構造が弱く、排気ポンプや通路からの振動が実験装置に伝わってしまう問題がある。KEK 放射光計画では、ナノビーム、マイクロビーム利用を予定していることから、徹底した振動対策が求められる。実験ホールの基礎構造としては、深い支持層まで杭を打ち込む杭基礎にするか、浅めの範囲で地盤改良を行い直接基礎とするか検討が進められている。ただし、つくばの地盤は軟弱なため、ある程度の重さを支持するには改良の範囲が広大になること、またコストの面からも地盤改良を行うのはあまり現実的ではないという意見も挙げられている。床構造は梁で床がある程度区切られる梁構造ではなく、できるだけ一枚の大きなコンクリート板とするようなマットスラブ構造で進める方針である。そしてビームラインを設置する実験ホールの床はリングトンネルと一体形成とし、50cm 以上の厚みを持たせる。コンクリート床は多層構造とし、上層の増し打ちコンクリートには電線管の埋設や配管ピットの構築ができるようにする考えである。振動抑制のための施工方法については現在調査・検討を進めている。実験ホールと光源リング床は、建屋の屋根を支える基礎とは分離して別構造となるよう検討している。また、実験ホール外周通路部分と側室部分についても、ビームラインが並ぶ床の構造体とは分離することを検討している。また、ビームラインの排熱処理やインフラ配管、空調配置の引き回しなど、建屋構造に関係するため、検討を進めている。

ビームラインのコンポーネントや実験装置の搬入出作業についても、ビームライン側の実験ホールはエアパッドを使用するなど、実験ホール床に振動を与えないような対策を検討している。

7-2. 熱源設備

加速器トンネルや実験ホールの空調、加速器およびビームライン用の冷却水のための冷熱源として、高効率で温度安定度の高いインバータターボ冷凍機を主体とした熱源とする。

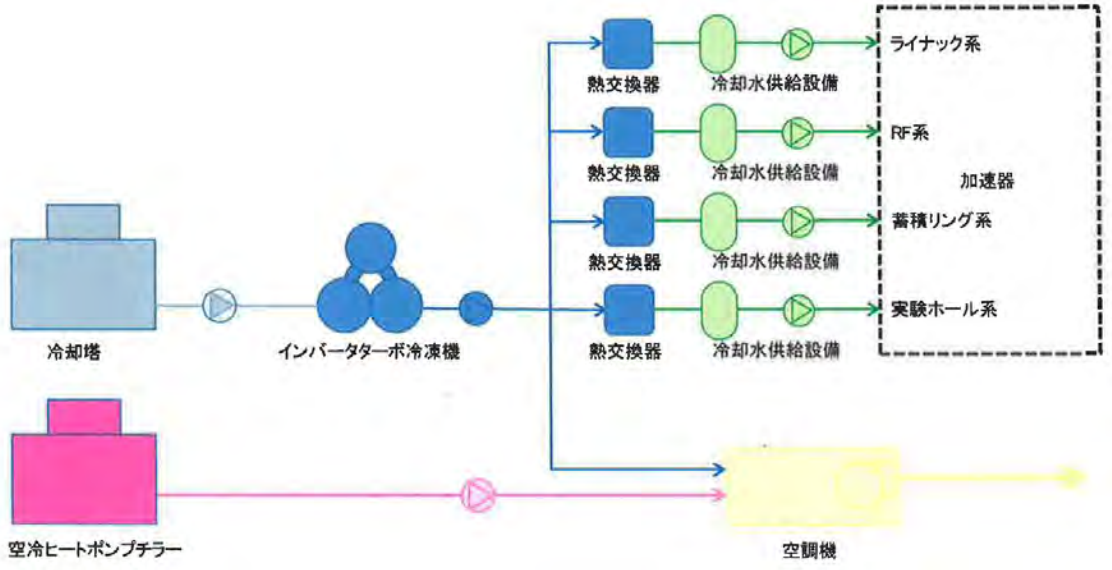


図 7-1: 熱源系統の模式図。

また、暖房や夏季の除湿のための温熱源として、エネルギー効率の高いモジュールヒートポンプチラーを採用する。熱源系統は、リング内側に設置する 4 室の熱源機械室に設置し、4 ゾーンに分けて受け持つと共に、メンテナンス時や故障時に相互にバックアップ出来るよう、リング状に敷設した共通配管にて接続する。

7-3. 冷却水（循環水）供給

ビームラインで使用する冷却水（循環水）は純水を使用する。冷却水供給装置は熱交換器、送水ポンプ、膨張水槽、デミナーユニットなどからなり、４室の熱源機械室それぞれに設置し、インバータターボ冷凍機から供給される冷水と熱交換し、一定温度の冷却水を実験ホールなどに供給する。実験ホールで使用する冷却水（循環水）は、既存 PF 実験ホールと同様に差圧 0.2MPa（送水 0.4MPa→復水 0.2MPa）、温度安定度±0.5℃以下として、ビームライン当たり 50L/min を確保する。空調と同様に、４カ所の熱源機械室にエリア分けし、それぞれ 730L/min 程度の送水可能とする（合計で約 2900L/min）。また、送水ポンプの脈動を減衰するために、配管経路にダンパーなどを設ける。

発熱量に関しては検討中であるが、ビームシャッターなどの遮蔽機器のほか、ビームラインの光学素子冷却などで標準となりつつある液体窒素冷凍機の排熱を充分吸収できるものを算定する必要がある。

精密な温度安定度が必要な装置には、この冷却水をヒーターによって、さらに温調してから供給するか、個別に設置する水冷式高精度水用温度制御装置（±0.03～0.05℃）から供

給する。

7-4. 実験ホール空調

ナノビーム、マイクロビームを扱う上で、空調温度の揺らぎはビームの不安定要因に大きく関わるため温度を一定に抑えることは必須である。KEK 放射光計画では、実験ホールを±0.5℃以下（ハッチ／ブース内の目標は±0.1℃以下）で安定させることが必要となる。実験ホール内の空調は、熱源機械室から供給される温冷水を熱源として、エアーハンドリングユニットにより行う。屋根の温度変化の影響を少なくするため、天井と屋根の間の空間も空調する。換気のために取り入れる外気は、温度調整してから取り入れる。ビームラインハッチ、実験ハッチ内の発熱による温度変化を抑えるため、ハッチ内にもエアーハンドリングユニットからの温調された空気を取り入れる。

7-5. 寒剤・ガス供給ライン

実験で使用する寒剤（液体窒素）を供給するために 1 機(最終的には 2 機)の液体窒素ＣＥを建屋外側に整備する。また、実験ホール内周側に、窒素ガス、ヘリウムガス等の供給ラインを設置し、必要に応じて各ビームラインに配管を引き込むことが出来るよう検討中である（4 節「ビームライン設備」参照)。

使用後のヘリウムガスを再利用するためのヘリウムガス回収ステーションを整備する。回収されたヘリウムガスは、パイプラインを介して超電導低温工学センターへ送られ再処理される。

7-6. ガス排気ダクト

実験ホールには、実験用の可燃性・支燃性・毒性ガスの持ち込みに対応するために防爆構造の排気ダクト 2 系統（可燃性ガス持ち込み用／支燃性ガス持ち込み用）を設ける。持ち込まれたガスは、排気ダクトに接続されたシリンダーキャビネット内に収納した状態で実験に使用することが可能となる。ガス漏れが発生した時のための除外設備はシリンダーキャビネット側に設けることとする。また、実験室内の油汚染を防止するため、ロータリーポンプ用排気ダクトを整備する。

7-7. 電気設備

KEK 放射光計画の新リングでは、13MW 程度の電力需要が見込まれる。この需要を満たすため、新たに受電設備を整備する必要がある。必要な変電所は、特高変電所 1 カ所、サブ変電所 4 カ所を想定している。特高変電所は 66KV→6.6KV に変圧して施設に必要な電力

を送り、サブ変電所は各施設内に設置され、使用者が必要な電圧（6.6KV→100V,200V,etc.）を供給する。

受電設備については、新リング内側に新たに特高変電所、およびサブ変電所を配置する。特高変電所については、15MW 受電（7.5MW×2 系統）として、受電幹線は、PS 変電所から分岐して接続する。また、サブ変電所を 4 カ所を設け、新光源の運転に必要な電力を供給する。ビーム利用系（実験ホール）で必要な電力は、全ビームラインで 2070kW 程度を想定している（空調、冷却水、照明などを除く）。

7-8. ネットワーク設備

各ビームラインや実験室へ、高速ネットワーク環境を供給できるような設備を検討する。特に今後の実験で必要となってくるビッグデータ解析では、各装置から高速演算／大容量サーバが必須であり、実験ホールからサーバまでダイレクトに繋ぐ必要がある。また、自動測定や遠隔操作実験などには、別途ネットワーク設備を整備する必要があると考えられ、物理的・論理的に複数にネッッとワーク設備を敷設することで、安定かつ高精度、高速度なデータ測定が実現できるものと考えている。

7-9. 側室環境、中尺実験ホール

オンサイトで必要な側室等の環境についても現在調査中である。コントロール室、低温庫、工作室、当番室、監視員室、部品保管庫、搬入口、出入り口、ビームライン毎の実験準備室、化学試料や生物試料などの準備室、サーバールーム、データ処理室、ユーザ控室、

見学フロアなど必要な配置および面積の検討を進めている。基本的には SP-8 同様に実験ホール外周部分に配置し、外廊下を設けて放射線管理区域の実験ホールからも、非管理区域の廊下側の一般区域からも出入可能な配置を検討している。さらに全体を 4 分割する部分にはエントランス機能を持つ大型の部屋を設けることを検討している。

また、コヒーレンス利用や非弾性散乱など、ビームライン距離や特別に実験スペースを確保しなければ遂行することができない実験を対象に、実験ホール外にビームラインを引き出して、中尺実験ホールを整備することを視野に入れ、中尺ビームライン 4 本分の拡張エリアを確保する。

８．安全設備

KEK 放射光に於いてビームラインの安全設備は重要であり、遮蔽及びインターロック系についての検討が必要である。ここでは必要な遮蔽について述べるとともに、今回、KEK 放射光に向けて検討を行った新しいインターロック系の概要について述べる。

8-1.　遮蔽

ビームラインに於いて放射線から実験者を防護するため、あるいは実験試料のセットアップ時等に放射光ビームを停止しておくための遮蔽は大変重要である。以下は KEK 放射光のビームラインにおいて必要となる遮蔽の例である。

- ビームシャッター（図 8-1 右）：ビームシャッターは、遮蔽体を放射光ビームの光路に出し入れする事で、放射光ビームの出射、停止を行うためのビームラインコンポーネントある。通常、遮蔽体は圧搾空気により駆動される。
- ハッチ（図 8-1 中）：遮蔽体により囲った箱のような区画で、ビームライン光学系、ビームシャッターなどを収納するもの、実験装置を収納するものがある。扉があり、一般的に人の出入りが可能であるが、後述のビームラインインターロックによりビームシャッターが閉じていなければ立ち入れないなどの対策が取られる。
- ビームストッパー、ガンマストッパー（図 8-1 右）：放射光の光路上（例えば分光器の下流など）に設置され不必要な放射光あるいはガンマ線を抑止するものである。

図 8-1：ビームシャッター（左）、ハッチ（中）、ガンマストッパー（右）の例

これら遮蔽に関してはKEK放射光の様々なパラメータをもとに計算を行い、材質、厚さ等について検討をしてゆく必要がある。

8-2.　インターロック系

KEK放射光に於いて、安全かつ効率的な利用実験を行うためには、ビームラインインターロックシステム[1]のようなインターロック系が不可欠である。ビームラインインターロックシステムには前述の遮蔽に関するビームラインコンポーネントのうち、ビームシャッターやハッチの状態を監視・制御し、放射線安全に関する機能を実現する必要がある。また、真空ゲージと呼ばれるビームラインの真空の状態を監視する機器やゲートバルブと呼ばれる真空封止のための機器を監視・制御し、ビームライン真空を保持する機能、ビームラインコンポーネントの冷却のための循環水の流量や温度の監視を行い、ビームラインコンポーネントを高輝度の放射光ビームのダメージから保護する機能が求められる。そして、これらビームラインインターロックシステムの運転状況を集中的に監視・管理するための集中管理システムも必要と考えている。

