

自律型機能の解明にむけたテーラーメイド  
光科学研究拠点計画

## 次期光源施設に関する基本構想

極限光オートノミー探究センター  
「省エネ小型高輝度放射光源 UVSOR-IV および各種実験ステーション」  
コンセプトデザインレポート ver.1

Conceptual Design Report for Future Light-Source Facilities:  
Research Center for Autonomous Functions by Tailor-Made Photon Science

2023年12月1日発行

## 目次

1. 全体概要	1
2. 科学目標	
2-1 複雑系・不均一系の科学	6
2-2 時空間ゆらぎによる自律型機能の可視化へ	8
2-3 光科学の現状と課題：生命分子科学を例に	9
2-4 複雑系の光科学：未到の手法開拓と装置開発	11
2-5 サイエンスケース：生物系について	
2-5-1 概要	13
2-5-2 標的事例（エネルギー輸送と代謝）	14
2-5-3 標的事例（液-液相分離）	18
2-5-4 標的事例（概日時計）	19
2-5-5 バイオ系の手法開拓	21
2-6 サイエンスケース：化学系について	
2-6-1 概要	23
2-6-2 化学反応ダイナミクス	24
2-6-3 易損傷試料への対応	26
2-7 サイエンスケース：量子・物質系について	
2-7-1 概要	27
2-7-2 マクロ材料からナノ・量子材料へ	29
2-7-3 機能発現の in situ 測定・operando 観察・超高速計測	30
2-8 分野横断型セレンディピティの創出	31
3. 計画の学術的意義	33
4. 計画の背景と経緯	38
5. これまでの活動実績	43
6. 戦略性と緊急性	49
7. 若手研究者等の人材育成	62
8. 計画の実施主体	65
9. 共同利用・共同研究体制	
9-1 個人研究から協働研究	68
9-2 産学連携	69
10. 建設地と予算案	
10-1 建設候補地	71
10-2 予算措置	72
11. 光源仕様	
11-1 放射光加速器について	73

11-2 挿入光源とビームライン .....	85
11-3 レーザー入射器と FEL の拡張計画 .....	87
11-4 光源加速器の代替案について .....	88
12 先端分析法仕様	
12-1 はじめに .....	90
12-2 放射光の空間構造・時間構造 .....	91
12-3 光電子分光、光電子顕微鏡 .....	100
12-4 軟 X 線イメージング .....	110
12-4-1 軟 X 線吸収分光・分光イメージング・共鳴散乱 .....	110
12-4-2 軟 X 線イメージング .....	111
12-4-3 SXM .....	114
12-4-4 CryoSXT .....	116
12-5 軟 X 線散乱・発光	
12-5-1 軟 X 線共鳴散乱分光 .....	122
12-5-2 軟 X 線発光分光 .....	127
12-6 軟 X 線オペランド分光 .....	132
12-7 軟 X 線磁気円二色性 .....	141
12-8 赤外線分光・イメージング .....	145
12-9 ガンマ線分光 .....	150
12-10 4重連アンジュレータ光源利用 .....	159
13 結言 .....	162
執筆担当者名一覧 .....	164



## 1. 全体概要

1 極端紫外光研究施設 UVSOR は 1983 年の初点から数え、2023 年に 40 周年を迎えた。今後の 30～50 年間の次世代への更なる展開を見据えて、大型設備である放射光源施設による共同利用・共同研究と学術推進の歩みを継続する必要がある、ここにコンセプトデザインレポートとしてまとめる。本構想の基本デザインについては、2018 年より重ねてきた議論を基に、2023 年の日本学術会議の未来の学術振興構想グランドビジョン「量子ビームを用いた極限世界の解明」に統括されたビジョン「複雑・不均一系の分子ダイナミクスに挑む量子光科学研究拠点の構築」、並びに文部科学省へ提出したロードマップ 2023 の設備計画「自律型機能の解明に向けたテラメイド光科学研究拠点」の申請書で議論されてきた内容にもとづく。

1900 年代から続く量子力学の発展に伴う光計測の進化の歴史は、結晶系の原子レベルでの精密な考察を目指し、今世紀のナノテクノロジーに表現されるように、多くの技術革新と共に進んできた。今やナノテクノロジーに表現されるように、我々の生活に欠かせない技術となっている。その後、人類の好奇心は留まることを知らず、より複雑で不均一な標的をいかにして理解し制御するかに移りつつある。1993 年、Ilya Prigogine の著書「複雑性の探究」により、「複雑系」という言葉が流行語になった。この複雑系は、エネルギーや物質の出入りによって新しい構造や機能が生まれ、物理法則から予測が難しい「散逸構造」と呼ばれる一般的な現象を指しており、生命活動にも強く関連する学際領域である。時を経て 30 年後の今、人類の好奇心は留まることを知らず、より複雑で不均一な標的をいかにして理解し制御するかに移りつつある。コンピューター計算能力の向上と観測技術の発展がその要因であり、時代の要請は「複雑なものをありのまま観測する」である。第一次ブームの流行語と似てはいるものの、その後 30 年経過した今は当時のような曖昧な概念ではない。

生物学分野は、複雑系事例の宝庫である。SPRING-8 をはじめとした高エネルギー大型放射光施設の発展により、複雑なタンパク質の構造解析が進み生物学をはじめとして多くの知見を与え続けている。しかし、例えば生物学の大いなる謎である「物質がなぜ情報を持つか」を理解するためには、これまでの緻密な構造解析法だけでは全く不十分であり、全く新しい機能解析法の開拓による複雑系ダイナミクスに関わる学理構築が求められている。そのために科学目標に沿って、現在持ちうる技術を駆使して光計測を挑戦的かつ革新的に発展させることに加え、光科学との分野融合による新たな学術分野の構築を強力にサポートする組織体制の構築という、光源や実験設備インフラストラクチャーのハードとワンルーフ研究教育支援環境のソフトの両側面による推進が不可欠である。複雑系の代表的な機能である「自律性」は、ゆらぎ・動的平衡物理として生命科学の多くの分野で発現するだけでなく、次世代量子マテリアル開発においてもその機能を理解するうえで重要視される学際的な共通項といえよう。

そこで次期 UVSOR 計画では、生命科学の重要課題であるロバスト(堅牢さ)と柔らかさが基礎となる自己修復能や環境応答性、エネルギー変換機能等をモデル標的とし、先端技術を駆使した挑戦的な光科学による量子計測によって困難な各研究課題を克服し、**10 年後の国際トレンドを主導できる中核研究拠点を目指す**。現在、生物学研究の主流は、時間・空間の各階層の構造学的な知見と、それらの相関情報を理論シミュレーションなどで繋げたマクロな機能の推察による展開である。この戦

略で得られる知見には限界があり多くの研究者が自律性機能の「真の姿」の理解を求めており、複雑系・不均一系の機能の因果律の理解に向けた抜本的な戦術転換が求められる。極めて挑戦的な目標であり、実現に向けては各分野の専門家が結束し大きな目標に向かって取り組む仕組みづくりが重要である。物理・物理化学と生物学や生命科学の連携はまさに超異分野融合とでも言うべきもので、協働作業のための人と技術の循環システムを新センター「**極限光オートノミー探究センター**」が担い、光科学を通じた自律性機能の翻訳によって為される、新学際領域「**フォトオートノミー科学**」の開拓を世界に先駆けて実現する。生命の理の深淵に踏み込むのはもちろんだが、生命は自然そのものが私たちに示している応用科学と言えよう。新奇物性の解明や物質開発にも、生き物たちから得た知見は役立つはずであり、生命科学の自律性を課題として開発される技術は、その他の物質系の計測技術として還元され新たな循環系を創出する。新センターが強力に超異分野融合を牽引し、生体模倣によって未来の材料開発に新たな価値観を生み出したい。

研究推進に不可欠なハードウェアとして、主体となるインフラストラクチャーはリング型放射光源とそれを利用した実験設備であるが、小型レーザー光源による実験ステーションや生命科学研究で必須な各種分析機器群を集中配備し、複雑系の必要設備群を岡崎キャンパス内に拠点集約する。放射光源としては、最適化された次世代の省エネ・高輝度小型リング放射光施設を敷地内に新たに建設する計画である。技術的にまだ十分に利用されていない波長帯の光や、新たに開発される超広帯域光の多元的複合利用によって新たな分子の表情を獲得し、自律性の光計測による新しい基盤学理を構築できる。また、放射光大国である我が国において、低エネルギー帯をカバーする小型施設は中型・大型施設では実施困難な研究課題を担うことができるため、学術性、国際競争や産業利用における相補的役割も持つ。40年の歴史をもち、3世代に渡り進化し続けてきた UVSORの強みである新規量子光ビームの開発や易損傷物質であるソフトマテリアルへの計測発展の成功事例をもとに、蓄積された知的資産を発展的に継承し、複雑系に挑戦的に展開することが有効である。具体的には、光の複合利用(マルチモーダル、マルチビーム、ビームアシストなど)により時空間階層を分離結合するクロススケール計測、あるいは階層横断的なトランススケール計測をはじめとした新規手法を開拓し、ゆらぎ現象の可視化により因果律をひもとくことで自律性機能のメカニズムの量子論的な理解を目指す。時間と空間の複合的現象である自律型機能の可視化には既存の諸手法では困難で、新規手法開拓が欠かせない。高輝度小型放射光と、小型レーザー光、自由電子レーザー光などの先端光源を最適化技術により安定的に供給し、テラヘルツ光、赤外線から真空紫外線、軟 X 線、ガンマ線にわたる超広帯域な光の複合利用による未踏の量子計測技術を開拓しつつ、多彩な光計測設備や各種分析器設備を自在に活用できる共同利用環境が構築される。また、我が国が主導してきた放射光・レーザー光による計測技術を軸とした学術発展の歩みを効果的に継承し次世代へ伝承する目的も無視できない。以上から、化学分野強化の基盤を担ってきた分子科学研究所 UVSOR 施設の計測科学ノウハウの継承資産と、自然科学研究機構の有する生命分子科学系の計測・分析技術と研究基盤を効果的・発展的にワンルーフで一元集約した新センターを発足し、国際的にユニークな「**分野の要望に応じてテーラーメイドに光を提供する**」光科学研究拠点を構築する。

一方、こうした手法や装置の開発能力をもつ若手研究者の育成は待ったなしの時期に来ている。学術系施設で培われてきた技術・人材資産は計画実現の重要基盤であり、マスタープラン 2020 で

進めている学術系放射光3施設間ネットワークを軸に、希少な技術情報や人材育成機会を国内共有し、コミュニティの連携を持続的に強化する。挑戦的な超異分野融合には、共同利用支援システムの運営体制の発展も不可欠で、効果的な研究活動を促進するために、生命科学で不可欠な専用試料調製準備室、汎用計測実験環境、倫理審査管理体制などを整える必要がある。集約された研究設備環境と研究機会を共有できる環境を最大限に生かすために、新センターでは「光道場」と名付ける育成プログラムの枠組みを設計する。光計測の階層トップでプログラムを牽引するオペレーターは学術界のマイスター「匠」である。このように大学共同利用機関が技術開発や人材育成の中心となり、超異分野連携を通じて困難な課題を打破するための大型設備の運営を行うことができる。

まだ光を知らない、光を使いこなせていないコミュニティがあり、多くの研究者と学生が存在する。こうした人々への研究支援や教育活動は自動的に、我が国の先端研究を担う人材問題の解決策へ誘うだろう。国内コミュニティの活性化はもちろんであるが、将来的にアジア近隣諸国、あるいはアフリカ諸国に新たな人材供給源を開拓し、国際連携を通じた新たな課題解決に取り組むことが可能となり、ひいては多くの国際社会課題の解決に向けた次世代の産業応用基盤創発に資することもできる。UVSOR-IV をベースにする小型放射光源による医療・創薬・食・環境・エネルギー課題等の研究推進のためのインフラ整備事例は、建設コストや運営観点から、こうした国々の良いロールモデルとなる

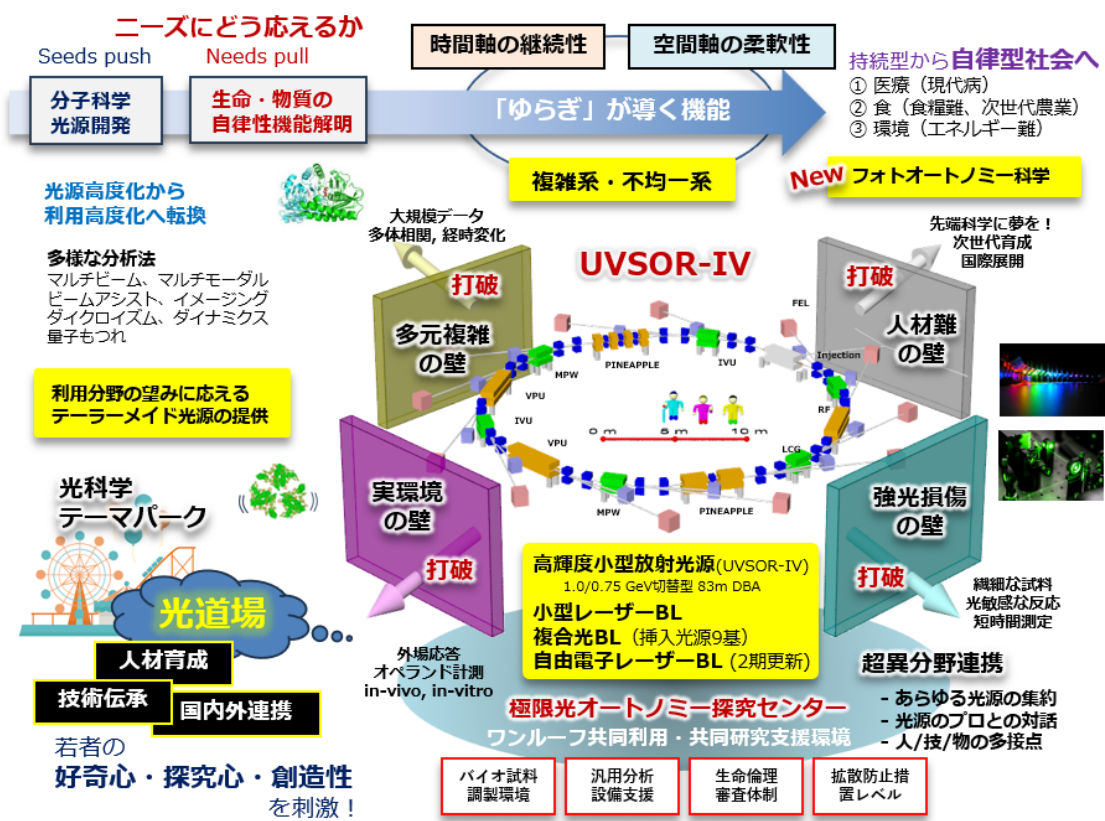


図 1-1: 多彩な光源をワンルーフ集約し、テラーメイドな高度支援環境の構築で困難な計測対象を克服し、総合性で各壁を打破し、新たな学際領域を新センターが切り開く

であろう。このように、UVSOR 次期計画は新たな放射光施設建設を軸にするものであるが、単なるいち組織の設備の高度化・高性能化を目指した施設計画では無く、新たな分野融合型の挑戦的な研究計画と捉えていただきたい。時代背景の生物学利用・複雑系計測に牽引されるニーズプル型の視点と、これまでの UVSOR の強みである光源開発力・分子科学やマテリアル科学の実績によるシーズプッシュ型が4輪駆動でドライブすることで初めて困難な科学目標を達成することができると確信する。化学分野強化の基盤を担ってきた UVSOR の装置開発の伝統と、光計測科学の技術と利用ノウハウの資産継承は我々の強みである。また、岡崎三機関の有する生命分子科学系の計測・分析基盤技術を効果的・発展的にワンルーフで一元集約できる地の利は極めて重要な因子である。次期計画の実施体制としては、大学共同利用機関の拠点機能を生かしつつ、光のヘビーユーザーを抱える連携機関を拠点ハブとして、ライトユーザーあるいはビギナーの利用障壁を排除し、一致団結の総合力で未来へ向かって共同利用・共同研究を強力に推進する。

### ・分野融合ニーズプル型の施設

- 1) **分野融合型研究が必要とする大型設備開発**: バイオイメージングのニーズの高まり
- 2) **研究ニーズ視点による光のテーラーメイド利用**: 緊急性の高い複雑系/不均一系の科学  
大型施設の担う「百貨店」要素と相補的な「専門店」要素
- 3) **ゼロをイチにするトライ&エラーの学術研究**: 小型施設の自由度と機動力は、大型施設ミッションの多様性機能とは相補的
- 4) **技術伝承と人材育成のためのワンルーフ研究環境**: ケミカルマシンに次ぐ分子科学研究所の第二弾拠点構築計画

### ・研究拠点構築へ向けて

- 1) **未踏の手法開拓で先端的な光計測を国際主導**: 光源のマルチ利用に挑戦し、光とバイオ専門家の協働による超異分野融合を目指す(トライ&エラーの研究環境パッケージが前提)、光科学以外の周辺研究環境の総合性が不可欠(試料作製・分析・解析・コーディネーション)
- 2) **地域性と研究資産(人と装置)による課題突破**: バイオ分野と放射光分野のオールジャパン体制と、UVSOR の歴史的資産である真空紫外線・軟 X 線を光プローブとした分光・顕微・回折諸手法による有機・無機ハイブリッド系の構造・電子物性計測ノウハウの蓄積を活用
- 3) **光源ファシリティの新しいあり方を具現化するセンター**: 進化し続けるファシリティとして、時代毎にミッション定義し学術創発する仕組みを完成。ユーザー要望に即したテーラーメイドな光を提供(光の利用高度化、最適化、戦略特化型)。光源施設と複合設備のワンルーフ環境により課題克服(放射光とレーザー光の共生融合)。放射光利用実験で築かれた共同利用・共同研究スタイルの拡張(レーザー設備の共用化でコミュニティ拡大)。
- 4) **長波長帯域の光源の希少性と成熟期にある技術開発**: 高輝度化の光源性能追及の時代から、データ出力に注視する時代へ、データの量と質、効率性と安定性(目的特化のスピード感で新分野開拓へ)。国際的に希少となる波長域の技術開発の持続性を担う。

## ・生物学を軸に国際トレンド創発へ

- 1) **バイオイメーjing手法の世界的な開発競争**: 微視構造や集合体構造の情報だけの研究は10年程度で行き詰まる懸念
- 15 2) **刻々と変化する生物の新しい表情の獲得・現象発見が不可欠**: 機能生物学の発展が今後の研究ターゲット. 生命の理解には各階層の構造学だけでは困難で階層横断計測へ. 使われていない波長帯の光があり、見ることができていない現象や対象がある
- 3) **新たな手法開拓に向けたニーズとシーズの分野融合が必須**: この数年で装置開発と試料調製の技術が進み、計測実現性が高まって国際的にブレイクしうる時期. 国際的に稀有な研究環境を構築し困難課題を打破する.
- 4) **自律性機能の解明を足掛かりに次世代の生物学の起点へ**: 複雑系や不均一系の重要機能のひとつである自律型生命機能のメカニズム解明とその制御を目指し、岡崎地区がハブ拠点となりオールジャパン体制で新たな学際領域「フォトオートノミー科学」を分野創発
- 5) **バイオ系に発した光科学の逆循環サイクル**: 現象の宝庫である生物系で開拓される手法をその他の分野へ技術フィードバックする新たな潮流を創出.

## 2. 科学目標

### 2-1 複雑系・不均一系の科学

光科学の先鋭化と放射光源ユーザーの裾野拡大の両立へ向けて、歴史的に化学分野強化のために運用してきた UVSOR の 40 年におよぶ研究環境資産と基盤技術を効果的に継承する。量子力学の誕生と共に、1900 年代から進化してきた計測科学の歴史を振り返ると、結晶系の原子レベルでの精密な解析と緻密な議論を目指し、多くの技術革新と共に光科学が発展してきた。今やナノテクノロジーに表現されるように、様々な分野で我々の生活に欠かせない技術となっている。その後も人類の好奇心は留まることを知らず、より複雑で不均一な標的をいかにして理解し制御するかに移りつつあるといえよう。1993 年、Ilya Prigogine の著書「複雑性の探究」により、「複雑系」という言葉が流行語になった。この複雑系は、エネルギーや物質の出入りによって新しい構造や機能が生まれ、物理法則から予測が難しい「散逸構造」と呼ばれる現象を指しており、生命活動にも強く関連している。90 年代当時は、理論予測に先行ないしは並行して実験研究を進めるのが理想であったが、当時の技術では挑戦的な実験に対して個別の成功事例はあれど、学術分野として成熟するまでには至らなかった。時を経て 30 年後の今、複雑系研究が再び注目されている。計算能力の飛躍的な向上と観測技術の発展がその要因である。第一次ブーム時にはなしえなかった「複雑なものをありのまま観測する研究」が現実なものとなってきたと言えよう。

長期的な学術の持続的発展を意識し、2030 年代に目指す科学目標として、複雑系・不均一系の量子光科学の学術基盤の構築を掲げる。広く分子ダイナミクスや次世代量子マテリアル、環境科学分析の知見を深めるために不可欠な光計測の発展を目指すものである。特に生物学分野は、複雑系事例の宝庫であると言えるが、SPring-8 をはじめとした高エネルギー放射光施設の発展によりタンパク質の構造解析が進み、続々と多くの知見を与え続けている。しかし、例えば生物学の大いなる謎である「物質がなぜ情報を持つか」を理解するためには、これまでの緻密な構造解析法だけでは全く不十分であり、全く新しい機能解析法の開拓が求められている。代表的な機能である「自律性」は、ゆらぎ・動的平衡物理として生命科学の多くの分野で発現するだけでなく、ミクロの物理・化学の分野では「秩序・マルチフェロイック」、マクロの環境・社会の分野では「持続性・共生・復元力」につながる学際的な共通キーワードとして捉えることができる。

具体的な光計測の目標としては、特に国際的に未開拓な、軟 X 線(SX)から真空紫外線(VUV)帯域のコヒーレント光源の利用による光の時間構造・空間構造を駆使した斬新な手法開拓と装置開発が求められている。まだ人類が使いこなせていない上記波長域を用いて、複雑系・不均一系の階層横断的な構造学への発展に向けた手法開拓と装置開発は必須であるが、さらに先駆的に国際トレンドを創発するためにも、挑戦的に新たな機能学のための新規手法開拓を目指す必要がある。生物学や生命科学、量子材料等の複雑物質系を中心軸に添え、1)構造学を深化させる定量的な計測の実現。2)まだ見ることができていない空間スケールの可視化を目指した階層分離的なクロススケール計測と階層横断的なトランススケール計測の実現。3)時間空間のゆらぎ構造とそのダイナミクスを光で意図的に制御し相関関係を視る、あるいは複雑系の状態をあるがままに視ることのできるライブ



イメージング手法の開拓を狙う。このためには、UVSOR の強みである新規光源技術の開発能力を強化した、多彩な光の複合利用によるイメージングや、in-situ その場観測(in vivo インビボ, in vitro インビトロ, operando オペランド)計測法の高度化・高機能化が求められる。こうした挑戦的量子計測をもとに動的平衡(非平衡現象)や超秩序状態の科学を切り開き、ユーザーと共に本科学目標達成を目指す。具体的には4つの挑戦的手法開拓、1)水の窓を克服した in-vivo, in-vitro 計測、2)オペランド複合多元イメージング、3)角運動量制御とダイクロイズム計測、4)量子もつれ現象と光計測、を実施する。本章では、主たる分野毎に、こうした光計測を元にしてサイエンスケースを検討した。これまでは無機物の計測を軸にして、より複雑な物質系へ発展応用させる展開が多くみられたが、今後は複雑系の宝庫であるバイオ系のニーズから生み出される手法や装置を、還元的に無機複雑物質群に適用する新たな循環サイクルを構築する。例えば、生物系で不可欠な「水の窓」の利用は、水溶性材料や環境材料への光計測技術においても極めて有効である。また、マルチビーム利用による構造と機能を繋ぐ複合情報の取得は、こうした物質群を理解するうえで人類が乗り越えるべき大事な一歩である。

17

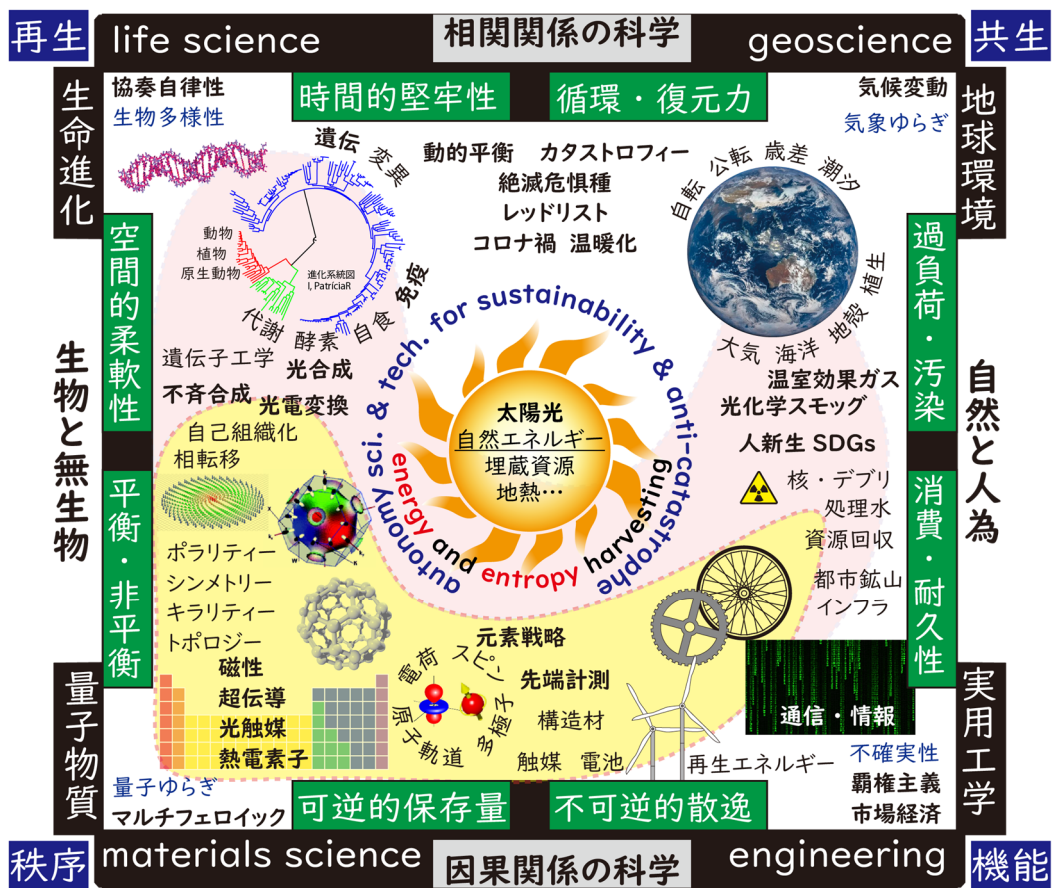


図 2-1: 将来計画として UVSOR が目指す複雑系・不均一系の光計測により切り拓かれる学術分野と社会還元される産業分野。従来の UVSOR-III にて対象としてきた領域を黄色で、UVSOR-IV で展開する対象を桃色で示した

## 2-2 時空間ゆらぎによる自律型機能の可視化へ

自律性(オートノミー)は広く学際領域を横断する共通項であり、生物系においては特に堅牢性(ロバストさ)と柔らかさの同居による自律性が深淵なる生命の諸機能の基盤となる。例えば、生物学的なエネルギー生成と代謝、自己組織化、自己修復・再生メカニズム、弱相互作用とシグナル伝達、環境応答性など多くの重要課題が知られる。また物質系(有機材料や無機材料)においても、自己組織化による表面界面構造の成長や、最近では量子マテリアルとして期待される、スキルミオン(磁性の渦)による情報伝達デバイスや、新物質概念として提唱された非平衡物質である時間結晶の概念が関連する。また蓄放電に伴う電池の構造劣化の修復機能、表面被毒除去による触媒の活性の回復、価数揺動化合物を用いた熱電変換素子など、物質・材料における復元力は生態系の自律性にも通じ、機能開発の要となる。

そこで自律性の探査試料の宝庫であり、かつ光科学による研究展開が未開拓で周辺波及効果が高く期待できる生物学分野をターゲット重点フィールドとし、量子計測科学による自律型機能のメカニズムの解明とその制御を目指す。こうした複雑系に適した先端手法開拓は異分野の専門家の叡智と先端技術の集約による学術研究環境の構築が不可欠で、大型施設を基軸とした共同利用支援型の研究活動システムが重要である。バイオ系における光科学の展開は多くの研究者に新たな視野を提供し、自律性の新たな知見を獲得することで、生物物理学の飛躍的な発展が期待され、更には

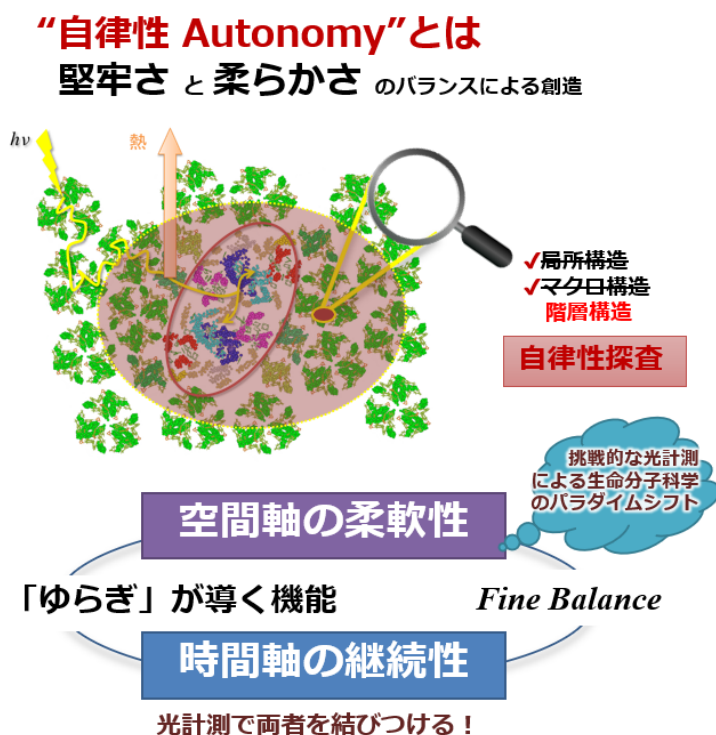


図 2-2: あらゆる物質群に展開可能な広範で学際的共通項である自律性



生命の理に関する深淵な世界に踏み込むことができる。一方で、自律型機能の生物界の進化に学ぶことで、人工的な機能創出における最適化、既存の物質科学の自律型機能イノベーション、生体模倣マテリアルをはじめとした環境適合材料の創出など、循環型サイエンスを通じた融合学際領域の基礎学理となる新たなフォトオートノミー科学の分野構築を誘う。

## 2-3 光科学の現状と課題: 生命分子科学を例に

特に生命の神秘と謎を解く過程で、細胞内の複雑な各要素それぞれの構造の研究は着実に大きな発展を遂げてきた。ゲノム、タンパク構造の解明が国家プロジェクトとして世界的に進められ、現在は、最後の重要ピースとして糖鎖の構造解明とデータベース構築が進められている(ヒューマングライコム PJ)。こうした構造学を起点とした研究で、その背後に潜む科学標的が明白になった今、迎えるサイエンスは生物機能学である。空間的(ナノ、メゾ、マクロ、ミリ)また時間的な(フェムト秒、ナノ秒、ミリ秒...)階層を分離した計測だけでは、多様で複雑な機能は解明できない。生物学のうち、光機能など超高速現象については、物理学・物理化学的なアプローチが有効で既にいくつかの先駆的成果が発信されている。一方で、構造スケールとしてもメゾスケール(数 10 nm から 数 100 nm)など、アプローチできていない空間サイズがあり、評価手法の開拓が求められる。あるいは分子レベルの化学分析イメージングによる微小元素の濃度や数の定量的評価も需要が高い。また時空間の階層横断的な現象をトランススケールあるいはクロススケールで光計測することで、機能発現のメカニズムを紐解いていくことが挑戦的な科学目標となる。そのためには各要素技術の深化が必須であり、特に多くの要素技術が成熟期にある光科学を駆使した未到の手法開拓と、科学目標が明確になりつつある生物系のための新たな装置開発を目指すタイミングにある。新たな特性をもつ光源の開発や、その

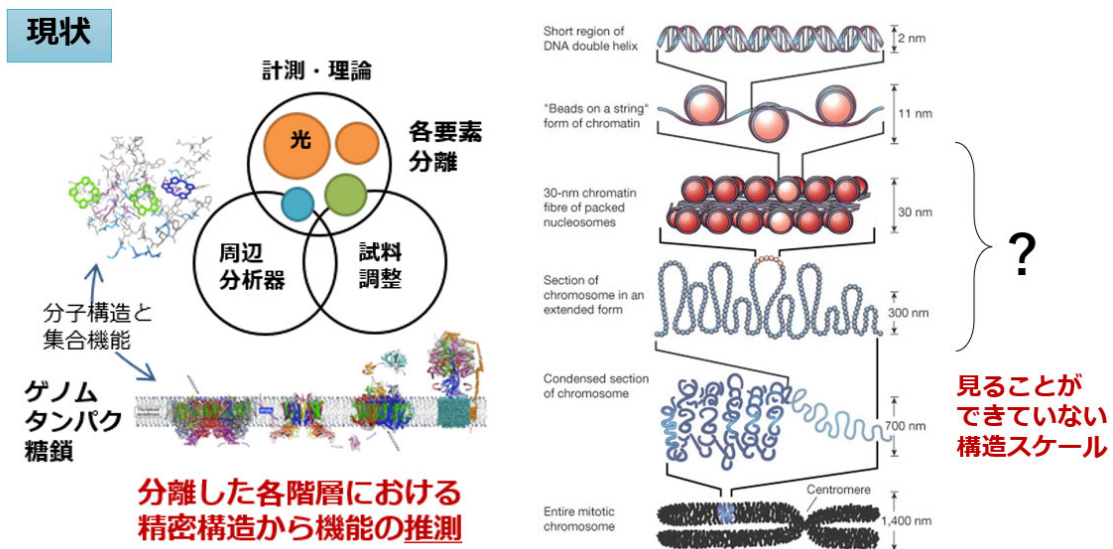


図 2-3: 複雑系の例としてバイオ分野におけるこれまでの研究展開  
[Nature 421, 448 (2003)より引用]

利用は UVSOR 施設の強みであり 40 年にわたる実績がある。光の複合利用は、今まさに世界中でアイデアの検討と計測実証の試みが始められている段階であり、人員・予算・設備の集約により、我が国発信で世界のトレンドを創出する仕組みを作ることが求められている。

先端光源の利用について、放射光では、構造学に適した短波長で空間分解能に優位性のある硬 X 線による従来の回折実験に加え、国際的に手法開拓と装置開発が進められており、高輝度コヒーレント光源利用による位相干渉法やトモグラフィー法による新たな構造解析が日々発展中である。しかし単一分析の構造情報だけでは階層横断的な複合現象である自律型機能の理解には程遠い。一方、無機物質系の研究では、その機能や物性評価として非常に強力な光波長帯である軟 X 線(SX)や真空紫外線(VUV)領域の光が既に広く活用されているが、バイオ系試料への利用は、放射光科学の長い歴史においても一部のテスト事例にとどまっており、技術的障壁を排除し広く一般的計測法としての普及が今後の課題である。主たる理由は、生きた「水環境」を重要な条件とするバイオ系試料の機能発現環境が、「真空環境」を標準とするこれらの波長帯(SX, VUV)の計測環境と親和性が低い点、また複雑系を適切にモデル化することによる物理化学的な研究視点が未開拓である点が挙げられる。近年、各波長帯で光源と計測設備の適切な調整技術が急速に進展し、試料マッチングの難しさも適切な試料セル構築などによって、低減されるようになった。言わば、かつて先人たちによって挑戦されてきた光計測を改めて現代の技術と知見を基に再構築し、装い新たに再挑戦する良いタイミングである。

一方、レーザー光源は放射光に比して極めてコンパクトな実験環境の構築が可能であり、近年、様々な分野において個人型研究の発展が目覚ましい。赤外線(IR)や可視光線(vis)では市販レー

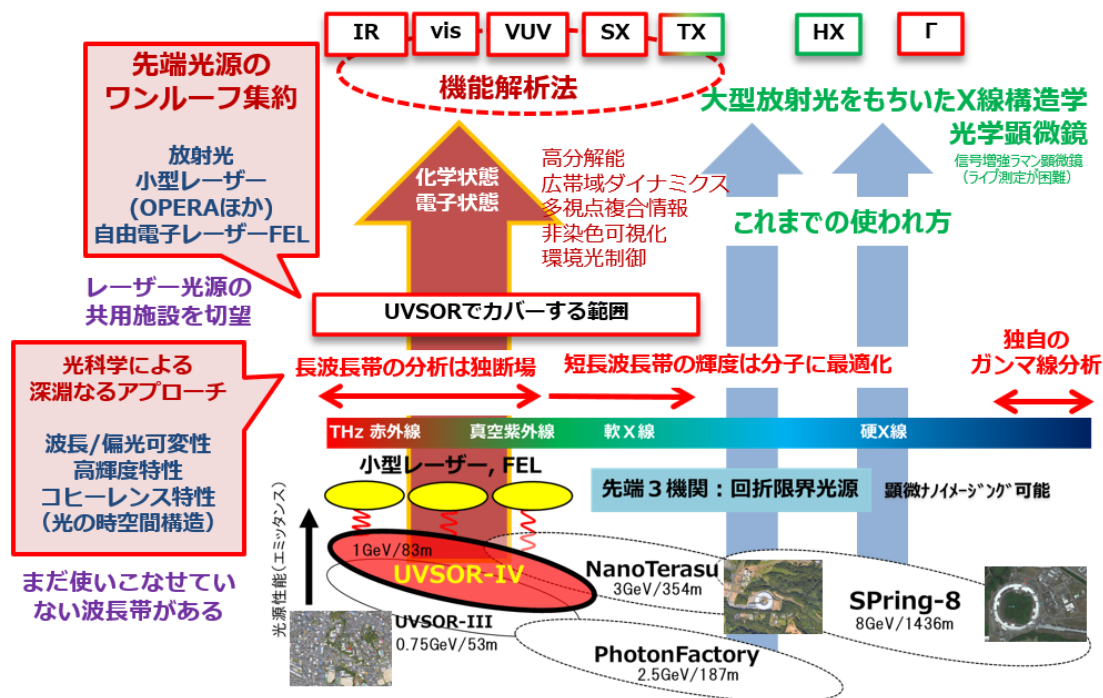


図 2-4: 放射光大国として先端 3 施設が全ての波長帯をカバーすることで国際主導する。UVSOR では小型施設ならではの研究機動力による斬新な研究活動が行われてきている。多様な波長帯のマルチビーム利用は前例が無く挑戦的であるが、叡智を集結し、世界に先駆けて困難技術の開発を目指す

レーザー光源が手軽に使える時代になり、コヒーレントラマンイメージングなど先端計測法が開発され、生命系の複雑な構造ダイナミクスを理解するうえで重要なツールとして広がりつつある。しかし依然としてより長波長帯のテラヘルツ、あるいは短波長域の VUV、SX 波長帯はレーザー光源の安定性や波長可変性の技術的障壁が高く、光計測を専門としない多くの研究者が、気軽に利用できる研究環境が極めて限られている。それでも、こうしたレーザー光源をベースとする先端イメージング手法は国際主導する連携機関の協力をあおぎ、新センターにおけるワンルーフ集約設備によるコンソーシアム体制を導入する。本機構における共同利用・共同研究の支援システムを効果的に拡張することで、レーザー光源ベースの実験についても国際主導できる研究環境が実現する。さらにレーザー光源は放射光源には無い、小型汎用性と高い時間構造特性を誇ることが最大の特徴である。本計画では放射光設備に積極的にレーザー光源を付帯させ、新規手法開拓の戦術としてレーザーの波長不連続性を放射光で補い、放射光の時間軸範囲をレーザー光で相互補完する。それぞれの光源特性をユーザーの求める研究テーマに適切に供給できる高度研究支援環境を世界に先駆けて構築することが目的である。