(1) ビームラインインターロックシステム

ビームラインインターロックシステムは独立してビームライン毎に設置する。この事によりシステムの独立性を確保でき、機器故障などの際にそのビームラインのみを切り離す事が可能となる。そして、放射光ビームライン基幹チャンネルのビームシャッター及びゲートバルブを閉じる事で、加速器の運転が可能となりビームラインにおけるトラブルの影響を最低限に抑える事ができる。なお、放射光ビームライン基幹チャンネルとビームラインインターロックシステムについては一体となって動作する事が求められる。

インターロック系のロジックはPLC(Programmable Logic Controller)と呼ばれる信頼性の高いマイクロコンピュータにより実現される（図8-2)。PLCは

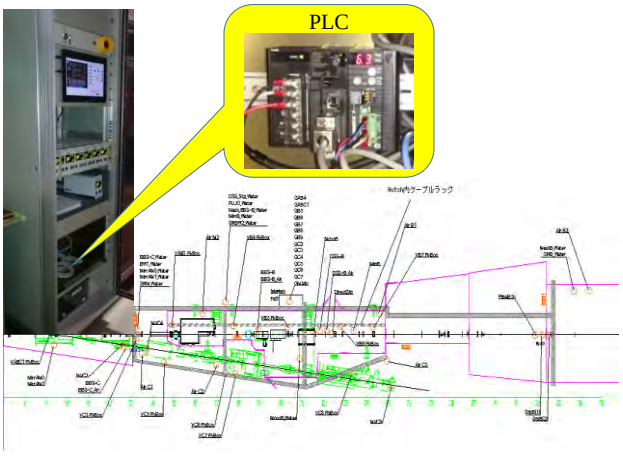


図8-2：PLCとビームラインインターロック

これまでも PF 及び PF-AR に於いてビームラインインターロックシステムなどに利用されてきた実績があり、安全かつ効率的なビームラインインターロックシステムの構築には不可欠である。なお、PF 及び PF-AR だけではなく SPring-8 などをはじめとする放射光施設において、インターロック系での PLC の利用は国内、国外を問わず一般的となっている。

ビームラインインターロックシステムにおいて最も重要となるのが放射線安全のためのロジックであり、たとえばビームシャッターとハッチ（図 8-3）の場合は以下のような動作を行う必要がある。

- ハッチが閉まっていない場合は関連するビームシャッターが開かない。
- 関連するビームシャッターが閉まっていない場合はハッチに立ち入ることができない。
- 関連するビームシャッターが閉まっていない時にハッチが開いてしまったらビームシャッターを閉じる。

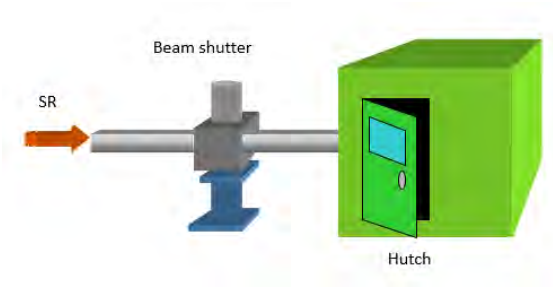


図 8-3：ビームシャッターとハッチ

これらの動作は信頼性を保つためにパーソナルコンピュータ等ではなく PLC により制御されるが、更に信頼性を高めるために、ハッチと関連するビームシャッターについてはハードワイヤーによるロジックも用意する。また、ビームシャッターなどを収納するハッチがある場合には関連するビームシャッターにあたるものは放射光ビームライン基幹チャンネルであり、同様にハードワイヤーによるロジック（図 8-4）を設け、放射光ビームライン基幹チャンネルとビームラインインターロックシステムが一体となって動作する必要がある。

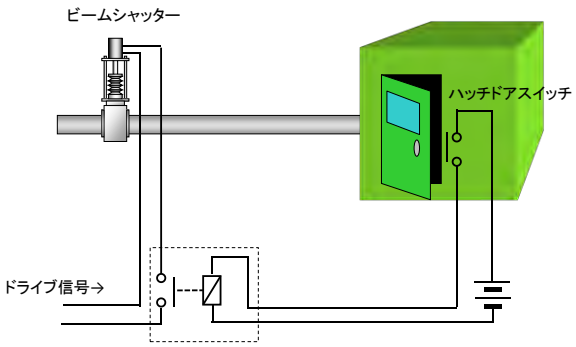


図 8-4：併設するハードワイヤーによるロジック

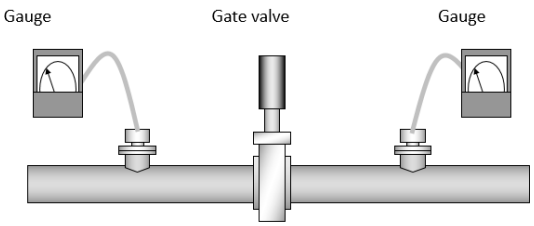


図 8-5：真空ゲージとゲートバルブ、真空度が悪化した場合はバルブを閉じる。

ビームライン真空を保持するためのロジックは、放射線安全に次いで優先度の高いロジックとなる。ビームラインの真空度は真空ゲージヘッドとそれを制御する真空ゲージコントローラによりモニターされる。

真空ゲージによりビームラインの真空度を監視し、真空度が悪化した場合は関連するゲートバルブを閉じる（図 8-5）。ただし、真空悪化を検知した場合は速やかにゲートバルブを動作させるため、真空ゲージコントローラのあらかじめ設定可能なしきい値により ON/OFF する接点信号をビームラインインターロックシステムに取り込み、ゲートバルブの制御を行う。

なお、真空度（圧力）を常に監視し、記録する事はビームラインの性能を維持するためには重要であり、ビームラインインターロックシステムのロジックとは別にその他環境データも含めたデータ収集の機能を設ける。

ビームラインインターロックシステムにはビームライン光学系を冷却するための循環水の流量、水温を監視し、異常がある場合はビームシャッター等を閉じるなどの措置をするロジックも組み込む。また、前述のように真空が悪化した場合には即座にゲートバルブを閉じるが、KEK 放射光は高輝度であり、直接放射光が当たった際に受けるゲートバルブのダメージも大きいため、即断アブソーバのような高速で放射光ビームを低減できる機構を設け、ビームラインインターロックシステムから制御できるようにする必要がある。

ビームラインインターロックシステムにはビームラインに設置された多くのセンサー類が入力される。フィールドバスを利用し、省配線化する事で大幅な工期の短縮、配線コストの低減を図る事が可能となる（図 8-6）。PF 及び PF-AR において効果は実証されており、KEK 放射光でも適用する予定である。

各センサーのモニター表示やユーザーがゲートバルブやビームシャッターの開閉操作を行うユーザーインターフェイスとしてはパーソナルコンピュータを利用する。また、基盤となるシステムとしては PF

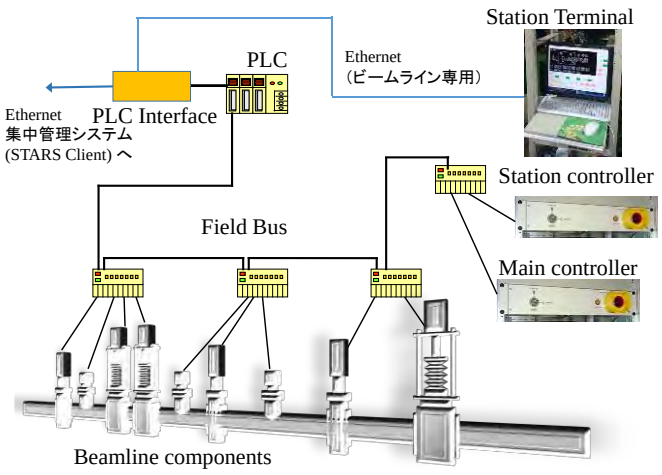


図 8-6：フィールドバスによる省配線化

及びPF-ARやあいちシンクロトロンなどで実績のあるSTARS（Simple Transmission and Retrieval System）[2][3]を使用し、STARSはPLCとのコミュニケーション及びユーザーインターフェイスとの信号授受を行う（図8-7）。KEK放射光加速器制御で利用予定のEPICS（Experimental Physics and Industrial Control System）とSTARSはゲートウエイを介して互いに制御が可能であるため加速器制御との連携が用意になるメリットがある。また、STARSにはこれまで開発された様々な汎用的なアプリケーションがあり、システム構築に際してコストダウン及び開発に要する時間の短縮を図る事ができる。なお、STARS及びパーソナルコンピュータによるユーザーインターフェイスはあくまでもスイッチや表示の役目を担うもので、インターロックに関わるロジックはすべてPLCにより行う事で、信頼性及び安全性を確保する。

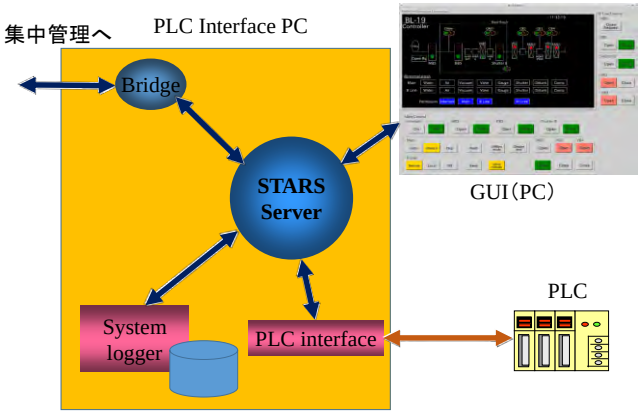


図8-7：STARSによるユーザーインターフェイス

このタイプのビームラインインターロックは現在PFに於いて開発が進み、信頼性及び安全性を確保したまま、大幅な開発コストの削減や開発期間の短縮など良好な結果が得られている。

（2）集中管理システム

ビームラインインターロックシステムはビームライン毎に動作するが、安定かつ円滑な運転の為にこれらの動きを集中的に監視および管理するシステム（集中管理システム）を設ける（図8-8）。集中管理システムはSTARSによって構成され、STARS Serverは集中管理システムサーバ用PC上で動作する。集中管理システム用STARS Serverは各ビームラインインターロックシステムのSTARSとブリッジを介して接続され、それぞれのビームラインインターロックシステムの動作状況などを収集する。また、必要に応じてビームラインを使用不可にする信号を送るようにする。この集中管理システムと実際にビームラインを利用するユーザーが使用のための手続きを行っているかなどの情報をリンクする事により、利用管理の厳密化を図る事ができる。

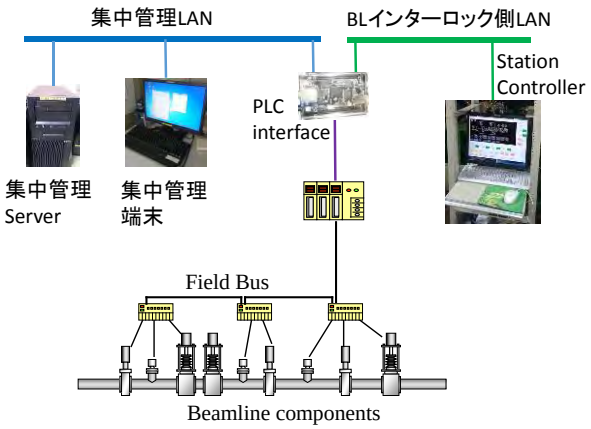


図 8-8：ビームラインインターロックシステムと集中管理システム

(3) 実験系との連携

ビームラインインターロックシステムに STARS を利用する事で、実験系で利用する計測システム等との連携が容易に実現できるようになる。なお、前述の通りビームラインインターロックシステムに於ける STARS は単にスイッチや表示の役目を担うものであり、インターロックに関わるロジックはすべて PLC により行われるので、実験系から不用意な操作命令を受け取ってもビームラインインターロックシステムには影響が及ばない。また、STARS Server には通過させるコマンド等を制限する機能が備わっており、この機能を利用する事で更に操作制限をかける事も可能である。

STARS はインターネットで利用されている TCP/IP Socket とテキストのメッセージ送受の為の共通のインターフェースを利用者に提供する。STARS の利用者はこれらの 2 つの知識さえあれば容易に連携するアプリケーションを構築する事が可能であり、様々なオペレーティングシステムやプログラミング言語での開発が可能である。また、様々なプログラミング言語用のインター

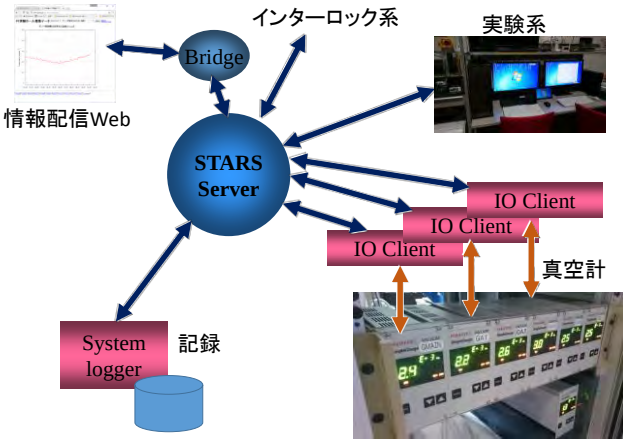


図 8-9： 実験系との連携、環境データの収集

フェースモジュールも用意されており、これらを利用すればさらにこれらの知識すら必要無くなる。

以上の事から、KEK 放射光におけるビームラインインターロックシステムは実験系との連携を図りつつ信頼性、安全性を確保できるものであり、自動測定や遠隔地からの実験をはじめとしたさまざまなアプリケーションに柔軟に対応が可能である。なお、ビームラインインターロックシステムのロジックとは別に、その他環境データ収集の機能を設け、ビームライン光学系や、装置等の制御にフィードバック／フィードフォワードできるようにする（図 8-9）。

8-3. ビームラインインターロックシステム設置の効率化

KEK 放射光では様々な分野の質の高い放射光利用実験が行われる。これらの実験に対応できる様々な放射光ビームを供給するためには、決してビームラインは全て同じ構成になるわけでは無い。つまり、ビームラインインターロックシステムもすべてが同じものではなく、場合によってセンサーの数、真空に関する機器のレイアウトが変わる事が予想される。また、それに際して PLC 上で動作するロジックの大きな変更が余儀なくされる。通常、ビームラインインターロックシステムのハードウエアの設計及び PLC プログラミングには大きな労力と時間を費やさなければなく、完成後の動作確認や PLC プログラムのデバッグも同様に労力・時間が必要となる。

これらの問題は、現在 PF で開発されている「設計の自動化」（図 8-10）及び「PLC プログラムの自動生成」の技術を用いる事で解決が可能である。実際に PF ではこの技術により大幅な工期短縮の実績がある。

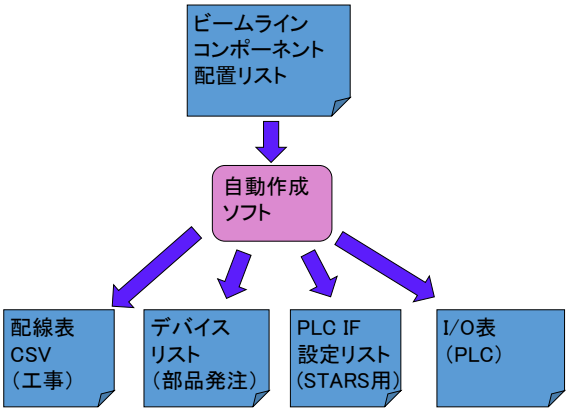


図 8-10：システム設計の自動化

表 8-1 は PF でのおおよその結果である。特に PLC プログラムの自動生成の効果は大きく PLC プログラミングについては大幅な時間短縮がなされている。PLC プログラムの自動生成はプログラミングだけではなく、発見しにくいバグの発生も抑える事ができるので、デバッグ時間の短縮にも大きく役立っている。

表 8-1: PF におけるビームラインインターロック設計・プログラミング自動化の効果

	自動化前	自動化後
ハードウエア設計、配線表作成	1～2 名、1～2 週間	1～2 名、1 日+3 日程度(修正作業)
PLC プログラミング	1 名、3～4 週間	1 名、0.5 日
デバッグ及び動作試験	数名、1 週間程度	数名、3 日程度

これまで述べたように KEK 放射光に於いては、遮蔽及びビームラインインターロックシステム、集中管理システムが安全設備として重要な働きをする。また、インターロック系の構築に関しては円滑な放射光利用実験遂行が可能なように、安全を担保しながら利便性のよいシステムを構築する必要がある。今回検討を行ったインターロック系であれば、この要求を十分に満たす事が可能である。また、システムの設置に於いてもコスト削減、工事期間の縮小が可能であるとともに実験系との連携も容易に実現する事ができる。

[1] 小菅隆、仁谷浩明、「新しいビームラインインターロックシステムの導入と効率化」、高エネルギー加速器研究機構技術研究会報告集、2016.

[2] T. Kosuge, Y. Nagatani, “STARS: Current Development Status”, Proceedings of PCaPAC2014, Karlsruhe, Germany, 2014.

[3] http://stars.kek.jp

９．測定技術

1．はじめに

1-1. 何を開発するか

1）多次元情報を高速に取得できる高性能検出器の開発

放射光利用研究のX線領域では、次世代太陽電池や光触媒への応用、先端的機能性材料の開発研究のため、X線回折による構造解析実験だけでなく、パルスX線ビームを使って時間応答を調べる時間分解 X 線回折実験や分光実験が展開されている。高輝度新光源による利用研究ではnmサイズビームを使った試料走査・高速測定、ns間隔パルスによって構造時間変化を調べるなど、空間・時間やエネルギーなどの情報を合わせた多次元情報を高速に取得できる高性能検出器の開発が必要となっている（図１）。CMOS ピクセルセンサー、フロントエンドASIC、FPGAによる高集積度電子回路技術をキー・テクノロジーとする高度な多次元計測系システム開発をPFでも進める。

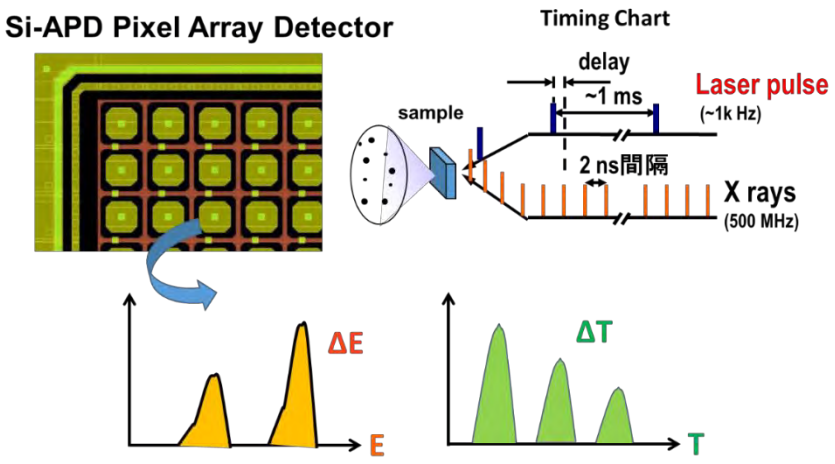


図１　空間・時間やエネルギーなどの情報を合わせた多次元情報を高速に取得できる高性能検出器の開発（イメージ）

X 線領域の研究を支えるものとして、ピクセルアレイ検出器（PAD）があり、センサーと信号処理回路をバンプボンディングにより結合するハイブリッド型検出器において、国内外の大型放射光施設などでめざましい開発の進展がある。一辺が数 10mm－数 100mm 領域の画像記録、パルス計測では6桁以上のダイナミックレンジで強度分布の解析を可能とすること、50μm以下の空間分解能、1フレームあたりのデータ記録を 1ms 以下に高速化することなどがすでに進行中であり、製品としての開発も進んでいる（表１）。日本では独自にセンサーと電子回路を一体化できる SOI(Silicon On Insulator)技術による検出器開発が行なわれている[1]。PF では 2010 年の物構研・計測システム開発室発足以後、2 次元検出器開発についてあらためて検討が開始された。2013 年より科研費・新学術研究によるプロジェクトに参加し、理化学研究所が開発した積分読み出し型検出器：SOPHIAS の X 線小角散乱・回折実験への応用を理研との共同研究として進め、計数型検出器はテスト用センサーチップ（Test Element Group-TEG）開発から開始した。時間分解実験では XAFS で実績がある。

表１　ピクセルアレイ検出器の開発例

Facility Detector name	Pixel size (μm)	Pixel no. per module (Max. pix. no. of detector)	Module size (mm) (Max. size)	Frame rate (Hz) (Rate for Max. size)	Type etc
PSI PILATUS3	172	100k (6M)	84x34 (424x435)	0.5k (0.1k)	Pulse DECTRIS Ltd.
PSI EIGER X	75	0.5M (16M)	77x40 (311x328)	3k (0.13k)	Pulse DECTRIS Ltd.
DESY Lambda (Medipix3)	55	0.39M (2M)	42x28 (85x85)	2k	Pulse X-Spectrum GmbH. Sensor: GaAs, CdTe
SPring-8　Ⅱ	70	0.3M (22M)	54x27 (324x324)	17k	Integral, Dynamic Range ～10^6 2017～2019:Up to 22M pix.

PF-AR リングの単バンチモード運転を利用する dispersiveEXAFS 実験ではシリコンストリップ検出器システムによる 1μs ごとのデータ取り込みを使ったポンプ-プローブ実験が実施されている。今後、20-40keV 領域の検出効率を引き上げるためのセンサー開発と独自の信号処理系の開発が必要とされている。高速パルスが得られナノ秒時間分解能を有する Si-APD ピクセルアレイは 100 チャンネル規模のリニアアレイがすでに放射光核共鳴散乱実験へ応用されつつあるが、さらに SOI 技術による 2 次元アレイ開発をめざす。

VUV/SX 領域では、10^{21}（光子数/秒・mm^2・$mrad^2$・0.1%バンド幅）を超える高輝度ビームの利用が可能になると期待されている。ナノメートルオーダーの集光ビームを使って高速・高効率で測定を行うには、多チャンネル素子による計測（1 次元、2 次元）、データ収集の高速化が必要とされている。現在、軟 X 線磁気円二色性測定のための 30 チャンネル・マルチアノード・マイクロチャンネルプレート（MCP）による 10Hz の高速偏光スイッチングに対応した高速計測システム開発がスタートしている。このシステムを基礎に 2 次元アレイ用信号処理システムの開発、エネルギー分析を可能とすることや CMOS アレイセンサーなど半導体センサーによる検出器開発などにも取り組む。

2）大容量・高速データ処理を可能とする通信制御の要素技術開発

検出器と計算機を結ぶデータ入出力と制御は、今後はイーサネットによる通信が主流となると考えられ、それをいかに高効率・高速で行なうかが重要である。ハードウェアの限界に達する速度と高い効率でデータ収集する技術として SiTCP がある[2]。現在、通信速度 1Gbps のものは実用化され、10Gbps が準備中である。10Gbps 回線を複数利用するシステムの開発を進める。

3）ビームライン制御と計測技術との統合

挿入光源、ビームライン光学系、試料環境の制御（試料交換含む）と検出器データ収集との統合が必要である。XAFS では 100 個レベルの試料を連続的に数時間内で測定するため、ハイスループット自動測定技術の開発が必要となっている。この開発には、試料交換、試料位置調整や最適なビーム照射位置を求めるためのプレ測定などを行なうことが含まれる。PF で進められてきた STARS による光学系制御、検出器データ収集をさらに進展させる。

1-2. どのように開発を進めるか

1）現在進行中のプロジェクトを開発の軸とし、以下の目標を数年内で達成する。

・X 線小角散乱・構造解析測定のための SOPHIAS 検出器（高精細）応用
・計数型 SOI 検出器（高感度－軟 X 線領域での測定）：プロトタイプ開発
・深さ分解 XMCD 測定（SX 領域）：マルチアノード MCP 検出器（高計数率、10Hz 偏光切替え対応、30 チャンネル）システムの完成
・核共鳴散乱・時間分解 X 線測定のための Si-APD リニアアレイ検出器システム（128 チャンネル）の完成

2）以下の新規プロジェクトの開始と長期（5 年~10 年）の目標達成をめざす。

・DXAFS:　Ge ピクセルアレイ検出器システム
・XAFS 測定などのためのハイスループット自動測定システム
・SOI によるナノ秒応答 Si-APD 2 次元アレイ検出器システム
・軟 X 線用 CMOS ピクセルアレイ検出器システム