また、第3世代放射光の光源性能の最適化と安定化を目指した設備高度化が進められており(第3.5 世代あるいは第4 世代と呼ばれる)、その特徴である波長連続性と偏光可変性を積極的に利用するマルチビーム・マルチモーダル計測の実証実験や次世代の標準計測法として世界中の更新計画で提案されつつある。各分野のニーズの先鋭化によって、光科学計測の次世代シーズが見えてきたともいえる。本計画では、日本の放射光大国としての先行投資を無駄にせず、大・中・小型施設であらゆる波長帯性能を担保し、あらゆる学術展開にも国内で対応できる研究環境を将来にわたって持続する使命を果たす。

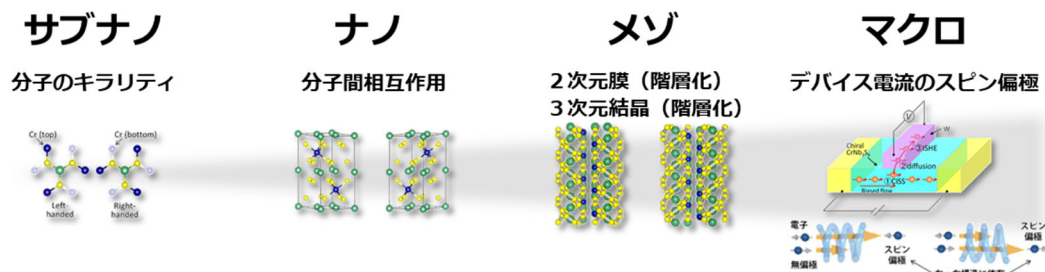
## 2-4 複雑系の光科学:未到の手法開拓と装置開発

これまでに UVSOR の強みとして進めてきた新たな量子ビームの開発や易損傷系であるソフトマテリアルへの国際水準の技術到達点をシームレスに継承し、現在人類が保有する光計測の先端技術を総導入する。高輝度小型リング放射光施設を軸に10年後の光科学の世界トレンドを獲得すべく、複雑系に特化した挑戦的先端分析法を開発する。小型放射光施設はその設備そのものが開発技術要素をもつ「常に進化し続けるファシリティ」である。あるいはその自由度(俊敏性、柔軟性、利便性)があることで初めてゼロをイチにするような光源技術や手法開拓が可能とも言える。大型放射光施設のように、多様性を担保するために最大公約数的に設計され、安定したインフラ設備をもとに先端実験環境を提供する施設とは大きく異なる。大型施設の百貨店的な特徴と小型施設の専門店的な特徴とも言える。小型施設を基軸とすることで10年スパンで時代背景ごとに先行投資すべき重点学術テーマを見定め、フットワーク軽く持続的に大型インフラを運用できる学術系施設の強みを生かした計画といえる。小型放射光施設の得意とする長波長帯の光と、同じく技術的に成熟した長波長帯のレーザー光を機能集約し、成熟した光源群としての最適化と安定化運用により、所望する光特性を自在に利用して(テーラーメイド利用)、ユーザーニーズに応えるとともに光科学を共同研究展開する

世界初の共同利用研究施設となる。今までの単色(波長)実験では見えなかったものを視るための新たな波長利用としての広帯域光(放射光とレーザー)整備が不可欠である。光の複合利用(マルチモード、マルチビーム、ポンププローブ、ビームアシスト等)により、これまで実施できていない階層横断的な知見を得ることで、複雑系・不均一系の俯瞰的視野による機能評価が実現する。本計画の科学目標である時間と空間の複合的現象である自律型機能を可視化し、その根源を量子論的に解明するために欠かせない研究設備群が新センターに集結する。生物分野や量子材料等の複雑物質系を中心軸に見据え以下の手法開拓を目指す。

- 1) 構造学を深化させる元素分布や構造体分布の定量的な計測の実現
- 2) 未踏の空間スケールの可視化を目指した階層分離的なクロススケール計測と階層横断的なトランススケール計測の実現
- 3) 時間空間のゆらぎ構造とそのダイナミクスを光で意図的に制御し相関を視る、あるいは複雑系の状態をあるがままに視ることのできるライブイメージング手法の開拓

### 階層を超えた因果律が顕在化する例



**キラル分子スピントロニクス**：分子（サブナノ）のキラリティを制御することで、それらが3次元的に階層化されたデバイス（マクロ）中を流れる電子のスピンの向きを自在に操作することができる。



**概日時計**：僅か1種類の時計タンパク質KaiC（サブナノ～ナノ）のATP加水分解反応速度が2倍になると、細胞リズム（メゾ～マクロ）の周波数も2倍になる。

図 2-5: 光合成以外でも、階層横断的なクロススケール計測が有効な他の事例。例えば、概日時計 24 時間サイクルのタンパク同士の連携活動の仕組みを量子論的に理解する。またキラリティの階層制御も同様の課題解決が有効である

## 2-5 サイエンスケース:生物系について

### 2-5-1 概要

13 生物学は自律性機能をはじめとした複雑系計測のターゲット宝庫である。例えば、よく知られた光合成のエネルギー変換と輸送について考える。最先端の放射光施設を用いた精密な構造解析によって、各タンパク質の詳細な構造は解明され、光エネルギー変換に重要な金属イオン周辺の化学情報も得られ、その謎は解けたかのようなのである。しかし例えば植物の葉が示す、太陽光の強さに応じて発電環境を変え、エネルギーを効率的に利用する生物の自律性は不明なままである。絶え間ない揺らぎの中にありながら、光によって得たエネルギーはどのようにして細胞中の反応中心への方向や道筋を知るのか？外界の変動に晒されながら必然的に生じるエラーを織り込み済みの動的なシステムが、いかにして選択的な機能を創発しているのか、メカニズムの表現を理論シミュレーションに頼らない、挑戦的な光計測による実験事実に基づいた物理化学的な原理の模索が求められる。同様の事例が、エネルギー生産と代謝(硫黄呼吸、光合成)、自己修復メカニズム(物質交換、記憶)、環境応答(生体リズム)、シグナル伝達(相互作用、液液相分離)など多岐にわたり見出される。これらの理解には、既存の計測法の高度化に止まらず、生物機能学に繋がる全く新しい技術による斬新な計測手法の開拓が必要不可欠である。またこうした機能学(フォトオートノミー科学)が確立することで、その先には例えばまだ機能が見出されていない分子(タンパク質や糖鎖など)の理解や、逆に意図的な機能をもつ分子の合成も可能となるであろう。今後も精密な構造解析にもとづく研究が進むと思われるが、その先に来るべき複雑系の光科学の研究展開を予測し、本計画のワンループ集約された研究拠点によって国際的に新たなトレンドを創発する。テラーメイド光源群と生物学に不可欠な実験準備環境を整え、岡崎三機関の生物学の研究者集団がコアとなることで極めて効果的にこの目的を遂行できる。これまでの UVSOR で培われてきた分子系の光計測ノウハウと、集約された研究拠点による異分野融合が、極めて挑戦的な科学目標に対して、その突破口を開くと期待するものである。

ライフサイエンスの多くの研究課題があるなか、自律性に代表されるような機能をひも解く新規機能解析法の手法開拓と新規装置開発および既存装置の高度化が不可欠である。後述するが、突破口として、例えば各重要タンパクの細胞内における階層横断的なトランススケール計測による、相対位置関係と機能制御の因果関係を捉え、各種機構を理解することが必須である。UVSOR の強みである光渦などの量子ビームが活躍する。また階層分離情報としても未開のメゾスケール(100nm~1 $\mu$ m)の分布密度計測が求められる。後述の、軟 X 線を用いた共鳴散乱分光法が有効であると考えられる。また熱や圧力などによって、人為的なゆらぎ制御を試みることで状態変化を観測することを検討する。例えば 2 種の波長光 AB を同時照射するシステムを構築する。制御光 A として、任意の制御したい物質に応じた波長を選択し、渦光として照射する。別の波長の光 B(軟 X 線あるいは VUV 線)でその状態変化を同時ないしは逐次的にモニターすることで検証できる。光の複合利用には4重連アンジュレータ機器が利用できる。どのような物理現象をどのような時間・空間スケールで見ると、現状の統計学的な相関計測を打破し、因果律を直接的に計測するアイデアが肝であり、全体の俯瞰像と詳細像の同時計測が効果的である。いずれにせよ、ニーズプルの前輪駆動の視点が不



可欠で、その科学目標のために必要とされるツールと研究の方法論の構築が求められている。もちろん別の視点では、これを支えつつ強力に後押しするための後輪としての実績による裏付けが不可欠であり、これまでの UVSOR の特徴的活動である量子ビーム開発と分子科学・マテリアル科学研究が両輪となる。超異分野融合の成功に向けては、研究者が日常で使う言語や思考過程の違いもあり、表層での協力関係では困難な課題解決は決してなしえない。ワンルーフ研究環境における異分野融合により、新たな一步を踏み出していくことが不可欠である。多岐にわたる生物学であるが、以下にケーススタディを例示する。各分野の発想転換に繋がれば幸いである。

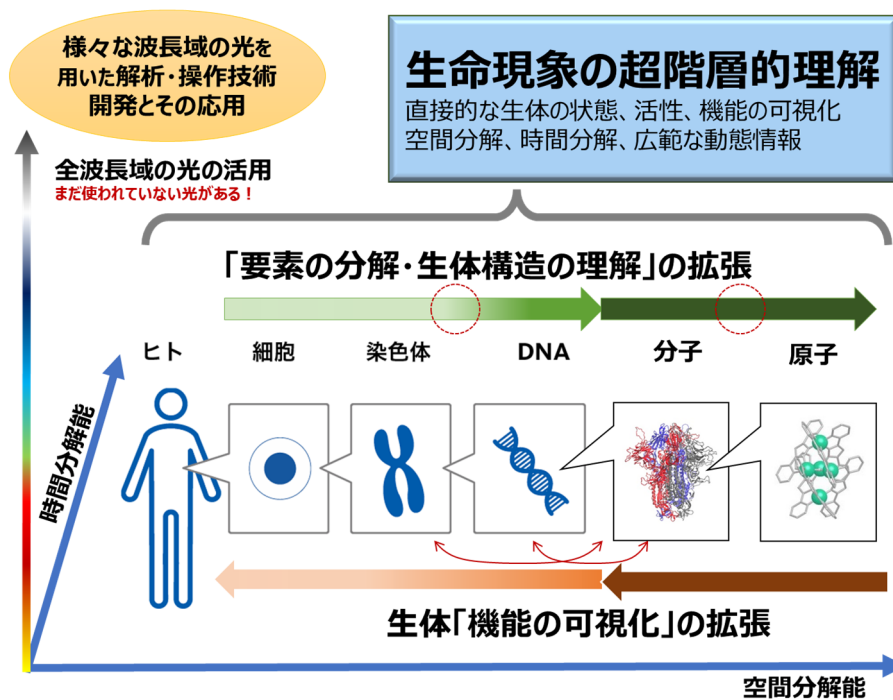


図 2-6: 階層横断的な現象をひもとき機能の源を知る。まだ計測できていないスケールの構造体があり、各階層を繋ぐ情報が不足している

### 2-5-2 標的事例(エネルギー輸送と代謝)

米国エネルギー省は、2007 年の報告書 “Directing Matter and Energy” において提示した Grand Challenges にもとづき、新規エネルギー材料・技術の基盤構築に向けた複数のプログラムを展開している。なかでも、量子効果により発現する物質機能やその制御技術の研究が精力的に推進され、光合成タンパク質内におけるエネルギー輸送や電荷輸送など「常温かつ乱雑な環境にある量子効果の役割」について学術が大きく進展し、欧米の量子物理学者を強く刺激し量子生物物理と呼ばれる新領域が隆盛する契機となった。一方で、量子生物物理の対象として精力的に研究された光

合成初期過程においても、分子・物質科学としては手つかずの学術的に重要な問いに直面する：

- ・ 指向性： 比較的穏やかなエネルギー勾配・小さなエネルギー収支を持ちながら、一方向性を持った振る舞いによって、ほぼ確実に所望のエネルギー輸送・変換、物質変換を行う。
- ・ 環境適応性： 外界の変動に曝されることで必然的に起こるエラーに対しては、自己の状態に非線形に応答し、自己の機能を自律的にスイッチさせることで適応し、頑健性を保つ。

| 15

このような、外部からの制御に依らずとも発現する指向性・環境適応性といった自律機能、そして、エラー耐性を備えた分子・物質システムの構築原理の理解は、自然が見せる巧妙な動態の探究に留まらず、省エネルギー社会実現を支えるサステナブルな機能性デバイスを創出する鍵となる。

光合成の初期過程では、反応中心タンパク質に内包された複数の色素分子を電子が流れ、20 Å以上もの長距離を数十ピコ秒という短時間で移動する。この過程は、電子移動(正反応)に比して電荷再結合(逆反応)の反応効率が1/1000以下という驚異的な指向性を示す。この指向性の起因として、電子移動に関与する分子近傍のタンパク質が構造変化することにより電荷再結合を抑制することが示唆された [1]。一方、自然環境下において太陽光強度は刻一刻と変化する。強光条件では、過剰に吸収された光エネルギーが活性酸素などを生成しタンパク質を損傷させる。この防御のため、光捕集タンパク質に内包されるクロロフィル近傍には光エネルギーを熱として散逸できるカロテノイドが結合している。光合成系では光反応と細胞内の pH 低下が連動し、強光時に過剰な光反応が進行すると光捕集タンパク質がプロトン化されて構造変化が生じる。これによりクロロフィルとカロテノイドの相対配置が変化し熱散逸能が強化され、反応中心タンパク質へ流入するエネルギーが減少することにより光合成系が安定化すると考えられている。つまり、光反応が反応媒質に摂動を与えて性質変化を引き起こし、反応系へとフィードバックすることで光反応の効率や経路を制御している [2]。反応系と反応媒質が連携した巧みな光反応制御であり、自律機能の発現機構を理解する上で重要な知見・洞察を与える。

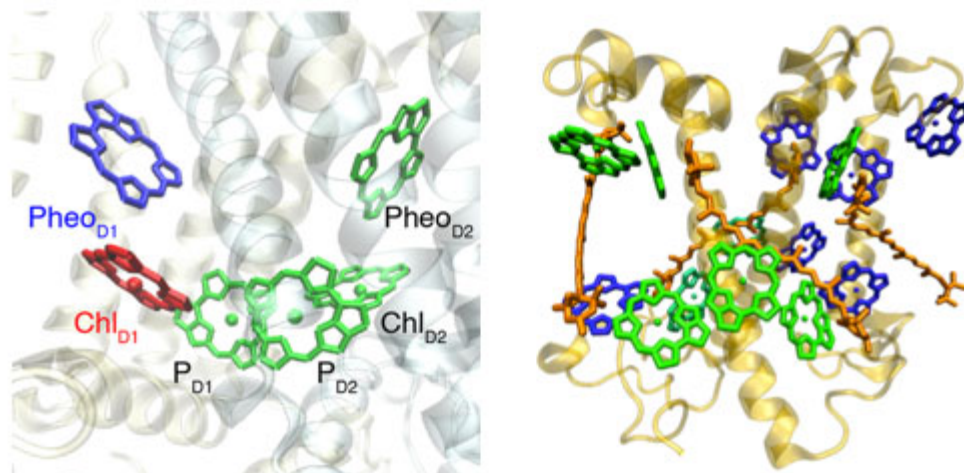


図 2-7: 光合成の残された謎

次に、エネルギー代謝として硫黄呼吸を例に光計測の展開を探る。原始の海で誕生した生命は、現在の熱水噴出孔に棲息する化学合成細菌と同様のエネルギー代謝、すなわち、硫化水素やメタンを電子供与体として利用したと考えられている。また、原始的な光合成生物は、現在の紅色硫黄細菌や緑色硫黄細菌と同様に、水より簡単に電子を取り出せる硫化水素を利用していたと考えられる。その後出現したシアノバクテリアが、進化した光合成系により水を電子の供給源として利用し始めたことで酸素が大気中に蓄積し、その結果、酸素を利用して効率的にエネルギー代謝を営む生物が繁栄するに至ったとされる。このように、硫黄は、酸素が地球上に出現する以前に生命のエネルギー代謝において中心的な役割を担い、環境変化によりその役割を終えたとされてきた。ところが、最近の研究により、酸素呼吸に依存するヒトやマウスなどの高等動物においても、硫黄に依存したエネルギー代謝が依然として旺盛に営まれていることが明らかにされてきた。これは、生体における超硫黄分子(硫黄原子が複数連なった電子授受能に富む活性分子群)の発見とその主たる産生酵素の同定から明らかになったものであり [3]、現在の教科書に記載のない新知見である。硫黄呼吸とは、超硫黄分子の存在を考慮して初めて解明できた生命現象であり、生化学・生物学の歴史的な転換につながる新概念といえる。

硫黄は酸素やセレンとともに、周期表の第 16 族に属する元素である。現在多くの生命がエネルギー代謝において利用する酸素に比べて、硫黄は第一イオン化エネルギーが小さく、電子親和性は大きい。これは、硫黄が酸素よりも電子を放出しやすく、かつ、電子を受け取りやすいことを意味する。セレンは、さらに原子量が大きく電子軌道が広がることから、より電子の授受をしやすくなる。セレンが持つこのような性質を模倣しているのが超硫黄分子であるといえる。超硫黄分子とは、直鎖状に連結した硫黄原子を含む硫黄代謝物の総称である。このように同種の原子が直鎖状に連結している状態はカテネーションと呼ばれる。最も典型的なのは炭素原子であり、有機化合物の多様性を支えている。硫黄もカテネーションを形成するが、これまで生体におけるその実態はほとんど知られていなかった。なぜなら、硫黄が酸化還元を受けやすい元素であるため、硫黄カテネーションは測定時の操作により容易に分解してしまうからである。しかし最近、分解を最小限にとどめて、超硫黄分子を精度よく定性・定量できる画期的な質量分析技術が開発され [4]、超硫黄分子が  $\mu\text{M}$  オーダーで生体内に豊富に存在することが明らかにされた。超硫黄分子は電子の授受能力に極めて優れており、求電子性と求核性、両方の性質を有している。したがって、周囲の pH や相互作用する相手分子の性質により、多様な反応を起こすことができると予想される。最近では、金属ナノ分子カプセルを用いた  $\text{S}_8$  (8 つの硫黄原子が連なり環状構造になった分子) が生細胞内に豊富に存在することも明らかにされ、その局在や生理的意義の解明が新たに注目されている。

超硫黄分子は、システインパースルフィドやグルタチオンパースルフィドなどの低分子代謝物として存在するとともに、タンパク質のシステイン側鎖にも硫黄カテネーションを形成した状態でも存在する。したがって、従来の生命科学では考慮されてこなかった超硫黄分子の化学的・物理的性質の理解に基づく新たな生物学では、エネルギー代謝、シグナル伝達、遺伝子発現などに加えて、タンパク質の翻訳と成熟、金属配位子結合、翻訳後修飾、輸送、品質管理を含むタンパク質科学に大きな変革をもたらすことが必至である。これはとりもなおさず、発生・分化、細胞増殖・細胞死、恒常性維持・ストレス応答、発がん・老化など、様々な生命現象全般において、これまでの常識を覆す新しい分子



基盤が明らかになることを意味する。実際、上述のエネルギー代謝以外に、学術変革領域(A)「硫黄生物学」では、これまで理解できなかった生命現象に次々と新しい解答が出され始めている。

超硫黄分子という用語は日本人研究者が作り出した造語であり、世界中の研究者に認知されるにはまだまだ多くの知見の積み上げが必要な若い学問領域である。我が国における超硫黄分子研究の裾野を広げ、我が国発のさらなる成果を得るためには、超硫黄分子の計測基盤技術の確立と普及が必要不可欠である。生体を構成する細胞や組織・臓器からタンパク質や無機化合物を抽出して、質量分析により定量的に超硫黄分子を同定する技術は複数の機関で構築されてきたものの、生細胞・生組織における超硫黄分子のダイナミクスを計測する技術に関しては、蛍光指示薬を用いた間接的なイメージング法しか確立できておらず、決して十分と言えない。超硫黄分子の同化(anabolism)や異化(catabolism)の制御機構やその生理学的意義を明らかにするためには、定量性に富むイメージング技術の開発が必要であり、UVSORはその実現に資するリソースとなりうる。

「生命とは何か」を読み解くうえで、中間代謝系の理解は極めて重要である。システミックなレドックス・エネルギー代謝の中間代謝体としての超硫黄分子の定量的可視化は、タンパク質分子レベルにおいては、システイン側鎖の超硫黄化・脱硫黄化による機能修飾やそこを標的とする新規創薬技術開発への応用が期待できる。生細胞・個体レベルにおいては、生物の健康状態や老化度を予測する新たな技術、さらには環境変化による内的恒常性の攪乱など、疾患リスク予測技術の開発が期待できる。こうした計測技術は、日本学術会議が示す「未来の学術振興構想グランドビジョン」の一つ「生命現象の包括的(網羅的)理解による真の Well-Being の創出」にも大きく貢献する。

### 超硫黄分子と硫黄呼吸の発見

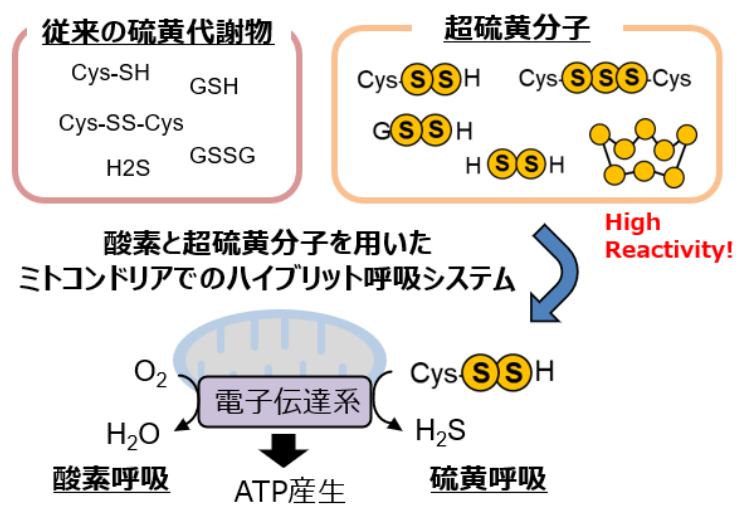


図 2-8: 哺乳類細胞のミトコンドリアは、酸素より豊富に存在する硫黄(超硫黄分子)を電子受容体として活用することで、高効率な電子伝達(ハイブリッド呼吸)を行なっている

### 2-5-3 標的事例(液-液相分離)

液-液層分離(liquid-liquid phase separation, LLPS)はタンパク質や RNA などの機能分子を細胞内に区画化し、それらの機能を調節する洗練されたしくみを司る物理現象である。また、ミトコンドリア、リソソーム、分泌顆粒など脂質二重膜に包まれたいわゆる「膜オルガネラ(membrane organelles)」に対して、「非膜オルガネラ(membrane-less organelles)」を形成する点で構造や性質が大きく異なる。線虫の生殖に必須とされる RNA を含む P 顆粒と呼ばれる構造が液滴状の性質を持つことから発見されたその現象においては、その後、in vitro 実験によって得られた相図に基づく物理化学的性質や、液-液相分離を起こすタンパク質に共通して見られる、一定の構造をとらない領域 intrinsically disordered domain (IDR)の存在などが明らかになった。とくにこの数年で細胞内での液滴の生理的意義に関する研究が急速に進み、細胞質では代謝反応の加速、減速の場として、また核内の凝集体である核小体では DNA のクロマチン構造のアセンブリー装置として機能することなどが矢継ぎ早に報告され、「液-液相分離による機能分子の区画化」という概念は生命科学に革新をもたらしつつある。

液-液相分離によって形成される液滴様構造(凝集体)はタンパク質や RNA を含むことはよく知られているものの、細胞内外のさまざまな環境に応じて形成される多様な凝集体がどのようなタンパク質群、RNA 群で形成されているのか、それぞれの組成の実体や形成機序については不明な点も多い。それは、緑色蛍光タンパク質(GFP)などで標識した限られたタンパク質を光学顕微鏡で観察する手

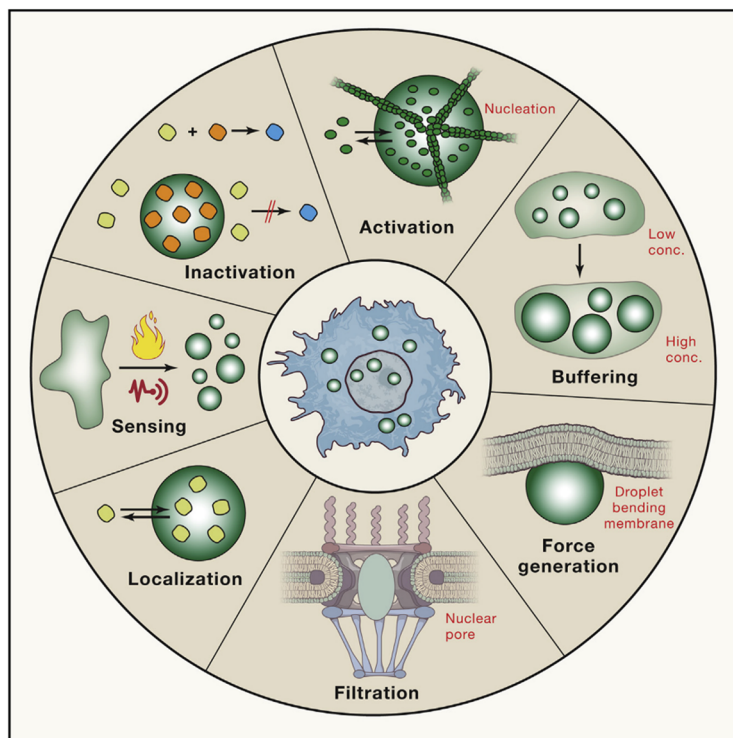


図 2-9: 凝集体のさまざまな機能(文献 5 より)

法の限界ともいえるだろう。ある状態の凝集体を分離することができれば、生化学的および分子生物学的手法によってタンパク質、RNA を網羅することもできる。しかし、その凝集体の動的平衡は細胞内外の環境変化によってダイナミックに変化し、また膜オルガネラのように分離することが困難なため、その組成の時間発展に関する情報を得るのは容易ではない。この液-液相分離研究の醍醐味ともいえる部分に切り込むためには、より良い優れた観察、計測手法が必要とされる。凝集体の物理化学的変化を伴う時間発展は、とくに疾病との関わりに注目されている。例えば筋萎縮性側索硬化症(ALS)では液-液相分離により凝集体を形成するFUSと呼ばれるタンパク質の変異によって、凝集体の性状が変化することが原因であると考えられている。変異 FUS タンパク質が形成する凝集体は不可逆的にゲル、固体状態へと変化しやすいことが神経細胞の機能を低下させる要因とされているのだ。FUS など疾患の責任遺伝子の変異によるタンパク質の構造変化がどのように凝集体の振る舞いを変化させるのか、疾患と凝集体形成との関わりに関して精力的に研究が進められている。この凝集体の質の変化はエイジングとも捉えることができ、このような変化をリアルタイムで捉えるためには蛍光標識したタンパク質だけに注目するのではなく、凝集体全体の組成の変化、物性の変化も捉えることが重要である。分子振動を捉えるラマン顕微鏡による観察や、ブリルアン散乱による粘弾性の計測など、様々な波長域を用いた多様な観察・計測手法によって分子や凝集体が発信する情報を入手する必要があるだろう。生命科学に必須となったバイオイメージングの世界でもマルチモダリティやクロスモダリティといった複数の観察手法を組み合わせることで課題に取り組む姿勢が浸透しつつあるが、一層、物理化学、生命科学の融合的共同研究を進めることにより、新たな観察、撮像手法の開発が求められている。基生研 NIBB は、プリンストン大学と協定を結び、研究分野を主導しており、先方からの期待も高い。世界に先駆けて新たな手法を開拓することで国際トレンドを作ることができる。

#### 2-5-4 標的事例(概日時計)

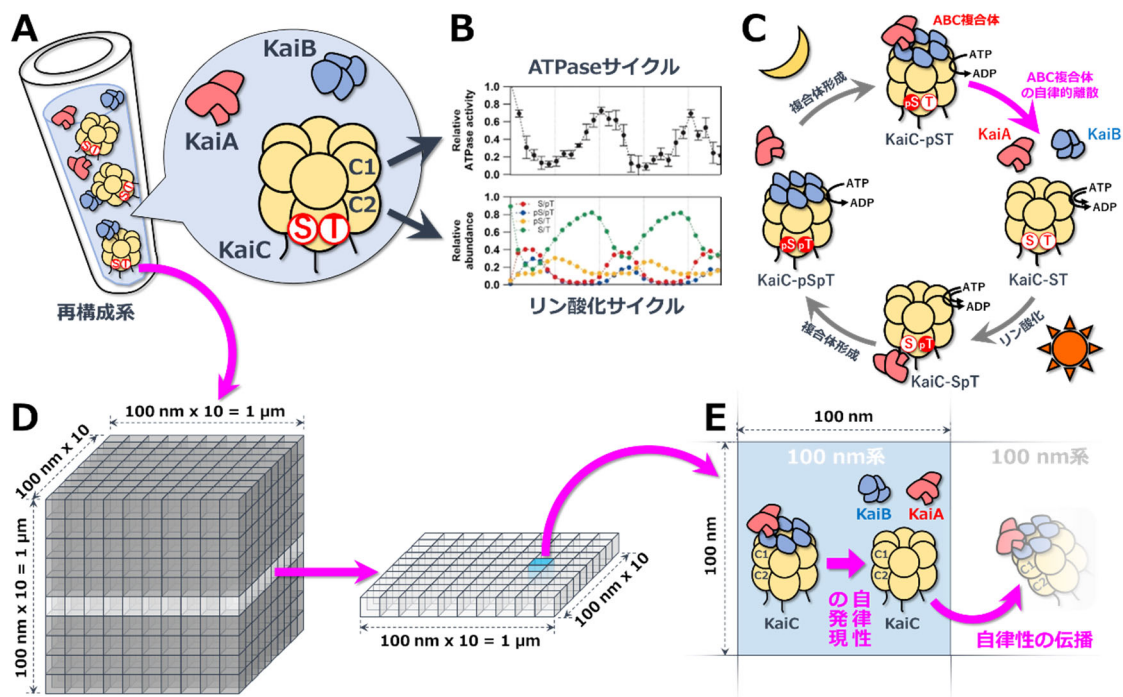
ミクロとマクロの間にあたる「場」において、生体分子の集団はエネルギーや情報のやり取りをしながら豊かな生命機能を実現している。「個(分子)の性質(化学)」と「集団(細胞)としての機能(生理学)」が交錯する反応場を特定し、そこで機能する分子集団の構造や離合集散を紐付けて理解深化を図ることは、マルチスケールにわたる生命現象の統合的理解を志向した研究戦略の一つである。

一般論として、ある生命現象に深く関与する複合体が見つかり、同複合体の形成・構造に関する研究が先行し、その一方で、同複合体の離散現象に関する研究が遅れをとる傾向がある。ここで注目する離散現象は、一般的なタンパク質複合体が平衡下で会合や解離を繰り返すようなマイクロ現象ではなく、過度なまでに安定化されていた状態や構造が、何かしらのきっかけにより不安定化され、次の瞬間には別のマクロ状態へと自律的に遷移する(生物学的)相転移を指す。たとえば、紡錘体／収縮環／仮足の消滅といった細胞骨格の大規模な組み替えなど、複合体の離散は細胞内のあらゆる場所やタイミングで重要となるにもかかわらず、その研究例は複合体の形成に比べると極めて限定的である。考えられる理由として、離散現象を細胞外で再構成することが容易でない点や、そのような実験系が構築されても、一見無秩序なタイミングで起こる離散の構造機序を理解することが容易

でない点が挙げられる。

生命の時間を司る概日(約 24 時間)時計システムについても同じことが言える。概日時計は生命活動を概日周期でリズム的に制御するシステムで、(1)概日周期での自律的発振、(2)周期の温度補償性、(3)同調能という、時計の生理学的 3 性質を備えている。シアノバクテリアの概日時計システムにおいては、時計遺伝子(*kaiABC*)が 1998 年にクローニングされると[6]、6 年後の 2004 年までに 3 種ある時計タンパク質(KaiA、KaiB、KaiC)それぞれの結晶構造が報告された。更にその直後の 2005 年には、3 種の Kai タンパク質と ATP を混合することで(図 2-10A)、タンパク質分子からなる 24 時間周期の振動子(図 2-10B)が試験管内で再構成された(以下、再構成系と呼ぶ) [7]。これを機に研究の舞台は細胞内から試験管内へと移され、3 種類の Kai タンパク質が結合した ABC 複合体(図 2-10C)を対象に、低分解能構造、形成過程 [8-10]、そしてマルチスケール性 [11] が精力的に研究されることとなった。

その一方で、ABC 複合体の離散過程に研究者の注目が集まることはなかった。しかしよく考えると(図 2-10C)、概日リズムを刻むためには、日没とともに形成された ABC 複合体が環境温度に影響されることなく、適切なタイミング(夜明け)で自律的に離散し、これに伴う振動子間の同調作用を経て、系が初期状態に戻されなくてはならない。このように、ABC 複合体の自律的離散過程は 24 時間性(周期長)・温度補償性・同調性という「時計の生理学的 3 性質」を想起させる諸現象が交錯する過程であり、そのメカニズムの解明は細胞内における概日時計の理解に必須となる。



**図 2-10: サブミクロン系内・系間における自律性の発現と伝播。(A)**シアノバクテリア概日時計システムの再構成系。**(B)**C1ドメインで起こる ATPase サイクル、C2ドメインで起こるリン酸化サイクル。**(C)**シアノバクテリア分子時計の定性的モデル。**(D)**再構成系の微視的描像。**(E)**サブミクロン系内で発現する自律的離散と、隣接するサブミクロン系への伝播

上記の自律的離散現象はサブミクロン(～100 nm)の時空間スケールを単位として進行する。再構成系をミリメートル → ミクロン → サブミクロン…へと微視的に見ていくと(図 2-10D)、100 nm を一辺とする立方体中(図 2-10E)に KaiA(2 量体)、KaiB(4 量体 or 4×単量体)、KaiC(6 量体)がそれぞれ 1～2 分子含まれることになる。このサブミクロン系を最小単位として、KaiA と KaiC は KaiB を挟むように結合して ABC 複合体(図 2-10C)を生成し、KaiB/KaiC 間の相互作用(KaiB/KaiC 相互作用)の解消をきっかけに構成因子単体へと離散する(図 2-10E)[10]。このイベントが隣接するサブミクロン系へ次々と伝播して同期することにより、再構成系全体を自律的離散へと導く描像が想起される(図 2-10E)。しかしながら、サブミクロン系における自律性の発現と伝播の仕組みについては、細胞内(系)はもとより再構成系においてさえ今なお未解明である。

光学顕微鏡による検出ではサブミクロン系内・系間を十分な時空間分解能で観察することができない。タンパク質をはじめとする生体高分子は炭素原子を豊富に含むため、SX 線を利用したイメージング法により、メソスケール(サブミクロン)系内における炭素数の絶対定量が叶えば、複合体の形成や解離をイメージングすることができると期待される。

### 2-5-5 バイオ系の手法開拓

新センターでは、まだ利活用されていない波長帯の光利用や、多彩な光源の融合によるマルチモーダル計測あるいはビームアシスト計測を掲げている。現在の放射光科学では、HX 線による構造研究が盛んであるが、未開の空間スケールとして分子間構造に相当するメソスケールの構造評価が手薄である。また構造学を深化させる化学状態としての定量的な計測の実現も欠かせない。さらに、上記の事例にあるような自律性に基づく各機能の理解に向けては、静的な構造情報だけでは十分ではないため、計測法の抜本的な開拓が欠かせない。時間空間のゆらぎ構造とそのダイナミクスを光で意図的に制御し視る、あるいは生きた生命をあるがままに視ることのできるライブイメージング手法の開拓は極めて重要であろう。既存の放射光施設の各手法であっても、未利用の波長帯を活用することで突破口が拓かれるケースも検討できる。新センターが目指す4つの革新的計測法についてバイオ系を事例にした検討例を記す。各手法の具体的な提案は後述の 12 章もご覧いただきたい。

- 1) 水の窓を克服した in-vivo, in-vitro 計測
- 2) オペランド複合多元イメージング
- 3) 角運動量制御とダイクロイズム計測
- 4) 量子もつれ現象と光計測

1)についてはバイオ計測の新しい潮流を生み出すもので、波長帯の拡張と既存手法の要素技術開発について検討できる。まだ利用しきれていない SX 線については、X 線吸収分光(XAFS、STXM 系統)や X 線散乱/発光分光(XES、RIXS、RSoXS 系統)が検討できる。XAFS や STXM は、試料セルと水の窓の波長帯を活用することにより、これまでの非染色系のイメージング手法であるコヒーレントラ

マン法の補完として、新たに化学状態(分子種)を特定したイメージを取得することが可能である。放射光 X 線は電離作用があるため、生体試料を扱う場合その構成成分である有機分子の放射線損傷を考慮することが重要である。一般に、高分子の C-C 結合や C=O 結合などの化学結合が損傷を受ける線量は、おおよそ 10~100 MGy 程度である。光源が高輝度になるだけでなく、効率的な計測手法の開発も生体試料を測定するうえで重要である。具体的なケースとして、細胞膜を構成するリン脂質を考えると、炭素吸収端の 320eV では、放射線量 10 MGy までに照射可能な光子数はおおよそ  $1 \times 10^8$  [photons/ $\mu\text{m}^2$ ]と概算できる。これは、集光サイズ  $\phi 10 \mu\text{m}$  光強度  $1 \times 10^{10}$  [photons/s]では、たった1秒で生体試料が損傷してしまうことを意味する。そのため、軟 X 線からテNDER-X 線領域では、3 GeV クラスの中型放射光施設に比べて、光強度が2桁程度低下する小型放射光施設と生体試料は相性がよいと言える。効率的なイメージング手法として、密着型軟 X 線顕微鏡法がある。本手法は、細胞などの試料をシンチレーター上に配置し、薄膜メンブレン( $\text{Si}_3\text{N}_4$ )で密閉し、レントゲン撮影と同様に投影画像を検出する。空間分解能はシンチレーターに投影されたイメージを可視光領域の光学レンズで結像するため光学顕微鏡と同様に 200 nm 程度に制限されるが、透過光放射光を X 線結像光学素子を用いずにそのまま観測するため、非常に効率的である。本手法は、古くからあるが、近年のシンチレーター、メンブレンおよび 2 次元検出器の性能向上によって、放射光エネルギーを変えながら測定するイメージング XAFS 法として新たな利用方法が検討できる。2023 年 10 月現在、UVSOR-III 光源を利用した試験実験を、開始している。現在、空間分解能 1.6  $\mu\text{m}$ 、エネルギー分解能 0.2 eV で空間二次元およびエネルギー軸の3次元計測が可能であることを確認した。CMOS 検出器 (1024 x 1024 pixel) 1ピクセルごとに XAFS スペクトルが得られるため、1つの細胞のイメージングに対して 100 万本近くの XAFS スペクトルが得られる。そのため、得られた大量の3D データの解析には、機械学習の利用が適当と考えられる。実際に行った Preliminary な解析では、脂質とタンパク質の分布を識別することを確認した。機械学習を利用し XAFS スペクトルの分類することで、脂質とタンパク質を識別したイメージングが可能であることを確認した。今後、水分を含む試料について、空間分解能サブ  $\mu\text{m}$ 、エネルギー分解能 0.1eV、かつ時間分解能ミリ秒の、空間・化学種・時間分解した測定が立ち上がることが期待できる。