3）PF 内外の組織との共同開発を進める。

すでに Si-APD リニアアレイ検出器システム開発や 30 チャンネル・マルチアノード MCP 検出器システムの開発において、物構研・計測システム開発室を通した素核研エレクトロニクスシステム（Esys）グループとの ASIC 開発・FPGA 技術による共同開発が 2010 年から進展している。KEK 測定器開発室には APD リニアアレイ、高速シンチレータ開発におけるプロジェクト参加を行いアクティビティの一端を担っている。KEK 外では SOI 検出器である SOPHIAS 検出器の応用研究を理化学研究所と 2013 年から進めている。今後は計測技術ネットワーク”Open-It”による大学・企業との連携、海外研究機関との連携を進める。

参考文献

[1]　Y. Arai *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. A **636**, 531 (2011).
[2]　T. Uchida, IEEE Trans. Nucl. Sci. **55,** 1631 (2008)

2．SOI 技術を用いたピクセル検出器開発

(1) 背景

PF では新学術領域研究「3 次元半導体検出器で切り拓く新たな量子イメージングの展開」(H25~H29)の計画研究の一つとして、Silicon-On-Insulator (SOI) 技術による光子計数における高精細さと高速性とを両立した放射光 X 線実験用 SOI ピクセル検出器の開発を進めている[1, 2]。図 1 に SOI ピクセル検出器のもととなる SOI ウェハーの概要示す。

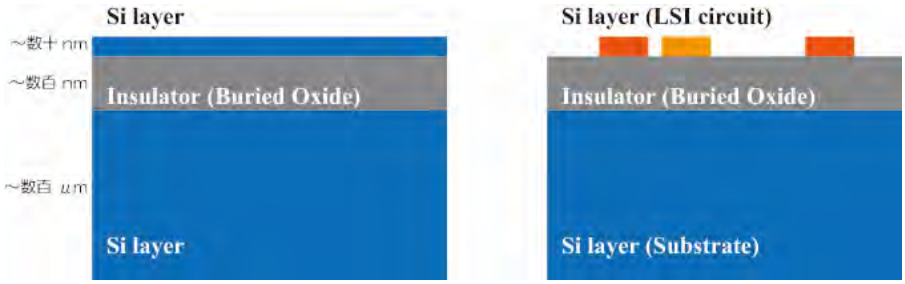


図 1　SOI ウェハー

図 1 には SOI ウェハーの構造を、各層のおおよその厚みとともに示した。上下の二層の Si 層に挟まれているのは SiO_2 の絶縁層である。右図は、下部の厚い Si 層を基板として上部の薄い Si 層に信号処理回路を実装した様子を示す。SOI 技術によるセンサー開発のポイントは、この下部の Si 基板をセンサーとして用い、電荷収集端子を設けて回路層と接続することで検出器として使用できるようにしたことである。製作は半導体プロセスのみで行われ、センサーと回路は初期の製造工程から一体になっている。このようにセンサー・回路一体の構造の検出器をモノリシック型検出器と呼ぶが、バンプボンディングによる制約がないため、

・寄生静電容量に起因する信号レベルの低下や雑音の増大を大幅に軽減することができる、

・ピクセルサイズの縮小はハイブリッド型検出器よりも有利に進められる、

等の利点がある。図 2 に SOI ピクセル検出器の概要を示す。図中で使用されている SOI ウェハーは Double-SOI 構造と呼ばれるもので、絶縁層中にもう一枚 Si 層（Middle-Si 層）が挿入されている。Middle-Si 層は固定電位に接続されることによりセンサー層を介して発生するクロストークに対するシールドの役割を果たす。また、X 線照射を繰り返すことで絶縁層にホール電荷が蓄積され回路が正常に動作しなくなる（Total Ionizing Dose effect；TID 効果）が、Middle-Si 層に蓄積電荷を打ち消すような電圧を印加することで

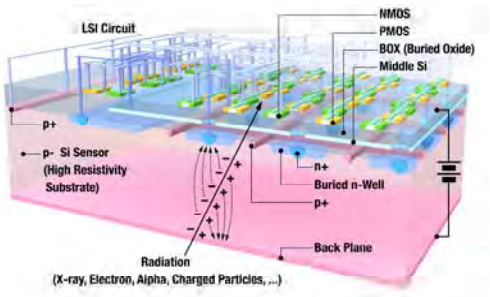


図 2　SOI ピクセル検出器

TID 効果による回路性能の劣化を補償することができる。これらの SOI の特徴を生かし、高精細・高速応答可能な X 線検出器の開発を行っている。さらに、薄い裏面不感層の実現、センサー表面処理を施すことで 2 keV 程度の軟 X 線にも感度を持たせることを目指している。現在 PF では後述する 二つのプロジェクトを行っている。

(2) 放射光 X 線実験用パルス計数型ピクセル検出器開発

Si ピクセル検出器の検出光子の信号読み出し手法にはパルス計数型と電荷積分型があり、前者はピクセルからのパルス出力のうち波高閾値を超えた信号を計数するもの、後者はピクセルに蓄えられた総電荷量をデジタル変換するものである。ピクセルに搭載する回路が異なる他、両者の検出器としての仕様・特性が実験に対するメリット・デメリットのいずれになるかを検討し、測定に最適化した検出器設計が必要である。現在の PF や新光源で展開される構造解析実験のうち X 線回折・小角散乱を想定すると、1 ピクセルへ複数光子が同時に入射して信号が重なり合う可能性が低いことからパルス計数型検出器の使い勝手が良い。パルス計数型は、低ノイズレベルが実現されれば広いダイナミックレンジを確保できる、X 線の検出タイミングやエネルギー分解能の情報を精度よく得られる等の利点があげられることから、開発目標を

・50 μm 角以下のピクセルサイズ、
・メモリ内蔵によりマイクロ秒の連続記録を可能とする、
・軟 X 線に対して感度を持たせる、

としてパルス計数型ピクセル検出器の開発を開始し、現在は Test-Element-Group (TEG) を製作しピクセル性能の評価を行っている。

図３に現在評価中の CPIXPTEG1 チップを示す。中央付近の赤枠部分には 16 bit カウンタ搭載の 64 μm 角ピクセルによる 32×32 アレイを、その上部青枠の二か所にはアンプ、ディスクリミネータ等ピクセル内アナログ回路性能評価用の TEG を配している。ピクセルサイズの 50μm 以下への縮小や回路性能のアップグレードを積み重ねて計数型 SOI ピクセル検出器の完成を目指す。

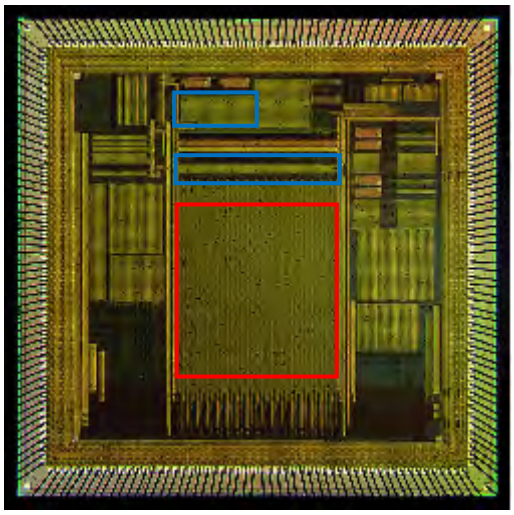


図３　CPIXPTEG1 チップの写真

(3) SOPHIAS による放射光 X 線構造解析

理研により開発された SOPHIAS [3] は 30 μm 角ピクセルのセンサーチップを実装した高ダイナミックレンジ・高精細積分型検出器である。撮像領域として 26.73 mm（H）×

64.77 mm（V）(不感領域除いた画素数としては 891 (H) × 2157 (V) 画素)のチップを二枚搭載している。PF では計数型ピクセル検出器の完成に先駆けて、高精細ピクセル検出器の放射光 X 線実験への応用として SOPHIAS による X 線回折・小角散乱実験を進めている。現在行っている実験の一つに、$SmBaMn_2O_6$を試料とした X 線回折がある。この試料は相転移によって強誘電性が変化することが知られており、相転移に伴い結晶中の原子位置が変位することで元々 1 本だった回折ピークが近接した 2 本に分離する [4]。X 線回折実験において、このように近接する回折ピークを持つ試料の構造解析ではピークの分離が重要であることからピクセル検出器には空間分解能の高さが要求される。

(4) 今後の SOI ピクセル検出器開発

TEG による電子回路・センサー性能の評価を行なっているパルス計数型ピクセル検出器について、数 10 mm 角サイズのプロトタイプ検出器システムの製作へと数年内で進める。まず、ピクセルサイズ 50 μm 以下、1 フレーム（数 100 k ピクセル）あたり 1 ミリ秒以下の読出し速度、数 keV までの X 線 1 光子の検出という目標を達成したい。このため KEK 素核研・新井グループの協力を得るとともに中国高能研グループとの共同研究を進めている。1 光子に対して複数のピクセルが応答してしまう問題に対応できる回路の実装の他、

・軟 X 線検出のためのセンサー表面処理および空乏層厚さの最適化、

・ピクセル搭載型メモリを実装することによる信号読み出し高速化、

についての検討を進め、次世代の放射光実験で要求される高精細、高速、高感度の計数型ピクセル検出器を開発する。

(5) Si-APD ピクセルアレイ検出器について

比例モードで動作するシリコン・アバランシェ・フォトダイオード（Si-APD）は内部増幅率が～100 倍にとどまるが、ナノ秒幅の高速パルス応答が可能である。そのため、X線検出器自体の応答をマイクロ秒からナノ秒へと 1000 倍に高速化することができる。たとえば、サンプリング 0.5ns 程度の時系列連続計数測定（MCS）を ASIC アンプと FPGA によって行い各ピクセル最大 10^8 s^{-1} の高計数率のまま、Si-APD ピクセルアレイにより、試料温度等を変えながら X 線強度の時間変化の迅速な記録を可能にする[5]。すでに 64 チャンネル Si-APD リニアアレイ検出器（ピクセルサイズ：100x200 μm、有感部：9.6mm）による 0.5ns 時間分解計数を実現させており、PF での Si-APD 開発（浜松ホトニクスに素子製作を委託）と素核研エレクトロニクス・システムグループの超高速 ASIC 開発・FPGA 技術による共同研究とベンチャー企業での信号処理ボード製作を進めている（図４）。1000 チャンネル規模(32×32)のセンサー開発を経て 100×100 チャンネル以上の二次元検出器の開発へと進める。信号読み出し回路としてアナログメモリセル[6]を採用、X 線強度をデジタル処理の時間応答限界に制約されず超高速応答でアナログ波形として記録することも可能である。この方式は散

乱強度大でパルスが同じタイミングで数多く重なる場合や 1ns 以下の間隔のパルス X 線を使う測定にも対応できる。

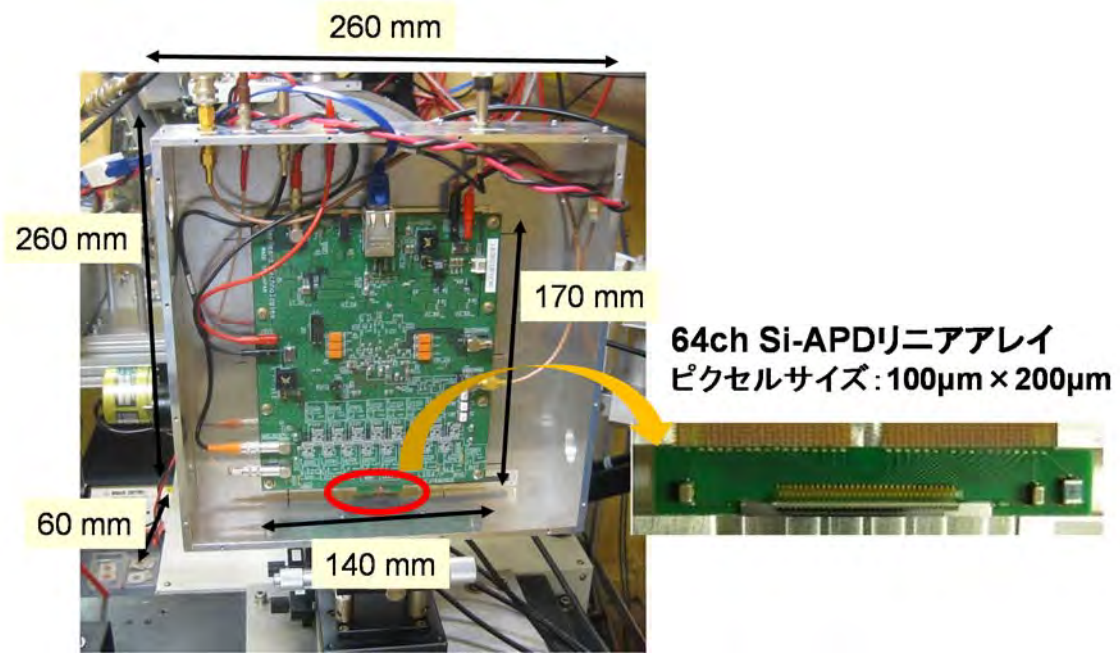


図４　64 チャンネル Si-APD リニアアレイ検出器

上述のように科研費・新学術「３次元半導体検出器で切り拓く新たな量子イメージングの展開」の計画研究のもとで、ピクセルサイズ 30μm 角をめざす計数型チップ開発や積分型センサー応用を進めている。この SOI 技術を応用するプロジェクトではフォトダイオードタイプのピクセルだけでなく、比例モード Si-APD ピクセルセンサーの試作が行なわれており、2 次元 Si-APD ピクセルアレイ検出器の実用化のための開発を協力して行なう。2017 年度までの SOI プロジェクトに続いて Si-APD ピクセル X 線センサーの開発を PF において継続させる。

参考文献

[1] Y. Arai *et al.*, NIM A**636**, 531 (2011)
[2] T. Miyoshi *et al.*, NIM A**732**, 530 (2013)
[3] T. Hatsui, Synchrotron Radiation News, Vol. 27, No. 4, (2014)
[4] H. Sagayama *et al.*, Phys. Rev. B **90** 241113(R) (2014)
[5] S. Kishimoto et al., Rev. of Sci. Instrum. **85**, 113102 (2014).
[6] H. Friederich, et al., IEEE Trans. on Nucl Sci. **58(4)**, 1652 (2011).

３．原子層レベルの深さ分解能を実現する角度分解型軟 X 線・電子検出器の高速高感度化

薄膜の軟 X 線吸収(XAFS)スペクトルを測定する際、表面敏感であるという利点から、X 線吸収後の緩和過程で生じるオージェ電子を検出する、いわゆる電子収量法を用いることが多い。さらに二次元型(Microchannel plate; MCP)検出器を使って角度分解して検出することで、深さ方向の情報を付加することができる。この特長を利用した解析法が「深さ分解 XAFS 法」である。様々な出射角の電子を別々に取り込むことで、全ての検出深度に対応する X 線吸収スペクトルを一括に取り込み、解析的に表面(あるいは界面)成分と内部成分の XAFS スペクトルを得ることができる（図 1）。従来の深さ分解法では、MCP 検出器の感光部を蛍光スクリーンに投影し、CCD カメラで記録する方式を採用しており、これまでに原子層レベルの深さ分解能を達成し、薄膜表面や界面の電子状態分析を行ってきた。さらに試料への磁場の印加が可能なセットアップにすることで、深さ分解 X 線磁気円二色性(XMCD)スペクトルも得られる仕様になっている。この手法を磁性薄膜に適用することで、成長過程における磁気異方性変化の「その場観察」が可能となり、スピントロニクス分野で注目される薄膜や多層膜の基礎物性を調べるツールとして威力を発揮してきた。

表面成分の XAFS／XMCD スペクトルを得る手法としては高い信頼性を誇るが、界面成分の抽出に関しては大きな課題がある。表面から数 nm の上の界面層は観察できても、さらに深い**下の界面層**を同等な精度で観察することは困難を極める。というのも、従来の検出方式（蛍光スクリーンと CCD の組み合わせ）における検出効率やダイナミックレンジでは、例えば数 10 nm 程の厚い被膜層で覆われた層からの微弱なシグナルを、感度よく得ることが非常に難しいからである。光源の性能があがり、高フラックスの光を使えるようになったとしても、検出器の問題で深さ分解能を制限されることは避けるべきである。

そこで計測システム開発室だけでなく、素粒子原子核研究所エレクトロニクスシステムグループ、および計測技術の専門家ネ

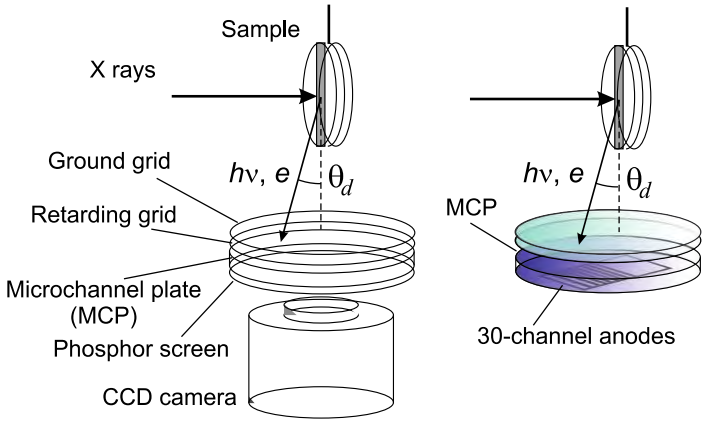


図 1　従来の深さ分解 XAFS 法（左）と 30 チャンネルマルチアノード MCP 検出器システム（右）。

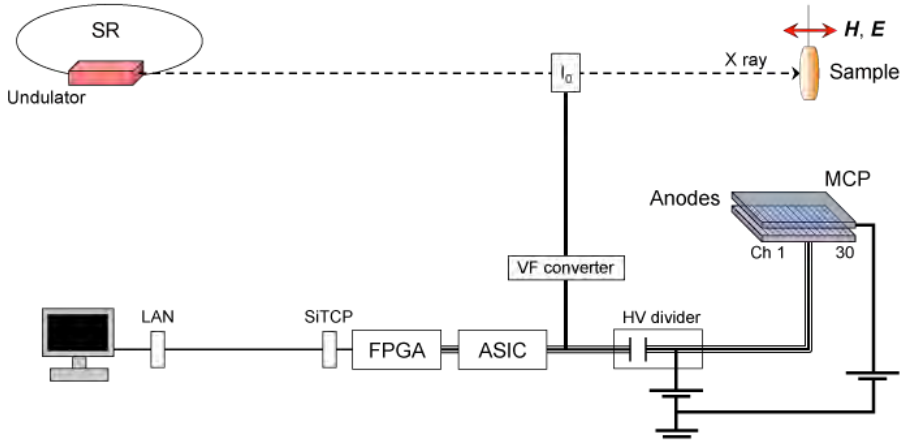


図 2：マルチアノード MCP 検出器システムの概略。MCP で増幅されたシグナルが ASIC と FPGA を介して信号処理される。

ットワークである Open-It と連携して開発を進めているのが、マルチアノード MCP 検出器を用いた新しい深さ分解測定システムである。図 2 に測定システムの概略を示す。MCP で増幅されたシグナルが、ASIC と FPGA を介して電気的に信号処理される仕組みとなっている。30 チャンネルのアノードが 1 mm 間隔で平行に並んでおり、電子収量モードでは素子面から試料までの距離を約 60 mm にセットすることにより、検出角（θ_d）0-15° の範囲を 1° 刻みで取り込むことで、検出深度（λ）が 0.5-2 nm のスペクトル群を得ることができる。一方軟 X 線蛍光収量モードでは、電子収量の場合の 3 倍ほど距離を離すことで角度分解能を稼ぎ、0-4.5° の範囲を 0.3° 刻みで取り込むことによって、λ が 0.5-17.5nm のスペクトル群を得ることができる。いずれの収量モードにおいても**サブ nm の深さ分解能**の達成が可能となり、世界的に見ても例のない電子・蛍光収量モード対応の軟 X 線深さ分解測定システムの構築を目指す。近年ではデバイスの動作時に近づけるため、電場などの外場をかけた状態で深さ分解測定を行う**オペランド観察**の需要が高まっていることから、特に外場の影響を受けない蛍光収量モードを用い、多様な測定に対応できるように高度化することが重要である。

また ASIC と FPGA の高速信号処理能を生かし、将来的にはピコ秒からナノ秒の**高速反応を追跡**することが可能である。繰り返し周波数 500MHz のマルチバンチ構造を有する運転モードでは、GHz 領域で動作する素子におけるスピンのダイナミクスを観察するのに適した時間構造になっており、ナノビームとポンププローブを組み合わせることによって、例えばスピン伝播の時間発展を 3 次元的に観察することが可能となる。近年スピン波を利用した機能デバイスの開発がますます盛んになっており、動作中におけるスピン波伝播の様子を、元

素選択的にナノメートルオーダーで観察する手法が確立すれば、機能性の理解が飛躍的に上がることが予想される。

実際のデバイス構造に近い物質群を観察対象とする場合、注目する元素の微量性に加え、被膜層など他の構成元素からのシグナルによって、鮮明な XMCD シグナルを得ることは難しいと予想される。この問題を回避するには、捉える電子や蛍光のエネルギー選別をすることで**より高い S/B** を実現する必要がある。電子収量の場合には、グリッド電極に印加する阻止電場を変化させて特定のエネルギーの電子のみをカウントすることによって、約 20 倍の S/B が期待される。一方蛍光収量の場合には、波高分析機能を利用することによってエネルギー選別が可能になる。これらの特長を生かすことで、スピン波伝播以外にも、外場による応答・緩和過程や、表面化学反応の吸着・脱離過程の、今まで観測されてこなかった時間スケールでの観察が可能となり、たとえその対象が厚い被膜層や吸着層に埋もれた界面層であっても、鮮明な XAFS/XMCD スペクトルが得られると期待される。また通常はパルスカウント型の検出法を用いているが、カウント数が多い場合には数え落としが生じることがある。この問題を回避するには積分型の検出法が有効とされていることから、並行して開発を進めたい。

４．SiTCP によるデータ収集システムの高速化と効率化

データ収集システムの役割は検出器が生成する信号データを損失無くかつ効率よく計算機へ転送しデータを記憶装置に記録する事である。近年のデータ収集システム開発時の課題は指数関数的に増加する実験データへの対応である。

加速器科学実験は高輝度・高強度を進めているが、その背景には実験結果を得るまでの時間を短縮する意味でのコストが重視されている。放射光実験でも高輝度化が進められており、新たなサインエンスを展開するとともに以前はビーム利用時間の制限等で不可能だった実験も実施可能になっている。この事は単位時間当たりの実験データ量を爆発的に増大させた事を意味する。高輝度化により短時間で十分なイベント数が取得できるようになると複数の検出器を 2 次元面に配置する事も可能になる。また、短時間で十分なイベント数を得ることができるなら時間分解能を上げて時間構造を見ることも可能となる。空間的、時間的に拡張されたこれらの観測データを得るために検出器数と時間方向のサンプリング数が上昇するため単位時間あたりに処理すべき信号データ量は指数関数的に増加する。指数関数的に増加するデータ量を生成する検出器の例としてたんぱく質構造解析などで利用される２次元検出器がある。既に製品化されている EIGER X4M はピクセル数が約 4.5M、1 ピクセル当たりのデータサイズが 12 bit、最大フレーム・レートが 750 Hz であり 1 秒間に生成されるデータ量は約 40 Gbit になる。データ圧縮技術などを採用すれば数十パーセントのデータ量を削減する事はできるが削減率はデータに依存するのでシステム設計の立場からは要求データ転送速度として最大値の 40Gbit/sec を採用する事になる。この様に莫大なデータが生成される実験が特別な事ではなく通常の実験として行われる時代になりつつある。技術の進歩は速いので、時が経てばさらに高い性能が求められるであろう。以上のように時が経つにしたがい指数関数的に増加する膨大な実験データを処理可能なデータ収集システムの開発が求められている。

データ収集システムの役割は検出器が生成する信号データを損失無くかつ効率よく計算機へ転送しデータを記憶装置に記録する事である。検出器が生成するデータは指数関数的に増加しているので単位時間あたりに計算機へ転送するデータ量も指数関数的に増加している。このように増大する検出器データは近年著しい電子機器の性能向上により比較的容易に処理できると感じるかもしれない。しかしながら、データ収集システム固有の問題があるため、実現する事は容易ではない。データ収集システムはフロントエンド・エレクトロニクスとバックエンド・エレクトロニクスで構成される。フロントエンド・エレクトロニクスは検出器近傍に配置され検出器信号を処理したデータをバックエンド・エレクトロニクスへ転送する。バックエンド・エレクトロニクスは主に計算機で構成され転送されたデータの解析や記録装置への保存処理などを行う。計算機性能は年々向上しているので、計算機の構成などを工夫することで指数関数的に増加を続けるデータに対してもバックエンド・エレ