いくつか前述の具体ケース例について検討する。例えば液-液相分離を対象とすれば、液滴がどのような分子組成で形成されているかを知ることができる。水による吸収があっても十分なコントラストで、SやP元素のK吸収端のイメージが取得できる。また新たな保護フィルタの材料開発によっては、L吸収端の光吸収感度差を新規に利用できる可能性がある。また概日時計では、100nm スケールのメゾスケール構造や分布情報が必須であり、SX線を用いたRSoXSによる構造評価や、密着 XAFSによる時間ダイナミクスが有効である。硫黄呼吸においては、STXMにより数 10nm スケールで位置分解した分子の化学状態を取得できるため、細胞との相互作用に依存した硫黄官能基の化学状態の知見を得ることができる。

2)は広く非平衡科学の新しい潮流を生み出すもので、いずれの階層においても動的情報を得るために不可欠な手法開拓である。これまでの統計分布に頼る計測では研究スピードの点でそぐわない。また機能探査として、局所構造情報と理論シミュレーションによる量子ダイナミクスが手段のひとつであるが、未開の機能のモデル化においては、理論近似に不確定性が残る。センターでは新たな光計



測として、2つの波長域の光を組み合わせたビームアシスト計測を検討する。例えば、一定の構造を取らずゆらいでいる液滴や、入射光強度に依存した光合成アンテナのゆらぎを、凝集構造に適切な波長の光渦(あるいはベクトルビーム)の光トルクを利用することで人為的に制御し、その場で化学情報と構造情報を紐づけることで機能情報を導く。光源としては波長帯に依存するが、卓上レーザーと放射光、あるいは放射光のみでPINEAPPLE 挿入光源の分割利用によって実施可能と期待される。

3)は分子キラリティ科学を深化させるもので、既に手法としては存在する。ここに渦光をはじめとして、光源側の角運動量を追加することで新たな応用手法へと発展できる。また4重連アンジュレータと高速位相変換子を利用することで、広帯域波長におけるミリ秒のダイナミック偏光特性が計測できる。ミリ秒でゆらぐ分子内の官能基の配向をモニタする装置の開発が期待できる。あるいは硫黄呼吸系では、環状  $S_8$  分子を光励起することで人為的に開環(光解離)させ、その周囲に存在する脂肪滴へのサルフェン分子の化学的な影響を、別の波長光でその場計測により、エネルギー輸送ダイナミクスの理解につながると期待できる。

4)は将来の量子制御や量子計測の深化に繋がる未踏の領域である。量子もつれ現象は、神経伝達や磁気センシングで生物機能として身に着けていると言われている。かつてより光計測は、量子もつれのモデル実験の良い土俵で、超短パルスレーザー光源による実証報告がある。放射光においては UVSOR が光源開発の点で世界を牽引しており、加藤らにより重連アンジュレータを利用したパルス対の実証に成功している。また平らによるガンマ線を用いた陽電子消滅による量子もつれの検証や、新たな光の利用法がまさに始まろうとしている。

## 2-6 サイエンスケース:化学系について

### 2-6-1 概要

UVSOR 施設は分子科学分野への放射光科学の波及を意識して「ケミカルマシン」のミッションポリシーの下に利用されてきた。事例をあげれば枚挙にいとまが無いが、古くは木村克己らによる有機化合物のフロンティア軌道のスペクトルデータベース構築は有名である。他に、化学系利用による学術開拓の成功事例として、有機エレクトロニクス分野の展開があげられる。90年代当時は、加速器設備が貴重で、超高真空技術の要請から有機化合物は汚染源として敬遠されていた。関一彦(名古屋大)、上野信雄(千葉大)らは、放射光科学を先行研究していたドイツへ留学し、有機分子固体の光計測技術ノウハウを取得し日本へ持ち帰った。有機化合物の基礎学術的な成果が次々と UVSOR から発信され、我が国が当該分野の基礎学術分野を牽引することに成功し、その後2010年代以降の有機エレクトロニクス応用分野の急速な発展に呼応した。石井久夫らによる、有機無機界面のエネルギー準位接合モデルの総説は、分野のバイブルとして認知され極めて高い引用数を誇る[12]。またこうした技術と経験の蓄積は、光学素子の炭素汚染対策法や、易光損傷試料への対処法の研究ノウハウの蓄積に繋がっている。

我が国は日本化学会が国際的にも最大規模の構成員約3万人を誇る。新たな物質を生み出す

使命はもちろんであるが、最近では創出した物質の機能や物性評価も精力的に検討される時代となってきた。特に化学反応の可視化や、反応ダイナミクスの追跡が最近のトレンドになりつつあるので、化学系における光科学計測の展開は、ポテンシャルユーザーを多く抱えると言える。次期 UVSOR でもこれまでに培われてきた光学素子の炭素汚染対策や、易損傷物質系の光計測ノウハウを最大限に活用し、日々生み出される有機化合物に対する物性・機能評価にタイムリーに応え持続的な科学技術の発展に貢献する。

## 2-6-2 化学反応ダイナミクス

溶液中の触媒反応、電気化学反応、光化学反応、生化学反応などの多くの化学現象は、その電子状態のダイナミクスの観点からは未知の領域である。近年の放射光の高輝度化と、液体ジェットや SX 線透過膜による試料セルの技術革新により、SX 線分光法による軽元素(C, N, O, F など)や遷移金属(Ti, Mn, Fe, Co など)の元素選択的な電子状態解析が可能になり、液体の SX 線分光測定が世界中で盛んに行われるようになってきた。しかしながら、これらの研究は液体構造や光励起ダイナミクスの観測などの物理系の研究にとどまっていた、化学現象を電子状態から探索する研究については、まだ「可能になりつつある」と形容するのが妥当なのが現状である。

長坂将成らを軸に、UVSOR-III(BL3U)において、透過法による液体の XAFS 法を開発して、放射光の利用経験のない研究者も含む多数の共同研究を行い、軟 X 線分光法の化学利用を推進してきた。国内における SX 線領域の第三世代放射光施設は、現在建設中の NanoTerasu だけであり、国外と比較してその進展は遅れている。第三世代放射光施設では、軟 X 線の輝度が大幅に向上すると共に、コヒーレンス性も増すため、新しい実験手法の開発の可能性があると共に、試料の放射線損傷などの新たな測定上の問題も出てくる。海外の第三世代放射光施設では、新しい研究の展開や測定技術の改良が進んでおり、速やかに我が国の技術開発の遅れを取り戻す必要がある。手法開拓の中心となる学術系放射光施設の存在が求められる。

具体的な実験例をもとに、今後、さらに求められる必要な技術開発について以下に述べる。長坂らが開発した透過法による液体の XAFS 測定装置は、液体試料を 2 枚の窒化シリコン膜(100 nm 厚)で構成された透過型の液体セルに入れている。そのため、液体の温度、pH、電極電位などの化学条件を容易に制御することができる。また、液体セルは常圧のヘリウム環境下にあるため、実際の化学反応が進行するオペランド条件での XAFS 測定が行える特長がある。長坂らは電気化学反応のオペランド XAFS 計測に世界に先駆けて成功している[13]。透過法による XAFS 測定では、電極固液界面と共にバルクの電解質溶液の電子状態変化を観測できる。一方、軟 X 線吸収に伴い溶液中で発生する電子を、作用極における微小電流変化から観測する電子収量法が提案されている[14]。電子の脱出深度の関係で、電子収量法では、作用極の電極固液界面を強調した測定が可能であり、電極触媒の電子状態変化を詳細に調べることができる。電子収量は、軟 X 線吸収に伴う二次過程を観測するものであり、高精度なスペクトル測定には、高強度の軟 X 線が必要である。そのため、電極固液界面のオペランド XAFS 測定は、第三世代放射光施設で飛躍的に進展することが期待され



る。また、透過法による XAFS 測定では、バルクの電解質溶液の電子状態変化を観測できるため、電子収量法と透過法の同時測定により、電極固液界面と電解質溶液の電子状態変化を同時に解析できて、その反応メカニズムを詳細に調べることができると期待される。

第三世代放射光施設で飛躍的に進展する可能性があるのは、レーザーと放射光の同期による光化学反応の時間分解 XAFS 計測である。長坂らは最近、KEK-PF の軟 X 線ビームライン BL-13A において、可視光レーザーと放射光から発生する軟 X 線を同期することで、数十ピコ秒スケールの時間分解 XAFS 法を開発した[15]。鉄フェナントロリン錯体水溶液において、光励起により生成する高スピン状態から、基底状態である低スピン状態への緩和過程を、N-K 吸収端 XAFS 測定により鉄フェナントロリン錯体の配位子の電子状態変化から調べた。一方、天然の光合成システムは、数多くの有機分子・金属錯体が関与する極めて複雑なエネルギー・電子移動過程からなる。例えば、光捕集アンテナでは、アンテナ中心への高効率なエネルギー移動が重要であり、水の酸化反応では、高反応性酸化還元種の生成が重要である。そのため、光合成システムの理解には、これらの素過程をつなぐ、エネルギー・電子移動に着目して、その移動メカニズムを時間分解 XAFS 法により調べることが重要である。光励起によるエネルギー・電子移動過程を理解するためには、そのドナーとアクセプターの電子状態変化を個別に調べることが重要である。図 2-11(a)に示すように、 $[\text{Ru}(\text{bpy})_3]^{2+} +$

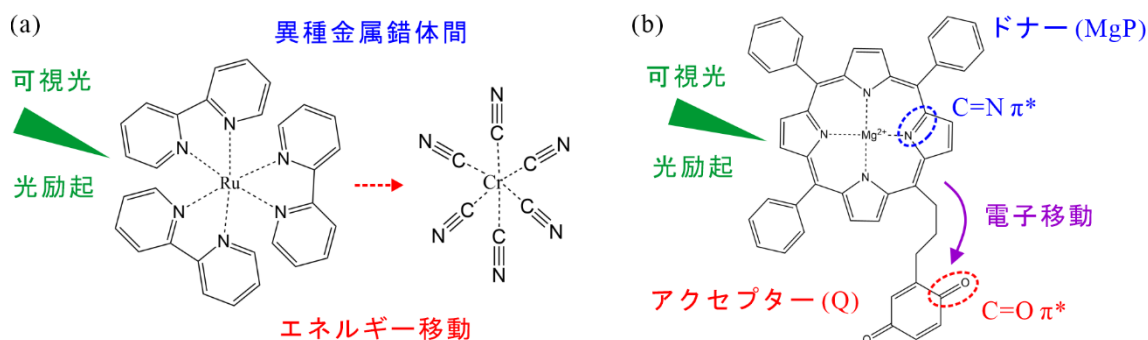


図 2-11 (a) 異種金属錯体間の蛍光共鳴エネルギー移動と、(b) 二元分子系での光電子移動

$[\text{Cr}(\text{CN})_6]^{3-}$  溶液系では、 $[\text{Ru}(\text{bpy})_3]^{2+}$  錯体の光励起後に、 $[\text{Cr}(\text{CN})_6]^{3-}$  錯体への蛍光共鳴エネルギー移動が起こる[16]。軟 X 線 XAFS では、金属錯体の配位子の電子状態変化が議論できるため、ドナー分子とアクセプター分子の配位子の C-K 吸収端 XAFS 測定により、そのメカニズムを調べることができる。また、図 2-11(b)に示すように、Mg ポルフィリン-キノン(MgP-Q)溶液系は、光電子移動のモデル系である[17]。光励起されたドナー(MgP)から、アクセプター(Q)への電子移動を調べるうえで、MgP では金属錯体の配位子が重要であり、Q は有機分子で構成されるため、軟 X 線 XAFS 方が、そのメカニズムを調べるうえで必要不可欠である。励起レーザーの波長を自在に制御すると共に、高強度の軟 X 線により、低濃度な溶液系でも XAFS 測定が可能になるため、エネルギー・電子移動のメカニズム解析は飛躍的に進展すると考えられる。これにより、天然の光合成システムの機構解明と、それに伴う高効率な人工光合成系の開発が更に進むと期待される。

長坂らが開発した透過 XAFS 法は、生物系への展開も期待できる。上述したように、液体試料は 2 枚の窒化シリコン膜で挟むことにより構成している。図 2-12 に示すように、膜タンパク質再構成の手法[18]を基にして、窒化シリコン膜上にタンパク質を包埋した脂質二重膜を担持することができれば、膜タンパク質の XAFS 測定が実現する。光合成反応に重要な役割を果たす光化学系 II (PSII) タンパク質などは、葉緑体のチラコイド膜中に含まれる膜タンパク質であり、脂質二重膜に包埋された状態で正しい構造と機能が維持される。また、タンパク質の溶解度は低いいため、溶液中のタンパク質の XAFS 測定は困難であるが、脂質二重膜中に包埋するタンパク質の量を増やすことで、タンパク質の XAFS 測定を実現できる。また、光励起によるエネルギー・電子移動の時間分解 XAFS 法が確立すれば、天然の光合成反応の反応機構を直接観測することも可能になる。光合成反応の明反応は、PSII タンパク質中のクロロフィル *a* 分子が 680 nm の光を吸収して電子を生成して、酸素発生中心である  $Mn_4CaO_5$  クラスターにより、水から酸素とプロトンが生成することにより開始する。軟 X 線 XAFS による元素選択的な電子状態解析から、それぞれの素過程を分離して、そのメカニズムを調べることができる。このように、溶液中の光化学反応の時間分解 XAFS 法は、そのまま天然の光合成反応などの生体系への適用もできるため、XAFS 法は溶液中の化学反応ダイナミクスを調べるうえで非常に有用な手法である。第三世代放射光施設の実現により、高強度、高コヒーレントな軟 X 線を用いることで、その研究も飛躍的に進展することが期待できる。

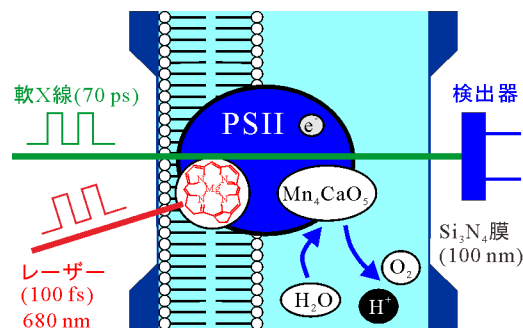


図 2-12: PSII タンパク質の光合成反応の時間分解 XAFS 測定の模式図

### 2-6-3 易損傷試料への対応

光を利用する分析法は多岐にわたるが、高輝度光源の利用では、分子やソフトマターをはじめとする一部の物質系において、しばしば実験中の試料の帯電、変性や損傷など、光照射の影響が知られている [19,20]。また、先端材料においても詳細な実験データの取得においてはその影響が表れるため、各試料に応じた光源パラメータの調整が必要となり、ビギナーへの参入障壁ともなっている。さらに、こうした光損傷の影響は実験方法や、試料形態によって多彩である。また、実験成功例として公表されにくいデータであるため、研究者ノウハウとしての蓄積になりがちである。それでも、いくつか

光損傷そのものを科学テーマにした放射線化学の研究成果や [21,22]、ピコ秒やフェムト秒での構造ダイナミクスを標的とした FEL 光源による試料破壊を前提とした実験法の例も見られる。

こうした光照射の影響を避けるために、最も単純な方法は、試料位置における光強度を下げる技術が一般的である。特定の波長域のみを透過する金属箔のフィルターを用いる方法や、ビームライン光学系を操作して光の焦点位置を変えることで光子密度を下げる方法である。また放射光源では、気づきにくい影響として、輝度は低くとも特定の高次光の影響も留意が必要となる。照射光エネルギーはいくつかの物理現象として試料に依存して顕著に表れる。例えば、物質内の構成元素のエネルギー準位間に相当する光を用いる場合は、共鳴現象が生じるためしばしば複雑な物理現象をひも解くために有効であるが、物質によっては局所的な結合切断にもつながり、選択的反応の視点では「分子メス」の技術となる [23]。これは、軟 X 線領域の光のエネルギーを合わせることにより、特定の原子に局在した内殻電子のみを選択的に励起することができることを利用する。内殻励起により生成した内殻正孔は、オージェ過程により短時間の内に崩壊し、価電子軌道に 2 個以上の正孔を生じる。これらの正孔が結合性分子軌道に生じ、しかも化学結合の両端に局在した場合には、大きなクーロン反発力が結合間に働き短時間にその切断が起こるのである。あるいは検出方法によっては、微小光スポットと高感度計測を活用し、固体試料上をマイクロメートルあるいはナノメートルで位置掃引することで実現できるケースもある。こうした対応は、研究者の経験とノウハウによるところが大きいが、UVSOR は多くの研究者の出入りにより、組織的に見ても上記の知見が比較的豊富に蓄積されており、特にソフトマター系の計測に対して、先駆的な成果が発信されてきた。次期センターはこの経験を活かし、より困難な試料系の光計測を実現する。

| 27

## 2-7 サイエンスケース：量子・物質系について

### 2-7-1 概要

1900 年に黒体放射における離散的なエネルギーの正体を「量子」と名付けたのがプランクである。20 世紀は、量子力学が古典物理学から芽を出して現代科学の基礎科学の根幹となる大樹に成長し、その過程で全人類の生活様式さえも変革していった時代であった。20 世紀半ばには放射光やレーザーが実用化され、分析・微細加工技術の発展の恩恵を受け、半導体エレクトロニクスが花開き、光触媒や高温超伝導体の登場で物質科学はますます深淵・多彩な世界となっている。20 世紀後半は「界面を制する者はデバイスを制す」を合言葉に、低次元系物質に閉じ込められた電子の量子効果が織りなす様々な物理現象を有用な機能に昇華させる物性物理分野が隆盛を極める時代となった。UVSOR が誕生した 1980 年代はまさに高温超伝導や有機半導体の機能発現機構の解明で物性計測法が革新的に成長し、物性物理学を牽引していった時代である。

それとは並行して量子力学誕生時から謎に包まれた「量子もつれ(量子同士の非局所的な相関)」が実証され、この現象に基づいた量子コンピュータや量子暗号が国策の研究分野の一つとなり、21 世紀は再び量子革命の時代と謳われるに至った。ここでの主役は電子の第四の量子数であるスピンである。量子技術が実体を得たデバイスに組み込まれるためには、実用材料における物性研究に新

たにスピンという視点で切り込んでいく必要がある。21世紀初頭に、原子一層からなる究極の低次元結晶が登場し、その中を「相対論」で記述される方程式に従って運動するディラック電子が発見された。また新たに登場した「トポジカル物質」では、位相幾何学という数学で分類される対称性の異なる者同士の界面(トポジカル物質の表面)での「量子もつれ」によりスピンが電流の実態となる金属状態の発現という、これまでの物性物理にはなかった新しい現象が見つかった。UVSORでの光電子顕微分光や複素誘電率計測はこうした物性解明の一端を担っていく。

これまで物性物理研究は、「構造解析から機能解明へ」を合言葉に微細化によるマクロからのアプローチと理想的なモデル単結晶を用いたミクロからのアプローチを組み合わせた要素還元的な研究によって推し進められてきた。近年は原子層物質の制御されたヘテロ・ねじれ積層や多極子を生む複合化合物、磁気渦(スキルミオン)や光渦(軌道角運動量光)、さらには強光子場で作り出された時間軸上の励起状態の結晶構造の創出(フロッケ・エンジニアリング)など、スピン同士が相互作用しながら特異な振舞いを示す舞台を用意し、物性・機能の新たな可能性を探求する研究が展開されている。「機能探求から構造の逆設計」がキーワードになる。UVSORは「機能発現領域」の光エネルギー帯をカバーする。UVSORはこれからの研究展開のキープレーヤーとなることを目指す。

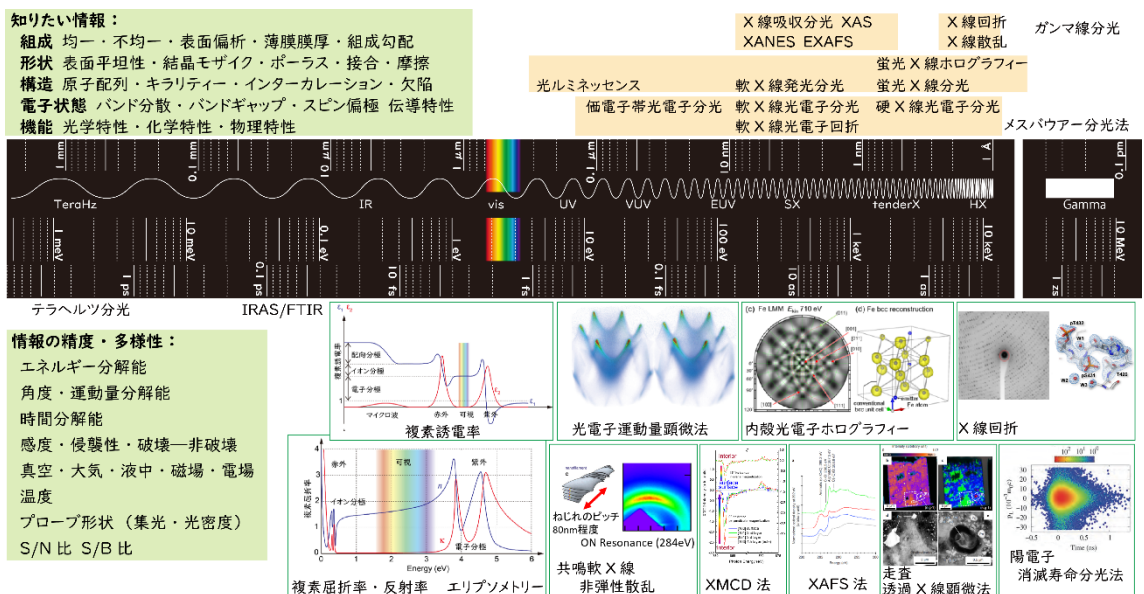


図 2-13: 放射光をベースにした様々な物性計測手法

## 2-7-2 マクロ材料からナノ・量子材料へ

これまで、光触媒・炭素繊維・青色ダイオード・ネオジム磁石・リチウムイオン電池など、様々な機能性材料の発明が社会変革の契機となってきた。物質・エネルギー・情報変換デバイスにおいては効率や耐久性、センシングデバイスにおいては高感度や多帯域応答、情報伝達・記憶演算デバイスにおいては微細化や高速度、といった性能が求められる。近年では環境低負荷や希少元素の代替といった価値が材料開発において重要な要素となってきている。

それぞれの材料を実用化・高性能化する過程では、各種分析法に基づいた原子スケールからの物性科学研究が決定的な役割を果たしてきた。放射光施設はその基盤技術として物性科学研究を支え続けている。先端計測技術による今まで見えなかったものを見ることで新たな物性や機能を見出す「ゼロからイチへのイノベーション」とともに、安定な広帯域光源によって実現されているトレーサビリティが確立した基盤分析技術が、実用材料の改良を通じた性能最適化プロセスにおいて必須である点をまず強調したい。実用材料の故障解析においては高感度の定量分析が重要である。よく知られた例では、放射光分析によって支えてきた超高純度のフッ酸水の製造・供給がある。ありとあらゆる不純物の混入が歩留まりの低下につながる半導体プロセスの中で、エッチングに使われるフッ酸水は 12N の純度が要求されているが、放射光によるウェーハ上の不純物原子検出によるフィードバックが超高純度フッ酸水製造技術の確立を支えている。

他方、新機能探索においては定性分析が主軸となり、新たな視点での微小物理量変化の検出が新展開につながる。放射光施設では、分子の配向やイオン分極に敏感なマイクロ波・赤外光から価電子・内殻準位を励起する極端紫外光・X 線に至る広帯域が供給される。ワンルーフのもとで元素選択的な X 線分光(XAFS, XMCD, XES, RIXS)や価電子敏感な光学測定(誘電関数計測)・電子分光(ARPES)など、様々な先端計測法がラインナップされている。そのため、異なるバックグラウンドの研究者が新奇物質・機能材料を施設に持ち込み、情報交換・経験交流の場ともなっている点が放射光コミュニティの特徴でもある。

さて、次世代材料開発におけるコンテンポラリーの課題の一つとして、スピンの自由度をどのように制御し利用していくかという点を挙げたい。従来、磁性や超伝導の発現を特徴づける基本要素として電子スピンの集団運動が研究対象であった。理想化された単結晶格子から出発し、基盤との格子不整合による一軸歪をもつ薄膜中の磁性や電気伝導の異方性が研究対象となった。鉄系超伝導体はまさに放射光分析によってその物性発現機構が解明されてきた好例で、酸化物単結晶 SrTiO<sub>3</sub> 基板上の FeSe 単原子層超伝導の研究も盛んにおこなわれてきた。近年は、表面・界面(各種トポロジカル物質)や原子層積層物質(ねじれ積層グラフェン・金属カルコゲナイド)・フレームワーク構造(COF/MOF)・多極子クラスターにて発現する特異な対称性を舞台にしたスピン物性科学が隆盛を極めている。放射光技術もそれに呼応し、顕微イメージングを融合した先端計測法開発が日進月歩で進められている。UVSOR-III では ARPES をベースにした顕微法としてそれぞれ PMM の計測拠点を建設した。スピン計測に関しては、スピン偏極 PMM(BL6U+7U、顕微)とスピン偏極 ARPES(BL5U、高エネルギー分解能)の二本立てによる統合的な拠点形成を目指している。

### 2-7-3 機能発現の in situ 測定・operando 観察・超高速計測

ナノ物質における静的な原子構造・電子状態の解析とともに、外場応答に対するダイナミクスの計測は新奇材料の電子物性の解明の両輪となる。特にデバイス動作下(operando)でのその場(in situ)測定により、機能と原子構造・電子状態をブリッジする「活きた」情報が得られる。試料への外場導入は photon-in/photon-out 測定である共鳴X線発光分光(RXES/RIXS)や赤外-可視-紫外領域の光学測定でこれまで盛んに行われてきたが、よりハードルの高い光電子分光計測法の分野でもニーズに応えるため気体雰囲気下・磁場印加下での開発が進められてきている。

| 30

また構造相転移や自己組織化による秩序形成、欠陥導入による結晶成長様式の制御などにおいて、物性発現機構は実時間測定によってはじめて明らかになる。ここで高効率の投影型イメージング計測の出番である。回折法における暗視野像観察によるドメイン選択計測は相転移に伴う局所構造のダイナミクスを追跡する強力な tool となりうる。共鳴 X 線散乱の実時間測定はメソスケールの構造変化をとらえる有力な手法である。光電子運動量顕微鏡では Fermi 面の実時間観察機能を用い、温度変化による構造相転移に伴う電子状態変化を in situ で観察する研究を進めている。また、放射光のパルス構造とレーザー光源の同期によるポンプ・プローブ超高速時間分解計測はますます盛んになっていくであろう。

最後に「時間結晶」について考えてみたい。実空間( $r-t$ )での結晶中の電子の振舞いはフーリエ変換によって逆空間にてバンド分散( $E-k$ )として表現される。単層グラフェンの  $\pi$  バンドを例にとると、二次元結晶中の自由電子的は逆空間で  $E=\hbar(k_x^2+k_y^2)/2m$  と表されるが、結晶の周期性によりブリルアン域での折り返しが発生する。単層なので  $k_z$  方向には分散構造は現れない。2 層、3 層、 $\dots$ 、 $n$  層と層数を増やしていくと  $n$  個の電子状態が離散的に表れ、その極限であるグラファイトでは  $k_z$  方向に連続した三角関数状の分散となる。その中途のナノメートルスケールの量子井戸に閉じ込められた電子は、逆空間( $k, E$ )では離散的な準位、実空間( $r, t$ )では定在波(フリーデル振動)を形成する。ここで時間軸・空間軸両方に表れる定在波が運動量軸・エネルギー軸両方に離散準位として現れることに注目したい。空間・時間や運動量・エネルギーをそれぞれ等価な次元として扱うことができる。近年、新しい概念として議論される「時間結晶」は空間・運動量軸で議論されてきた結晶の概念を時間・エネルギー軸に拡張するものである。強光子場を物質に導入し「非平衡状態」を作ると、時間軸上に振動構造を持つ励起状態(時間結晶)を制御して形成することができる(フロクエ・エンジニアリング)。この刹那的に表れる未知の物質相を通して新たな物性物理の展開が始まっている。本計画での実現を目指す生命科学や生物学における自律性機能の解明に向け、物理現象の根幹となる時空間の揺らぎは「動的平衡」の概念で説明される。時間結晶の物質創成とその光計測の技術開発は、動的平衡の可視化にも不可欠な手法展開となるであろう。

## 2-8 分野横断型セレンディピティの創出

自律性機能解明には、以下の要素も欠かせない。1) 複雑系の複合評価のための光計測を補完する関連分析器と試料準備環境のワンルーフ整備(先端顕微鏡、構造評価等の装置群、安全倫理管理)、2) 拠点一元化による研究推進の高効率化と人材育成システム構築である。

我が国が主導してきた放射光・レーザー光を軸とした技術開発と学術発展の歩みを継承し、大学共同利用機関の特徴と強みを生かしたオープンミックスラボ(OML)制度による国際的に独特なワンルーフ集約型の共同利用・共同研究システムを構築する。広帯域の光源を集約的に利用し、融合研究環境の場「光道場」を提供する極限光オートノミー探究センターを組織化し、生命分子や量子マテリアルなどの複雑系に対応できる高度研究支援環境を提供する。若者の好奇心や探究心を刺激する「光道場」で、熟練者であるシニア研究者とビギナー、ライトユーザーが時間と空間を共有する仕組みである。装置開発の能力を有した光計測専門家の育成と複雑系を起点とした分野の拡張による新しいキャリアパスや人材ルート開拓と循環の仕組み作りが不可欠で、個人研究から協調的研究活動の時代へ適合するための融合型ファシリティによる組織体制改革を実行する。光計測のオペレータは学术界の「匠＝マイスター」である。困難な世代交代は大型施設の拠点機関が担う。こうした組織環境によりはじめて、生物系で利用されていない波長帯の光や、広帯域光の複合利用によって複雑系や不均一系に特有の新たな分子の表情の獲得に繋がり、自律性機能を軸とした基盤学理の構築が可能となる。自律性は広く領域を横断する共通項であり、物理学、数学、情報学、工学、化学から生物学、農学、薬学、医学まで、超異分野横断により科学者の高いセレンディピティが期待され、多彩なイノベーションに繋がる。例えば、生物系の研究を起点に新たな視野が生まれ、時間結晶や人工細胞などの未開拓領域の急速な発展や、既に開発が進んでいる有機無機ハイブリッド材料等への生体模倣機能のアドオンによる革新的設計に応用でき、広範な光科学研究の推進に資する。技術的に成熟した先端放射光とレーザー光による先端分析を既存の分析手法とワンルーフ集約し、自律性のメカニズム解明のカギとなる階層分離・階層相関の総合評価によって、それらの発現機能の原理を解明する。

### ・達成目標マイルストーン

- 1) コヒーレント放射光・レーザー光・量子ビームを高度に利用する未踏の量子計測科学による基盤科学技術の開拓
- 2) 誰もが「光」を自在に活用できる先端計測科学支援環境の提供による複雑系・不均一系ダイナミクスの融合学理の開拓
- 3) 先端技術を駆使した量子ビーム光を使いこなすための人材育成「光道場」の環境提供による教育と技術継承
- 4) 光による量子状態・化学状態の操作・制御と多変数・広帯域計測による可視化を通じた循環型次世代ものづくり



## 参考文献

- [1] G. Sipka, et al., *Open Biol.* **12**, 220297 (2022).
- [2] T. Kondo, et al., *Nat. Chem.* **9**, 772 (2017).
- [3] T. Akaike et al., *Nat Commun.* **8**, 1177 (2017).
- [4] T. Ida et al., *PNAS.* **111**, 7606 (2014).
- [5] S. Alberti et al., *Cell* **176**, 419 (2019).
- [6] M. Ishiura et al., *Science*, **281**, 1519 (1998).
- [7] M. Nakajima et al., *Science*, **308**, 5720 (2005).
- [8] S. Akiyama et al., *Cell. Mol. Life Sci.* **69**, 2147 (2012).
- [9] Y. Murayama et al., *EMBO J.* **30**, 68 (2011).
- [10] S. Akiyama et al., *Mol. Cell* **29**, 703 (2008).
- [11] J. Abe et al., *Science* **349**, 6245 (2015).
- [12] H. Ishii et al., *Adv. Mater.* **11**, 605 (1999).
- [13] M. Nagasaka et al., *J. Phys. Chem. C* **117**, 16343 (2013).
- [14] L. Kao et al., *Surf. Sci.* **702**, 121720 (2020).
- [15] F. Kumaki et al., *J. Chem. Phys.* **158**, 104201 (2023).
- [16] A. Juris et al., *J. Am. Chem. Soc.* **98**, 1047 (1976).
- [17] K. Wynne et al., *J. Am. Chem. Soc.* **117**, 3749 (1995).
- [18] R. Tero et al., *Sci. Rep.* **7**, 17905 (2017).
- [19] M. Ono et al., *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **455**, 251 (2006).
- [20] S. Machida et al., *Phys. Rev. Lett.* **104**, 156401 (2010).
- [21] H. Yamane et al., *J. Elect. Spectro. Relat. Phenom.*, **232**, 11 (2019).
- [22] A. Vollmer et al., *Electron. Struct.* In press.
- [23] M.C.K. Tinoe et. al., *J. Chem. Phys.* **100**, 5988 (1994).