クトロニクスは対応可能であると考えられる。一方、フロントエンド・エレクトロニクスに関しては注意が必要である。フロントエンド・エレクトロニクスは検出器近傍に配置されるため形状、体積、発熱、消費電力など様々な制約が課せられる。この制約下において指数関数的に増大するデータを高速に処理し計算機へ転送する必要がある。同時に検出器の空間密度増大により一つのフロントエンド・エレクトロニクスが処理すべき検出器（チャンネル）数も増大している。この様な制約下の装置に対して発展目覚ましい計算機をそのまま適用する事はできない。

検出器が出力する多チャンネルの信号を高速処理する回路は集積回路化することで解決可能である。この事は 2 次元センサが集積回路技術で実現されていることからもわかる。問題は集積回路内で処理した膨大なデータを計算機へ送るデータ転送インターフェース部である。近年では最低でもギガビット以上の転送速度が要求されている。このデータ転送インターフェースは開発期間、性能、保守管理などシステム全体のコストを考慮すると標準インターフェースとも言えるイーサネット技術が有力候補である。イーサネットは技術世代間の互換性を重視した規格であるため新旧規格の機器が直接またはハブと呼ばれる機器を介する事で容易に接続可能でありシステムを部分的に高速化することができる。これは既存データ収集システムに新しい検出器を容易に導入できる事を意味する。例えば、あるビームラインに新たに設置する検出器が膨大なデータを生成する場合、該当部分のみに最新機器を設置して対応する事ができる。他の部分は性能やコストなどを考慮して数世代古い機器をそのまま使用できる。イーサネットの転送速度は 10 Mbit/sec から 100 Gbit/sec まで規格化されおり用途に合わせて必要十分な速度を採用可能である。この互換性はシステム保守管理の観点からも有効である。通常古い世代の技術を採用した製品は製造中止となり購入や保守が不可能となる。技術世代間の互換性が無い場合、一部の装置故障やアップグレードのために全ての装置を入れ替える必要があるが、イーサネット採用はこの問題を解決する。さらに、イーサネットは広く使われているため高機能高性能な多種多様で高性能な製品を安価で活用できる点も大きな長所である。

イーサネット採用は様々な長所があるが、イーサネット規格はデータ転送の無損失を保障していない。そのためデータ転送の健全性（無損失転送）は他のソフトウエア的な通信手段と組み合わせて実現する。無損失データ転送を保障するために TCP/IP と呼ばれる通信プロトコルと共に用いることが一般的である。データ損失時は TCP/IP のデータ再送機構によりデータが修復され無損失で計算機へ転送される。TCP/IP は比較的複雑な処理が要求されるため、一般に CPU を用いたソフトウエア技術を用いて実装される。しかしながら強い制約が課せられているフロントエンド・エレクトロニクスで CPU を採用する事は難しい。1 Gbps 通信以上の高速データ転送を実現するためには高性能 CPU が必要である。しかし、高性能 CPU は消費電力が大きいため発熱が大きくなり冷却機構が必要になるなど装置が大きくなる。また、CPU を動作させる際にオペレーティングシステム(OS)を採用する事は一般的であるが、Linux などの汎用 OS を動作させるためには大容量メモリが必要となり装

置の大きさが大きくなるとともに消費電力・発熱量も大きくなる。汎用 OS は背景で多くのタスクが動き続けるので、十分に高性能な CPU を用いないと長時間安定して高速通信する事は難しい。例えば、転送速度が不定期に突然μs から ms 程度の短期間に大きく低下することなどが報告されている。これらの挙動は OS の内部動作で決まるためユーザーによる調整や対応は容易ではない。OS を採用しない実装方法もあるが、開発や保守について考慮すると多くの経済的・人的リソースが必要になるため採用は困難であろう。

フロントエンド･エレクトロニクスがイーサネットと TCP/IP の組み合わせを採用する利点は多いものの、その実現に関して問題があることを示した。この問題を解決するために SiTCP[1,2]と名付けた TCP/IP およびイーサネット処理専用ハードウエア（デジタル回路）を開発した。1 Gbps まで実用化されており、10 Gbps 版を開発中である。この SiTCP によりフロントエンド･エレクトロニクスでイーサネットと TCP/IP の組み合わせを採用する事が容易に可能になった。SiTCP の開発目的は検出器近くに配置されるフロントエンド・エレクトロニクスをネットワーク装置化する事である。図 1 に SiTCP を用いたデータ収集システムの概念図を示す。

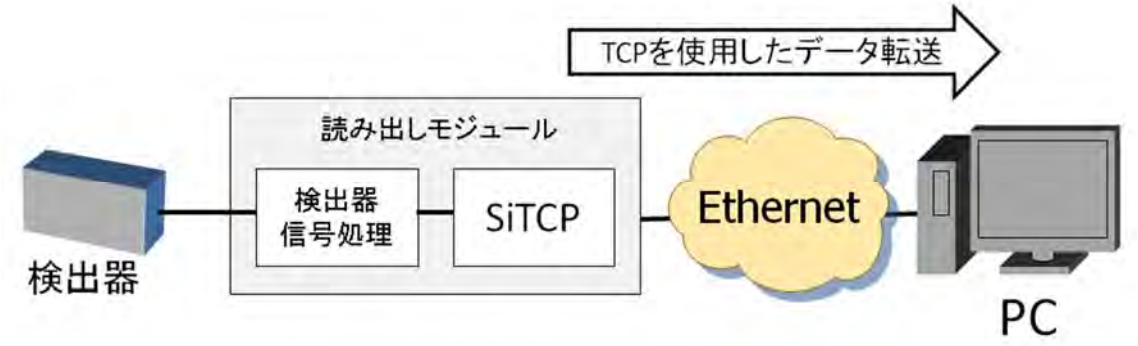


図 1　SiTCP を用いたデータ収集システム概念図

SiTCP は専用ハードウエアであるため、先に示した以下の制限を満たすことが可能である。

- 装置の大きさ制限
- 消費電力
- 長期安定性

SiTCP は Field Programmable Gate Array(FPGA)と呼ばれる半導体チップに書き込まれることが多い。FPGA とはユーザーが回路情報をソフトウエアのように書き込むことができる半導体チップである。SiTCP のユーザーは自ら開発した実験専用回路と共に SiTCP を FPGA に書き込むことでイーサネット通信インターフェースを持つ独自の半導体チップをその場で作ることができる（図 1 参照）。これは数センチメートル四方の一つの半導体デバイスに高性能計算機と同等の通信性能を持たせる事と同等である。SiTCP によりイーサ

ネット採用による装置の大きさ制限が大きく緩和された。

CPU と比較すると SiTCP の消費電力は非常に小さい、使用する FPGA の種類などに依存するものの 1 Gbps 通信の場合で 2W 程度である。高性能 CPU が数十 W 消費する事と比較すれば非常に小さい事が分かる。消費電力は回路規模と回路動作速度の積に比例するため、回路規模を小さくすることと回路を低速で動作させることで低消費電力化を実現した。一般に専用回路と CPU を用いたソフトウエア処理で回路規模と回路動作速度について比較すると回路規模は小さくなり、回路動作速度は遅くなる。CPU は様々な処理を行うため多種多様な処理が行うことができるように設計されている、また高速処理に対応するために複雑な回路が採用されているため回路規模が大きい、また CPU は逐次処理なので（例えば 1 ワードのデータを処理するために複数の命令を実行させる必要がある）高速データ転送する際は転送速度よりも十分に高い速度で回路を動作させなければいけない。一方専用回路の場合、処理毎に専用回路を設けて分散処理するため、回路を最適化する事ができるため回路規模が小さくなり回路は低速で動作させることができる。CPU は数 GHz 程度の動作速度であるが FPGA は数百 MHz 程度の速度なので 1/10 程度の回路動作速度である。近年 FPGA 上に CPU が組み込まれるようになり Linux OS 等が動作可能になり FPGA を小さな計算機と使用できるようになった。この技術を用いることでも TCP とイーサネット技術を比較的容易に採用できる。しかしながら、データを高速かつ長時間安定に転送することは難しい。2010 年頃までデスクトップ PC を用いて安定にギガビットの速度で TCP 通信する事は簡単ではなかった（現在でもノート PC や廉価版計算機では難しい）。廉価版 PC に搭載されている CPU であっても動作速度は数 GHz である。それと比較して FPGA に組み込み可能な CPU の動作速度は高々1GHz 程度である。安定に高速データ転送を行うために十分な性能の CPU であるとは言えない。以前、FPGA の組み込み CPU を用いてシステム構築を進めていた実験グループが性能的な問題を解決できず、最終的に SiTCP により問題を解決した事例がある。この事からも組み込み CPU を用いてデータ取集システムを構築することが容易でない事が分かる。

以上のように SiTCP を用いれば実験装置のフロントエンド・エレクトロニクスでイーサネットを容易に採用可能である。この利点により SiTCP は多くの実験や観測で採用されている。

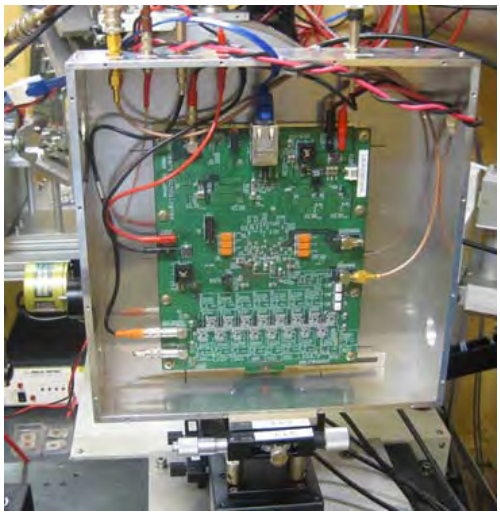


図２　64 チャンネル光検出器システムのフロントエンド・エレクトロニクス

放射光実験に SiTCP が利用された例として図 2 に核共鳴散乱測定のために開発された 64 チャンネル光検出器システム[3]のフロントエンド・エレクトロニクスの写真を示す。集積化技術によりボードサイズは 170mm ×140mm である。検出器が出力する 64 チャンネルのアナログ信号を 1 枚のボードで処理、デジタル化を行い、ギガビット・イーサネットを介して計算機へデータを転送する。写真から分かるように放熱器などは無く低消費電力であることが分かる。計算機が複数のギガビット・イーサネット・リンクを処理できる性能を持っているなら、イーサネット・スイッチと本フロントエンド・エレクトロニクスを複数使用することでより多数の検出器信号を処理する事も可能である。

現在の SiTCP の転送速度は最高 1 Gbit/sec であるが、近年のデータ量増加に対応するために 10Gbps 版 SiTCP を開発中である。10Gbps 版 SiTCP を用いれば、これらのデータを読み出しシステムを容易に実現できる。レイヤー2 と呼ばれるイーサネット処理と ARP, ICMP などの管理用プロトコルの実装が終了し、TCP 処理部の開発を進めている。2016 年度に試作第一版を開発する予定である。試作完成後は複数の実験グループと協力しながら実際の読み出しシステムに組み込んでテストを繰り返す事で障害修正と性能向上を進める。

10Gbps SiTCP が実現すればたんぱく質構造解析でもちいる 2 次元センサのデータも複数の SiTCP を搭載する事で十分処理可能である。SiTCP の高速化によりフロントエンド・エレクトロニクスの高速化は可能であるが、10 Gbps 以上の転送速度になるとバックエンドの計算機を含めたシステム全体で適切な性能配分を考察し実装する事が重要になる。良くある過ちとして、計算機に 10Gbps インターフェースが付いていれば 10Gbps で通信できると考える事である。計算機に 10Gbps インターフェースが付いていれば、確かにある期間（例えば数 msec など）に限ればその期間は 10Gbps で通信できる。しかし、実験期間全体で常に 10Gbps で通信し続けることができる保証はない。何故なら計算機のイーサネット通信のデータは CPU で処理するため、計算機上で動作している複数の他のタスクの影響

を受けるからである。CPU 性能がタスク量と比較して十分高ければ問題ないが、現時点では計算機が一つの 10Gbps リンクを受信する事は容易ではない。計算機の機種選定や OS のチューニングなど様々な工夫が必要である。この問題を軽減するために 10Gbps 版 SiTCP では仮想的に複数の 1 Gbps リンクを束ねて一つの 10Gbps リンクとする機能を実装予定である。この機能により一つのフロントエンド・エレクトロニクスが出力するデータを複数台の計算機で受信し記録する事が可能となりバックエンド・エレクトロニクスの構成方法に柔軟性を高めることができる。もちろん複数の 1 Gbps リンクを一台の PC で処理する事も可能。この様にデータ送信部のシステム設計も構想時から詳細な検討が必要である。