### 3. 計画の学術的意義

#### ・研究者の知を基盤にして独創的な探求力により新たな知を開拓できるか(挑戦性)

光科学は物理学を起点に、光源技術の深化と共に多様な分野へ発展してきたが、まだまだ近年の化学・生物学・農学・医薬学分野の需要の高まりに対応できていない。こうした分野に特有の複雑系・不均一系の計測は歴史を振り返れば、計測を専門とする研究者らにより 30 年以上前から世界中で萌芽的に光計測による研究が試みられてきたが、成功例が少なく分野構築までは至っていない。学術のブレークスルーには先端手法を開拓するだけでなく、手法が一般的に広く普及するように、各種光源の使われ方に加え、共同利用研究施設の支援体制の抜本的かつ総合的な変革が求められる。成熟した放射光およびレーザー光源の最適化・安定化を基に、時代背景に即した使い易いインフラ環境と高度な研究支援体制による光科学の一般化を実現し、分子科学研究所(IMS)、基礎生物学研究所(NIBB)、生理学研究所(NIPS)(以下、岡崎三機関)の研究土壌を生かした融合計測科学拠点として、極限光オートノミー探究センターを構築する。生命科学や生物学の重要課題である「自律性機能の可視化」が共通項である。今まで利用してきた波長域では見えなかったものを可視化するための新たな波長域の利用、あるいは単色光(単一波長)実験では見えなかったものを可視化するというニーズに応えるために、新たな波長帯の利用だけでなく、挑戦的な超広帯域光の複合利用により、階層横断的な知見を得ることで、複雑系・不均一系の俯瞰的視野による機能評価が実現する。物質やシステムの階層性が岡崎三機関の組織関係に対応している点も強みである。また、小型施設 UVSOR の利点として、それぞれの光源の特徴をテーラーメイドで提供することで初めて、自由な発想や着眼点からくる計測要求に対応することができる。このような共同利用・共同研究環境は国際的にみて極めて独自性が高い。

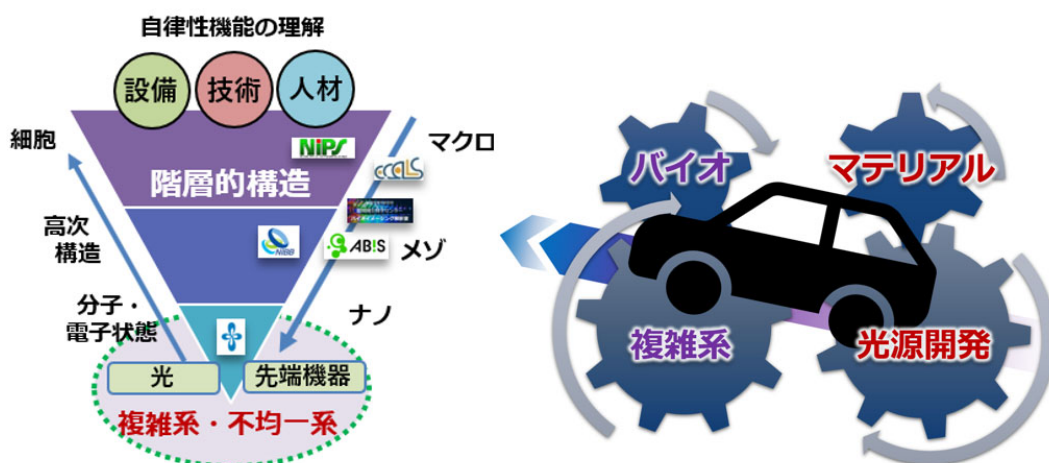


図 3-1: バイオ分野や複雑系のニーズに牽引されつつ、UVSOR の強みである分子科学・マテリアル科学の研究実績と新しい光源開発とその技術を利用するシーズ押出による四輪駆動で困難な目標に向けて新センターがドライブする。階層横断的な現象をひもとき機能の源を知る。まだ計測できていないスケールの構造体があり、各階層を繋ぐ情報が不足している

・学術研究の多様性を重視し、細分化された知を俯瞰し総合的な観点で捉えてるか  
(総合性)

産業イノベーションを拓くためには、長期的な視点であらゆる可能性に備えた基礎学術を支える政策が重要で、光科学による計測分析研究は不可欠である。基礎学術の種は無数に存在し、将来のどの時点で何が芽を出すか予見はできないが、一度花開いた場合の投資面のコストパフォーマンスは、施設インフラの長期的持続性や分野を問わぬ波及性の点から極めて高いと考える。小型施設は、大型施設 SPring-8、中型施設 NanoTerasu と波長帯あるいは利用視点から相補関係にあるだけでなく、これらの施設にない柔軟性や研究自由度を持つ事で、あらゆる学際領域への俊敏な対応が可能で、光科学の Center of Excellence となりうる。

化学・バイオ系の需要増への対応は、岡崎三機関の研究者集団と、大学共同利用機関の強みである技術職員らによる潤沢な支援環境を総合的に活用する。国内スタッフやヘビーユーザーの母集団は頭打ちで減少傾向にある中、分野拡大に伴い増加中の新たなニーズに対応するためには、我が国の放射光大国としての施設間連携による総合力が有効である。既に 2020 年度から放射光施設の学術 3 機関の連携プログラムで施設横断的な技術継承と若手育成を進めている。それでも長期的な視点で将来の技術枯渇を防ぐためには我が国全体で持続的な施設更新による育成機会が欠かせない。学術施設では、新たなビームライン(BL)・実験ステーション・測定手法を大学・研究所の研究者らと施設の研究者・技術職員らが共同で開発を進めている。こうした場を「光道場」と名付け、複雑でブラックボックスになりがちな先端設備の仕組みを理解しながらシステムを組み上げる経験を積むことができる。また放射光のみならずレーザー光などあらゆる光源技術を集約した新センターは、まさに「光のテーマパーク」である。若者の好奇心、探究心、創造性を刺激する仕組みづくりが



図 3-2: 光計測で重点化する2つの分野軸(バイオ計測、量子計測)とオープンミックスラボ OML で実現するワンルーフ型超異分野融合による頭脳循環効果と人材育成・技術伝承. 極限光オートノミー探究センターが中心となる共同研究を展開する

欠かせない。光道場教育プログラムは研究者育成だけでなく、様々なノウハウをもった技術者を育成する場ともなっている。先端計測はイメージング法へと深化しており、データ科学をもとに生成される大規模データの解析法と管理法も重要な整備事項であり、これらを総合的に担う新センターを設置して施設間連携による標準化を通じて総合的に整備するシステムづくりが重要である。

・異分野や国内外の様々な関係者との連携・協働による新学術領域創生(融合性)

ワンルーフ型支援パッケージ構築によって生命分子計測の人材を育成し、持続性のある共同利用支援機関を構築する。これまでのような小規模研究グループの集約程度では未踏の広範な学術領域に対しては遅々として進展しない。あるいは今後の熾烈な国際競争に打ち勝つには、我が国の総合的な研究支援環境と異分野融合による目標打破が求められる。

一方で、生物学と物理学では、文化背景のみならず使用する言語表現が大きく異なり、協働で科学成果を創発する作業は、まさに超異分野融合と考えて良い。思考的距離のある両分野間で、研究者意識の方向性が共有されてはじめて、効果的な融合研究が進展しうる。本計画では、その共通項となりうる「自律性」というコトバが、科学目標として明示されている点が強みであり、計画実現性の上で極めて重要と考えている。個人研究から協調的な研究活動(協働作業)の時代を意識し、光源技術の集約とオープンミックスラボ(OML)による組織規模の拡大により支援体制を刷新する。光科学の専門研究者、バイオ試料の管理運用の専門研究者、複雑な大規模データを有効活用するた



図 3-3: 自律性機能を共通項とすることで共同研究を推進. 複雑系宝庫であるバイオ系で開発される新手法や要素技術が、従来の無機物複雑系へ逆循環される新しい仕組みを構築



めの専門研究者、高度な計測機器を維持管理する技術職員、コーディネータによるビギナーへの先端機器利用支援、利用申請から実験までの事務支援窓口の一元化など、大学共同利用機関がこれまで培ってきたノウハウを活用できる。「自律性」は、生命科学分野ではきわめて多くの事象が関わるため、計測科学がバイオと向き合うことで創発される階層横断の新たな視野は、無機物質の複雑系へ逆視点でフィードバックがかけられ循環活用される。

・日本の優位性や位置付け、世界に通用する卓越性の獲得や世界的貢献度(国際性)

放射光は技術的には概ね成熟期だが、長波長帯である真空紫外線・軟 X 線の利活用は、技術的な困難さもあり、まだコミュニティも小さく研究者が十分に使いこなしているとは言い難い。新たな利用分野の発掘や利用拡大が期待され、国際的にも未開拓な学術フロンティア創発が期待できる。海外では選択集中によって一国一施設(中型)が主流で、先端研究が実施できる小型施設は欧州3か所のみ(Denmark: ASTRID, Sweden: MAX-IV/1.5GeV, Poland: Solaris)であり、国際的にこの領域の技術枯渇が懸念され、放射光大国である日本への技術開発や学術牽引への期待は高い。一方、英国 Diamond 放射光施設の戦略に代表されるように、国際的に未開拓な重要領域であるバイオ系を軸とした融合研究環境を構築する機運が上昇中である。本計画における小型 1GeV 級施設では運用術として初の導入例であり、我が国のバイオ研究の国際競争力の優位性を考慮すべき緊急性の側面も見える。また、レーザー光と放射光設備を一元集約した共同利用・共同研究の融合利用環境の構築は国際的にもまだ無く、VUV 帯のバイオ活用アイデアや実験成功例が発信されれば熾烈な国際競争が生じるだろう。我が国が世界トレンドを牽引し、光科学の優位性を堅持するためには、こ

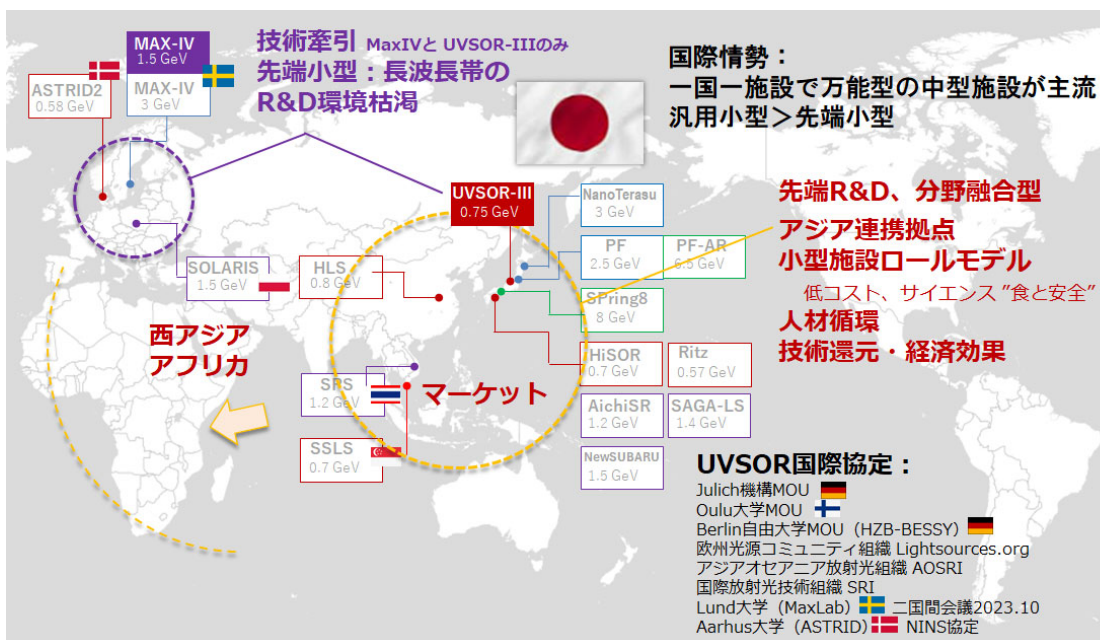


図 3-4: 国際的な中庸化で要素技術枯渇が懸念され、放射光大国日本への技術開発への期待は高い。レーザー光と放射光の融合利用法やレーザーの共用施設は未提案で手法開拓先行のチャンス光を軸とした化学・バイオ系の融合研究環境例はまだ少なく、紫外線の活用例や実験成功例が発信されれば熾烈な国際競争が生じるため、世界に先駆けて 10 年後のトレンドを獲得すべき。

れまでの技術と人的資産による先行投資が効果的である。また、アジアでは唯一の小型施設であるため、医薬、食と安全、環境エネルギー問題を目途にした光科学利用の安価なロールモデルとなれば、途上国を中心として同様の省エネ小型施設建設が検討され、技術提携や人材流動の活性化による国際連携拠点としての活用も視野に入る。近隣諸国は単独での大型設備開発はまだ障壁が高い。こうした国々が本拠点を利用した独自の実験ステーションを構築し、国際共同研究を推進することも想定される。

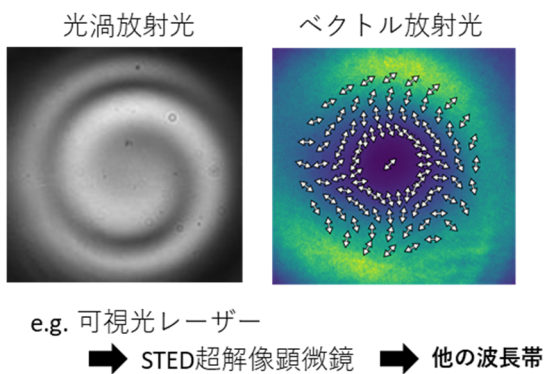
## 4. 計画の背景と経緯

### ・挑戦性の背景と現状(複雑系の光計測)

光科学は光源技術の深化と共に多様な分野へ発展してきたが、まだ多くの未活用分野が残る。特に化学・生物学分野の需要の高まりに対応できていない。また、大型設備への財政的投資難・技術開発難の諸問題が顕在し、我が国における次世代への技術継承と人材育成の対策が後手で手薄になり、イノベーションの基礎となる手法開拓や装置開発の今後の展開は極めて深刻である。我が国が主導してきた放射光・レーザー光を軸とした学術発展の歩みを止めないために大型設備を刷新し、ワンルーフ型支援パッケージ構築によって複雑系計測の人材を育成し、持続性のある共同利用支援機関を構築することが欠かせない。UVSOR の強みとも言える光源開発は着実に成果を積み重ねており(詳細は後述)、近年 VUV 域の光渦(2017)やダブルパルス光によるアト秒制御(2022)など、先駆的光源の実証に成功したことで、世界に先駆けた挑戦的な手法開拓による**光科学の世界トレンドを作る機会が来た**。新たな量子ビームの挑戦的開発と、複雑系に展開する先端光科学による新規基盤学術の開拓によるブランド化による国際的な中核研究基盤を構築する機会である。さらに広帯域光の万能型光源をニーズに対して網羅的に支援する「使い易い光源」をコンセプトとして支援体制

## 量子ビーム開発とその先端利用による学術分野の開拓

### 放射光空間構造の制御と応用



歴史的なUVSORのオリジナリティ

応用 困難な課題  
環境・エネルギー

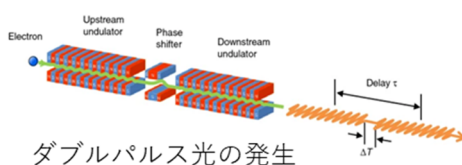
広帯域光の複合的  
利用の価値

新しい顕微鏡  
新しい手法  
を

新しい分野へ  
-量子マテリアル  
-ライフサイエンス

赤外光  
紫外光  
軟X線  
ガンマ線

### 放射光時間構造の制御と応用



実証  
段階

アト秒干涉

超高速レーザー  
実験との相補性

新しい量子計測へ

## 回折限界の極限光源の挑戦 持続的な先端計測開発

図 4-1: UVSOR では小型施設ならではの自由度とネットワークによる斬新な光構造の実証研究が行われてきている。多様な波長帯のマルチビーム利用は前例が無く挑戦的であるが、叡智を集結し、世界に先駆けて困難技術の開発を目指す



を転換することも必要である。この 1 年程度で、多様なプロジェクト計画の立案を含め、岡崎三機関の研究所間の議論が活性化しており、挑戦的計測による分野開拓への機運が高まってきている。またレーザー光源と放射光源の差別化と相補性も明確になりつつあり、歴史を振り返れば、今まさに成熟期にある両光源の利用転換期と捉える時で、ユーザーの立場に即して両光源を同等に提供する先端施設としての支援体制を構築し、ユーザー目線で真に求める計測に最適な光源を安定的に提供できる環境を整えることが重要である。コンパクトで多様な光源の一元化利用は、昨今の省エネルギー社会の要請に答えるための一つの解ともいえる。

### ・総合性の背景と現状(大型施設の利用法)

高度経済成長期には、産業専用施設をはじめ、その有用性と期待値から我が国には複数の放射光施設が建設された。当初、放射光第二世代として地域性を鑑みて東にフotonファクトリー(Photon Factory 以下、PF)、西に UVSOR が建設された。その後、第三世代の流れで、我が国には共用法の設置とともに世界最大級の SPring-8 が建設された。また中型施設については、およそ 30 年前に世界に先駆けて我が国に建設される予定であったが、2024 年度運転開始に向けて建設されている NanoTerasu まで待つことになる。この中型施設は多様性と光源特性、維持費や建設コストの視点でのバランスが良く、選択と集中が求められる国においては、現在国際的スタンダードともなっている。また PF、UVSOR は時代毎に要素技術の更新や、設備高度化を実施し現在に至る。共用施設である大型 Spring-8、中型 NanoTerasu は学術利用と産業利用の区別なく、出口戦略の明確な課題を実施することをミッションとしており、共同利用・共同研究の推進を担う学術系施設である PF、UVSOR は挑戦的な萌芽的研究や、試行実験を実施することができる施設で、無償利用や旅費支援などを含め、研究者の自由な活動環境が維持されている。一方で、その後に限られた人材の施設間への分散と理系人口の急速な減少問題が顕在化している。

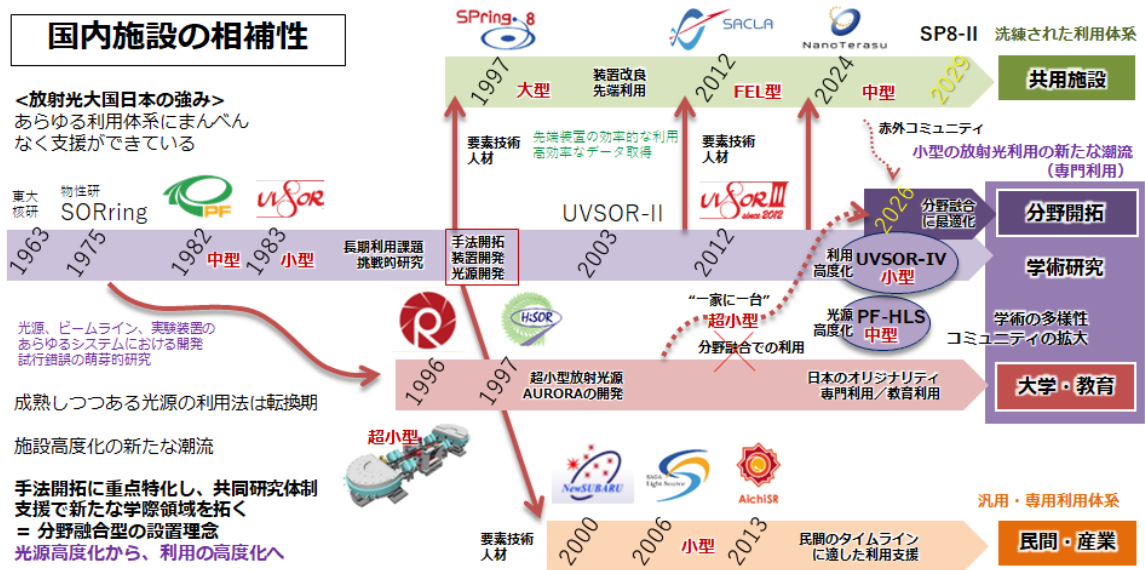


図 4-2: 国内放射光施設の変遷とミッション相補性

## ・分野融合の背景と現状(共同利用・共同研究)

多様な分野を抱える分子研 UVSOR 施設ですら、40 年の歴史を振り返れば、分野横断的な利用展開は容易では無い。シーズブッシュ型で構築された最先端設備を基軸とした玄人仕様の実験機器はビギナーへの利用障壁として立ちふさがり、物質利用や材料変革の時代の急速な変化に適応しきれていない。複雑系物質の多くは、その原子配置を精密に決定する精密計測による構造学に立脚することが多く、研究スタイルとして、まずはその構造決定という困難課題の解決へ向けた努力がなされる。そのため機能発現や物性制御への指針は、なかなか推測を交え盲目的である。複雑系・不均一系の理解へ向けて、先端光科学を駆使した定量的評価がその第一歩であり、アイデアが萌芽的な段階での集中投資により、世界トレンドを作るために国際標準設備と高度支援環境の効果的な集約が不可欠である。必然的に国際動向を逐次確認し、必要に応じて国際連携により相互の優位性を強化する戦術も必要となる。本計画では、大学共同利用機関のこれまでの地の利を生かし、新センターを軸に様々な目的階層の研究者への等価対応を実現することで自ずと研究者が集合し、国際的に分野融合研究が加速される。また生命創成探究センターでは、糖鎖研究グライコームプロジェクトの重要研究拠点として認識されており、今後同プロジェクトで構築されるであろう構造データベースと、本計画における機能評価法の開発がつながることさらに波及的かつシームレスな研究活動の発展が可能であり、岡崎地区の拠点形成は極めて効果的であるといえよう。一方で、先端光源として放射光とレーザー光の開発競争の歴史は計測科学の進化に重要な意味をもつ。

## ・国際性の背景と現状(世界トレンド)

### VISION: 放射光の歴史的な歩み

80-00s 高温超伝導ブーム(物性分野) → 物性科学の標準ツール  
 半導体微細化(産業界要請、リソグラフィ)  
 分子科学: 原子レベルでの合成反応・物理化学評価技術の期待 → 継続中  
 00-20s 複雑系構造解析: → 構造生物学の標準ツール  
 20-40s 自律性科学 → 機能生物学(ライフサイエンス起点)  
 空間/時間階層を横断する評価技術の必要性 Needs高まり

図 4-3: 放射光の歴史的な利用分野開拓の動向

光の利用は時代毎のニーズや研究規模の必然性から、波長帯毎に光技術開発と利用法の開拓が進められ、例えば、放射光における硬 X 線と構造学、赤外光・可視光レーザーによるイメージング・化学分析、レーザー非線形光学は一大分野展開が成功例として花開いた。VUV や SX 帯あるいはガンマ線帯域の利活用は国際的にみても今後の発展利用や技術開発が期待される未開拓な波長域である。国際的に放射光を利用したバイオ系の融合研究環境構築の機運の上昇期であり、レーザー光と放射光の集約環境の構築と融合利用による新規計測法への挑戦は未提案で、未活用波長帯の活用例や実験成功例が発信されれば熾烈な国際競争が生じるため、我が国が主導した世界トレンドを取得し、中長期的な優位性を堅持するためには緊急性が高く、施設や設備のハード投資のみ

ならず拠点センターや利用支援体制のソフト面の集約投資が不可欠である。また先端技術の集約により次世代施設は省エネ化が可能で、施設規模の最適化を検討すべきである。

2000～2010 年代に世界各国で第三世代の高輝度放射光施設が建設された。それぞれの地域性や国策を反映させた展開が見える。例えば、英国唯一の放射光施設である中型の Diamond では、国策としてバイオ系の研究支援に特化した運営で、バイオ計測関連ビームラインの比率を 30%以上(他施設平均 10-20%)とすることで分野を国際主導している。本計画はこの運営術をロールモデルとし、施設牽引型とユーザー主導型の良い面を合わせて超異分野融合を狙う。戦略的な集中と選択による中長期的科学目標で世界トレンドをつかむ。スウェーデンの MaxLab 研究所の Max-IV と肩を並べる唯一の先端小型施設であり、本施設による医・食・環境問題への光科学によるロールモデルが認知されれば、小型インフラ施設への投資は途上国には魅力的に映るであろう。その段での国際貢献は計り知れず、また人口問題をふまえ、研究者や若手人材の確保や流動性にも一石を投じることとなる。

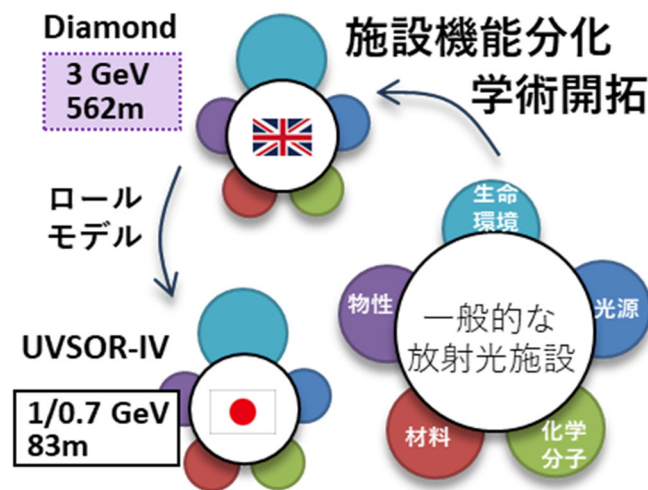


図 4-4: 大型施設の学術ミッションの集約化と拠点分担戦略. Diamond 施設では国策としてバイオ系ビームラインの強化を進めており、COVID-19 への対応は成功事例といえよう

シンクロトロン放射光は現在、第 3 世代に位置する。第 1 世代は高エネルギー物理学の加速器を間借りした世代、第 2 世代は専用の放射光施設を指し、第 3 世代はアンジュレータなどの挿入光源を中心とした高輝度光源をいう。その後は効率化にも視点が移り、各国で更新計画にある第 3.5 世代(あるいは第 4 世代とも呼ばれる)は低エミッタンス性から幅広い波長帯で高輝度でコヒーレントな光を供給しつつ、安定性にも配慮がなされる。極めて高い空間分解能で、複雑な物質材料システム・デバイス、生命組織などにおいて、これまで見えなかった構造や状態の原子レベルでの可視化が期待されている。また時間構造制御はレーザーに優位性があるが、放射光のアト秒時間制御も可能になりつつあり、アト秒～ナノ秒、マイクロ秒～秒、時間～年の広範囲の時間軸にわたって、物質材料システム・デバイス、生命組織の動的変化追跡を実現できると期待される。異なる空間スケール・時間スケール・波長特性を持つ2ビームを組み合わせる放射光マルチビーム実験によって放射

光の可能性が大きく広がると期待できるが、多彩な開発を限られた大型施設で担うのは困難な課題であり、学術機関の主導と集中政策による分担作業で、挑戦的な光計測手法の開拓を成し遂げる。放射光源の光特性のうち、多くの試料系では高輝度化の目的は既に必要十分な状況に達したとも言える。中型施設では、前述のように、もうしばらくの間は高輝度化のための第 3.5 世代(あるいは第 4 世代と定義)とも呼ぶべき施設高度化計画が続くが、小型施設では長波長域の光源性能は概ね成熟しており、今後はデータ出力に視点を置いた運営体制が必要であると言える。データの量と質、つまり組織・実験の効率性と安定性が重要なフェーズであり、目的特化のスピード感も意識した共同研究スタイルを切り拓く必要がある。成熟期を迎えた放射光の利用転換期を見定め、挑戦的な光源開発の視点だけに囚われずに、高度利用実験の視点に軸足を移し、検出効率の向上に努めることが戦略として有効である。先端光源として放射光にしばられず、レーザー光も同等に提供できる包括的光源設備体制とし、ユーザーが求める計測・分析に最適な先端光源を「その種を問わず」に安定的に提供できる環境を整える。

世界の放射光施設の分布は、米国、日本、ドイツが突出し、中国が追従している。日本とドイツは開発要素の強い基礎学術研究で世界をリードできる数少ない先進国という共通点が見出される。100 年後の科学技術を支える国の盟友として残るために、基礎学術への長期的投資を検討していただきたい。中期的には、国内 11 放射光施設で、先端光源・手法開発とそれを担う研究技術者人材育成、各種量子ビーム・各先端計測・理論研究との学術連携、物質・生命インフォマティクス基盤の構築を推進しつつ、アジアオセアニア連携を始め、国際協調も強化する。

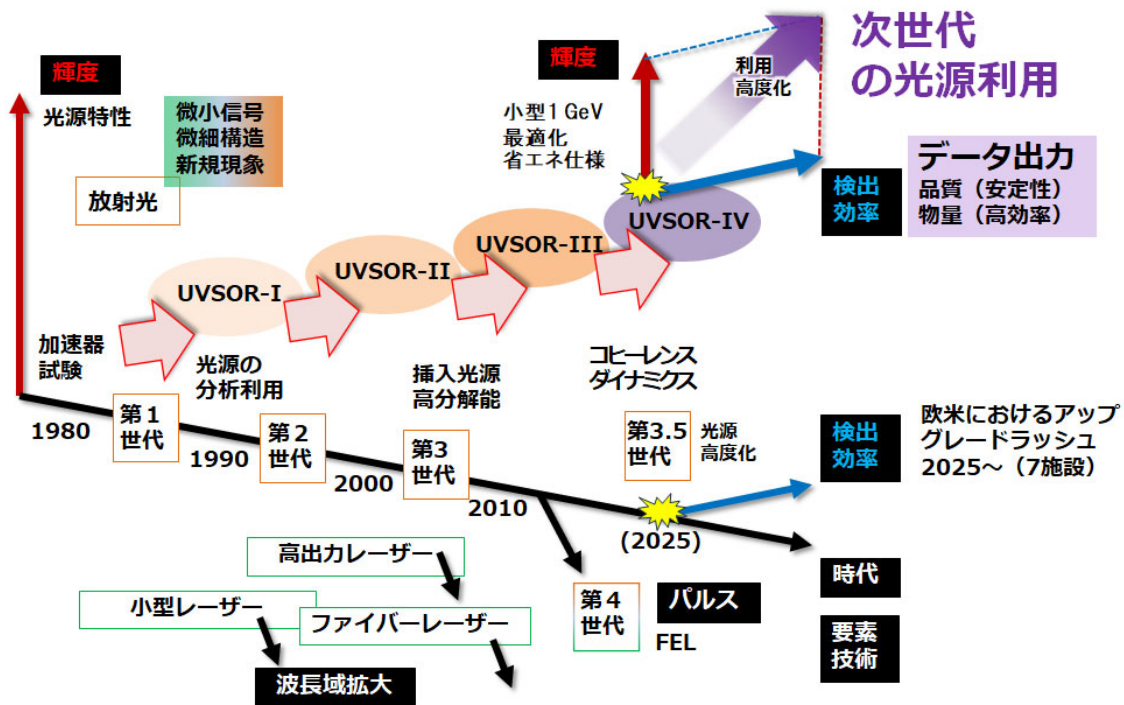


図 4-5 第三世代高輝度放射光の次の展開。高輝度化を目指した高度化は完了し、高効率・高品質データ出力を意識したユーザー利用の高度化視点へ



## 5. これまでの活動実績

### ・UVSOR の 40 年の歩み

43

IMS の小型放射光施設 UVSOR は 1979 年の「極端紫外連続光源計画」にその第一弾の姿を見て取れる。物質の化学状態を精密に視ることを目的として、光の波長域で重要な紫外線(UV)を頭文字とし、ultraviolet synchrotron orbital radiation UVSOR(極端紫外光施設)と命名された(その後、計画スタート直後に極端紫外光実験施設、2004 年に極端紫外光研究施設に改称、また 2016 年より UVSOR を固有名詞化した)。その後、1983 年に初点(放射光発生)に成功して以来、分子科学分野への放射光科学の波及を意識して「ケミカルマシン」のミッションポリシーの下に利用されてきた。世界中で放射光建設が進んだことで、老朽設備は陳腐化していく中、2003 年に当時の先端技術の導入による光源高度化(UVSOR-II)、さらに 2013 年 2 度目の高度化に成功した(UVSOR-III)。国際事例を見るに、先端技術を導入した施設を新地に刷新建設するのが常であったが、IMS のコミュニティー基盤の拡張を最優先に捉え、場所を変えずに高度化する戦略がとられた。2004 年、極端紫外光実験施設から極端紫外光研究施設に名称変更し、上記の光源高度化に加えて、ビームラインの先端分析装置の開発を定期的に続け運用拡大しつつあり、2023 年度は初点から 40 周年を迎える。国内では大型 SPring-8、中型 NanoTerasu と相補的な小型施設の位置づけとなる。各施設の役割分担が有効である点は学会の共通認識であり、本施設は長波長帯の光波長域の強化と、それらを利用した分子科学分野の支援を担ってきた。また分子科学コミュニティのみならず、核融合科学のプラズマ実験や天文学における宇宙観測機器の検出器テストなど、貴重な波長帯を利用した研究も進められた。学術機関として国内支援に注力した運営で、基礎学術的な研究成果を中心に国

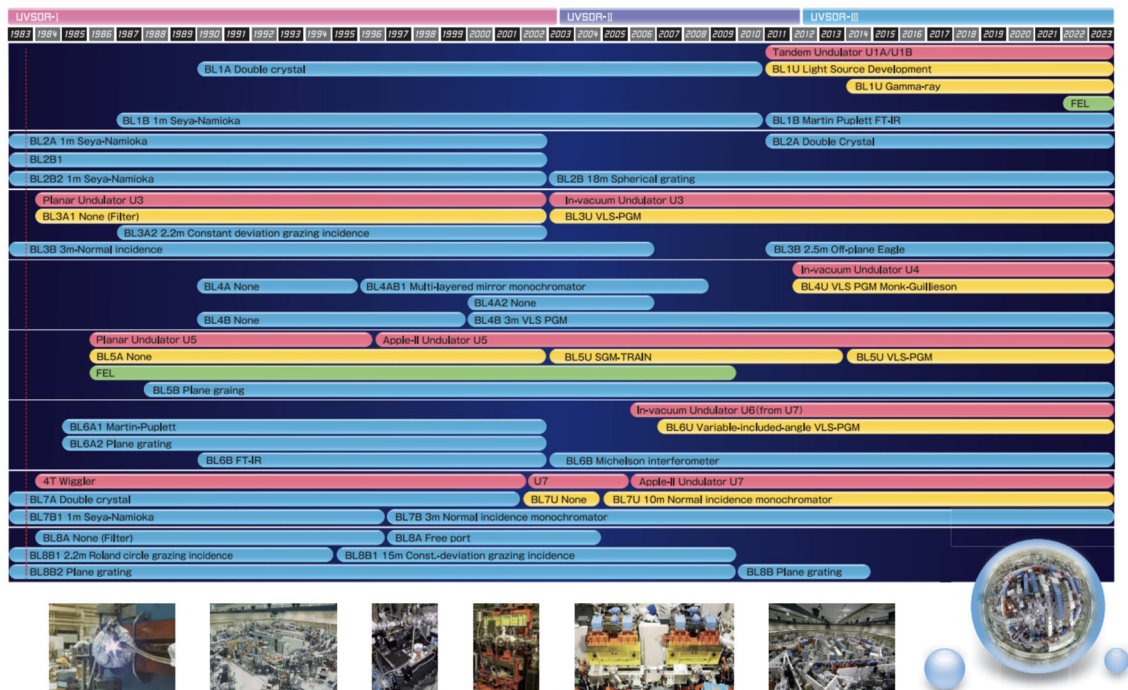


図 5-1: UVSOR の 40 年にわたるビームライン分光器の変遷

内外へ発信しているが、国際的競争力を維持するために、先端設備の技術開発を日々推進し、競争環境のバランスを取りながらユーザーとともに共同利用・共同研究を進めている。

### ・世界を牽引してきた量子ビーム・光源開発の強み

1980年代の建設当初より、小型・低エネルギー施設の利便性・柔軟性・俊敏性を活かして、様々な新しい放射光の発生法・利用法の開拓に取り組んできた。電子蓄積リングを用いた共振器型自由電子レーザーの開発は加速器の設計段階から盛り込まれており、1990年代を中心に世界最短波長域での発振や光共振器内での逆コンプトン散乱による高強度ガンマ線発生 の原理検証など、世界を先導する成果がある。赤外線領域での放射光利用や放射光とレーザーを併用した実験、また、蓄積リングの低アルファ運転による超短パルス生成も、小型で小回りの利く UVSOR の特性を活かして、1990年代に世界に先駆けて行われた研究の一つである。

2000年以降、UVSOR-II の時代になっても、世界的に希少な研究環境を活かし、フランスのグループとの国際共同研究などにより自由電子レーザー発振の基礎研究で成果が挙げられたほか、自由電子レーザー光を用いた応用研究も展開された[1,2,3]。その後、2000年代半ばに加速器同期超短パルスレーザー装置が導入されたことで、偏光可変コヒーレント高調波発生[4]、レーザーバンチスライスによるコヒーレント放射光生成[5, 6]、など数々の目覚ましい成果があげられた。これらの成果をもとに大型の外部資金を獲得し、それまで光電子分光ビームライン BL5U に寄生する形で行われていた光源開発研究を専用のビームライン BL1U で行えるようになった。

2010年代の UVSOR-III の時代に入り、BL1U では上述した研究をさらに発展させる一方で、光渦やベクトルビームといった特異な空間構造を有する光の発生で世界を先導する成果をあげた[7, 8, 9]。さらに、タンデムアンジュレータからの放射の特異なアト秒精度の時間構造を利用した量子状態制御や超高速分光の原理実証に世界で初めて成功し[10, 11, 12]、放射光の全く新しい利用法の可能性を世界に示した。最近では、超短パルスガンマ線の発生とそれを用いた非破壊分析も開始されている[13]。

UVSOR40年の歴史の中で、継続的に新しい光源開発研究とその利用法の開拓に取り組み、世界を先導する成果を生み出し続けてきた。これを可能にしたのは、UVSOR が小型低エネルギー放射光施設であるからと言えよう。特殊な実験を行うための実験装置の製作やその加速器への組み込みは大型高エネルギー加速器では熱負荷や放射線対策のため技術的に難しく、また格段に高価となる。また大規模施設での新規開発プロジェクトの意思決定に要する時間や、予算規模の大型化によって研究遂行が現実的に難しくなるためである。また専有的実験になることが想定されるため、多くのユーザーを抱えるため必然的にビームタイムの確保は困難である。これらは特に全く新しい技術開発への挑戦において決定的に不利であることは明らかであろう。一方で、時間や資金、マンパワーの必要な高精度化技術や安定化技術は、こうした大型施設の強みであり、これまでも多くの実績がある。小型施設はこの恩恵を受けて、既存の開発されたハードウェアをもとに、スピード感をもって光源開発に注力できるためオールジャパン体制の我が国の強みとなっている。図に示すように、UVSOR では小型であることの強み「俊敏性、柔軟性、利便性」を最大限活かし、光源開発を継続的に行ってきた。この歩みを止めることなく、本計画においても小型低エネルギー、かつ高性能という特質を活かして放



射光科学の最先端を切り拓き続けたいと考えている。

| 45

## 光源開発の40年の歴史

- ・建設当初から継続的に新しい光源技術を開発しその利用法を開拓
- ・世界を先導する成果はその後PFやSPring-8などへ展開



### 放射光-レーザー協奏技術

世界初！放射光レーザー完全同期実験(1989)

### 自由電子レーザー・コヒーレント放射

世界最短波長 自由電子レーザー発振 (1997)

世界初！偏光可変コヒーレント高調波発生 (2008)

世界初！準単色波長可変コヒーレント放射光発生 (2008)

### 特殊波長開拓

世界初！赤外テラヘルツ共用ビームライン(1986)

世界初！超短パルスガンマ線発生(2010)

### 次世代放射光量子技術開拓

世界初！VUV光渦発生の原理解明と実証 (2017)

世界初！放射光ベクトルビーム発生 (2018)

世界初！放射光アト秒制御の実証 (2022)

世界初！アト秒制御放射光による量子状態制御 (2019)

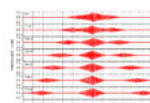
世界初！重連アンジュレータによる超高速分光 (2021)

→ 2000年代になってSPring-8, PF-AR, Saga-LSなどへ展開

→ シード型FELの基礎研究 SACL AなどのXFELへ貢献



→ 2000年代になって SPring-8へ展開



→ 第4世代光源の 基幹技術？

**“光源開発”**  
国際的にみても稀有な利用例

図 5-2: UVSOR の強みである、独自の光源開発の 40 年の歴史を示す代表的成果

## 参考文献

- [1] S. Takano et al., Nucl. Instr. Meth. A **331**, 20 (1993).
- [2] M. Hosaka et al., Nucl. Instr. Meth. A **483**, 146 (2002).
- [3] C. Evain et al., Phys. Rev. Lett. **102**, 134501, (2009).
- [4] M. Labat et al., Phys. Rev. Lett. **101**, 164803, (2008).
- [5] S. Bielawski et al., Nat. Phys. **4**, **390** (2008).
- [6] M. Shimada et al., Phys. Rev. Lett. **103**, 144802 (2009).
- [7] M. Katoh et al., Sci. Rep. **7**, 6130 (2017).
- [8] M. Katoh et al., Phys. Rev. Lett. **118**, 094801 (2017)
- [9] S. Matsuba et al., Appl. Phys. Lett. **113**, 021106 (2018).
- [10] Y. Hikosaka et al., Nat. Commun. **10**, 4988 (2019).
- [11] T. Kaneyasu et al., Phys. Rev. Lett. **123**, 233401 (2019).
- [12] T. Kaneyasu et al., Phys. Rev. Lett. **126**, 113202 (2021).
- [13] Y. Taira et al., Rev. Sci. Instr. **93**, 113304 (2022).