現時点でイーサネット規格は 100 Gbps まで制定されている。次の規格 400 Gbps の制定が 2017 年に予定されている。現在使用可能な FPGA 技術では 100 Gbps を処理する事は難しいが、今後も FPGA の性能は向上すると思われるため、将来は対応可能になると考えられる。既に 40 Gbps 対応の FPGA も販売され始めているので 10Gbps 版完成後に仮想的に４つの 10Gbps リンクを束ねた 40Gbps 版を開発予定である。

SiTCP は指数関数的に増加する放射線検出器のデータ量を計算機へ転送するために適した技術である。SiTCP の強みは性能に加えてコスト削減効果である。ハードウエアからソフトウエアまで含めたシステム全体の開発コストを考慮するとデータ転送に TCP/IP とイーサネット通信を採用する意義は非常に大きい。イーサネット採用により技術世代間の高い互換性に起因する様々な利点を享受できる。従って、SiTCP を採用する事でフロントエンドも通常のネットワーク機器となるため、年々高性能化する FPGA、計算機、ネットワーク機器などを部分的に置き換えまたは新規追加することでコストと性能を考慮した最適化が可能になる。これは日々性能を向上させることが可能な柔軟なシステムであり、計測システム性能を常に高く維持するために必要な要件である。以上のように SiTCP は KEK 放射光計画においても次世代ピクセル型検出器などの大容量データを高速処理するシステム構築のために必要不可欠な技術と考える。

参考文献

[1] T. Uchida, Hardware-based TCP processor for gigabit ethernet, IEEE Trans. Nucl. Sci. **55**, (1631) 2008.

[2] http://research.kek.jp/people/uchida/technologies/SiTCP/

[3] S. Kishimoto *et al.*,Nuclear resonant scattering measurements on (57)Fe by multichannel scaling with a 64-pixel silicon avalanche photodiode linear-array detector, Rev. of Sci. Instrum. **85**, 113102 (2014).

５．超高速時間分解 XAFS のための位置敏感検出器の開発

（1）背景

これまでの科学技術は、平衡状態（相図）に基づき、材料性能や組成を変えるために急激な温度勾配 *T* や圧力勾配 *P* を与えて、「**非平衡状態**」を介すことで様々な金属・無機材料を作り出してきた。しかし従来よりもさらに急激な外場をトリガーとして用いると、従来の比較的ゆっくりと状態量を変化させる場合とは異なる「極短時間にも現れる準安定の非平衡状態」が反応の支配因子となると考えられている。こうした「極短時間にも現れる準安定の非平衡状態」を利用することで、平衡状態もしくは平衡からのずれが小さな条件で状態を変化させる経路とは異なる経路で反応が進行し、全く新たな反応や反応生成物を創出できる可能性がある。しかしながら平衡状態からのずれが大きなこうした反応は“不可逆反応”であり、これまでの観察手法では不可逆反応前と不可逆反応後の定常状態での材料を観察することしかできなかった。このため材料設計においてはそこから反応経路を推測し、多くのトライ・アンド・エラーを繰り返すことで硬い金属、熱に強い材料や、耐衝撃に優れた材料など高付加価値の材料を開発してきた。しかし「極短時間にも現れる準安定の非平衡状態」を観察することにより、材料設計において最も重要な *P*、*V*、*T* などの急激な変化を受けて発生する材料中での反応起点の解明が可能になり、新たな材料設計が期待できる。

「極短時間にも現れる準安定の非平衡状態」の取り組みとして、我々は PF-AR において放射光 X 線パルスとレーザーとを組み合わせ、1 パルスの X 線で測定可能な時間分解 X 線回折および吸収分光システムを開発し、外部刺激を付与した直後に材料中で生じる反応の極初期の状態を観察してきた。近年 X 線自由電子レーザー（XFEL）の実用化によりフェムト秒オーダーの X 線パルスが得られるようになり、X 線パルスの時間構造を利用した時間分解 X 線回折や XAFS 測定もフェムト秒オーダーの時間分解能を有するに至った。一方で鋼の焼き入れに代表される材料の変態は拡散を伴いナノ秒の時間スケールで生じると考えられている。拡散現象はナノ秒からサブナノ秒で進行する典型的な不可逆過程のひとつであり、秒～サブ秒のレベルでの急激な外場（*P*、*V*、*T*）の変化により反応パスを制御していることになる。このように XFEL のパルス X 線を用いたフェムト秒オーダーのみでなく放射光施設を用いたピコ秒からサブナノ秒の現象を観察することも極めて重要になる。

（2）KEK 放射光における新展開と期待される成果

現在 PF-AR で展開されている 1 パルスの X 線で測定可能な波長分散型 XAFS（Dispersive XAFS：DXAFS）実験ではレーザーと DXFAS を組み合わせたシステム（図 1）を用いることで、材料の衝撃破壊や高温の鋼を急冷却することによる焼き入れなど不可逆な単発現象のメカニズムを解明することを目的として研究を行っている。例えば、古くから行われている鋼の焼き入れプロセスを考えてみる。鋼の焼き入れは昇温により相転移した鉄を急冷することによる鉄格子の変態の速度と固溶炭素の拡散速度が微妙に異なることを利用して材料設計を行っており、結果として炭素を過剰に固溶した非常に硬い組織が形成される。拡散現象はナノ秒からサブナノ秒で進行する典型的な不可逆過程のひとつであり、秒～サブ秒のレベルでの急激な外場（*P*、*V*、*T*）の変化により、反応パスを制御していることになる。放射光施設から得られる 1 パルスの X 線を用いた測定を行えば得られるスペクトルの時間分解能は X 線のパルス幅、すなわち約 100 ps となる。これによりナノ秒からサブナノ秒の時間スケールで「極短時間にも現れる準安定の非平衡状態」を可視化し、パルス外場による材料の「非平衡状態」を介した材料創製を行うことが可能になる。このような従来の極短時間の時間分解実験に加え、KEK 放射光ではナノビームを用いることにより従来空間での平均情報であった測定を、空間の不均一性を含めて評価できるようになり、材料学的に革新的な情報を得ることが期待される。例えば、上述の炭素などの添加物に由来する析出物の分散制御により材料を高強度化、高延性化することが可能になる。通常析出物は数 nm～数十 nm サイズであり、これらは材料中の数 μm～数十 μm 程度の結晶粒もしくは結晶粒界で発生する。既に展開されている PF-AR での研究では光源性能により試料位置での X 線ビームサイズは数百 μm であり、材料中に生成するナノ析出物とバルクの情報を合わせた平均情報しか得られない。しかし新光源では集光光学系を用いることにより試料位置で数百 nm～数十 nm の高強度な X 線を得ることができる。X 線サイズを適切に調整することにより、ナノ析出物が結晶粒もしくは結晶粒界のいずれに発生するのか、また析出物のみに X 線を照射することにより析出物の発現から成長に至るダイナミクスを解明することが可能となる。このような実材料系で

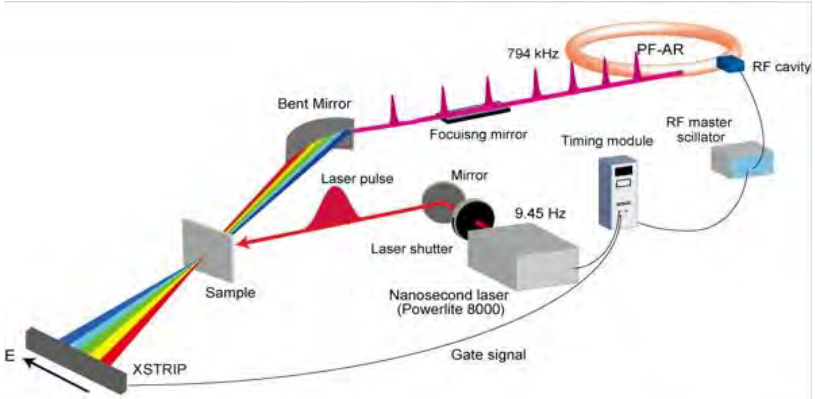


図 1　レーザーと DXAFS を組み合わせたシステムの概念

は、析出物の発生および成長は不均一に起こると考えられるが、新光源を用いることで析出物発生サイトによる生成速度の差異などが現れると期待され、不均一に進展する反応の構造的かつ時間的な基点を解明することが可能となる。これにより高強度、高延性など高付加価値の材料設計に対して極めて重要な知見を与えると期待される。これを実現させるためには次期光源から供給される X 線パルスを DXAFS システムに最適な形で高精度に検出することが必要条件となる。

(3) 検出器開発の目的、着想に至った背景と開発する検出器等の特色

パルス X 線を用いた時間分解測定には主に X 線パルスセレクターを用いて物理的に X 線パルスを間引き、目的のタイミングの X 線パルスのみを使用する方法と、極短時間の検出ゲートを有している検出器を用いることで目的のタイミングの X 線パルスのみを選択的に取り込む方法があり、DXAFS では後者を用いている。DXAFS システムの特徴は湾曲結晶によって波長分散され、発散した X 線を一度に位置敏感に検出することである（図 2）。このため DXAFS を用いた超高速時間分解測定では検出器の性能が実験データの質を大きく左右する。パルス X 線を用いた DXAFS 測定用の X 線検出器として必要な主な要素は、「位置敏感検出」と「孤立バンチを切り出せるゲート時間を持つ」の 2 点である。次期光源で目標とする位置敏感検出器のスペックを表 1 にまとめた。DXAFS では X 線強度を位置敏感に測定する必要があるため一次元もしくは二次元検出器が必要である。これらはピクセルアレイ、ストリップ検出器いずれでも構わない。

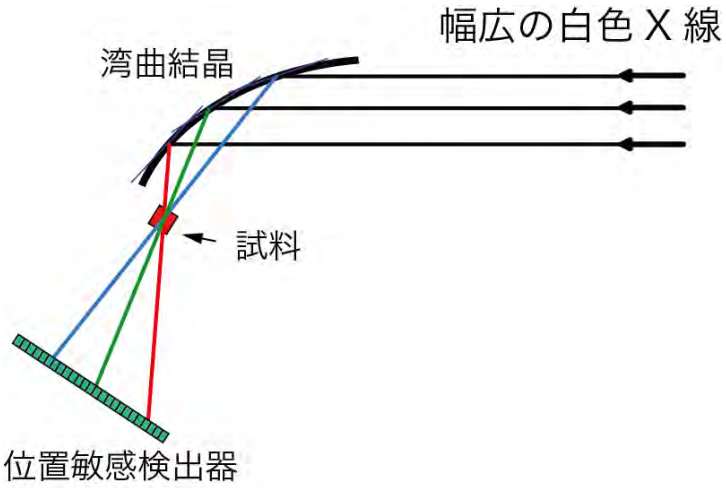


図 2　DXAFS システムの概念図

カバーするエネルギー域および検出効率

現在の DXAFS システムでは K 吸収端でクロム（約 6 keV）からセリウム（約 40 keV）のエネルギー領域での測定が可能な光学系が準備されており、検出器としてはシリコンマイクロストリップを使用している。シリコン素子は 500 μm 厚、25 μm 間隔で 1024 個が一次元に配列している。この条件下で例えば 7 keV（鉄の K 吸収端近傍）においては検出器の 1

素子辺り約 10^3 photons/pulse の X 線が得られ、数十回の積算で解析に耐える S/N 比のスペクトルが得られている。500 μm 厚のシリコンでは 3d 遷移金属（5-10 keV）の吸収端エネルギー近傍でほぼ 100%の検出効率を有している一方で、材料学的に極めて重要な元素であるロジウム（吸収端エネルギー：約 23 keV）、パラジウム（同：約 24 keV）、すず（同：約 29 keV）などの吸収端エネルギー域になると 20-30%と検出効率が著しく低下する。加えて高エネルギー領域では Si(311)や Si(511)など高次の湾曲結晶を用いる必要があり、試料位置での X 線強度はさらに減少する。このため検出器素子にゲルマニウムを用いることにより特に高エネルギー領域でシリコンよりも高感度に検出できることを目指す。仮に厚さ 1mm の Ge を検出器に用いれば 30 keV で 90%以上の検出効率が見込まれ、想定している全エネルギー域（5-40 keV）で極めて高効率な検出が可能となると期待される。