## ・分子科学への放射光利用研究の展開

分子科学に特化した利用による学術開拓の成功事例として、有機エレクトロニクス分野の展開があげられる。1990年代、まだ放射光施設そのものが貴重だった時代から、関・上野ら(当時 40代)を

中心に当該分野の開拓的研究が創始された。当時は、加速器設備が貴重で、超高真空技術の要請から有機化合物は汚染源として敬遠されていた時代である。両氏は、放射光科学を先行研究していたドイツへ留学し、有機分子固体の光計測技術ノウハウを取得し日本へ持ち帰った。有機化合物の基礎学術的な成果が次々と UVSOR から発信され、我が国が当該分野の基礎学術分野を牽引することに成功し、その後 2010 年代以降の有機エレクトロニクス応用分野の急速な発展に繋がった。ゼロベースの学術知見を得てから製品化まで 20 年程度を要し、現在も発展中の分野を構築した例である。このような学術主導の展開成功事例を基に、本計画ではバイオ系の自律型機能を事例にフットオートノミー科学の創発に挑戦する。

一般的に、試行錯誤の手法開拓や装置技術開発は、大学共同利用機関の中長期的支援が不可欠である。例えば、光電子分光法は古くから知られる手法であるが、最近ドイツで開発された実空間／波数空間電子レンズ切替機構の設定により、イメージング計測へのパラダイムシフトを迎えようとしている。先端機器 R&D の一環として、2020 年に本邦初号機を UVSOR へ導入し、鋭意追加機能を付与した装置を開発中である。実はこのドイツにおける装置開発には 20 年以上の試行錯誤が背景にあり、5-10 年の一般的なプロジェクトでは到底実現不能であった事例として未来に語り継がれるであろう。同様のケースを意識し、我々が持つこれまでの先駆的実験によるノウハウを継承し深化し続けることで、未開拓な VUV 帯コヒーレント光源の利用における量子制御・量子計測手法開拓と、マルチモーダル計測・時空間イメージングによる非平衡系や複雑系の計測科学のブレークスルーを目指す。ダブルパルス光生成など量子光の基礎物理の知見を積み重ね、30~50 年後の光科学は量子

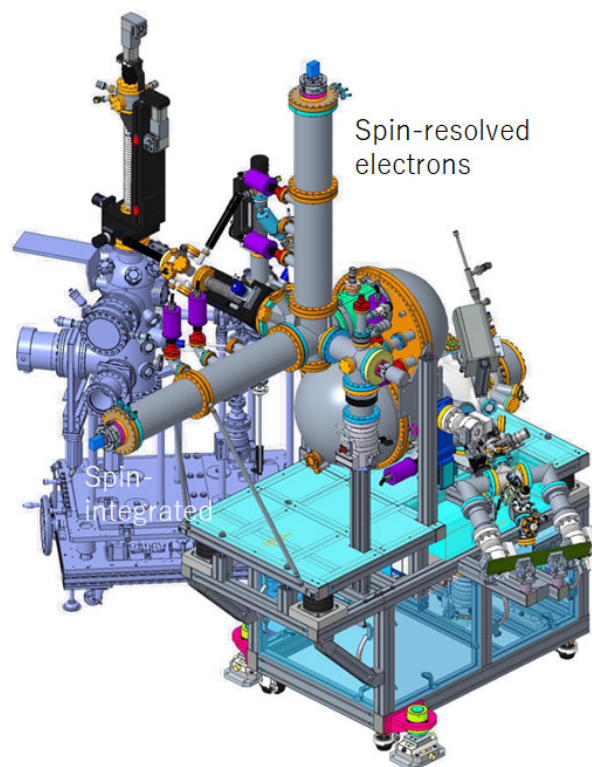


図 5-3: 2020 年度から開発を開始したスピン分解光電子運動量顕微鏡

もつれ現象を利用した光計測技術等により、神経伝達プロセスなど生命科学の深淵にアプローチすることも夢物語ではない。こうしたゼロからイチを構築する手法開発は学術機関が担う大型施設への集中投資が極めて効果的と考える。量子生命科学研究所(以下、量生研)が発足し、我が国におけるバイオ分野の基礎学術の発展に向けた量子計測の新たな潮流が始まろうとしている。また東京農工大(以下、農工大)の OPERA・コアファシリティ SCOP を軸とした先端計測の産学共同利用によるスタートアップ展開に期待が高まっている。

## ・次期計画関連会議リスト

かねてより UVSOR 設備の老朽化に対する中期計画を運営委員会や国際諮問会議にて議論してきたが、2019 年から本格的な次期計画に関する議論を開始し、コミュニティーの合意を得て次期施設のデザインコンセプトを共有してきた。

2019.10 第1回次期施設建設検討会(UVSOR シンポジウム, 共催 UVSOR 利用者懇談会:参加 100 名弱、学術系連携機関 HiSOR, PF および物性研 LASOR と将来展望を議論)

2020.1 マスタープラン 2020「放射光学術基盤ネットワーク」に採択、その後、月一定期的に 3 機関間の新技術 R&D 研究会を開催

2020.10 UVSOR シンポジウム(コロナ禍 DX 化議論)、

2020.10 分野研究会「次世代光電子運動量顕微鏡」

2021.1 第2回次期施設建設検討会(分子研討論会、分子研における共同研究と大型施設の在り方を PI で議論)

2021.8 第3回次期施設建設検討会(関連施設と光源・加速器要素技術について情報交換)

2021.8 UVSOR 利用者を中心としたユーザー大規模アンケートを実施し第 4 回にて議論

2021.11 第4回次期施設建設検討会(UVSOR シンポジウム共催, 共催 UVSOR 利用者懇談会:文科省基盤課来賓、機器設備仕様の詳細について検討)

2022.1 第 35 回日本放射光学会年会(次期施設計画をポスター発表)

2022.3 シンクロトン放射光設備技術 SRI 国際会議(次期施設計画をポスター発表)

2022.8 軟 X 線分光 XAFS 研究会(次期施設計画を紹介)

2022.11 第5回次期施設建設検討会(NanoTerasu, AichiSR との施設間連携の展望を議論)

2022.12 分野研究会「軟 X 線共鳴散乱・反射率 ソフトマテリアル・ソフトマターのナノ～メソスケール構造解析」

2023.1 分野研究会「フォトン生命科学拠点形成を目指した UVSOR の活用」

2023.3 次期施設建設のコンセプト論文を国際学術誌へ投稿(Electronic Structure 5, 034001-1-9 (2023). DOI: 10.1088/2516-1075/acdf32)

2023.7 分野研究会「Seeds and Needs for Tomorrow's Synchrotron Radiation Photoelectron Spectroscopy Research 明日の放射光光電子分光研究展開のシーズとニーズ」

2023.9 分野研究会「イオン液体インフォマティクスの発展に向けて」

- 2023.9 分野研究会「UVSOR-SPring8 赤外ビームライン合同ユーザーズミーティング」
- 2023.10 分野研究会「Frontier of Soft X-ray Spectroscopy for Chemical Processes in Solutions 溶液の化学現象の軟 X 線分光測定の前線」
- 2023.10 日本学術会議「未来の学術振興構想」の募集に際し、グランドビジョン「量子ビームを用いた極限世界の解明」に UVSOR 計画の「複雑・不均一系の分子ダイナミクスに挑む量子光科学研究拠点の構築」が採用された。
- 2023.11 分野研究会 NINS 先端光科学研究分野プロジェクト研究会「放射光の量子性・干渉性に基づく革新的計測手法の探索」
- 2023.12 UVSOR40 周年記念式典
- 2023.12 UVSOR シンポジウムおよび第6回次期施設建設検討会

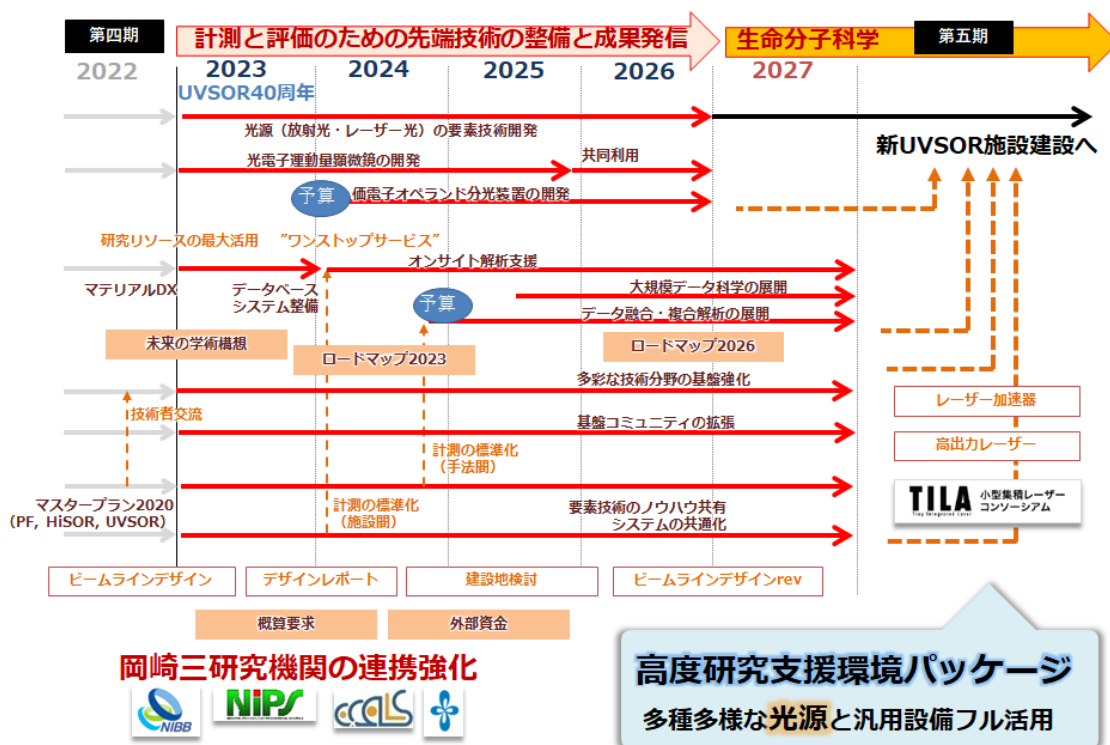


図 5-4: 次期 UVSOR 計画のための第四期目標と準備状況

## 6. 戦略性と緊急性

### ・3つの循環サイクル(学術開拓・拠点構築・放射光コミュニティー)

限られた資源の有効活動と地球環境保護の観点から持続型社会の重要性が認知され、循環型社会への拡張も提唱されている。この考え方を発展させると経済活動のみならず、学術活動においても専門家の枠組みを超えて総合的なアプローチで効果的に生産活動をすることが求められる時代となった。本計画では3つの視点で循環サイクルを構築し、持続性社会を拡張させた自律性社会の実現に向けた社会学的なモデルケースの側面も持つ。

### ・光計測を軸とする研究環境の一元化(循環サイクル1)

光源技術と分子科学ノウハウによるシーズブッシュ型とバイオ系や量子マテリアルの複雑系標的のニーズプル型の両輪ドライブによる研究推進は放射光設備利用法の転換期であることを既に述べた。時代背景から複雑系・不均一系の科学を目標に掲げた計画が散見されるが、真に分野融合を成し遂げ困難な課題を達成するためには、各種設備のハード的な充実はもちろんのこと、利用支援や周辺研究環境のソフト的な側面も極めて重要となる。我が国では依然として分野横断的な組織づくりは欧米に比して後発的で、バイオ系の利用に配慮した光計測環境は限定的であり実験機会が十分に提供できていない。また個々の要素技術や分析装置は各機関に配備されているため、名目上は挑戦的な課題も実施できる環境が存在するように見える。有能な研究者らによる成果が一定量生み出されることは期待できるが、試料環境の制約による限定的なテーマ設定や、付带的に必要とされる補完実験までのデッドタイムが発生するため効率的ではなく、国際的な競争力をもって分野開拓するには心許ない。特に生命科学や生物学では、周辺研究環境の充実性が研究推進の律速となることが多々ある。新鮮な試料を光計測するための試料調製環境や検証実験環境、あるいは拡散防止措置レベルが厳格に管理されている実験室環境や、共同利用における生命倫理審査体制が整っているなど、主たるインフラ以外の整備が充実している共同利用拠点が存在しないことが問題である。こうした実験研究の一連の作業として、実験申請、試料準備、試料分析、そしてメインの光計測、事後の試料確認、データ解析のスキームを一貫して実施することで初めて困難な複雑系の研究が進展する。

計画準備段階から、化学やバイオ分野のユーザーが光科学で活躍できる場を構築し、多視点で光科学研究が発展することは必須である。例えば、技術面では先端バイオイメージングで赤外・可視光帯レーザーを駆使した超解像度法やコヒーレントラマン分光法の展開がめざましい。軟X線帯は軽元素に感度をもち化学状態計測に適すため、放射光ベクトルビームや光渦を併用するなど革新的技術を未利用波長帯で展開すれば、マルチビームによる新たな超解像度技術による複合イメージング法として期待できる。こうした未探査な物質群へ、斬新な視点での光の利活用が期待され、新たに微細かつ俯瞰的・巨視的な機能探査による新たな研究発想の獲得による計測ブレイクスルーを誘うことができる。構造からの機能の推測による生物学から脱却し、例えば細胞膜内の各組織の階層相関計測など、より直接的な状態・活性・機能の可視化や、ビームアシスト法によって、光による生体システム操作・制御の方法論の開拓を目指すことに繋がる。具体的な手法内容や装置仕様は、11章以

降に記載する。

一方、バイオ系の需要により開拓される新規手法は、化学反応ダイナミクスや量子マテリアル制御など他分野へと技術転換される。軟 X 線における「水の窓」の利用方法が確立すれば、無機材料の水和物などの計測などが想定できる。これはかつての技術循環の逆サイクルと言え、学術系放射光施設が担う波及性と持続性を意識した本計画の重要な戦略の一つである。

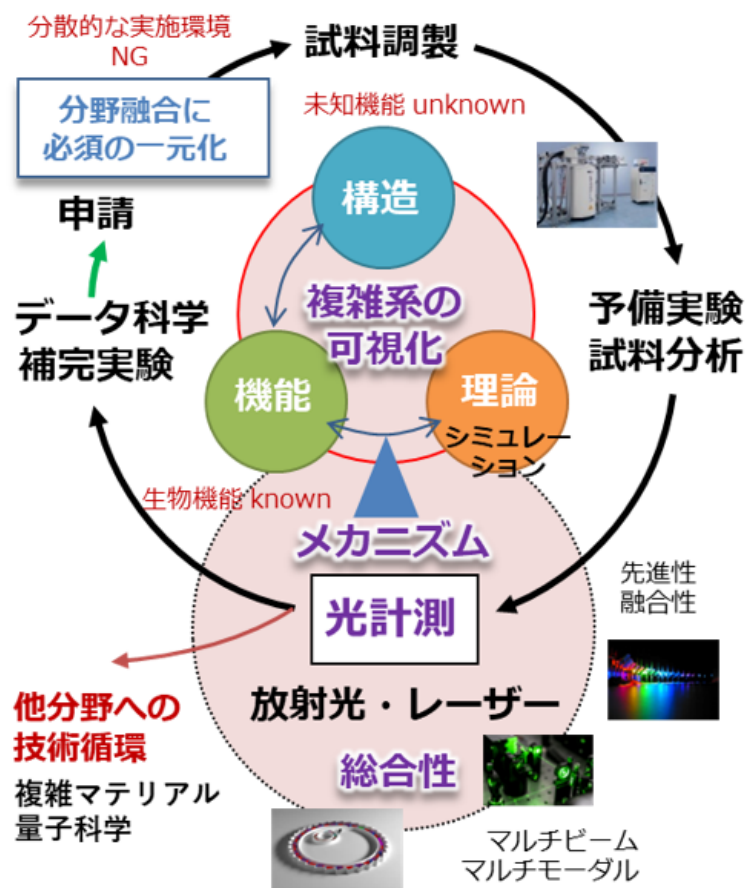


図 6-1: 複雑系・不均一系の光計測のためのサイエンス循環



## ・拠点ハブと共同研究による分野構築(循環サイクル2)

組織的な側面では、光科学のビギナーから専門家までを網羅する研究支援環境を OML 集約することで、有効な頭脳循環と人材育成環境として有効に展開できる。進展が著しい DX 技術を大型施設へ導入することは重要な展開であり、これまで専門家の勘・コツ・経験に依存していた先端計測が、

51 AI ロボットや機械学習支援による計測・分析環境の充実によって、その利用法や研究標的は大きく様変わりするはずである。さらに、これまで分野外だった研究者たちの参画は、斬新な視点での光の利活用が期待され、新たな研究発想の獲得、より俯瞰的な科学観の獲得、セレンディピティ機会の創出へと誘うことができる。システムインテグレーション(物質・計測・制御・解析・理論)により、放射光・レーザー光・分析・加工・データ科学等の各分野技術の融合を加速し、テラヘルツ、赤外、紫外線から軟 X 線までの広く長波長帯を網羅する「使い易い」放射光・レーザー光源と、量子光、自由電子レーザーやパルス  $\gamma$  線の「挑戦的な」特殊光源を利用した、機能・物性の制御・計測拠点の構築による多彩な学問領域への貢献を目指す。

大学共同利用機関を中心に人が集まるシステムはあるが、自身の実験計画の遂行が目的であり、また各実験手法間のコミュニケーションは難しく、施設へ来所した利用者間の交流機会が乏しい。閉鎖的な縦割り関係を打破するべきである。光源制御と分光計測を専門家とする研究者と技術者集団による支援と、URA をはじめとしたスタッフの人員数強化による抜本的な体制改善が必須であり、相談窓口から計測・解析支援までを一元化した OML 協力研究環境を生かして異分野交流を促進し新領域を切り開く。各連携機関の協力により、光科学のビギナーから専門家までのテラーメイド支援環境で協調的研究活動が活性化し、有効な頭脳循環の場合は人材育成としても独特の環境となる。これまで専門家の勘・コツ・経験に依存していた先端計測がビギナーにも利用できる環境となり、その利用体系は大きく様変わりするはずである。近年、大型設備開発の機会が稀有になり、若手へのノウハウ伝承が急務である。若手育成については 7 章で述べる。

物理系で循環させてきた人材供給は、新たなソースとしてバイオ系の分野母体をユーザー開拓することが有効である。異分野融合が叫ばれ、個人研究レベルでの成功事例は多数見受けられるが、組織レベルでの計画は今後の課題と言える。特にレーザー光源を非専門家が自由に扱える環境が不足しており広く普及させるための工夫が必要となっている。個人研究者との共同研究による技術伝承は限定的である。そこで、単なる先端放射光設備の建設ではなく、歴史的に開発競争関係にあった小型レーザーや自由電子レーザー等のあらゆる光源を一堂に介し、その利用法の大転換をもって、システム統合によりライフサイエンスへの展開までを意識した超異分野融合を加速する。

一方、本計画で重要なニーズ規模の期待値を示すものとして、バイオ系のコミュニティからは、挑戦的な「自律型生命機能」の解明に向けた手法開拓の取り組みに対し、高い関心とともに計画支援の意を表明して頂いている。生命科学分野における計測は、岡崎三機関、量生研、農工大、ExCELLS がコンソーシアムを構築し手法開拓を担いつつコミュニティ拡大を目指す。量子・マテリアル分野における計測は、既存ユーザーを中心に IMS、物構研 PF、広大放射光科学研究センター(以下 HISOR)、名大シンクロtron光研究センター(以下 NUSR)が持続的に牽引する。学術連携の循環は、その外縁にある産学連携へと連続的に展開させることができる。共同研究体制については 9 章にて述べる。

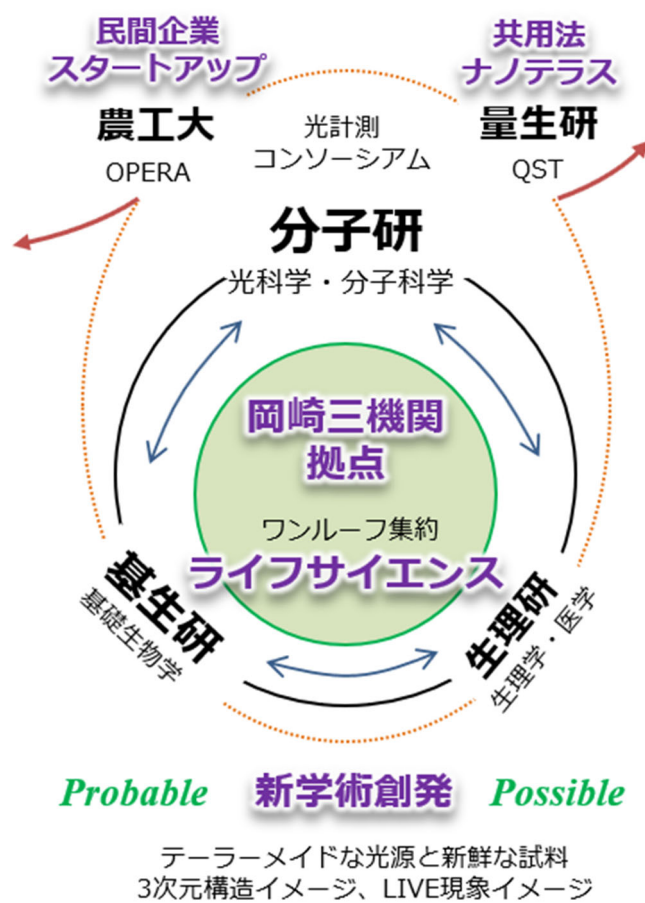


図 6-2: 複雑系・不均一系の光計測のための拠点ハブと共同研究循環

### ・学術系放射光の施設連携と共用施設との相補性(循環サイクル3)

今まさに成熟期にあるレーザーと放射光施設の利用転換期と捉える時期である。光源技術の開発だけでなく、利用者の立場に即してあらゆる光(放射光とレーザー光)を同等に提供し、特定のコミュニティだけでなく、多くの研究者が先端光科学を推進できる研究支援体制を構築し、ユーザーが求める計測に最適な先端光源を安定的に提供できる環境を整えることが重要である。このような施設は利用者視点で見れば、理想的な大型光源施設の設置理念であるが、これまでの各コミュニティの歴史的な背景から国際的に実現していない。国内にはレーザー技術を自由に使える共同利用機関は限定的である。

| 53

また人口減少や分野コミュニティのトレンド移行に合わせ、放射光ユーザー供給源も物理系から、分子科学やバイオ分野への拡張が有効であるが、10 数年前から戦略的に進めている欧米に比して出遅れている。本計画の実施時には、日本は 9 施設 10 リング型放射光源の体制であり、大型の SPring-8(8 GeV)、中型の NanoTerasu(建設中 3 GeV)、小型の UVSOR(計画 1 GeV/0.75GeV 切替型)で全エネルギー帯において最先端の光科学を網羅的に実施でき、さらに他の大学設置施設で学生を中心とした人材育成が進められ、また民間利用に特化した地域施設で、その需要に応じた適切な実験環境が整備できる。こうした光科学研究環境は極めて独特で、国内に多種多様な放射光施設が存在する強みとして、相互連携による技術開発や人材育成で大きなアドバンテージがあるといえる。このような多くの放射光源施設が存在していても、日本の施設の利用度は 100%以上である、高い産業利用度も含めて、諸外国から機関間の分担や運用法は参考にされている。欧州では各国の施設長が集まって戦略的コンソーシアム LEAPS が結成され、各施設の光源特性にあった利用分野等の役割分担の議論があるが、国内事情が優先され、調整作業は非常に困難であると聞いている。本計画ではこうした放射光コミュニティの敷居だけでなく、レーザー光源のコミュニティを包括することで、設備上の垣根を払拭し、ユーザーにとって利用障壁のない「あらゆる光」を駆使することのできる実験環境を提供する。欧米との国際競争を視野に入れると、地理的立地からアジアオセアニアユニオン構想も議論すべき段階にあり、主導権を握るためにも技術開発の先駆性と持続性が重要である。またバイオ系利用で顕著な、電磁波やX線を利用した構造解析学の先にある新たな機能評価法・分析法の開拓が世界的に求められており、新センターがその突破口を切り拓き、世界トレンドを作る。岡崎三機関の分野横断的な議論により生命科学分野における光の新規活用を通じた学術ハブ機関としての役割が再確認され、今まさに機運が高まっている。

光の未利用分野の研究者人口や、経済成長中のアジア諸国の潜在需要(人口と産業)を鑑みると、今後の光科学研究のユーザー数の増加傾向に比して、それを支える研究者と技術スタッフや、分野を牽引するヘビーユーザー母集団の頭打ち状況を克服する必要がある。既に 2020 年度より、放射光分野では学術 3 機関の連携プログラムで施設横断的な技術継承と若手育成を進めている。サイエンスと人材循環が 10 年サイクル、大型設備の更新サイクルが 20 年程度と長いために、その機会が重要な因子で、施設の絶対数が一定数必要となる。さもなくば、若手へ技術伝承する機会が 20 数年に一度となり、技術レベルが低下する可能性が高まるだけでなく、要素技術を開発できる民間企業の持続性にも影響する。人材と技術枯渇を防ぐためには、国内施設規模は維持しつつ、定期的な施設更新機会を欠かさないことで長期的な発展に資することができる。

民間企業による産業利用の多くの事例は、学術利用とは全く異なる時間軸あるいは支援内容が求められる。申請方法、支援体制、地域性、利用規模など、検討すべき項目は多岐にわたる。主に Aichi SR や SAGA-LS、また新しい試みとしてコアリション事業を始めようとしている NanoTerasu の戦略が参考となる。具体的な検討については第 9 章にて後述する。我が国における 10 施設の役割分担とその存在意義は、日本放射光学会において議論され、その他の各サポートレターにも記述されているとおりである。次期計画で高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所(以下、物構研)PF 施設が目指す放射光設備を利用したマルチビーム実験は、短波長 X 線帯では唯一の方法となる。PF 施設は歴史的にも加速器研究者集団の強みがあり、次期施設 PF-HBR は世界的に光科学の学術を牽引していくであろう。また技術革新による大型施設の省エネ化は重要な研究課題である。こうした基礎技術や学術の発展を我が国の共通資産とすべく、マスタープランをもとに学術三機関で連携して次世代の技術開発を進めている。

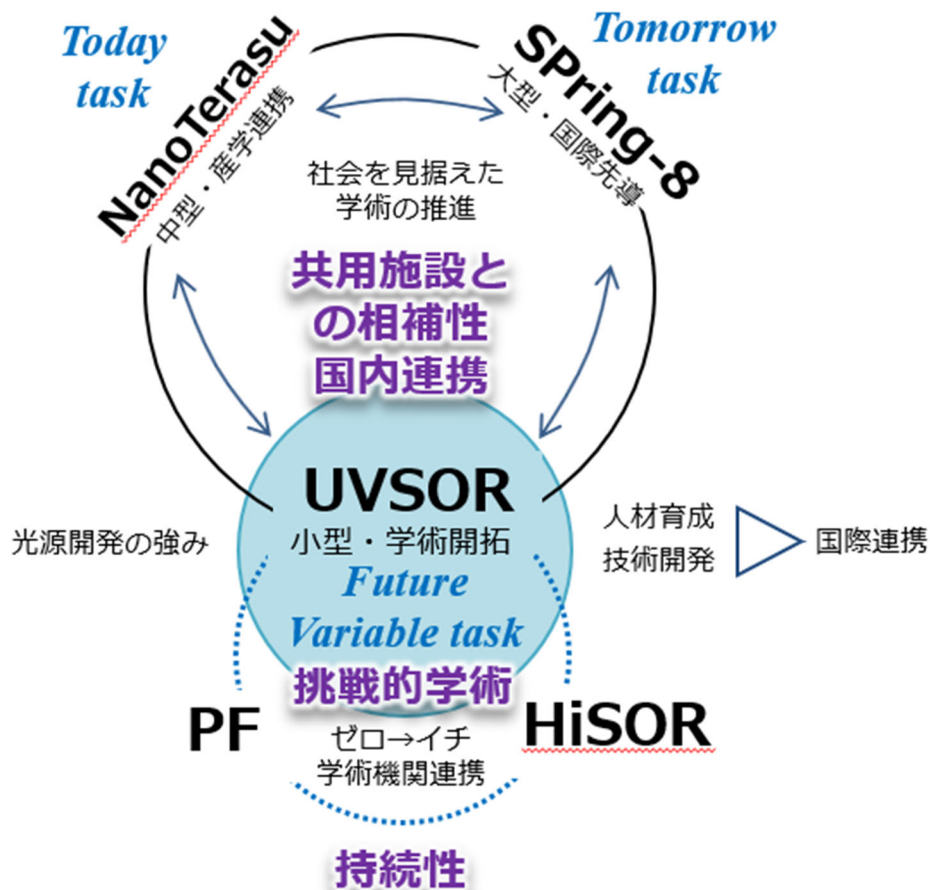


図 6-3: 複雑系・不均一系の光計測のための放射光施設循環

## ・将来的な我が国の成長・発展、未実施の場合の弊害と懸念

共用推進法による国策としての大型放射光施設の活躍が目にとまり、新たな施設建設や次の高度化の展開にも期待が高まる中、問題点も懸念されている。例えば、NanoTerasu のコアリションコンセプトには産学連携の新たな試みとして、多方面から高い期待が寄せられるが、その一方で将来的な懸念材料として、金銭的な負担ができる企業参入に限られる点が挙げられる。決して安くはない有償利用が運用形態の基本であるので、中短期的にそれに見合う経済効果が見える研究に対してのみ、業界が先払いをして利用する形態で、確実な成果が求められると共に挑戦的な計測は戦略が難しい。また共用法施設の学術推進は、今日的な社会要請に関連した分野に限定的となり、ゼロをイチにするような開発段階の次世代の計測法を試行錯誤で研究するような体制は、こうした大型施設では運用コストの観点等で現実的に実施困難であるため、こうした光科学の革新的発展を担ってきたUVSOR、HiSOR や PF 施設の学術機関の責務は大きい。既に我が国発信の「新手法や新装置」の登録件数は減少の一途であり、これが先端成果の 2 年遅れの発信という負のループの源と言われている。最近、英国 Nature 誌に示唆的なタイトルの記事「[Japanese research is no longer world class — here's why](#)」が報告された(Nature, 623, 14 2023)。ましてや 10 年後の世界トレンドを創発するような挑戦的研究は言わずもがなである。20 年程度前は、先端開発コストも現状のように高くなく、個人研究による各種開発があり、その分野も多岐に渡っていたが、現状で残されている課題の多くは、時間と経費のかかる標的であり、大型インフラ整備とそれによる手法開拓は学術機関が担う意義が極めて高く、長期的成長の視点で予算措置政策の抜本的な対策が不可欠である。我が国が主導して 10 年後の世界トレンドを創れるかは、国力としての知的基礎力そのものの鏡と言える。他国の後追い技術では初期費用対効果に優れるが、全て二番煎じの技術では総合的な経済効果が薄まる懸念があることは前述のとおりである。さらに、自国内の大型設備の開発があつてはじめて地元地域・国内の装置メーカー向けの技術開発の場が保証される。つまり、大型設備の設置計画は、基盤産業の振興となる。特に放射光施設は、真空・光学・計測機器の技術の蓄積が進み知的財産が創出されるのはもちろんのこと、時代を跨いで技術伝承がおき、エンジニアが新しく育成される。我が国

に放射光施設が複数ある恩恵として、各要素技術が開発され中小企業が成長してきたが、一方で、測定プロトコルや OS はほぼ海外製である点は忸怩たる思いである。

かつてのマスタープランに代わる試みとして、日本学術会議の「未来の学術振興構想(2023 年版)」が新たに策定された。日本放射光学会から提出されたビジョン「新学術分野の創成と社会課題の解決を実現する先端放射光科学」は、19 のグランドビジョンのひとつである「量子ビームを用いた極限世界の解明」に取りまとめられた。その中で、わが国の放射光科学を継続的に向上させ、世界をリードする体制を実現し、更なる知の探究とエネルギー・環境・生命に関わる諸社会問題の解決を目指すために以下の 3 点、

- 1) 先端光源開発とその光源特性を活かした革新的な実験手法の開拓を担う人材育成
- 2) 放射光のみならず各種量子ビーム、その他広範囲の計測分野や理論研究との学術連携
- 3) 放射光施設ネットワークを拠点とした物質・生命インフォマティクス基盤構築

が強調されている。UVSOR が申請したビジョン「複雑・不均一系の分子ダイナミクスに挑む量子光科学拠点の構築」も本グランドビジョンに掲載された。新たに策定されたグランドビジョンによる提言は、我が国の多様な学術振興の指針となるとともに、学術政策、さらに関係省庁、大学を始めとする研究教育機関等における具体的施策や予算措置に活かされることを期待するものであるが、その実現を強く望む。

### ・先端科学分野の人材育成と技術伝承

分子科学、基礎生物学、生理学の今後の発展には、複雑系に最適化された先端分光技術の開発とそれを担う次世代研究者の育成が国際競争下を鑑みて急務である。特に、若手研究者の育成において、手法開拓や装置開発の経験は最も困難な部類のひとつであるため、昨今の物理学・物理化学分野の動向からは極めて深刻な状況であるといえ、緊急性が高い。いわゆる団塊ジュニアの世代を最後に若手が装置開発経験できていない状況に陥っている。経済成長期に深化した、材料科学・分子科学で培われた技術開発ノウハウを次世代に伝承するためには、失われた 30 年の影響は顕著で、残された期間は少ない。また、先端技術を駆使した光を使いこなすための人材育成もしかりである。特に複雑系の計測は、光技術の詳細な技術的ノウハウなしでは極めて困難である。実際に、

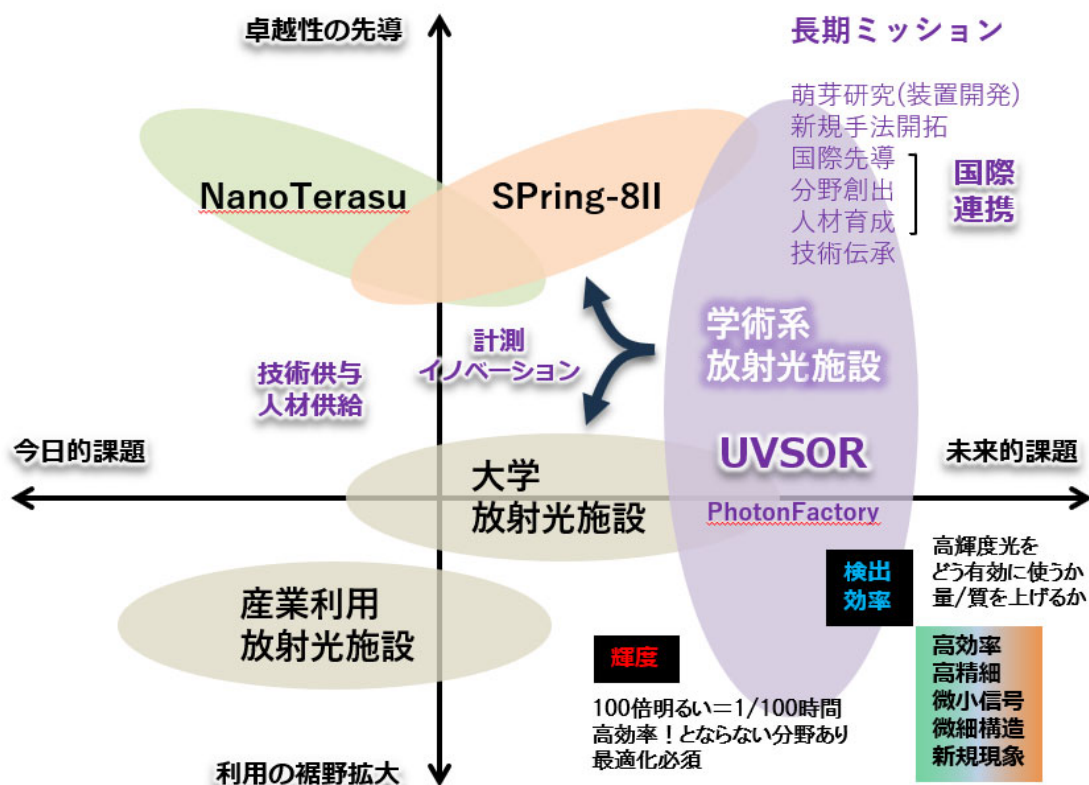


図 6-4: 我が国の放射光施設間の相補性. 装置改良は各施設の特定分野発信で定期的 to 実施されコミュニティに還元される. 多彩な基盤学術の持続性に極めて有効な分担体制



未利用分野への対応を組織化するには、極めて潤沢な人的支援と実験環境の構築が不可欠で、国際的な評判の高い英国並みの支援体制を早急に構築すべきである。

こうした課題対応として研究補助となる DX 技術の開発は並行して進めるが万能とはいえない。長期的に将来に渡り、さらなる発展性を期待するならば、若手が自ら経験しノウハウを創出する能力を訓練し、次世代を切り開く人材を育成することが望ましく時間を要する。本計画では、装置開発経験の希少な機会の時間と空間を共有し、多くの異分野の研究者が顔を突き合わせて活動できる「光道場」の環境を提供することによる教育と技術継承により、我が国の組織力の抜本改革と強化を狙う。機構が主導する OML プログラムを通じた支援体制や、岡崎三研究機関の基盤コミュニティによる機能集中が効果的である。

新たな学術分野の創発や、新規手法開拓・装置開発には長い試行錯誤の時間と多くの学生の協力などが必要で、特定の大学や機関を越えた仕組みづくりが必要である。大学共同利用機関をハブとした連携支援体制と、学術施設として運営される大型設備が不可欠と言える。国内での共同利用施設が直接、理系人材の育成の場となるばかりでなく、その成果発信が、次世代の理科好きの子供や理科教員を増やす好循環を生み、理科教育 STEM の強化に役立つ。また、地域性としての地位確立も重要で、アジア諸国から留学生を受け入れることで技術・技術者の海外伝承と波及につながる。文化輸出は武器輸出に勝る。学術施設は、新たな BL・実験ステーション・測定手法を大学・研究所の研究者らと施設の研究者が協働して実施する環境がある。加えて、IMS が創始期に掲げた三本足の鼎の理念に従い、技術者と研究者と支援員の連携で効果的な開発が進む。さらに、学術施設間の職員間交流によってコミュニティ全体で技術伝承が進んでいる。大型施設の共有環境「光道場」における希少な機会を教育プログラムとして利用し、複雑な設備をブラックボックス化せずに仕組みを理解しながらシステムを組み上げる経験を積むことができる。こうした学術施設でノウハウを身に着けた若手や技術職員が、期間限定で他施設の更新や建設現場の支援に出向き、仕様書・技術設計書には出てこない関連技術の知恵が伝えられる。また、学術施設では旅費支援と共同利用者用宿舍の提供を通じて、遠距離の地方大学からの利用をも広く支えてきた。また共同利用課題の通年申請など、息の長い課題研究の受け入れによって、大学院における計画的・継続的な教育・研究学生が保障されてきた。学生自ら計測・実験に参加できる、質の高い大学院教育の基盤となっている。将来、大型放射光施設が共用推進法のもとに SPring-8 と NanoTerasu の2施設に集約されると、学術研究の推進に必要な持続的な人材供給は叶わず、結果的に広義の学術基礎体力の低下につながるだろう。本計画を実施しないことによる日本に対する研究者コミュニティからの信頼喪失や学術における国際的プレゼンスの低下等の影響は極めて大きい。

### ・バイオイメージング手法開発の国際競争

欧米とのバイオイメージング技術の開発競争は熾烈を極める。国立研究開発法人科学技術振興機構の発表した 2021、2023 年度の「研究開発の俯瞰報告書」にあるように、我が国では新学術領域、AMED、CREST、さきがけなどのプロジェクト型研究が複数発足しているものの、手法開発は欧米のスピード感に負けている。超解像度顕微鏡や、プローブ顕微鏡が主体であり、放射光施設を利用し

た積極的な開発動向は国内外を見ても見当たらない。一方で、実験室レベルでのレーザー光源を用いたバイオイメージング装置の開発もにぎわいを見せている。大阪大学のグループを軸とした、「次世代統合バイオイメージング研究所の設立計画(第24期重点大型研究計画2020)」は、本計画と類似目的であり、分野ニーズの一端を見て取ることができる。本計画の放射光源やレーザー光源を自在に活用し、複数の実験手法開拓を目指す計画は、分野の波及性、共同利用インフラとしての投資性、開発装置の流用性などの長期持続性の観点で優位性があると主張したい。また同機構2023年度の「研究開発の俯瞰報告書」には、イメージング法の発展に伴う、共同利用の促進、システム普及や市販化に向けたオープンプラットフォームへの取り組みの重要性も指摘されており、本研究における大学共同利用機関が軸となる計画の有効性を指摘できる。また同書では我が国の構造的課題として、異分野連携の希薄さも問題視されている。ライフサイエンスにおけるイノベーション創出のためには、極めて多くの分野(生命科学、医学、工学、情報学、数理科学)の有機的連携が必要であるためとされている。欧米の成功事例をあげ、オープンサイエンスや共同研究を進める土壌として、コアファシリティとファシリティストッフ(技術者)の核が重要であることを指摘しており、本研究の目指すところと合致する。バイオ系の光計測は、試料染色法、レーザー光学などの技術的障壁が高く、一部の専門家に限定的である。そのため広く普及させるための仕組みづくりが重要である。本センターには、市販品の計測システムを導入するだけでなく、連携機関にて開発された、多光子励起可視光レーザーを用いる先端システムを共同利用設備として整備し、専門のオペレータの支援によって自由に活用できる運用システムを新センターに構築する。オペレータは伝統工芸の匠に準じた職人である。大型施設の研究拠点は、世代をまたいでこうした人材を育成する義務を担っている。



図 6-5: 研究開発の俯瞰報告書(2023年) ライフサイエンス分野には今後のイメージング法の展開をはじめ、国際比較検討の結果がまとめられている

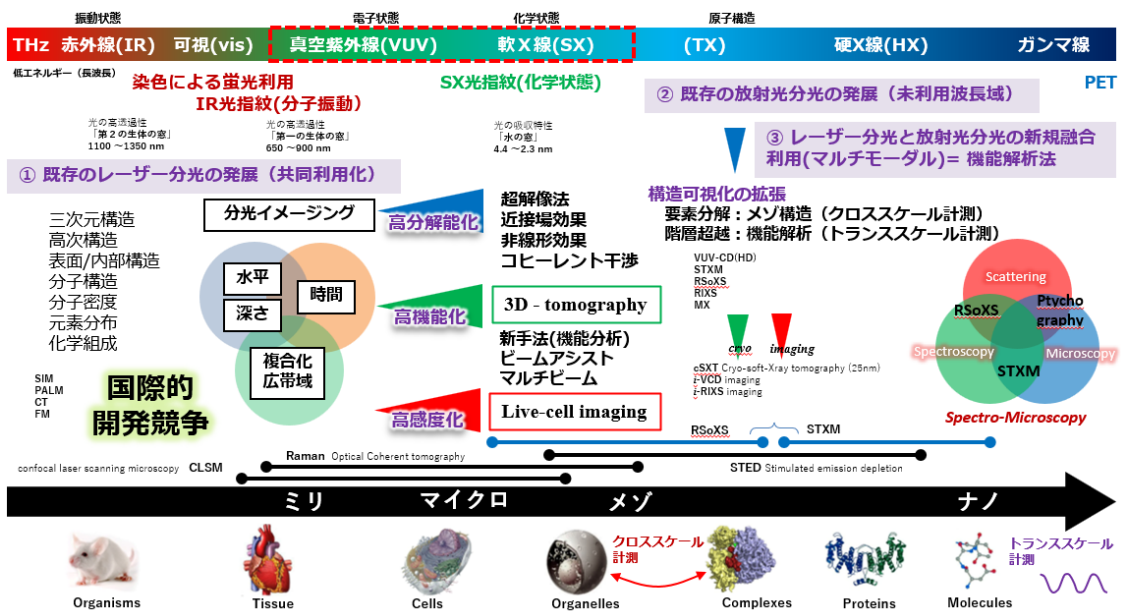


図 6-6: ライフサイエンス分野の分光イメージング手法の開発動向。まだ使われていない波長帯の光を利用するイメージング手法の開拓や、広帯域光の融合による新規手法の開発が求められる