エネルギー分解能

波長分散した幅広の X 線強度を位置敏感に測定するという測定原理上、検出器の空間分解能が劣化すると XAFS スペクトルのエネルギー分解能も悪化する。既存のシステムでは上述のエネルギー領域内における任意の元素について、その吸収端近傍 1 keV 程度のエネルギー範囲のスペクトルが一度に測定可能である。このためには検出位置（検出器設置位置）において水平方向に少なくとも 25 mm の幅が必要である。エネルギー分解能に関しては、25 μm ピッチの配列で、通常のステップスキャン方式で得られるスペクトルと同等である。このため 25 μm 以下の間隔で 25 mm 以上の水平方向の長さとなる素子数が必要となる。

孤立バンチの切り出し

最も重要な要素のひとつとして孤立バンチを切り出せることがある。これは次期光源のスペックに依存する。例えば PF-AR では X 線パルスは 794 kHz 周期で周回しているため、連続する X 線パルス間の間隔は 1.26 μs である。シリコンマイクロストリップ検出器は最小で 0.5 μs のゲートをかけることができるため 1 パルスでの切り出しが可能となっている。ただし繰り返し時間に関しては最短で 23 μs であることから、連続してやってくる X 線パルスを取りこぼすという欠点がある。新規に開発する検出器では KEK 放射光から得られる孤立バンチを検出するために、その周波数に応じたゲートをかけられること、連続して得られる孤立バンチを取りこぼすことなく検出できる繰り返し速度を有することが重要であり、これを満たすような読み出し時間、応答速度を有することが必要となる。

KEK 放射光の運転モード

放射光パルス X 線の時間構造を用いた時間分解実験には孤立バンチを有する運転モードが必須である。シングルバンチモード、ハイブリットモードいずれでも構わないが、孤立バンチ部分には極力大きな電流を蓄積することが望ましい。年間運転時間のうち一定時間をこのような孤立バンチのある運転モードでの運用が期待される。

表 1　目標とする位置敏感検出器の仕様

Detection medium	Ge
Number of pixels or strips	< 1024
Pixel or Strip Pitch	> 25 μm
Detector thickness	1 mm
Energy range	5 – 40 keV
Efficiency @ 30 keV	>90% for the whole system

１０．建設の予算と期間

１．建設に要する費用

1-1. 蓄積リング

KEK 放射光のユニットセルは，機能結合型偏向電磁石 4 台，進行方向勾配型偏向電磁石 4 台，四極電磁石 16 台，六極電磁石 6 台で構成されている。電磁石電源はすべての電磁石に個別電源を用意し，上記と同数の電源に加えて，水平補正電磁石，垂直補正電磁石電源がそれぞれ 8 台と 6 台ずつ装備される。その他，高速軌道フィードバック専用に応答速度の速い補正電磁石を 8 台ずつ各セルに設置する。また入射用に 4 台のキッカー電磁石及び 2 台のセプタム電磁石及びパルス電源が設置される。以上 20 セル分の電磁石，電源の設計，製作と設置，アライメント作業及び配線ケーブル等の費用を合計し，電磁石関連の概算見積額は 55 億円である。

高周波加速は 4 台の常伝導空洞（500 MHz）をクライストロンで駆動することを想定して概算見積もりを行った。また高調波空洞も蓄積ビーム寿命を延ばし，バンチ内散乱によるエミッタンス増大を緩和し実効エミッタンスを小さくする上で有効かつ不可欠であり，コミッショニング当初から導入すべくその経費を計上している。高周波加速系の概算見積額は 15 億円である。

リング真空系については，四極電磁石のボア直径が 30 mm となることにあわせて，従来の電子蓄積リングよりビームダクトの内径が狭くなるので，ビーム路の圧力を低く保つためには分布型排気系が重要となる。ビームダクト内面の NEG（非蒸発ゲッター）コーティングおよびアンテチェンバー構造を組み合わせて有効な排気速度を確保する設計である。電気伝導性，熱伝導性ともに優れる無酸素銅あるいは銅合金系の材料でビームダクトを製作する方針で概算見積もりを行っている。ビーム診断系は，ビーム位置モニター(BPM)をユニットセルに 10 台～11 台，リング全周で 201 台設置する。周波数帯域 100 Hz~200 Hz の軌道フィードバック系，横方向並びに進行方向の個別バンチフィードバック系，放射光モニター系，バンチ電流モニター，直流電流トランス（DCCT）等を備える。ビーム制御系，ネットワーク，タイミング系及び人的安全システム，機器保護安全システム等を考慮して概算見積もりを行った。真空系及びビーム診断，制御系の概算見積額は 35 億円である。

以上，蓄積リングの建設予算見積もり額は合計 105 億円である。

1-2. 入射器（入射系）

KEK に既存の 8 GeV LINAC を入射器として利用する場合，約 200 m のビーム輸送路が必要となる。現在建設中の PF-AR 直接入射路にほぼ匹敵する規模となり，電磁石，ビームダクト，ビーム診断系，安全システム等の加速器コンポーネントの費用は 10 億円と見積もられる。この他に下記の建物，設備の項にあるようにビーム輸送路の地下トンネル建設も必要となる。100 MeV~200 MeV 級の LINAC とブースターリングを組合せた入射系を採用することも検討している。費用はビーム輸送路の加速器コンポーネント，下記のビーム輸

送路トンネルの建設費用の合計と同等で建設可能と見積もっている。

1-3. ビームライン

挿入光源，ビームライン基幹部，ビームラインの一連の設備を新規に建設する場合の費用は，エネルギー範囲や光源の種類に依存するが，1 ビームライン当たり 4 億円~6 億円と見積もっている。ただし，挿入光源については現有のアンジュレータのうち 10 本程度が活用でき，分光器やミラーチェンバーについても，振動対策を施すなどして利用できるコンポーネントが数多くあるので，当初建設するビームライン 15 本程度に対して，概算見積もり額 45 億円を想定している。

1-4. 建物，設備，建設用地

建物・設備：　加速器と放射光実験ビームラインを収納するための蓄積リング建屋に加えて電気設備工事，機械設備工事，外構工事，設計費が概算見積もりに含まれる。蓄積リング建屋はリング・実験ホールを収納するドーナツ型の建物である。加えて機械室と研究室，居室等のスペースを備えており，延べ床面積は約 23,000 m^2 である。LINAC より蓄積リングまでの入射引き込み部地下トンネルは，長さが約 200m，延べ床面積約 1000 m^2 を想定している。総電気容量 5MVA の電気設備工事には，つくばキャンパスに既存の特高変電所を改造利用すること，新建屋や電源室への電気配線，実験用分電盤，通信設備，防災設備などが含まれている，加速器と実験フロアに必要な冷却水設備，空調換気設備，給排水設備などの機械設備工事，外周，内周道路，駐車場，リング下道路などを含む外構工事，設計費用をトータルして建屋関連工事費の概算見積額は約 180 億円である。

建設用地：　KEK 放射光の蓄積リングと放射光ビームラインを収納する建物は，KEK つくばキャンパス内で既存の建物・設備が存在しないフリースペースに収まる大きさである。地盤調査等の必要もあり建設場所は確定をしていないが，建設用地の新たな取得は必要とせず，費用を計上していない。

1-5. 加速器 R&D 経費

KEK 放射光の加速器コンポーネント製作開始する前に，各々の電磁石の試作，磁場測定，ビームダクト，ビームモニターとの空間的な配置，整合性の検証を行う計画である。以上の R&D に必要な期間は約 1 年と考えている。また高周波加速系では，将来の更新に備える意味も含めて，クライストロンに代わる高効率半導体アンプや新型 damped cavity の開発を継続して行く計画である。上記の R&D 経費として約 10 億円を計上している。

以上，蓄積リング，入射系，建物・設備・建設用地，加速器 R&D 経費を含めて，総事業経費は約 350 億円と見積もられる。

２．建設に要する期間

光源棟の建屋（電気設備，機械設備を含む）の建設には，実施設計に 1 年，建設に 2 年半～3 年程度, 合わせて 3 年半～4 年の期間を要すると見込まれる。光源加速器と入射路は，設計，製作に 3 年あまり，設置に約 1 年，その後の加速器のコミッショニングに半年程度と見込まれ，全体としては製作開始から 5 年目に放射光ビーム利用が開始できると見込まれる。初期設置のビームラインについても，3 年あまりで設計，製作を行い，加速器にあまり遅れることなく設置を進め, 5 年後のビーム利用開始に合わせて稼働できる見込みである。

なお，PF から KEK 放射光への移行に際し，つくば地区で放射光が利用できない期間をゼロにすることを目指す。放射光実験の停止期間が生じる場合は，PF の停止時期の調整や他施設との連携を図り，利用できない期間が最小限となるよう努める。KEK 放射光の運転開始後のビームライン建設については，学術研究と産業利用の割合，外部運営ビームラインの割合等のバランスを考慮する。

（附録）

KEK 放射光検討委員会

（五十音順、敬称略）

任期：2016 年 7 月 1 日～2018 年 3 月 31 日

運営形態検討委員会　委員長：佐藤 衛　　施設代表：足立 伸一

朝倉 清高、足立伸一、阿部 仁、雨宮 健太、雨宮 慶幸、稲田 康宏、大友 季哉、尾嶋 正治、門野 良典、河田 洋、木下 豊彦、木村 正雄、熊井 玲児、組頭 広志、腰原 伸也、小林 幸則、小山 篤、近藤 寛、櫻井 伸一、佐々木 聡、佐藤 衛、清水 敏之、辛 埴、瀬戸 秀紀、千田 俊哉、竹田 美和、田渕 雅夫、中川 敦史、朴 三用、林 眞琴、兵藤 一行、兵頭 俊夫、平井 光博、藤森 淳、船守 展正、本田 融、三木 邦夫、水木 純一郎、村上 洋一、百生 敦、 渡邊 健夫

ビームライン検討委員会　委員長：腰原 伸也　　施設代表：五十嵐 教之

雨宮 健太、五十嵐 教之、岩住 俊明、植草 秀裕、内海 裕一、奥田 浩司、奥部 真樹、片山 真祥、岸本 俊二、北島 昌史、北島 義典、腰原 伸也、小菅 隆、小林 寿夫、小山 篤、近藤 敏啓 、齋藤 智彦、櫻井 伸一、島田 賢也、清水 敏之、清水 伸隆、高橋 嘉夫、武市 泰男、田中 信忠、田渕 雅夫、豊島 章雄、中尾 裕則、長嶋 泰之、仁谷 浩明、平尾 直久、平野 馨一、堀場 弘司、間瀬 一彦、松垣 直宏、松下 昌之助、松田 巌、山口 博隆、山本 勝宏、横谷 明徳、吉朝 朗、吉信 淳、 米山 明男、 渡邉 信久

（オブザーバー：足立 伸一、加藤 龍好、小林 幸則、鈴木 芳生、土屋 公央、原田 健太郎、船守 展正、本田 融、宮内 洋司、村上 洋一）

ビーム利用検討委員会　委員長：近藤 寛　　施設代表：中尾 裕則

足立 純一、阿部 仁、市川 創作、植草 秀裕、宇佐美 徳子、大友 季哉、奥田 浩司、奥部 真樹、小澤 健一、小田切 丈、門野 良典、上久保 裕生、神田 一浩、岸本 俊二、熊井 玲児、組頭 広志、小林 寿夫、小森 文夫、近藤 敏啓、近藤 寛、齋藤 智彦、酒巻 真粧子、櫻井 伸一、清水 敏之、清水 伸隆、瀬戸 秀紀、千田 俊哉、高野 秀和、高橋 嘉夫、武市 泰男、田渕 雅夫、手塚 泰久、中尾 裕則、長嶋 泰之、野澤 俊介、兵藤 一行、兵頭 俊夫、船守 展正、松下 昌之助、宮脇 律郎、山口 博隆、山田 悠介、遊佐 斉、横谷 明徳、米山 明男、若林 裕助

（オブザーバー：足立 伸一、雨宮 健太、五十嵐 教之、加藤 龍好、木村 正雄、小林 幸則、鈴木 芳生、土屋 公央、 原田 健太郎、本田 融、村上 洋一）

発行者
高エネルギー加速器研究機構・放射光科学研究施設

連絡先
KEK 放射光事務局　office-kekls@pfiqst.kek.jp