・放射光施設間の国際競争と各計画

放射光施設は第三世代光源の技術的成熟に伴い、中型施設ではいわゆる第 3.5 世代(あるいは第 4 世代)と言われる、コヒーレント性を生かした実験へ移行するための高度化更新計画が散見される。欧米の主要施設が 10 数年経過する時期を迎え、2025-2026 年には欧米で実に 7 機関での改修工事ラッシュが計画されている。我が国では 1990 年代に世界に先駆けて、当該中型施設の建設計画があったが、時の政権事情により立ち消えとなり、来年度稼働予定の東北の NanoTerasu 実現まで、30 年弱のブランク期間を生じる結果となった。失われた 30 年の末裔として誕生するため、この間に世界中で蓄積された先端光技術のノウハウを集約できることは最新型設備のメリットであり、ようやく手にする国際標準の施設を我が国の研究者の多くが利用できる環境ができるのは喜ばしい一方で、上記のように先行する各国は更なる高度化により優位性を伸ばすことになるであろう。まさに周回遅れの極みである。このような政策ミスを二度と冒してはならない。

欧州では放射光施設のネットワークを通じ、それぞれの放射光施設がアップグレードを立案し、再建設期間をずらしながら人材交流を進めていた。現実にはコロナ禍・政情不安・エネルギー危機などが影響し、そうした人材・資材・技術のサーキュレーションが滞っている局面も生じている。図に示すように計画がずれ、アップグレードに向けた 5 施設の停止期間が 2025 年に重なることとなる(軟 X 線氷河期)。こうした“dark period”はサバティカル制度を通じた人材交流が盛んになる機会でもある。ここで国内施設の海外に対する visibility の向上も重要で、欧米で閉じがちな国際連携の輪に参入する必要がある。なお、国内では放射光学会や光ビームネットワーク事業(<https://photonbeam.jp/>)、学術 3 機関連携(マスタープラン 2020)など横串の取り組みが進められている。また、昨今のエネルギー問題により、電力集中する夏季期間の支援体制の持続性が問題視されている。大型施設では

運転コストの観点で利用停止措置をとる可能性があり、一定期間の国内需要が満たされない懸念が生じている。省エネ型の小型施設運用による受け入れ体制の確保が重要である。大型施設として世界を牽引してきた SPring-8 の次期計画(SPring-8II)が進みだした。次期施設は、長波長帯の赤外ユーザーへの支援停止案とされているため、我が国における赤外利用コミュニティの持続性を鑑みて、UVSOR の存在意義が高まっており、今後の展開についてユーザーコミュニティとの議論を進めている。

今回の科学目標は、挑戦的な「自律性」計測を中心に記述しているが、光計測アイデアが広まってしまうと、あとは経済力と時間の勝負となる。肅々と国際優位性を築くことが望ましい。世界的にみて、多くの国では一国一施設政策が標準で、コストパフォーマンスの観点から中型施設を保有するのみである。これは自国単独での網羅的な学術開拓ではなく、近隣諸国との協調による総合力で勝負する戦術とも言える。我が国はアメリカ、ドイツとならぶ放射光大国であり、国際的な技術開発の競争時代において、放射光大国日本への持続的な要素技術開発への期待は高い。技術普及後の爆発的なコミュニティの増大にも耐えうる盤石の施設連携があり、さらに加速化できることも我が国の強みである。小型施設は目的利用が特化されるため、世界的にみて施設数は希少である。小型施設が得意とする長波長帯の光源技術開発課題が多く残され、国際的にも希少・未開拓な学術フロントアが潜む。既存光源の利用においても真空紫外線・軟 X 線の波長域は、特に分子科学や生命科学で重要な軽元素に適した波長帯であるが、まだまだ光源性能をフル活用しているとはいえず、効果的な新学術開発への取り組みが期待できる。現状では、スウェーデンの小型施設(Max-IV)が最先端技術とともに稼働し始めたところであり、早急に本計画で、対抗環境を構築する必要がある。

また、レーザー光と放射光の融合利用は長い歴史をもつが広く共同利用展開されるには至っていない。またレーザー光源を自在に利用できる共用施設は国際的にも限定的である。複雑系をひもどくための光のクロススケール・トランススケール計測の技術確立が成されれば、生命科学にとどまら

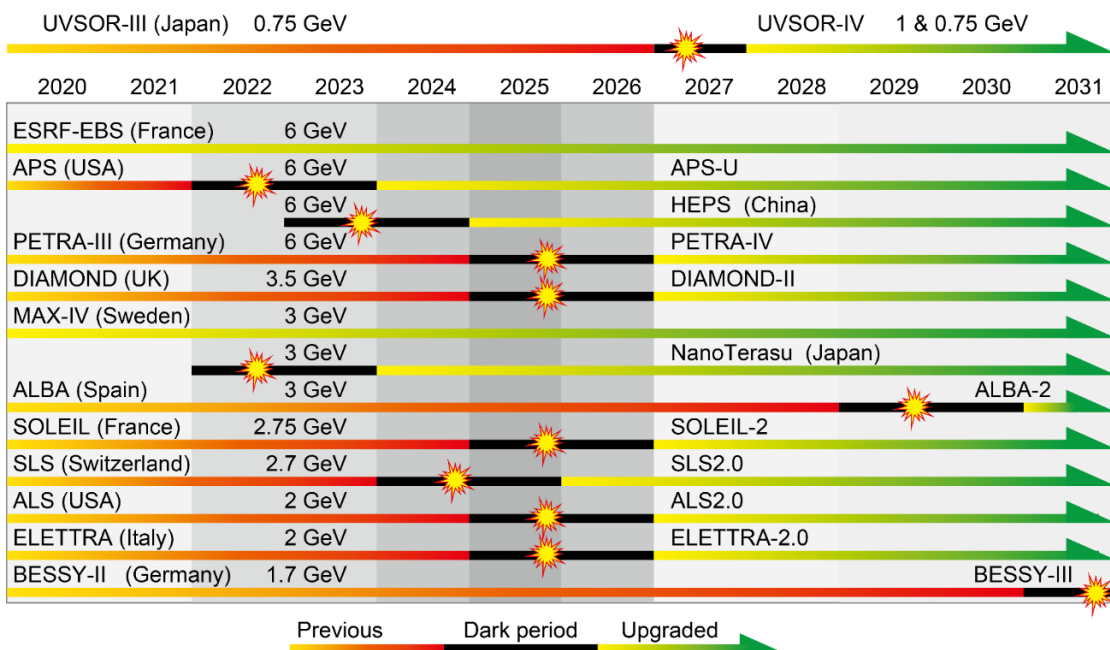


図 6-7: 欧米における第三世代放射光施設の各更新計画

ず、多くの分野で国際主導権を得るだろう。このような光を軸とした化学・バイオ系の融合研究環境例はまだ少ない中、紫外線の活用例や実験成功例が発信されれば熾烈な国際競争が生じるため、我が国の優位性を堅持するためには総合力をもって速やかに実行する時期にある。我が国における研究成果の発信状況を見ると、世界的なトレンドから約 2 年遅れて論文数の上昇がみられることが示されている。例えば、光電子分光法における分析器のシェアはほぼ海外(欧州)勢で占められている現状がある。欧州の放射光施設の光電子分光 BL に地の利があり、仕方なく海外の先進ビームラインを拠点とする国内ユーザーも少なくはない。技術交流・人材育成の観点から海外との共同研究は重要であるが、同時に国内コミュニティの空洞化にもつながる。光電子分光法における電子エネルギー分析器のように、その根幹技術が海外頼みばかりでは、当該コミュニティの成長は極めて困難である。かつて我が国に存在していた各種分析器を開発する力を、再度国内コミュニティで育て、国内に物性研究拠点を築いていかないといけない。こうした苦い経験をふまえると、10 年後のトレンドを見据えた戦略的な最先端設備への投資と整備が極めて重要である。本計画による複雑系・不均一系への光科学展開により日本発で世界標準を生み出し、国際競争力を向上させることが不可欠である。

### ・既施設 UVSOR の老朽化

2023 年 11 月 10 日の初点から UVSOR は 40 年を経過し、長きに渡り大型インフラを維持し、特定の分野ではあるが国際的な牽引にも成功してきた。2 度の高度化で多くの設備が更新されてはいるものの、依然として一部の設備は当時のものを利用している。国際競争力のある実験設備は稼働しているものの、耐用年数を越えて更新不能な設備が残り、これ以上の長期的な施設維持は困難である。また地下環境によるスペース拡張性が乏しいことから、次期施設は新地に建設することが効果的である。一般的に老朽化対策・技術の伝承はネガティブに捉えられがちであるが、まさに喫緊の課題である。材料開発や民間利用では実験・計測データの再現性が求められる分野が多くある。制限されたリソースの中でも、先端計測をとがらせるとともに、すそ野を有効に広げるのが理想である。それぞれの放射光施設単独で全ビームライン開発を担うばかりではなく、海外の放射光施設で実施されているような、複数の大学にわたる研究コンソーシアムが BL とエンドステーションを建設し、人を育てるような例が中小型放射光施設にて展開されるべきだろう。

本計画は、これまでの検討における最適解としての建設計画になっている。一方で、我が国の財政状況をふまえた検討も進めており、縮小した場合の中長期計画も今後は同時にしていく必要がある。

## 7. 若手研究者等の人材育成

大型装置や設備への投資難は技術開発スピードに顕著に影響する。装置開発はあらゆる分野の基幹を支えるため、その能力をもつ人材育成は資源のない我が国では重要な戦略のひとつである。人材育成で手法開拓や装置開発の経験は最も困難なテーマのひとつで、熟練した PI や技術者との共同作業が最も効果的であるが、様々な背景からその機会が失われつつある。20 年前までは、個人型研究で大型競争的資金を獲得すれば、十分に挑戦的な開発が可能であった。現在は、研究緻密化やキャリアパスを意識したテーマ設定、物価高騰渦の社会環境から文化的な変革期にあるとも言える。長期間を要する開発は、目先の成果主義の研究では敬遠されがちで、時間の短縮を目的として市販の先端装置を購入し、メーカーと独自の改良や開発を加える手段が検討できる。しかし現実的には、大型化・高度化した先端設備導入は単に現行予算措置の点で困難である(2-3 億円以上を所要)。こうした複合的環境背景の変化が、世界トレンドを創出できない、先端成果が 2 年遅れで発信されるという諸悪の根源のひとつである。

大学共同利用機関のミッションはこうした課題のひとつの対応策を提示できるが、時代的に本計画が、世代継承挽回の最後のチャンスであるといっても過言ではない。共同利用・共同研究システムは、その循環サイクルや協働性から、適切かつ効果的な設備投資が可能である。装置開発とその恒常的維持管理において不可欠な予算措置の仕組みに加え、人事異動の少ない技術職員が長期的に装置開発やノウハウ継承の中軸を担うことで、研究者は自由な環境で開発と利用に専念できる。大学共同利用機関は、異分野の敷居を戦略的に制御し、コミュニティーの枠を越えたトレンド創出を目指すことができる。学際ハブ拠点として国際的な学術トレンドを掌握し、中長期的に戦略的に集中投資することで、常に世界標準の研究環境を維持してコミュニティーに提供できる。定期的に更新される最先端技術の技術トレーニング環境により、人材育成と技術伝承が担保される。こうした環境は共用推進法による大型施設では、その支援方向性の特徴から極めて困難であり、学術機関が管理する大型施設が不可欠である。一方で、光科学の専門家は、分野トレンドの変化もあって、国内スタッフやヘビーユーザーの母集団は頭打ちで減少傾向にあるため、新たなニーズに対応するためには、施設間連携による総合力が有効である。マスタープラン 2020 に基づいた学術 3 機関の連携で、施設横断的な技術継承と若手育成を進めている。限られた予算による設備更新機会を、独占せず広く享受しようというコンセプトである。本計画の施設建設や装置整備過程においては、過渡的に多くの研究者による連携が必要となる。加速器技術については多くの専門家集団を有する高エネルギー加速器研究機構の協力支援を仰ぐ。BL の開発と整備については、放射光やレーザー光のヘビーユーザーを抱える諸大学を中心に、量子計測 BL コンソーシアムを立ち上げ、BL 建設と調整ならびに実験を実施する。バイオ系の光計測においてはレーザー光による高度先端光計測を推進しているヘビーユーザーらによりバイオ計測 BL コンソーシアムを立ち上げて、同様に BL 建設と調整ならびに実験を実施する。各連携大の協力により、各コンソーシアムの中で、若手研究者にリーダー格を担わせ、実働部隊を指揮してもらい次世代へ伝承する。

光の専門スタッフをセンターの基軸とするが、その上位階層に、計測装置ごとに、マイスター・オペレータ層／ヘビーユーザー層／一般ユーザー層／リモートユーザー層のような技術要請レベルに応



じた利用者階層を想定し、それぞれの立場で業務に従事できる研究環境を設定し、大学院生のトレーニングを総合的に行える「光道場」を設置する。現施設では、利用課題申請は年間約 220 件、院生、助教やポスドクの若手研究者数は 300 名程度である。課題数は、運転時間を 24 時間体制で 2 倍にしても単純倍増にはならないが、ある程度の増加が期待できる。一方で、これまでヘビーユーザー層に偏っていた利用者分布がライトユーザー層へ拡張することで、必然的にビギナーへの実験参加バリアが下がり、若手人数は増加すると期待できる。

若者の好奇心と探究心を刺激できるような時代背景に適合する融合型ファシリティと組織体制改革が効果的で、新センターの環境を「光のテーマパーク」となぞらえた。新センターに多彩な光源技術を集約し、支援組織規模の拡大とともに、教育プログラム「光道場」体制を構築する。主に物理系で循環させてきた人材供給は、新たなソース源としてバイオ系の分野母体をユーザー開拓することが有効である。異分野融合が叫ばれ、個人研究レベルでの成功事例は多数見受けられるが、組織レベルでの計画は今後の課題と言える。特にレーザー光源を非専門家が自由に扱える環境が不足しており広く普及させるための工夫が必要となっている。個人研究者との共同研究による技術伝承は限定的である。そこで、単なる先端放射光設備の建設ではなく、歴史的に開発競争関係にあった小型レーザーや自由電子レーザー等のあらゆる光源を一堂に介し、その利用法の大転換をもって、システム統合によりライフサイエンスへの展開までを意識した超異分野融合を加速する。

将来的な人材枯渇は、新参分野コミュニティを新たな供給源として開拓し、健康・食料・環境問題が深刻なアジアや周辺途上国への啓蒙と国際連携によって克服できる。大型装置への投資難・技術開発難の諸問題が顕在し、次世代への技術継承と人材育成の対策が極めて深刻である。こうした設備の技術枯渇を防ぐためには持続的な施設更新機会が欠かせない。

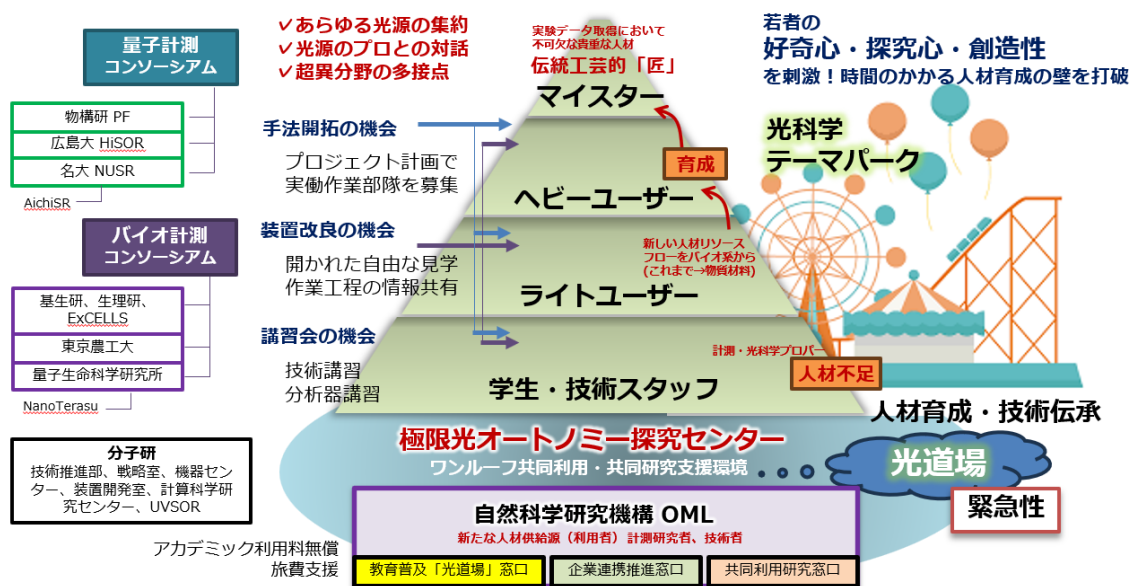


図 7-1: ワンルーフ集約による窓口一元化と光道場による人材育成仕組み、各ユーザー階層の適切な教育でマイスター持続性を担保する



図 7-2: 人材育成フロー. 利用レベル毎にユーザー層が育成される

## 8. 計画の実施主体

中核機関として IMS が実施拠点を構築する。運用中の UVSOR の組織体制を基盤とするが研究スタッフを増強する。光計測に必要な光源インフラとして、新たに省エネ・高輝度小径リング型加速器放射光設備 UVSOR-IV を建設する。連携体制として、現有の機器センター、装置開発室、計算科学研究センターと支援体制を共有し、職員の兼任により「極限光オートノミー探究センター」を中心として組織改編し、機構直下のセンターを設置する。NIBB や NIPS、ExCELLS の光計測専門家を同センターに配置転換し、これまで光科学と疎遠な周辺コミュニティへの展開を強化する。IMS の設置理念にある「三本足の鼎」を国際先進化し、研究者のみならず技術推進部の技術者らによる利用者支援強化とコーディネータ部門による支援充実化を図る。

65

マスタープラン 2020 に基づいて学術 3 機関(PF、HiSOR、UVSOR)の施設横断的な技術継承と若手育成を継続して進める。加速器建設においては多くの専門家集団を有する物構研の PF の協力を仰ぐ。BL の開発と整備については、ヘビーユーザーを抱える諸大学を中心に、量子計測 BL コンソーシアムを立ち上げ、BL 建設と調整ならびに実験を実施する。連携機関である、HiSOR、NUSR が一部を担当する。また農工大(OPERA)は、バイオ計測 BL コンソーシアムを立ち上げて、同様に BL の建設と調整ならびに実験を実施する。当大学実施の OPERA 事業コア技術である生体関連小分子の無標識検出技術を中心に技術協力および若手育成を進化させるための人材交流を実施していく。その他に、これらの活動グループでフォローできない分野領域を中心に分野選定して、協力研究体制を構築する。個人レベルで光科学を推進している研究グループを、クロスアポイントメント制度により雇用し(30%業務)、ヘビーユーザーとしてビームライン管理と実験に注力していただく。IMS を研究グループの分室とし、大学院生らの学位取得の主戦場として活用してもらう(光道場)。光道場には、ユーザー技術水準に応じたコースレベル設定をし、手法開拓、装置開発のアドバンスな課題か

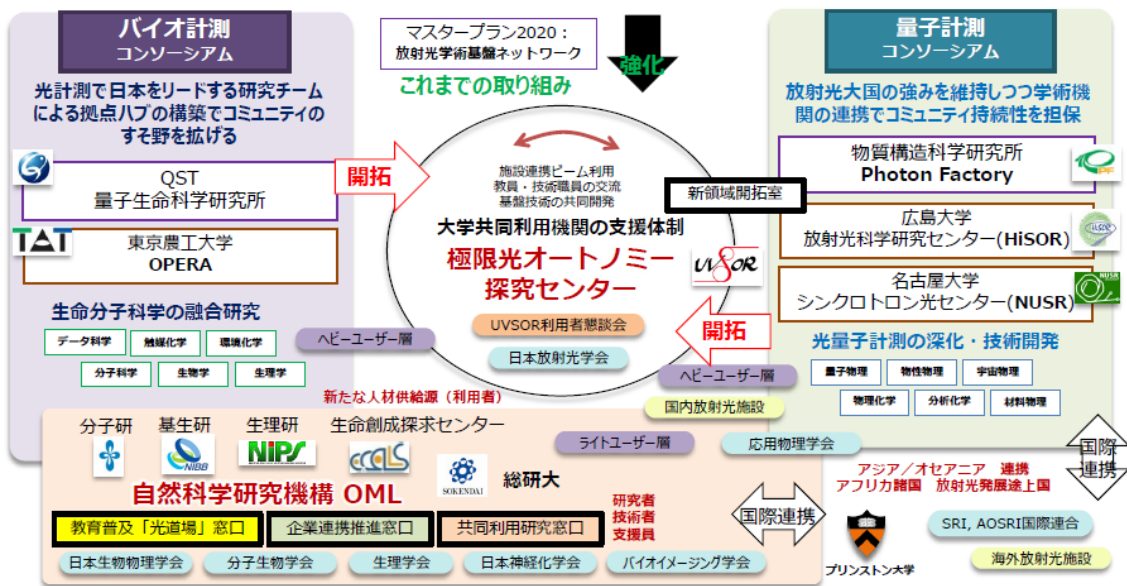


図 8-1: 学術機関連携体制と、OML 窓口および放射光ヘビーユーザーを抱える各大学による量子計測 BL コンソーシアム、バイオ系光計測ヘビーユーザーによる大学による BL コンソーシアム

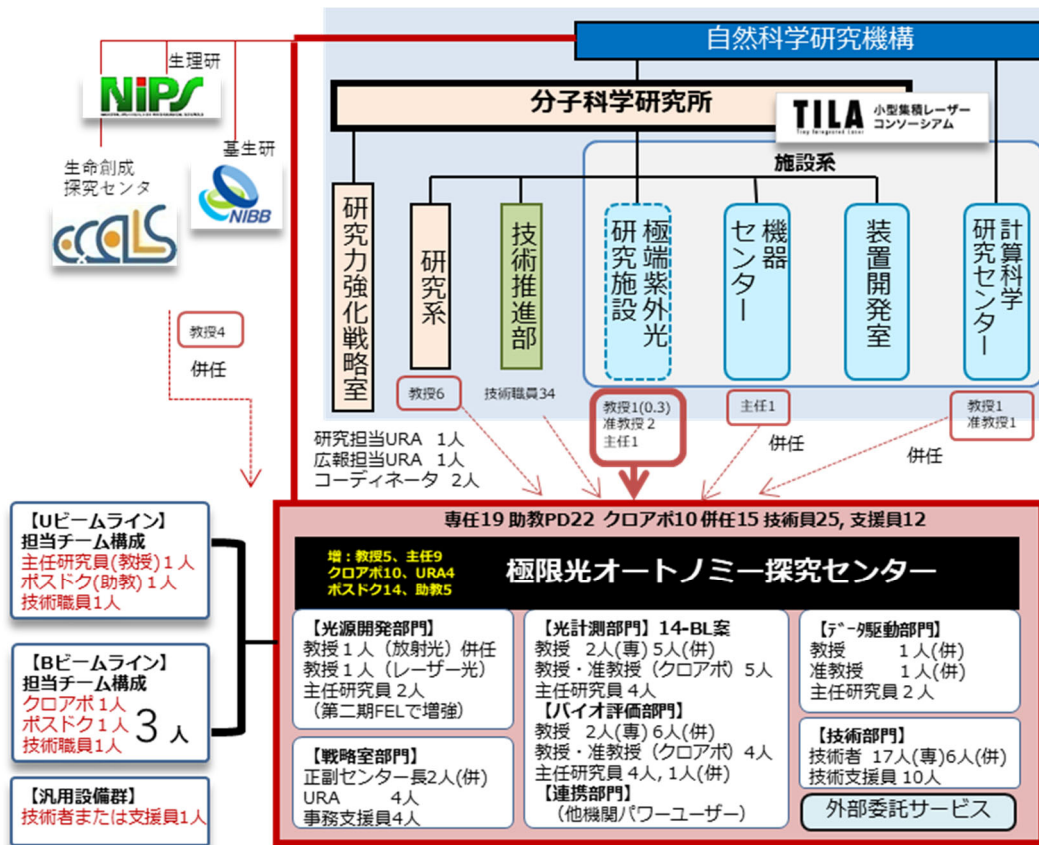


図 8-2: 自然科学研究機構直下の新センター組織概要

ら、光源、分析法利用、制御システム、データ処理まで、幅広い技術レベルの実習が可能な教育プログラムを提供する。新センターは、光源開発部門(専任 3 名、併任 1)、光計測部門(専任 6、クロアポ 5、併任 5)、バイオ評価部門(専任 6、クロアポ 4、併任 7)、データ駆動部門(専任 2、併任 2)、および連携機関を中心としたヘビーユーザー層によるコンソーシアムの連携部門からなり、各 PI には若手研究者(助教およびポスドク)を配置する。また、運営戦略部門(センター長 1、副センター長 1、専任 URA4、支援員 4)と技術推進部の技術スタッフ(専任 17、併任 6、支援員 10)で構成する。特にビギナーへの支援として研究コーディネータの価値が極めて大きいことが、民間利用施設として評価の高い AichiSR の運営で実証されており、本計画でも積極的に体制を構築する。放射光源を最適化した 4 年目以降は 24 時間運転体制とし、ランチビームラインの運用が可能なように夜間管理スタッフを外部委託する。各 BL につき PI 研究者と若手研究者、技術職員の 3 名以上で管理でき、国際標準的なユーザー利用支援体制となる。またライフサイエンス汎用計測機器群は、機器センターと連携して技術職員と主任研究員を中心に管理する。

本計画で刷新する省エネ型光源技術のひとつに小型レーザー入射加速器の導入を掲げる。社会連携部門(TILA コンソーシアム)で開発されつつある高出力レーザーを起点とし、これまでの線型電子線加速器の代替技術として、レーザー航跡場による加速器技術の応用を中期的に目指す。他施設計画では高エネルギー帯でのレーザー加速器 R&D が進められているが、低エネルギーでの技術



障壁が低いためまずは本施設での実用化が期待できる。現時点では完成されていないが、日々の開発動向に留意しつつ、本計画で 8 年目の導入を目指し、実現可能なタイムラインとして関連施設及び開発研究者と密接に協同していく。レーザー入射加速器は自由電子レーザーへの拡張展開が可能で、本計画後半における時間軸の研究強化に資する。

67 光の多彩な学問領域への利用拡大は先端光科学のコモディティ化を意味し、潤沢な支援環境は自ずと民間企業利用における研究支援との相性も良い。計画は 2 年のスタート期間と 10 年間の支援利用期間である。新センターは、既 UVSOR 設備から多くの BL 機器を転用することにより、活動停止の影響を最小化し、シームレスに研究活動を継続できる。新センターの建屋はキャンパス内に建設する。実験棟には小型加速器と各種レーザー光源設備を同フロアに整備し、バイオ系試料および複雑・不均一系の研究推進に不可欠な周辺汎用分析装置と実験室環境を集約整備する。一部の汎用分析装置は上記の各光源設備と直接接続し、その場観測やオペランド実験環境として利用可能にする。センター建屋には、センター職員 100 名強のうち専任研究者ら 50 名程度が活動できる居室と会議や交流の場の空間を整備する。

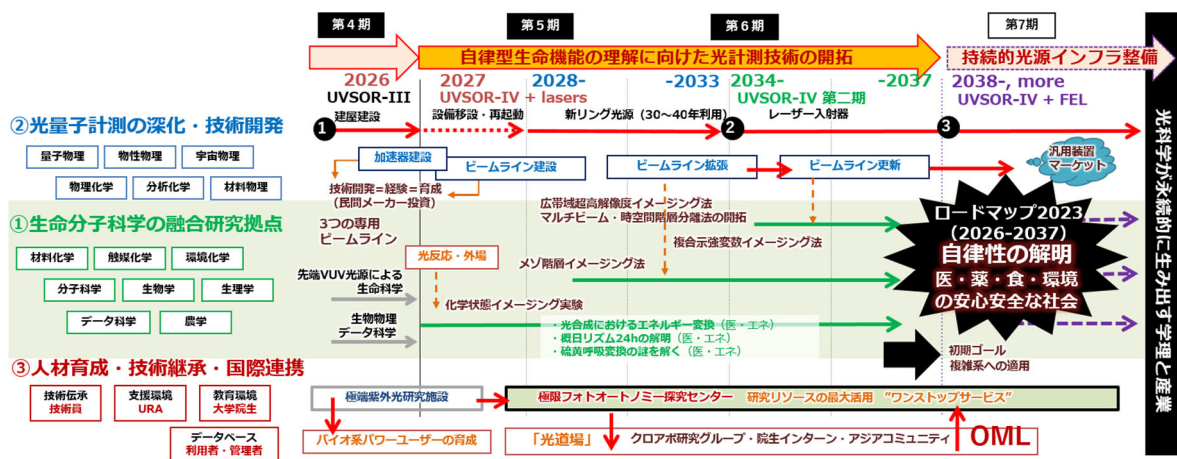


図 8-3: ロードマップ 2023 申請時点での実施計画タイムライン

## 9. 共同利用・共同研究体制

### 9-1 個人研究から協働研究

IMS は、大学共同利用機関としての重要なミッションとして、創設以来、全国の大学からの多数の研究者と協力して様々な共同研究を進めている。大型施設の UVSOR 放射光施設(年間 220 件申請、500-700 名で延べ 5,000 名・日の来所)や、物性測定・化学分析・分光計測に関する汎用測定装置を機器センター(年間 125 件申請、約 400 名利用)が維持し、全国の大学研究者を中心に広く利用されている。機器センターが 2022 年度より主導する「マテリアル先端リサーチインフラ」事業では、UVSOR の一部実験設備を利用した磁性探査研究が実施されており、計算機センターのデータ支援事業が開始されている。本計画の新センターによる光科学計測を主軸とする分析・計測支援に加え、各センターが所有する汎用実験設備と新たにライフサイエンス用の先端設備群を集約することにより、ユーザーが計画する研究の幅が大きく広がり、付帯的な実験として周辺設備による事前実験あるいは補完実験を自在に実施することで類を見ない研究環境が実現し、効果的な成果取得が期待できる。

新設する放射光源は周長 83m 小型サイズで消費電力効果に優れる(BL 数 14 基からスタート)。実施できる実験課題数は BL 数に比例するため、現状と同等規模と想定している。一方で、これまでの国内支援中心の運営から、海外ユーザーを巻き込んだ競争率の厳しい支援環境を想定しているため、研究の質は向上するものと期待する。運用開始4年後には安定稼働を目指し、国際標準である 24 時間連続運転を実施する。その場合の利用件数や利用人数は2割程度の増加、利用時間は 6 割程度の増加が見込める。長い歴史において未だ光を自在に活用できていない化学・バイオ分野ユーザーへの利用障壁を排除し、新鮮で斬新な視点による計測を開拓することが、光の新奇活用への最大の課題であり、高度な研究技術と充実した支援環境のパッケージが不可欠である。光源制御と分光計測を専門家とする研究者と技術者集団による計測支援はもちろんのこと、URA をはじめとした支援員の数的強化による抜本的な体制改善が必須であり、相談窓口から計測・解析支援までを一元化した協力研究環境として、新たに極限光オートノミー探究センターを構築する。包括的分析支援そのものが分野横断型研究を促進させ、施設や設備の共同利用、多彩な研究者の共同研究を通し、大学共同利用機関としての役割を果たす。

個人研究から協調的な研究活動(協働作業)の時代を意識し、光源技術の集約とオープンミックスラボ(OML)による組織規模の拡大により支援体制を刷新する。



## 9-2 産学連携

本計画の連携機関である東京農工大では、「JST 産学共創プラットフォーム共同研究推進プログラム(OPERA)」事業を2018年度から6年間推進してきた。「光融合科学から創生する「命をつなぐ早期診断・予防技術」研究イニシアティブ」と題されたこの事業は、生命科学分野と獣医学分野の研究領域を5つのキーテクノロジーとして設定し、そのキーテクノロジーのひとつに光イメージング計測「コヒーレントラマン顕微鏡」を組み込んでいる。本事業は、それぞれのキーテクノロジーにより、既存の産業分野で企業との共同研究を行うことで、あらたなオープンイノベーションの骨格となるスタートアップ支援への道筋を構築することにある。また、既存の産業分野で共同研究を進めるのと並行して、新たな学術的挑戦として、物理学のカテゴリーの中でも異分野との親和性が極めて高い光科学により、これら生命科学分野と獣医学分野を基盤的かつ横断的に融合させる目的がある。領域横断的な融合分野を総合しシステム化することで、産業構造に大きな変革をもたらすと期待され、事業終了にあたり既にいくつか成功事例があげられている。今後はさらに、光計測を国際標準化して世界に展開することで、新たな市場を創出することを目指している。

こうした大学と民間企業の産学共同研究のスキームは、階層性を異にすれば本計画にも拡張できると考えられる。例えば、OPERAプロジェクトでカラーコンテンツであるコヒーレントラマン顕微鏡がスタートアップとして利用されるが、その先に持続的な実験手法の開拓を同時並行することが望ましい。この時にアーリーSEEDSとしてゼロからイチを生み出す研究所の担う役割は大きい。種の創出から多彩な分野拡張、そして社会実装に至る共同研究の厚みをもった階層性が構築できる。最終的な出口へ向けた効果的イノベーション創出の社会循環に繋がる仕組みと言える。

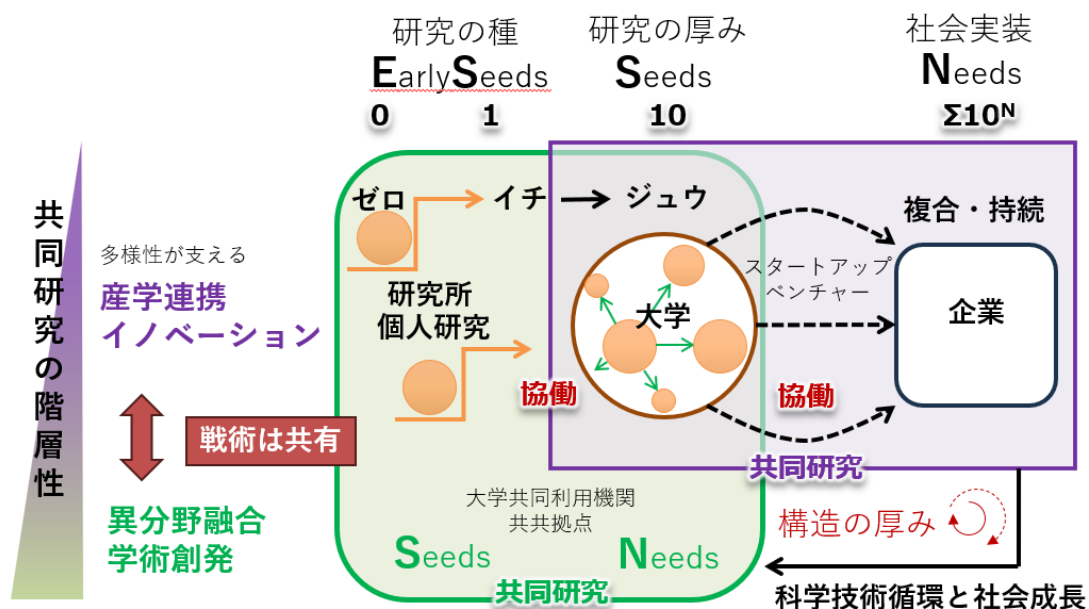


図 9-1: 研究シーズとニーズは共同利用・共同研究の階層性において分類することで同様のスキームを展開することができる。さらに階層横断的な仕組みの構築によって、イノベーション効果を高める組織づくりも可能である

民間利用の多くの事例は、学術利用とは全く異なる時間軸あるいは支援内容が求められる。例えば、放射光施設利用に関して AichiSR は極めて高い民間利用率(7 割程度)を誇り、その運営方法は欧米からも参考にされているという。大型施設にも関わらず、専門コーディネータによる親身な申請サポートのみならず、申請機会や審査スケジュールが迅速性と利便性に視点がおかれたデザインである。そのサービス対価としての利用料設定である。一方の、学術研究においては限られた共有資産の有効活用の上位概念があり、競争的資金の審査と同様に適切な科学目標と実現性に対するの序列付けが必要で、上記の申請システムは全く馴染まない。また民間利用では費用対効果としての成果取得が重要な指標で、さらに実験の再現性が大事な要素となるため、オペレータによる一方通行的な計測が主な施設側の作業である。本計画で目指す共同利用・共同研究の支援体制とは必ずしも合致せず、施設毎の業務分担が効果的で、我々は産業ドリブンの学術を分担する。民間利用においても先端的な学術要素の高い実験も行われており、こうしたケースでは学術系との差別化は不要となってくる。民間のハイレベル実験に向けたひとつの解決法が NanoTerasu におけるコアリションシステム、あるいは大企業自らが BL そのものを運営実施するケースであるが、中部地区の地域性を鑑みると、AichiSR と我々の綿密な連携が有効であろう。例えば、AichiSR で実施しきれない高度計測実験は本センターの共同研究型の研究支援システムで担うことができる。互いのユーザーと技術動向の情報交換を密に行い、それぞれの洗練システムを有効活用することで、幅広い民間需要への最適化が実現する。こうした 10 施設の役割分担とその存在意義は、日本放射光学会において議論され、その他の各サポートレターにも記述されているとおりである。次期計画で高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所(以下、物構研)PF 施設が目指す放射光設備を利用したマルチビーム実験は、短波長 X 線帯では唯一の方法となる。PF 施設は歴史的にも加速器研究者集団の強みであり、次期計画である放射光マルチビーム実験施設 Photon Factory Hybrid Light Source (PF-HLS)は世界的に光科学の学術を牽引していくであろう。また技術革新による大型施設の省エネ化は重要な研究課題である。こうした基礎技術や学術の発展を我が国の共通資産とすべく、マスタープランをもとに学術三機関で連携して次世代の技術開発を進めている。

## 10. 建設と予算案

### 10-1 建設候補地

効果的な分野融合には地域性を含めた研究の距離感が極めて重要である点を述べた。小型リング放射光施設の建設場所は本計画のワンループ環境構築のミッションにより、岡崎地区が必要条件である。小型リングの設置面積 50×60m<sup>2</sup>と将来的な直線部 50m 延伸を想定し、3カ所について設置可能性を検討した。三島地区のロッジの統廃合によって本計画を実現可能である。

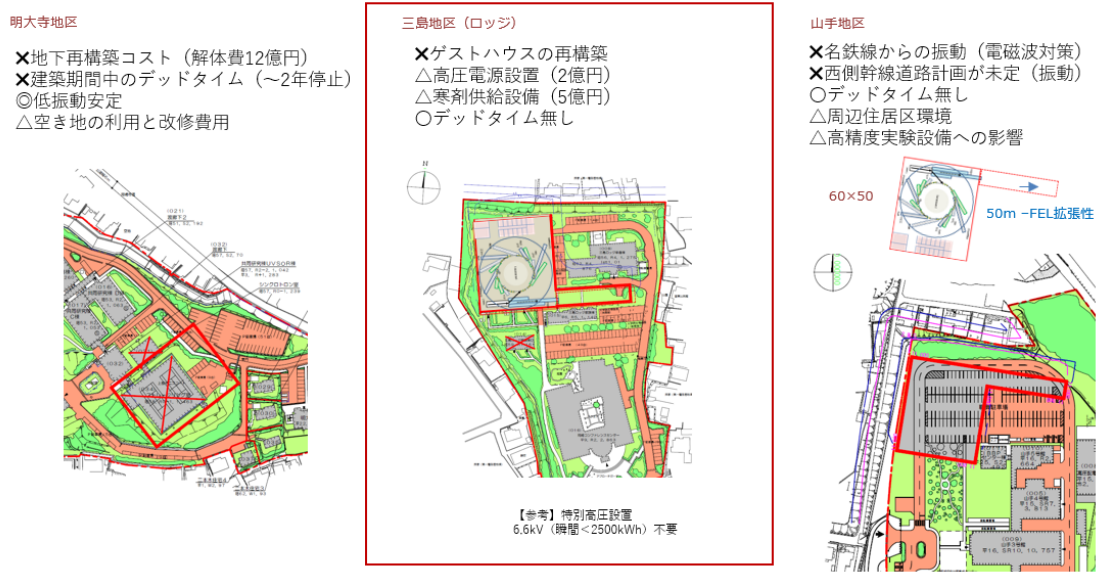


図 10-1: 三島地区への設置を最有力候補とする

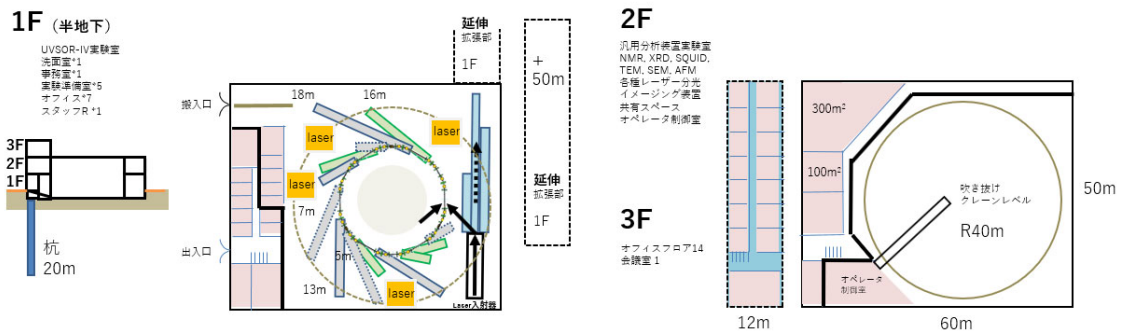


図 10-2: 新センター建物概要

## 10-2 予算措置

ロードマップ 2023 の申請計画書の例を示す。設備総額 160 億円、内訳：第 1 期光源加速器 15 億円、蓄積リング 30 億円、建屋：35 億円、バイオ BL：20 億円、バイオ周辺設備：20 億円、第 2 期 EUV-FEL 拡張：40 億円、および運営費：10 億円/年、人件費：5 億円/年を目安に策定。10 数年前の類似施設の建設費からの物価高騰比を考慮してある。光源加速器は、UVSOR-III の転用は難しい可能性があるため新規刷新する計画であるが、レーザー航跡場技術による加速器技術が開発されれば、より低コストとなる。

小型リング型放射光源設備は大型リング施設に比べると自由度が高いため、時代に即した運用が可能な点で大型施設に比した優位性がある。実施される研究課題数に対する消費電力比率(電気代経費)は低く、大型施設と比して約 3 倍コスト面で効果的である(2022 年度 UVSOR ケース：1 億円/220 課題)。現 UVSOR 施設は既に 40 年を経過しており、老朽化の影響が顕著で、このまま改修費用を投資することによる施設存続は可能であるが国際競争力の点で設備価値は減る一方である。また現施設は地下に設置しており、スペース拡張性に乏しいため、現在も新たな装置開発への障害となっている。国際競争力を維持するための先端実験設備の開発は継続しつつも、前述の更地への新センター建設により抜本的な更新が求められる。

所要経費の計画

(百万円)

	1年目	2年目	3年目	4年目	5年目	6年目	7年目	8年目	9年目	10年目	10年目以降	合計
施設・設備費	10,800	400	800	0	0	0	0	4,000	0	0	0	16,000
光熱水費	100	150	200	200	280	280	300	100	250	250	500	2,610
データベース等整備費	50	50	100	100	100	100	100	100	100	100	200	1,100
人件費	440	440	460	460	460	460	460	460	460	460	920	5,480
旅費	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	60	360
保守・メンテナンス経費	150	300	200	200	200	200	200	1,000	200	200	400	3,250
寒剤費	100	100	150	150	150	150	150	150	150	150	300	1,700
その他運営費	300	300	300	300	300	300	300	300	300	300	600	3,600
合計	11,970	1,770	2,240	1,440	1,520	1,520	1,540	6,140	1,490	1,490	2,980	34,100

## 11. 光源仕様

### 11-1 放射光加速器について

新センターは多彩な光源設備を提供するが、その中でも核となる大型設備が、省エネ型小型高輝度放射光源 UVSOR-IV である。UVSOR-IV 加速器の設計においては以下の 4 点を基本理念とする。

- (あ) SPring-8II、NanoTerasu を補完する真空紫外領域での回折限界光源の実現
- (い) 建設及び運転コストの低減による持続可能性の実現
- (う) 安定性と柔軟性の両立による多彩な利用の実現
- (え) 小型施設の俊敏性を活かした新技術開拓の場の実現

これらを実現するために必要な加速器の仕様を以下で考察する。

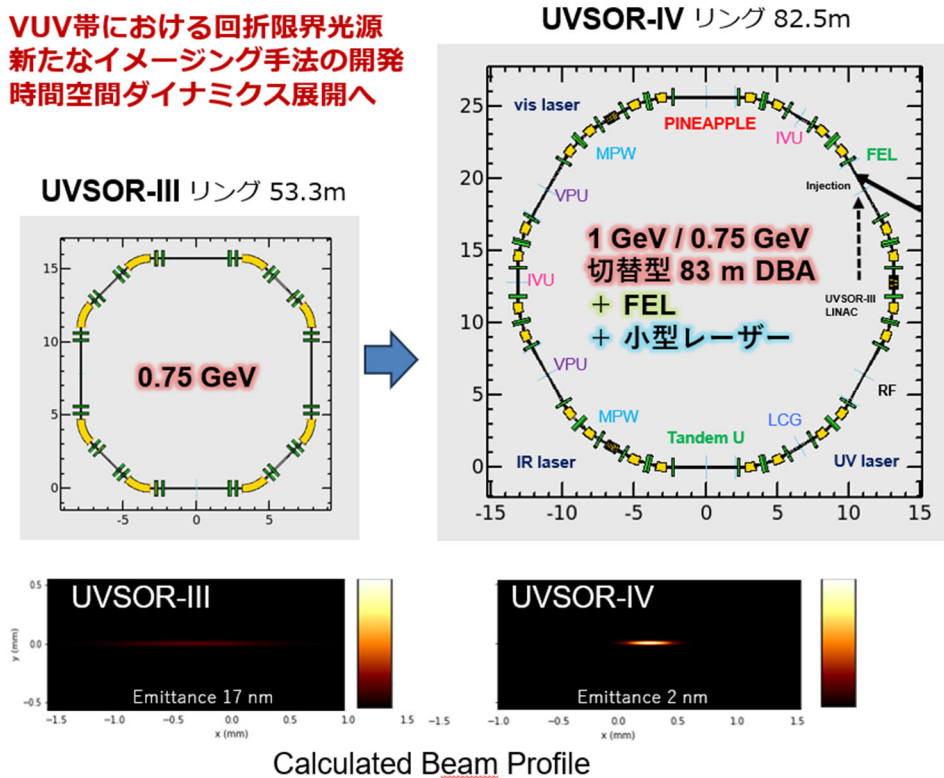


図 11-1: UVSOR-IV の概要と光源性能向上

#### 小型放射光施設の設置目的

今日の放射光源における主力光源装置であるアンジュレータからの放射光の光子エネルギーは、アンジュレータのパラメータが同じであれば、電子エネルギーの二乗に比例する。過去約 30 年間、

我が国の放射光科学の最先端を支えてきた SPring-8、Photon Factory、UVSOR の 3 施設の電子エネルギーはそれぞれ 8GeV、2.5GeV、0.75GeV であり、約 3 倍の等間隔となっている。これにより得意とする光子エネルギー領域は約 10 倍の等間隔となり、それぞれ硬 X 線、軟 X 線、真空紫外線に適した光源となっている。この 3 施設体制により真空紫外線から硬 X 線までの広大な波長域を切れ目なくカバーしてきた。軟 X 線領域は Photon Factory がその任を担ってきたが、輝度の点で国際的競争力の低下が懸念事項であった。2024年度より稼働する NanoTerasu がこれをカバーすると期待されるが、学術利用の側面では Photon Factory の次期計画である PF-HLS がその責務を担っていくことになる。硬 X 線領域は近い将来 SPring-8 を SPring-8II に高度化することで世界最高水準

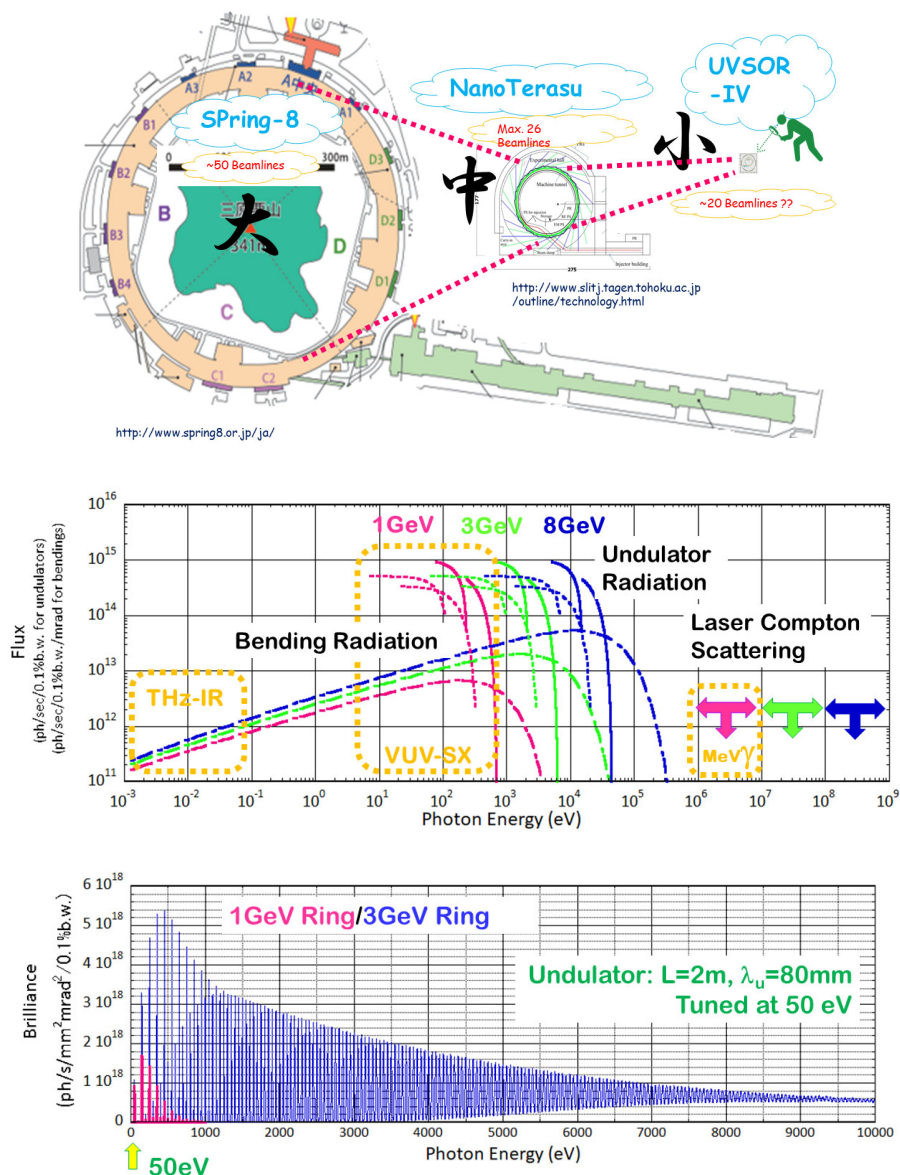


図 11-2: 高エネルギー大型リング、中エネルギー中型リング、低エネルギー小型リングの役割分担。上;施設の規模の比較、中;光子エネルギー領域の比較、下;高エネルギーリングと低エネルギーリングのアンジュレータ放射の違い



の光源性能を維持できる見通しである。残る真空紫外線領域では、UVSOR-III が世界的にも希少な高輝度低エネルギー光源として現在でも世界最高水準の性能を維持しているものの老朽化は確実に進行しており、回折限界までもう一段性能を高めた高輝度光源 UVSOR-IV を建設することで、今後 30 年間の日本の放射光科学の基盤を支える体制が完成する。

75 一般的に大は小を兼ねる、という考え方がある。放射光施設においても、確かに X 線を得意とする大型高エネルギー光源でも磁場が強く磁場周期長が長いアンジュレータを装着することで真空紫外線領域のアンジュレータ光を生成することは技術的に可能である。しかし、この場合、大量に発生する X 線の中にわずかに混じっている真空紫外線を、強力な熱流や放射線を防ぎつつ末端の実験装置へ輸送することになる。必然的にその構造は複雑・高価となり、利用目的に合わせた柔軟且つスピード感のあるビームラインの建設・運用も困難となる。大量に生成されている X 線を利用することなく捨て去ることの非経済性に止まらず、これを安全に捨て去るにも多大なコストがかかる点にも留意すべきである。これまでの我が国における硬 X 線(HX)、軟 X 線(SX)、真空紫外線(VUV)を電子ビームエネルギーの異なる 3 台の最先端光源加速器から供給する体制は技術的にも経済的にも極めて合理的が高く、世界に誇るべきものである。電子エネルギー 3GeV の NanoTerasu が順調に立ち上がりつつあることから、UVSOR-IV の電子エネルギーを 1GeV あるいはそれ以下とし、NanoTerasu、SPring-8II との 3 台体制により、真空紫外線から硬 X 線まで切れ目なく世界最高水準の高輝度／回折限界放射光でカバーする技術的・経済的に合理的な体制が持続できる。大型施設と相補的であるもう一つは、低エネルギー光源の小型であり柔軟な利活用が可能である点である。これは未踏の光源技術へスピード感を持って挑戦する際に極めて重要となる。大型施設では 50 ないし 60 もの異なる実験設備が同時稼働しており、ある特定の用途に特化したサービスは支援しにくいのが実情である。小型施設で原理検証した新しい技術を大型施設へ技術移転し短波長域で展開することで、我が国が世界を先導できる。また、小型であることから光源と利用の距離が小さい点は人材育成の観点からも重要である。あるいは隣の装置が視野内にあり、貴重な開発機会を共有できる現場の雰囲気人材育成の資産である。光源装置をブラックボックス化することなくその動作原理を十分に理解しながら新しい利用法の開拓へ挑むことができるという、まさに光道場と呼ぶにふさわしい環境を提供できる。これらは次世代を担う人材育成の点から極めて重要であり、小型施設で育成された人材を大型施設へ送り出すことで、この分野の基盤を支えることができる。このことは、現在、国内のほとんどの放射光施設(一部の海外施設)において、UVSOR で育った人材が活躍している姿を見ることができ、事実により実証されている。

放射光源発展のこれまでの歴史は、ひたすら輝度の向上を目指したものであったといって過言ではない。偏向電磁石からの放射の利用が中心であった第 1, 2 世代からアンジュレータが主力となる第 3 世代となり、アンジュレータ光が本来持つ高輝度特性を最大限発揮できるよう、電子ビームの低エミッタンス化が図られた。放射光のエミッタンスは光が本来持つ固有のエミッタンスと電子ビームのエミッタンスの畳み込みとなるが、光の波長のみで決まる前者に対し、加速器技術により後者を小さくするのが低エミッタンス化である。低エミッタンス化が進み後者が前者よりも小さくなるとそれ以上輝度は向上しない。この輝度の限界のことを回折限界と呼んでいる。波長の長い真空紫外域では電子ビームエミッタンス数 nm で概ね回折限界となるが、軟 X 線領域では数 100pm、硬 X 線領域では数

10pm 程度のエミッタンスが必要となる。

電子ビームのエミッタンスとは、ビームの進行方向に垂直な面内での空間広がりや角度広がりの積である。これが小さいほど指向性の高いビームということになり、ビームの放出する放射光の輝度、すなわち単位面積、単位立体角を単位時間内に通過する単位スペクトル幅あたりの光子数、も高くなる。ストレージリングの電子ビームエミッタンスは、放射減衰と放射励起と呼ばれる 2 つの過程で決まる。前者は電子が放射光を放出することで失うエネルギー・運動量を高周波電場で加速し補う際に各電子の進行方向が揃うことで指向性が高まる効果である。一方後者は電子が放射光を光子の形で放射し確率的かつ不連続なエネルギー変化を被ることで指向性の劣化が生じる、いわば量子論的な揺らぎの効果である。この 2 つの効果のつり合いにより、エミッタンスが決まる。放射光の放出そのものは防ぎようがないが、それにより生じるエネルギー揺らぎの空間的ビーム広がりへの波及をビーム光学的な手法で抑制することができる。光子の放出が起きるのは偏向磁石中であり、詳細は省略するが、低エミッタンス化のためには偏向磁石中での光学関数と呼ばれるビームパラメータを最適化する必要がある。ところが光学関数は偏向磁石中で場所により変化するため、仮に偏向磁石の中心で最適化しても、端部では最適条件から外れてしまう。偏向磁石の長さが短いほど、偏向磁石の中でまんべんなく最適条件に近づけることができる。以上のことから、低エミッタンスのストレージリングの設計の基本は、偏向電磁石をできるだけ小さく分割し、その周囲に収束電磁石を配置し偏向電磁石中のビームパラメータを最適化する、ということになる。容易に想像できるが、低エミッタンスを指向するストレージリングは必然的に大型化する。

| 76

一般にストレージリングでの電磁石配置(ラティス)はセルと呼ばれる基本構造を繰り返す形になっているが、特に放射光源加速器のラティスは短いセル多数の繰り返しで構成されていることが多い。2台の偏向電磁石の両側でエネルギー分散を消す Double-bend Achromat (DBA) セルは第 2 世代放射光源の一部で採用され、第 3 世代放射光源では標準的といつてよいほど広く採用されてきた。アンジュレータの設置に適した無分散直線部が無理なくリング内に多数確保できる点で他のラティス構造に比べ大きな優位性がある。多彩な利用や新技術開拓において、これら多数の直線部の存在は不可欠なものである。

低エミッタンスを狙うラティスでは、強い収束電磁石(四極電磁石)の導入が不可避であり、そのため電子エネルギーの違いによる収束作用の違い、いわゆる色収差が大きくなり、これの補正のために導入される六極磁石も必然的に強くなる。この強い非線形性の存在により電子が安定に周回できる振幅の範囲、いわゆるダイナミックアパーチャが狭くなる。入射直後の電子ビームは大振幅で運動し、また、蓄積された電子も残留ガスとの散乱などにより一定の確率で大振幅の運動を始めてしまう。ダイナミックアパーチャが狭いとこれらの電子を安定的に長時間捕獲できずビーム入射効率の低下やビーム寿命の短縮を招く。この問題を解決するために第 3 世代光源の開発期に考案されたのが harmonic sextupole である。これは色収差補正用六極磁石の非線形効果を打ち消すように追加の六極磁石を配置する手法であり、特に DBA セルでは偏向電磁石の両側に六極磁石を対称的に配置することで極めて効果的にダイナミックアパーチャを改善できる。現在稼働中のほとんどの第 3 世代光源でこの技術が採用されている。

DBA セルの特長のもう一つは運転の自由度が高いという点である。直線部の分散関数を制御する

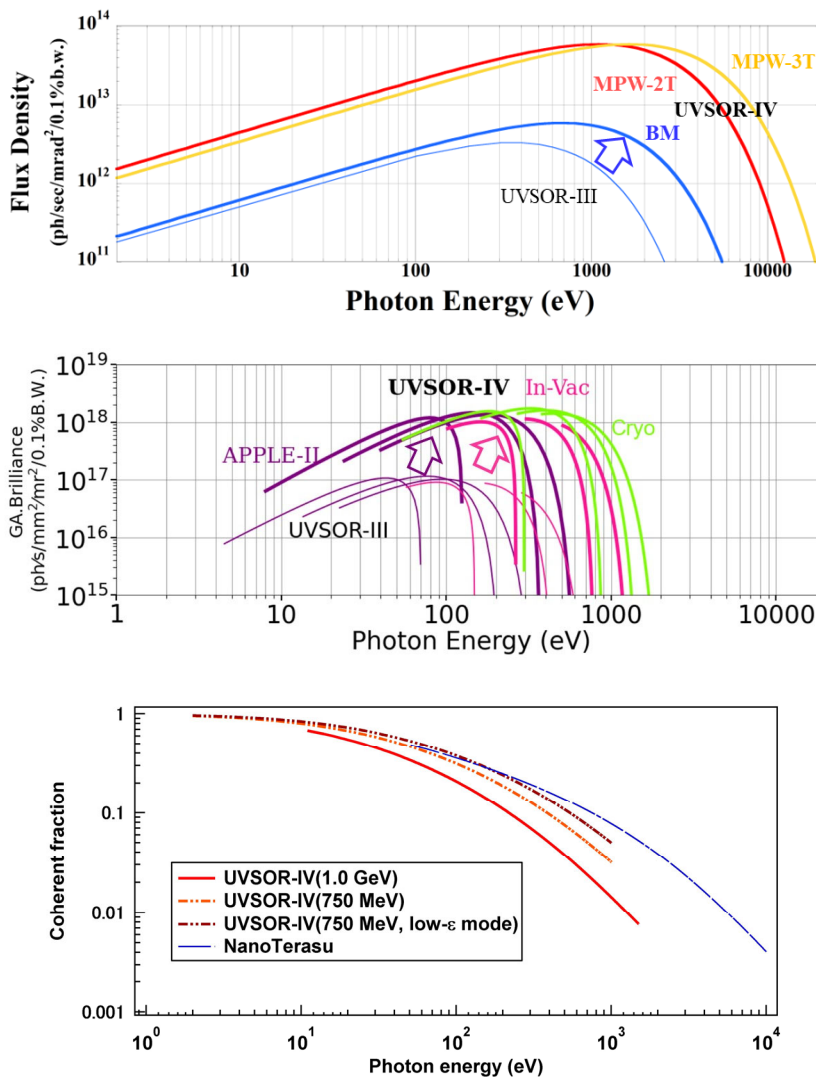
ことで、電磁石パラメータを大きく変えることなく、エミッタンスやモーメンタムコンパクションファクターを  
広範囲に制御でき、新しい光源技術や利用技術からの光源パラメータへの様々な要求に柔軟に応  
えることができる。構造が単純であるがゆえに調整パラメータ数が少なく、上述したビームパラメータ変  
更のみならず運転エネルギー変更などにおける調整も比較的容易となることが期待できる。これらは  
| 77 運転の省力化という点でも重要である。

硬 X 線領域での回折限界を目指す次世代の高エネルギー光源加速器のように 1nm を超えて、  
100pm 前後の低エミッタンスの実現を目指す場合に DBA セルを採用しようとする先述した偏向磁  
石の分割の要求からセル数を必然的に大きくせざるを得ず、その結果、ビームエネルギーの割に周  
長が極端に長くなってしまふ。このため、数 100pm のエミッタンスを目指した MAX-IV(スウェーデン)  
は一つのセルの中の偏向磁石数を DBA の2台から 7 台へ増やした Multi-bend Achromat(MBA)セ  
ルを採用したが、これに追随する形で、以降の高エネルギー次世代放射光源計画の多くで MBA セ  
ルが採用されている。一般に MBA セルを採用するリングでは第 3 世代光源のような大きなダイナミ  
ックアパーチャの確保が難しいことから、狭いダイナミックアパーチャでも入射蓄積を可能とする新し  
い技術の導入が必須となっている。なお、MBA と称しているリングでも2つの DBA セルの間の直線部  
を極端に短くする、もしくは無くすることで、一つのセルに連結融合し、これを MBA セルとしているもの  
もある。このようなセル構造はビームダイナミクスの DBA セルに近いことから、第 3 世代光源で培  
われ成熟した運転技術を適用できるという利点があり採用されているものと思われる。

UVSOR 施設は、建設当初より、小型・低エネルギー施設の利便性・柔軟性・俊敏性を活かして、  
様々な新しい放射光の発生法・利用法の開拓に取り組んできた。共振器型自由電子レーザーの開  
発は加速器設計段階から盛り込まれており、1990年代を中心に世界最短波長域での発振やレー  
ザー発振機構の基礎研究が行われてきた。これを発展させる形で 2000 年以降も自由電子レー  
ザーの基礎研究や応用研究が継続されている。低アルファ運転による短パルス生成、コヒーレント高調  
波発生、レーザーバンチスライスによるコヒーレント放射光生成、超短パルスガンマ線発生とその応  
用、VUV 帯の光渦やベクトルビーム生成と利用法の開拓、タンデムアンジュレータ放射によるアト秒  
時間干渉実験、高強度円偏光紫外・真空紫外線照射実験など、世界的にも極めて独自性の高い  
光源開発研究とその利用法の開拓に取り組み、世界を先導する成果を生み出し続けてきた。放射  
光利用法でも、赤外線放射光利用、レーザー放射光同期実験など世界を先導する新しい技術への  
挑戦が行われてきた。小規模放射光施設であり、標準的なユーザー運転とは別に、特定の研究テ  
ーマやユーザーの要望に応じた特殊な加速器運転にも柔軟に対応できることで迅速に研究を進める  
ことができた。

大型施設では多数のビームラインを有し、ユーザー数も多いことから、加速器を特定の実験が占  
有する形で使用することに風当たりが強く、ビームタイムの獲得が困難である。特殊な実験を行うため  
の実験装置の製作やその加速器への組み込みも高エネルギー加速器では熱負荷や放射線対策の  
ため、格段に高価となる。また、全く新しい技術の開発は、可視・紫外など、安価に実験装置が構築  
できる波長域で原理の検証を行うのが効率的であるが、高エネルギー加速器では、このような長波  
長域の放射光の発生や取り出しが技術的に困難である場合が多い。これらの事情により、大型施設  
では研究開始の意思決定に時間がかかり、また、必要な予算が大型化することでその獲得に時間が

かかり、ビームタイムの確保が難しいことで研究の遂行に時間がかかる。これらは特に全く新しい技術開発への挑戦において決定的に不利であることはあきらかである。実際、1990年代には Photon Factory でも UVSOR と同じような共振器型の短波長自由電子レーザー開発の試みがあったが、上述した大型施設特有の様々な困難のために、発振に至らないまま中止となった [H. Kitamura, K. Tsuchiya (eds.), KEK Report 97-19 (1998)].



Coherent fraction の計算に用いたエミッタンスの値: 4.2 (1 GeV), 2.4 (750 MeV), 1.6 (750 MeV, low-ε) nm rad

図 11-3: 高輝度小型リングの光源特性

### 加速器設計目標と方針

本計画で狙う科学目標の実現に向けては、新たな手法開拓や装置開発が不可欠であり、光源加速器がこれらの研究開発に柔軟且つ迅速に対応できる必要がある。ニーズプル型の施設利用発想転換として、ユーザーの求める実験条件に合わせて加速器パラメータを柔軟に調整でき、必要な装置を迅速に装着でき、テーラーメイドに光を利用できる実験環境は小型施設でなければ提供できない

いといっても過言ではない。多様な利用目的に応じて光源性能を最適化するためには、ビームエネルギー、エミッタンス、バンチ長などの基本パラメータを柔軟に変更できることが必要である。例えば、ストレージリングの周回電子ビームエネルギーを年間スケジュールの一定期間で区別し、長波長領域での回折限界光の利用に重点を置く 0.75 GeV 運転と短波長域での高フラックス光の利用に重点を置く 1 GeV 運転に切り替えて運用する計画である。また、前述の UVSOR における光源開発の歴史から明らかなように、年間の一定期間を新規光源・利用技術開発の専用期間とすることも重要で、新センターでもその運用を踏襲する計画である。

以上の考察をもとに、UVSOR-IV の設計目標を、

- (1) 電子エネルギー 1 GeV 以下
- (2) エミッタンス数 nm 以下
- (3) 周長 100m 以下
- (4) 10 本程度の挿入光源用直線部
- (5) 300mA 以上のトップアップ運転
- (6) エネルギーやオプティクス柔軟な可変性の確保

とし、これを以下のような方針で実現することを目指す。

- (a) 第3世代光源で培われた成熟した技術を土台にする
- (b) 早期実現のため建設コストを可能な限り抑制する
- (c) 持続可能性のため運転コストを可能な限り抑制する
- (d) 持続可能性のため運転維持管理の省力化を図る

上述したような方針のもと設計した加速器の概要を以下に示す。基本セル構造は DBA セルである。UVSOR-IV が担うべき真空紫外領域では数 nm 程度の電子ビームエミッタンスで概ね回折限界に到達できる。この点は現在の加速器技術では極限的ともいえる 100pm 前後の低エミッタンスを必要とする X 線領域とは異なる。また、UVSOR-IV では、限られた周長でできるだけ多数の直線部を確保し、多彩な利用に合わせた各種挿入光源を実装することを目指している。このような目標を実現するには DBA セルが最も適している。技術的に成熟した単純な基本設計を採用することで光源の安定な運転を早期に実現し、多彩な挿入光源と柔軟な運転モードを組み合わせる新しい光源技術やその利用法の開拓をスピード感をもって進めることができる。これにより開発スピードの速い国際競争に打ち勝つことができる。単純で数多くの直線部(フリースペース)をリングの随所に持つラティス構造は特徴がないともいえるが、長期的な視点からは、特定の目的に特化せず利用目的の動向に応じて柔軟に光源を発展させていけるといえる。

加速器全体のコンパクト化、低コスト化のために、minimal DBA セルとでも呼ぶべき極限まで単純化した DBA セル構造を採用する。その鍵となる技術は複合機能型磁石である。UVSOR では UVSOR-II への高度化の際に四極・六極複合機能型磁石、UVSOR-III の際に偏向・四極・六極複合機能型磁石を導入し、限られた周長の中での性能向上を実現してきた。UVSOR-IV でもこれら実績のある技術を積極的に採用する。第3世代光源の典型的な DBA セル構造では2台の偏向磁石のほかに、四

極磁石7~8台、六極磁石7~8台が用いられる。これに対し、minimal DBA セルは、四極・六極機能を持つ偏向磁石 2 台、六極機能を持つ四極磁石 3 台だけで構成される。このような DBA セル 12 個でリングを構成し、それぞれのセル間には無分散直線部を配する。直線部は現在の UVSOR と同じ、4.2m の長い直線部と 1.6m の短い直線部を交互に設ける。その結果、周長は約 83m となる。

このラティスで achromat 条件のもと、オプティクスを設計すると、エミッタンスはビームエネルギー 1GeV での運転で 4.3nm、750MeV では 2.4nm となる。短直線部へ後述する多極ウィングラを挿入する場合には放射減衰が強まる効果によりエミッタンスは 2.0nm(750MeV)となる。一方、achromat 条件を破れば 1.3nm(750MeV)程度まで低エミッタンス化できる。momentum compaction factor をほぼゼロにする低  $\alpha$  運転も磁石強度を大幅に変えることなく実現可能で、前述の光源開発の需要に十分応えるものである。

これまでの検討の結果、分散部側の六極磁場成分により色収差を補正し、無分散部側の六極磁場成分によりダイナミックアパーチャを最大化する、という伝統的な harmonic sextupole の手法で入射と安定な蓄積のための必要最小限のダイナミックアパーチャは確保できる見通しである。確実性を高めるため、さらなるダイナミックアパーチャの拡大の検討を続けている。低エミッタンスリングでは、一般に、ビーム内の電子同士の衝突散乱による寿命の短縮やエミッタンスの増大が問題となるが、これらの効果は電子エネルギーが低いほど顕著となる。1GeV 以下という低エネルギーで数 nm という低エミッタンスの UVSOR-IV の場合には、その効果は大きく、これを避けるためには、高調波空洞と呼ばれる、主加速空洞の整数倍の周波数の加速空洞を導入し、電子バンチ長を延ばし電子密度を下げることで、これらの効果を抑制する必要がある。高調波空洞を日常的に安定的に利用している放射光源は今日でもそれほど多くないが、UVSOR では 1990 年代に高調波空洞を導入し、それ以降現在に至るまで継続的に使用しており、その運用に関しては十分な経験を積んでいる。



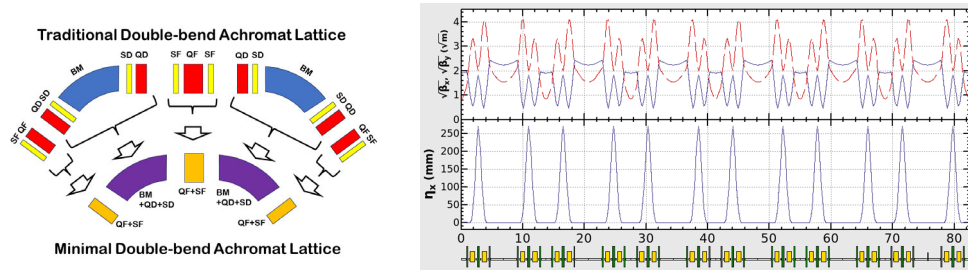


図 11-4: UVSOR-IV のラティスと光学関数

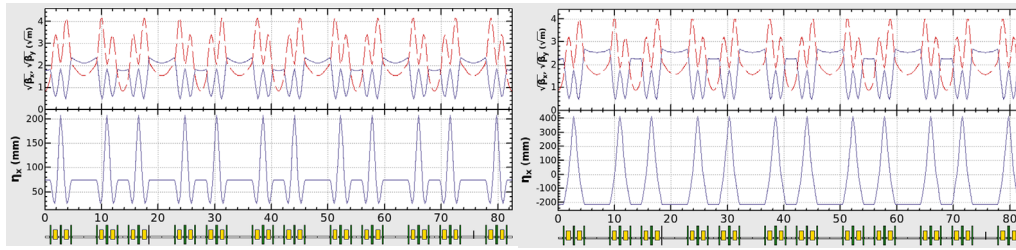


図 11-5: UVSOR-IV で可能な多様なオプティクス例(左;低エミッタンスモード、右;低アルファモード)

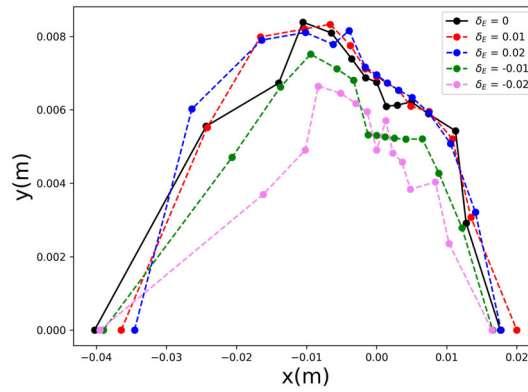


図 11-6: Achromat モードでのダイナミックアパーチャ

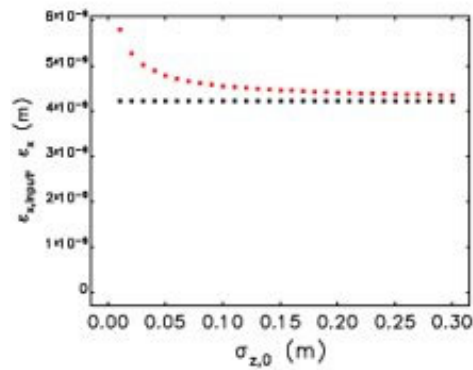


図 11-7: 高調波空洞によるビーム内散乱の抑制

## 加速器要素技術

UVSOR-IV を実現する鍵となる加速器要素技術について、以下で概要を述べる。

ラティス設計の項で述べたように、すべての主要磁石を複合機能型とし、偏向磁石で二極、四極、六極を、四極磁石で四極、六極磁場を生成することで、ラティスを構成する磁石数を大幅に低減する。またビームパイプ径を限界まで小さくすることで、電磁石そのものの大きさを極小化する。これらは建設コストの低減に大きく寄与する。さらに、これら磁石を永久磁石／電磁石ハイブリッド方式とする。大まかには、起磁力の 2/3 程度を永久磁石で、残り 1/3 程度をコイルで発生することで、消費電力量を 1/10 程度に抑えながら、定格からその 1/3 程度までの間で磁場強度を可変とする。これにより、エネルギー可変、オプティクス可変の柔軟な運用が可能となる。コイルは原則空冷とし、冷却水設備不要のシステム構成とすることを目指す。これにより、電磁石コイルでの電力消費を抑制する直接的効果に加え、冷却水設備を不要とすることでその建設・運転・維持管理のコストを削減する。長期的には、冷却水系をなくすことで老朽化による水漏れなどのトラブルを避けることもできる。永久磁石の弱点は、磁場の均一性が低いこと、磁化の温度変化が大きいことであるが、この弱点をハードウェア面に加え、機械学習を取り入れた運転制御技術を組み合わせることで克服する。このようなハイブリッド複合機能型磁石の開発を広島大学、名古屋大学、KEK などと協力し進める。すでに設計検討作業に着手している。

| 82

建設コストを抑制するために、高周波加速系は既存の UVSOR-III のシステムを可能な限り流用する。RF 周波数は 90.1MHz とし、高周波源や伝送系、低レベル RF 制御などを再利用する。高調波空洞は既存の3倍高調波空洞が真空系に問題があることから、新規に設計製作する。これには KEK との協力が必須である。今日の放射光源の多くでは 500MHz 前後の周波数が採用されていることが多いが、小型加速器から段階的に発展してきた MAX-IV では 100MHz が採用されている。その優劣については議論があるが、低周波の利点として、高周波源の入手と保守管理の容易性、バンチ長が長くなることでのビーム内散乱やビーム不安定性の低減、高調波空洞の設計製作に自由度が高い点などを挙げておきたい。

電磁石系のところで述べたが、建設コスト抑制のため、従来の UVSOR と比較して、ビームパイプ径をビーム力学的に許容される限界近くまで小さくする。これにより電磁石の小型化が可能となる。一方、コンダクタンスの低下により慎重な排気系の配置が必要となる。従来型の排気系に加え、KEK の協力を得てビームパイプへの NEG コーティングの可能性も検討する。

ビーム診断系は、ビーム位置検出器(BPM)、ビーム電流検出器(DCCT)、など標準的なものを一式備えることになるが、初期コストの低減のため DCCT など可能なものについては UVSOR-III のものを転用する。ビーム位置検出器に関しては、狭いビームパイプへの入射に備えて周回毎の位置検出が可能であること、高速高精度の軌道安定化を可能とすることなどが求められるが、これらはいずれも最近の放射光施設では標準的な技術である。制御システムについては加速器分野で標準的となりつつある EPICS を基盤に構築し、将来的な遠隔監視や機械学習による自動制御の導入に対応可能なものとする。これらビーム診断系・制御系の設計にあたって、長期にわたる安定な維持管理、保守部品の確保などの点を重視し、KEK を始めとする国内放射光施設との技術の共有化・共通化を図る。

入射器は建設コスト削減のために UVSOR-III 用の既存装置を転用することもできるが、老朽化対策が必要となる。この装置は 80kV 電子銃、15MeV 直線加速器、750MeV ブースターシンクロトロンからなる。このうち、ブースターシンクロトロンは電磁石系、真空系などの老朽化が進行していることから、UVSOR-IV 計画がスタートする前から、ある程度の老朽化対策を段階的に進める。将来的には、後述するように、最大加速エネルギー1GeV のフルエネルギー入射器を建設する。

ストレージリングへのビーム入射は、トップアップ運転時の軌道変動を抑制しつつ、狭いビームパイプへの入射を実現する必要がある。従来型の二極キッカー磁石によるバンブ軌道入射と PF や UVSOR などで試行されているパルス多極磁石による入射の 2 つの方式を検討し、今後の技術開発の動向も踏まえ最終的な方式を決定する。後者のコンパクトさは大きな魅力であるが入射効率などの点でさらなる技術開発が必要である。

従来の放射光利用法は、電子ビームから放射された光の一部を、スリットなどを用いて空間的に切り出し、さらに分光器を用いて周波数領域でスペクトルの一部を切り出し、末端の実験装置に送り込む、というものであった。このため、光源に要求される性能は高輝度特性、すなわち、狭い空間領域、スペクトル領域にいかにも多くの光子を投入できるか、であった。回折限界はこの輝度の向上が限界に達したことを意味しているが、その一方で、空間的にコヒーレントとなることで、光が本来持っている波動性があらわになってくる。光のコヒーレンスを利用する実験は、例えば、硬 X 線領域であっても光学的手法により強度を犠牲にしつつ空間コヒーレンスを高めることで、位相干渉を利用した構造解析法の開発などが行われている。これに対し、UVSOR-III では紫外線領域での回折限界光を利用し、光渦やベクトルビームの生成実験、アンジュレータ放射の時間コヒーレンスに関する基礎研究を進め、真空紫外域においてタンデムアンジュレータからのダブルパルス波束を用いたコヒーレント制御などの実験を行うなど、世界を先導する成果を上げてきた。UVSOR-IV では、これらの研究をさらに波長の短い軟 X 線領域へと展開する。利用できる光学素子の限られている真空紫外・軟 X 線領域で、回折限界条件下で光源が本来有する波動特性を利用することで、これまで不可能であった新しい計測法を開拓し応用展開できる。

## 挿入光源の活用

光源利用の側面では、特に多段連結型挿入光源の用途は未開拓の部分が多く、その可能性を十分に引き出しているとは言えない。連結型挿入光源は共振器型自由電子レーザーの増幅率向上のための光クライストロンや高速の円偏光スイッチングを可能とするクロスアンジュレータが古くから知られている。前者は、外部レーザーを用いたコヒーレント高調波発生(CHG)などへの展開があり、自発放射光であるが時間的なコヒーレンスを有する光を比較的簡便に生成できる。ただしパルス繰り返しは入射レーザー光のパルス繰り返しで制約される。その一方、パルス幅はレーザー光のパルス幅と同等になるため、サブピコ秒パルスの生成が可能である。波長は入射レーザー光の整数分の一が基本であるが、構成はやや複雑になるものの、Echo-enabled 高調波発生という手法によれば波長の連続可変性も原理的には可能である。さらに最近ではシングルサイクル光の生成も原理実証が行われている。これら、ストレージリングと外部レーザーを組み合わせた時空間コヒーレンスを有する光の発生法は比較的安価に行えることから、挑戦的な新手法の開拓に適しており、後述する自由電子レー

ザーの利用技術への展開を睨んだ技術開発の場となることが期待される。

クロスアンジュレータは放射光黎明期にアイデアが提唱されたが、これまで実用例は少なかった。しかし、SPring-8 においては長大な直線部に設置された多連アンジュレータが稼働し、高速偏光スイッチング光源として利用されている。ももとの二連のアンジュレータよりも高い円偏光度が実現可能とされている。また、高次光も円偏光となることから、カバーできる波長域が広がる点も大きな特長である。長さ 1m 弱の短尺の APPLE-II 型アンジュレータを4連にして UVSOR-IV に導入した場合の放射光スペクトルと円偏光度を図 11-8 に示す。

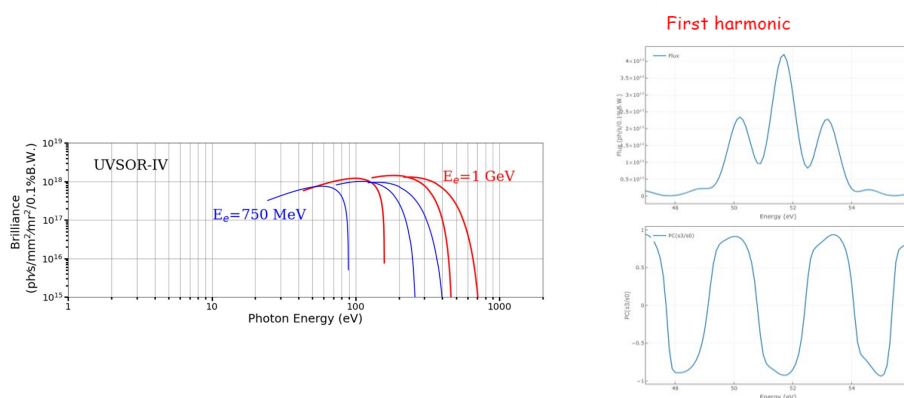


図 11-8: 四連クロスアンジュレータのスペクトル(左)と円偏光度(右)

クロスアンジュレータの応用としてベクトルビームがある。UVSOR-III で世界に先駆けて実証された技術であるが、光渦の空間構造とタンデムアンジュレータの時間構造を組み合わせることで、偏光を空間的に変調できる。複合波長イメージング、示強分布イメージングや物質量子状態操作などへの応用展開が考えられる。多連アンジュレータは、一つのビームラインに異なる特性を持つ光を一度に供給できるという点でも興味深い応用展開の可能性がある。波長、偏光、位相構造、時間構造などを自在に制御できるというのが、アンジュレータが本来持っている最大の特長である。回折限界条件下でアンジュレータ放射が本来持っている優れた特性をすべて引き出すことが可能となる。複数のアンジュレータからの異なる特性を有する光ビームを様々に組み合わせることで、全く新しい放射光の利用法を開拓できる可能性がある。

今日、光の量子性を計測技術へ応用する、量子計測・センシングの研究が活発である。これらの研究は、レーザー光を光源とし、近赤外から可視光の領域で研究が進められている。UVSOR-IV での最近の研究により、アンジュレータは光の波の性質を自在に制御できる技術であるということが明らかにされつつある。例えば磁場周期数 10 周期のアンジュレータからは正確に 10 サイクルだけ振動する波束が生成されことは実験的にも検証された。またその偏光も自在に制御できる。複数のアンジュレータを直接配置することで、ダブルパルス、あるいは複数パルス構造の波束を作り出し、その波束間の時間差をアト秒精度で制御できることも実証され、このような光波束を用いた量子状態制御や超高速現象の観測にも成功した。今まさに UVSOR-III において放射光の量子性を活用する技術が芽生えつつある。このような技術の前提となるのが回折限界である。UVSOR-IV の実現により、

UVSOR-III では真空紫外領域までに限定されていた上記の実験を、生物試料などより幅広い応用展開が期待できる軟 X 線領域まで拡大できる。

量子計測・センシングの分野では単一光子源の開発が活発に行われている。オンデマンドで一個の光子を確実に生成することがその目標であるが、これまでのところ実現されていない。UVSOR-III では、放射光の単一光子利用の開拓を目指して、基礎研究に着手している。通常の放射光源蓄積リングでは 10 の 11 乗前後の多数の電子が周回しているが、技術的には一個の電子だけを蓄積することは可能である。UVSOR-III において、一個の電子をストレージリングを周回させることには成功しており、単一電子からの放射を観測しその特性を調べる実験を進めている(未発表)。このような研究は、将来の放射光量子計測・センシング技術の基礎となるものである。UVSOR-IV ではそのさらなる展開を図る。

## 11-2 挿入光源とビームライン

UVSOR-IV には 12 カ所の直線部がある。長さ 4.2m の直線部が 6 本、1.6m の直線部が 6 本であり、このうち 2 本をビーム入射点と高周波系に用いるとすると、残り 10 本が挿入光源へ使用可能である。長い直線部をビーム入射と高周波系に使用する場合、比較的長いアンジュレータもしくはタンデムアンジュレータを合計 4 台設置できる。新たに導入する 4 連アンジュレータは用途と開発要素をふまえつつ、長直線部の仕様を検討する。また短い直線部には、短尺のアンジュレータもしくは多極ウィグラ(MPW)を計 6 台設置できる。なお、初期導入コストを低減するため、既存の UVSOR-III にて稼働中のアンジュレータは、UVSOR-IV に移設し使用する方針である。これらには 3 台の真空封止型アンジュレータが含まれるが、その一部については、クライオアンジュレータへの改造による広帯域化や短波長化を検討する。また高周波系もしくは入射部を短直線部に設置する。

UVSOR-IV には短直線部が 6 本あるが、ここに長さ 1m 程度、磁場強度 2~3T 程度の多極ウィグラ(MPW)を 3 台挿入すると、放射減衰が強まることによりエミッタンスが低減することに加え、ビームの安定性の向上も期待できる。さらに 1GeV 運転下での MPW からは tender X 線領域まで伸びる高フラックス X 線が生成される。生物学関連の試料においては硫黄やリンの K 殻励起に対応するため重要な波長帯といえる。また、磁場を適切に選ぶことによりその基本波長を近赤外・可視領域の領域に持ってくることで、外部レーザーと電子ビームの相互作用を利用する様々な光発生、レーザーパルススライス法や Echo-enabled 高調波発生なども実現可能となる。

既存の UVSOR-III のアンジュレータや上述した MPW を UVSOR-IV に装着した場合の放射光スペクトルは図 11-3 に示されている。

UVSOR-III から移設するアンジュレータのビームラインおよびエンドステーションについては合わせて移築し、それぞれ最適化と高度化を行う。24 時間運転を見越して、一部についてはブランチビームラインを設定し、初期投入として計 12 基を検討する。ユーザーの実験装置を持ち込み可能なフリーポートビームラインを 1 基設ける。コンパクト卓上レーザー光源の光学ベンチの設置スペースも配慮する。

ベンディングビームラインは既存 UVSOR-III の活動状況を鑑みて一定数を維持する。初期建設案として、長波長帯の直入射ビームライン、テラヘルツ・赤外ビームライン、低フラックスビームライン、開発専用ビームライン、フリーポートビームラインの計 5 基を検討する。各ビームラインと実験手法の詳細については 12 章にて述べる。

U B	ビームライン	手法例 + イメージング	光源	波長・偏光	空間階層			時間階層												
					nm	μm	mm	as (fs)	ps	ns	μs	ms								
1	生命分子化学状態イメージング	STXM, SXT	VPU, IRL	20-800eV	■															
2	生命分子メゾ階層イメージング	RSoXS, QXAFS	MPW	1~10keV		■														
3	生命分子赤強変数イメージング	cRIXS, XAFS	MPW	0.4~4keV			■													
4	スピン分解光電子運動量顕微鏡	PMM	PINEAPPLE	20~700eV	■	■	■													
5	スピン分解顕微光電子分光	ARPES	IVU	0.1~1.1keV		■														
6A	超高分解能光電子分光	LEARPES	NI-VPU	6~100eV		■														
6B	真空紫外円/渦二色分光	VUVCD, -HD	NI-VPU	6~100eV		■														
7	パルスガンマ線ポジトロン分光	GAGG, PET	LCS, UVL	5, 6MeV				■												
8A	超高速量子ビーム干渉	吸収、散乱、光電子	PINEAPPLE	20~700eV	■	■	■	■												
8B	生命分子時空間階層分離法	新規開拓	PINEAPPLE	20~700eV	■	■	■	■												
9	生命分子広帯域超解像度法	新規開拓	IVU, multibeam	0.1~1.1keV	■															
10	紫外可視反射吸収分光	UV-vis	BM	Vis-VUV			■	■												
11	オペランド光電子分光	ARPES, XAFS	BM	EUV-SX			■	■												
12	赤外顕微イメージング	IR	BM	THz-IR			■	■												
13	レーザー複合利用専用	非線形	IVU, IRL, UVL			■	■	■												
14	手法開発専用オープン	フリー	ブランチ																	

図 11-9: 分野毎にテラレーメイドで最適化された光源と設備、新センターに設置予定の実験ステーションの事例 (14 基の BL と実験ステーションで狙う空間階層と時間階層の特徴)

### 超異分野融合が創発する新規手法開拓

ハードウェアの観点では、放射光とレーザー光を相補的に捉え、超広帯域な光の複合利用による未踏の量子計測技術開拓と、多彩な光計測と各種分析設備を自在に活用できる計測・分析支援環境を利用分野の要望に合わせてテラレーメイドに提供する。光科学の先鋭化と利用者の裾野拡大の両立へ向けて、歴史的に化学分野強化のために運用してきた UVSOR の研究環境資産と基盤技術を効果的に継承しフォトオートノミー科学を確立する。特に国際的に未開拓な、VUV コヒーレント光源の利用による新規手法開拓と、光の複合利用によるイメージング等による挑戦的量子計測をもとに非平衡現象や超秩序状態の計測を切り開き、ユーザーと共に科学目標達成を目指す。具体的には 4 つの挑戦的手法開拓、1) 水の窓を克服した in-vivo, in-vitro 計測、2) オペランド複合多元イメージング、3) 角運動量制御とダイクロイズム計測、4) 量子もつれ現象と光計測、を実施する。



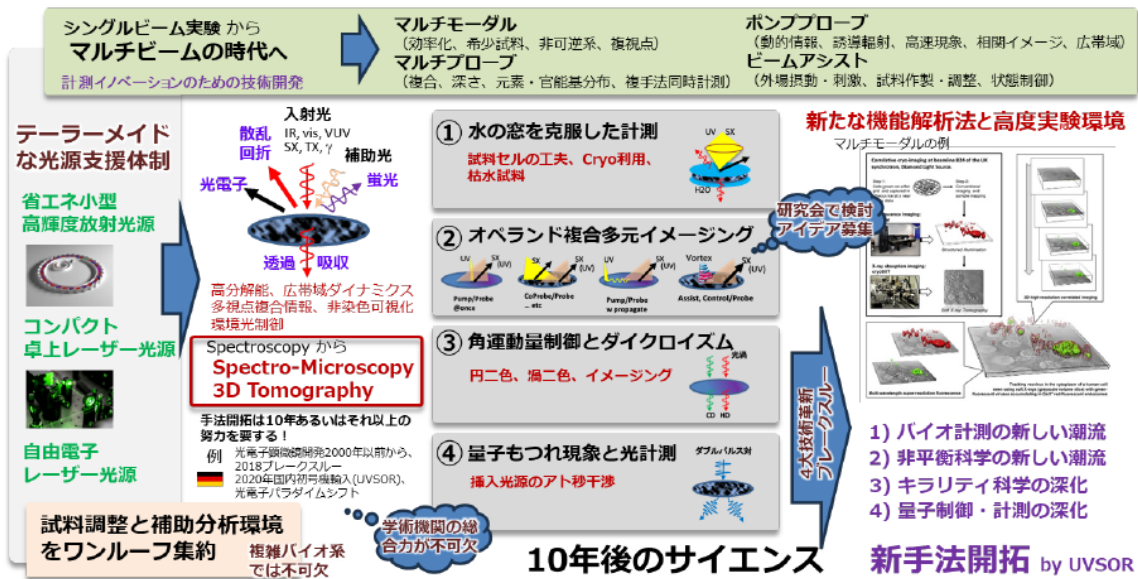


図 11-10: 複雑系・不均一系の光計測で重点開発する 4 つの挑戦手法。多彩な光源の組み合わせによるマルチビーム計測、複数の分析法を同一試料に対して実施するマルチモード計測、まだ利用できていない波長域の新たな展開、新規光源を利用した未踏の量子ビーム制御や量子計測の実現へ。

### 11-3 レーザー入射器と FEL の拡張計画

UVSOR-IV のフルエネルギー入射器として現状直ちに利用可能な加速器としては、ブースターシンクロトロンと常伝導直線加速器の2つが考えられるが、将来的には、近年技術開発の著しいレーザー加速器、すなわち、高強度レーザーによりプラズマ中に生成されるレーザー航跡場による電子加速も視野に入れるべきである。1秒程度の時間をかけてゆっくりと加速するシンクロトロンに比べて1マイクロ秒以下の短い時間で加速を完了する直線加速器やレーザー加速器は電力消費量の点で優位性が高いと考えられる。通常の常伝導直線加速器の加速勾配は 30MV/m 程度であり、単純計算では1GeV まで加速するのに 30m 程度必要ということになるが、実際の加速器は加速管だけで構成されているわけではなく、実際には 50m 以上となる。高価格の消耗品であるクライストロンを多数使用するため保守費用の点で不利である。レーザー加速は原理的にはその加速勾配が通常の直線加速器の 1000 倍以上となるといわれ、コンパクト性という点で大きな魅力がある。GeV 級の電子を加速した例も報告されるなど近年著しい発展を見せている。レーザー加速器の応用としてテーブルトップ X線自由電子レーザーの実現を謳う開発計画が多いが、最近ではシンクロトロンなどへの入射器としても注目されるようになってきている。その場合、ビームのエネルギー広がりが大きいことが難点であり、これをどう克服するかが大きな検討課題となる。

入射器としてレーザー加速器を含む広い意味での直線加速器を選択した場合、リングへの入射以外に、自由電子レーザーの発振に利用できる可能性が出てくる。レーザー加速器からのビームを

用いた自由電子レーザー発振の増幅が確認された例も出てくるなど、技術的には着実に進んでおり、UVSOR-IV 計画においても、その可能性を検討すべきであろう。また、自由電子レーザー以外にも、リングを低アルファモードで運転しておき、直線加速器からのサブピコ秒短パルスを一週だけ周回させ、短パルス放射光を多数のビームラインに取り出すことも技術的には可能である。ただし、自由電子レーザーの場合も同様であるが、パルス繰り返しは数 10Hz 程度以下に止まるものと予想される。新しい手法の開拓など、ユーザー側からのニーズに、低コストで即応できる可能性がある。

#### 11-4 光源加速器の代替案について

我が国の光科学において UVSOR 施設が果たすべき役割を熟慮して、上述したストレージリング設計を最適なものとして選択した。当然ではあるが、科学技術は日進月歩であり、UVSOR 施設を取り巻く状況も刻々と変わっていく可能性がある。それに合わせて光源加速器設計案も柔軟に見直していく必要が出てくる可能性もある。この節では、これまでに検討を行った他の光源加速器案についてその概略を述べておく。

レーストラック型で超直線部を有する放射光ストレージリングは、かつて東京大学の放射光計画で検討された[1]。UVSOR の将来経過としてこれを参考に 1.2GeV のレーストラック型ストレージリングの設計検討を行った[2]。周長約 170m、エミッタンス 0.7nm で約 25m の直線部 2 本を有する。直線部はシケイン構造とすることで複数のアンジュレータの設置への対応も想定した。この設計は、長尺アンジュレータによる真空紫外・軟 X 線領域での回折限界光の生成に加え、検討当時 UVSOR で活発に開発を進めていたレーザーバンチスライス法やコヒーレント高調波発生法などの外部レーザーを利用した新しい光源技術を主力光源とするという構想であった。1.2GeV と低エネルギーながら周長 170m は現在の Photon Factory と同等であり、規模の大きな計画である。一方で、アンジュレータ数は構成にもよるが 2~6 台程度を想定しており、数少ないビームラインで突出した成果を挙げるといった方向性を想定していた。レーザーを用いる新しい光発生法は、急速に発展しつつあった直線型加速器を用いた X 線自由電子レーザーや高出力レーザーを用いた高次高調波発生などとの競争力が懸念された。加速器の構造から、多連アンジュレータや EEHG などの光源技術とは相性が良いと考えられる。

エネルギー回収型直線加速器(ERL)は、超低エミッタンス、超短パルス、高パルス繰り返しなど、その期待されるビーム性能の高さから次世代光源加速器としても期待され、一時期、Photon Factory の次期計画として検討が進められた[3]。X 線発生を目指して電子エネルギー 3GeV 級の ERL を検討したが、ただし実現までに乗り越えるべき技術的課題も多く、現在では Photon Factory は次期計画としてストレージリングの検討を進めている。ERL は全く新しい方式の加速器であり、放射光ストレージリングが数 100MeV 領域の低エネルギー VUV リングからスタートしたように ERL も VUV 光源からスタートするのが現実的と思われた。このような発想で UVSOR の次期計画として VUV 光源としての ERL の検討が行われた[4]。多周回方式とすることで小型化・省電力化を目指して設計検討を行った。高繰り返し VUV-FEL や超短パルス放射光などの先進光源を主力とすることが想定された。ERL では超伝導加速空洞がその中核要素であるが、これは液体ヘリウムでの冷却が必須の装置で

ある。このため付帯設備として大型のヘリウム冷却施設が必要であり、またその電力消費量が極めて大きい。また、技術的に成熟したストレージングとは異なり、少人数の要員での運転維持管理は困難と予想される。現在 KEK では compact ERL と呼ばれる MeV 級の小型試験加速器で開発を継続しており、技術的な課題も徐々に解決されていく可能性がある。ERL が期待されるビーム性能を発揮した場合には、極めて魅力的な光源加速器となることは疑いない。今後の技術開発の動向を注視する必要がある。

#### 参考文献

- [1] N. Nakamura et al., Proc. EPAC2000, **669** (2000).
- [2] M. Shimada et al., presented at JSR2007 (2007).
- [3] “Energy Recovery Linac Conceptual Design Report”, KEK Report 2012-4 (2012).
- [4] T. Konomi et al., presented at iPAC14 (2014).

## 12. 先端分析法仕様

### 12-1 はじめに

本章ではいくつかの代表的な実験手法を提示し、各手法における仕様についてコンセプトをまとめる。設置目的については以下の項目を中心に記述した。

- ・既存アンジュレータ移設でできる研究展開
- ・4 連クロスアンジュレータで期待される研究展開
- ・ビームライン配置・光学系デザイン(移設対応か新設か)
- ・マルチビーム利用(複数の放射光の併用、ビームアシスト計測)
- ・マルチビーム利用(卓上レーザー併用、時間構造の利用)
- ・マルチモーダル計測(手法複合、非光計測の設備含む)
- ・運転スタイル(平日とスタディ運転、課題利用週数の考え方)
- ・国内外対比(国際トレンドや開発計画との関係)
- ・民間利用・需要(応用から創発される学術)

技術的仕様の詳細については、今後、テクニカルデザインレポートを準備する予定である。

## 12-2 放射光の時間構造・空間構造

### 概要

第1世代に始まり、第2、第3と続いてきたこれまでの放射光源の発展は、専ら加速器技術の高度化による輝度の向上によるものであった。近年世界各地で建設が計画され一部稼働を始めたものもある次世代光源は「回折限界」を目指す光源と言われている。UVSOR-IV も真空紫外線領域での回折限界を目指している。回折限界は電子ビームの指向性が単一電子の出す放射光の指向性を上回る状態であり、電子ビームの指向性向上による輝度向上が限界に達したことを意味しており、放射光の発展の歴史は大きな転換点を迎つつあるといえる。一方、回折限界条件下では放射光は高い空間干渉性を有し、光の波の性質、すなわち可干渉性を露わに示す。レーザー光源が利用可能な可視・近赤外領域では、光の波としての時空間構造や光の量子性を利用した量子状態制御、量子計測・センシング、超高速分光、超解像顕微鏡、光干渉断層撮像など様々な技術が開発され、基礎学術研究から医療診断まで、幅広い領域で応用され始めている。しかし放射光分野ではこういった応用例は極めて限られている。

近年、UVSOR-III において、佐賀 LS、富山大学、広島大学などとの共同研究として、比較的波長の長い紫外・真空紫外線領域で回折限界放射光を生成し、放射光波束が本来有する優れた時空間構造の実験的検証やその応用可能性の原理実証が進んでいる。光渦やベクトルビームといった特異な空間構造を持つ放射光の生成、超高速ダブルパルス時間構造を有する放射光波束の生成と利用、また、最近では単一電子からの放射光の観測による単一光子レベルでの時空間構造の実験研究も開始された。これら UVSOR-III で原理検証・基礎研究を進めている革新的な計測技術が、回折限界光源 UVSOR-IV において応用展開される。

このような展望のもと、自然科学研究機構先端光科学研究分野プロジェクトの支援を得て研究会「放射光の量子性・干渉性に基づく革新的計測手法の探索」を2023年11月に岡崎コンファレンスセンターにて開催した。光の量子性・干渉性の応用展開で先行している光学分野の研究者、UVSORで基礎実験を進めてきた研究者、放射光利用技術の研究者・技術者、さらに新しい手法に興味のある幅広い領域の研究者が一堂に会し、新しい利用手法の開拓や様々な分野への応用展開について活発な議論が行われた。レーザー分野での高次高調波発生(HHG)、加速器とレーザーを用いたシングルサイクル光生成、超短パルス光を用いたラマン分光など時間的にコヒーレントな超短パルスの発生法やその応用に関する講演に対して、時間的にコヒーレントではない放射光の超短パルス特性の応用開拓やそのパルス特性評価法に関する最新の成果が報告された。弱測定など光の量子性を活かした研究の現状、光周波数コム基礎から応用に関する講演が行われ、放射光の単一光子の応用可能性、直列アンジュレータによる周波数コム的な放射光の発生の可能性への関心が喚起された。イメージングでは走査型近接場光学顕微鏡と超短パルスを組み合わせた手法、光コヒーレントモグラフィの基礎と応用、軟X線領域でのSTED顕微鏡に関する講演が行われた他、光ファイバーを用いた放射光輸送法に関する講演が行われ、光学分野での先進的な手法の放射光分野への導入への関心が喚起された。また、光学分野での超高速偏光切り替えや近接場光による高度な円二色測定法に関する講演が行われたのに続いて、クロスアンジュレータの手法による放射光の偏光

切り替えやベクトルビーム生成に関する講演が行われた。以上の講演や議論を通じて、回折限界放射光の持つ可能性を引き出すのに、光学分野で開発され応用が進んでいる様々な高度な技術を参考にすることが効果的であることが実感された。また、この研究会での光学分野の研究者の講演を聞いて実感されたことは、光源の開発から手法の開発、さらには応用までを一つの比較的小規模な研究グループで実施している場合が多い、ということであった。これにより、UVSOR のような小型施設においてこそ世界を先導する放射光技術開発がスピード感を持って推進できる、ということが確信できたのも収穫であった。

### 放射光の空間構造とその応用可能性

アンジュレータ放射はその強度や位相、偏光などにおいて特異な空間構造を有する。円偏光アンジュレータの高次光は軸上に強度を持たないことからこれを利用するという発想はなかったが、その位相構造の特異性がシミュレーションにより示され[1]、これがいわゆる光渦であるという指摘がなされ[2]、BESSY と UVSOR-III で実証された[3, 4]。さらに、光渦放射の物理的起源が円軌道放射にありその放射場が軌道角運動量を運ぶことが理論的に説明され、光渦の放射が円運動もしくはらせん運動する電子において普遍的に見られる現象であることが示された[5]。このことは 12-9 節で述べるように渦ガンマ線の生成が可能であることを示唆している[6]。UVSOR-III では光源開発用ビームライン BL1U において紫外線領域のアンジュレータ高次光を大気中に取り出せたことから簡便な光学機器を用いて光渦放射に関する詳細な実験を行うことができた(図 12-2-1)。

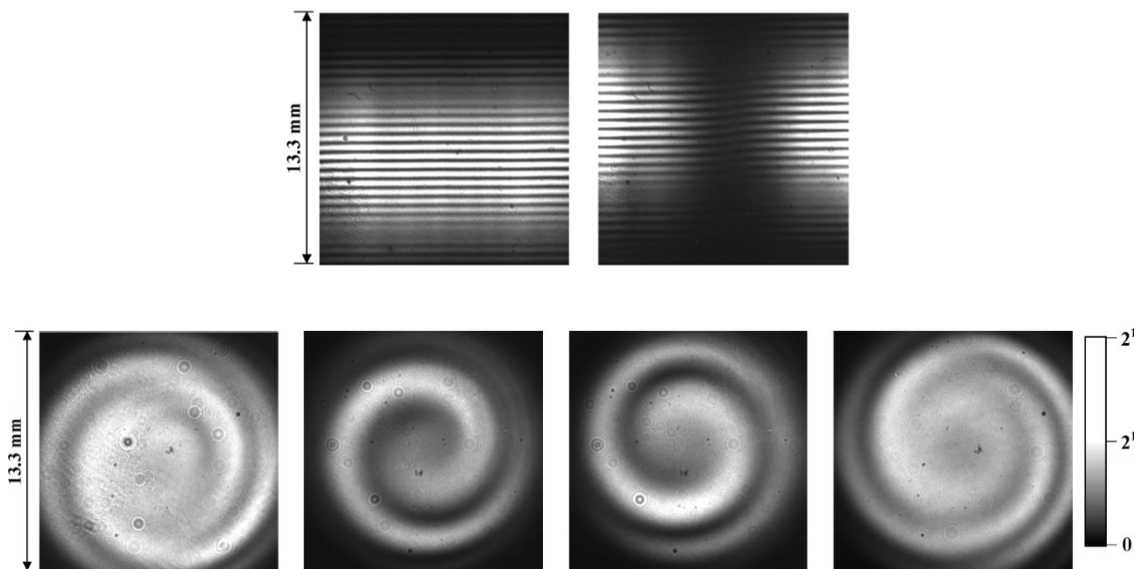


図 12-2-1: アンジュレータからの光渦放射の実験的検証. UVSOR-BL1U での紫外領域のアンジュレータ放射を用いることで高次光まで含めた光渦の放射が確認された[4].



放射光分野ではそれぞれ水平偏光と垂直偏光に設定された 2 台の直列アンジュレータからの放射を分光器を通すことで重畳し円偏光を作り出すクロスアンジュレータと呼ばれる手法が確立されている[7,8]。一方、レーザー分野では、2 つの光渦を重畳することで偏光が光ビーム断面上で分布を持つベクトルビームが生成できることが実証されている[9]。UVSOR-III ではこの 2 つの手法を組み合わせ、それぞれ右回り渦と左回り渦の生成に設定された直列アンジュレータ光を重畳することで世界に先駆けてベクトルビームの生成に成功した(図 12-2-2)[ 10]。2 つのアンジュレータ間に置かれた位相子と呼ばれる磁石の磁場強度を微小変化させることで、偏光方向を一斉にスイッチングできることも実証された。

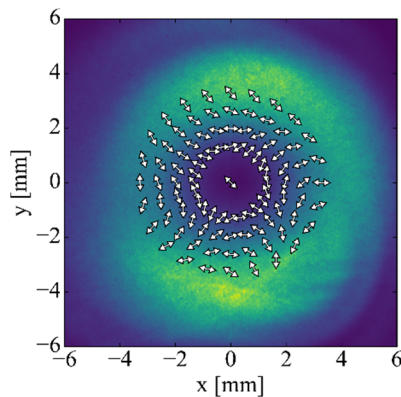


図 12-2-2: 直列アンジュレータを用いた放射光ベクトルビームの生成(世界初)[10]

光渦やベクトルビームは構造化光(Structured Light)と呼ばれ、光学分野ではその応用展開が模索されている。光渦はらせん状の位相構造を有し、光の中心部が位相特異点となることからドーナツ状の強度分布を有する。円偏光に対応するスピン角運動量とは別に軌道角運動量を運ぶことが示され[11]大きな注目を集めることとなった。光渦の応用としてはドーナツ状の強度分布を利用した超高分解能顕微技術(Stimulated Emission Depletion Microscopy; STED 顕微鏡)[12]がノーベル賞の対象となったことからよく知られているが、光の軌道角運動量の物質系への移行[13]や円二色性と対置される渦二色性[14]なども可視・赤外領域で実証され始めている。UVSOR-IIIにおける空間構造化放射光の発生に関する研究において UVSOR-III が紫外線領域において回折限界であることが重要であった[15]。UVSOR-IV ではさらに低エミッタンス化が進み、空間構造化光の応用の短波長域への展開が期待される。光渦の STED 顕微鏡への応用については短波長域への展開を目指した研究が始まっている[16]。光学分野では構造化照明顕微法(Structured Illumination Microscopy)の技術開発が進められている。ベクトルビームも含む空間構造化放射光の顕微・イメージング技術への応用について UVSOR-III で原理検証を進め UVSOR-IV で応用展開を目指す。光の軌道角運動量の応用展開については UVSOR-III においてガス分子に対する真空紫外光渦照射が行われたが、このときは特異な現象は検出されず、光渦の空間スケールと原子の大きさの不整合によるものと解釈されている[15]。最近ではスキルミオンとの相互作用などの理論研究も進んでおり[16]、今後の展開が期待される。渦二色性についても UVSOR-III において生体キラル分子などの相互作用の検証実験が進行中である。円二色性とは異なる情報を与えてくれる手法となる可能性を探索している。

## 参考文献

- [1] O. Chubar et al., Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A **435**, 495 (1999).
- [2] S. Sasaki et al., Phys. Rev. Lett. **100**, 124801 (2008).
- [3] J. Bahrndt et al., Phys. Rev. Lett. **111**, 034801 (2013).
- [4] M. Katoh et al., Sci. Rep. **7**(1), 6130 (2017).
- [5] M. Katoh et al., Phys. Rev. Lett. **118**(9), 094801 (2017).
- [6] Y. Taira et al., Sci. Rep. **7**(1), 5018 (2017).
- [7] K.J. Kim, Nucl. Inst. Methods. **219**, 425 (1984).
- [8] I. Matsuda, et al. J. Surface Sci. Nanotechnol. **17**, 41 (2019).
- [9] Q. Zhan, Adv. Opt. Photonics **1**(1), 1 (2009).
- [10] S. Matsuba et al., Appl. Phys. Lett. **113**, 021106 (2018).
- [11] L. Allen et al., Phys. Rev. A **45**, 8185 (1992).
- [12] S. Hell, Jan Wichmann, Opt. Lett. **19**(11), 780 (1994).
- [13] T. Christian et al., Nature Communications **7**, 12998 (2016).
- [14] Ward Brullot et al., Sci Adv. **2**(3), 1501349 (2016).
- [15] T. Kaneyasu et al., Phys. Rev. A **95**, 023413, (2017)
- [16] Hiroyuki Fujita et al., Phys. Rev. B **96**, 060407, (2017)

## 放射光の時間構造とその応用可能性

シンクロン放射の波形は相対論的電子の加速度運動を反映する。このことは加速器中の電子の運動を磁場で上手く制御すれば、放射光源が得意とする真空紫外から X 線までの広い波長域で、光パルスの波形をテーラーメイドに設定できることを意味する。ところが一般的に放射光源で得られる光は多数の電子の放射が乱雑に重なり合ったものであり、個々の電子が発する光パルスの時間構造はその中に埋もれてしまう。たとえば偏向電磁石を通る単一電子はアト秒域の時間幅のハーフサイクルパルスを発し、アンジュレータを通る電子は磁場周期数で定まるサイクル数の矩形波パルスを発するが、このような光パルスの時間構造をそのまま利用することは出来ない。もし放射光源が本来持つ光パルス波形のテーラーメイドな制御性を活用できれば、放射光科学の発展はもちろん未踏の研究分野の開拓にも繋がるだろう。このような背景のもと UVSOR-III では近年、放射光の時間特性の利活用を目指した実験研究を進めてきた。そして二台のアンジュレータを直列に並べたタンデムアンジュレータを使えば単一電子の放射波形、つまりはサイクル数が定まったダブルパルス状の時間構造を物質の量子状態の制御や計測に利用できることを見出した。

光学レーザーの分野ではダブルパルスを使った物質の量子状態の制御や計測が 1990 年代から盛んに行われている[1,2]。その短波長化は最近の大きなトレンドであり、制御・計測対象の拡大と高速化が期待されている。ダブルパルスによる量子状態の制御・計測では光の振幅や位相を物質の波動関数へ転写することが重要である。そのためには位相の揃ったコヒーレント光の発生とパルス間の精密な遅延時間の操作が必須になるが、コヒーレントなダブルパルスを真空紫外より短い波長域

で生成し、かつパルス間の遅延時間を光周期以下の精度で操作することは技術的な困難が大きい。ところが近年の高次高調波レーザーやシード型自由電子レーザーなどの光源技術の急速な発展は、極紫外の波長域でコヒーレントなダブルパルスの発生とアト秒レベルの遅延時間制御を実現した [3,4,5]。この技術革新によって、光学レーザーでは難しかった高いエネルギー状態や電子の運動をターゲットとした量子制御・計測が現実のものとなった。たとえば原子分子ではアト秒からフェムト秒スケールでの電子ダイナミクスの時間観測[6, 7], 元素選択的な反応制御の開拓へ向けた光過程の量子制御[8], 水素分子の超高速解離反応の量子制御[9], 基礎物理の検証を目的とした時間領域の極紫外精密分光[10]など、基礎から応用までを見据えた様々な研究成果が報告されつつある。しかしながらこのような実験には極めて先鋭的なレーザー技術が必要であり、その汎用化やさらなる短波長化には大きな技術革新が必要である。

| 95

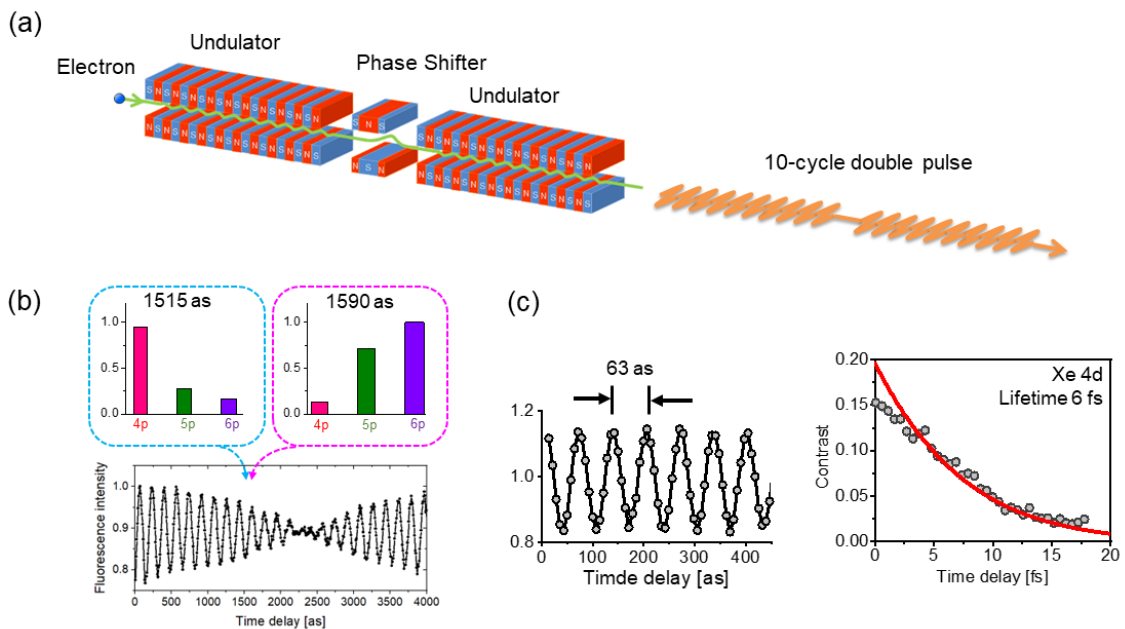


図 12-2-3: (a) タンデムアンジュレータによるダブルパルスの発生. (b) 極紫外ダブルパルスによるヘリウム原子の量子制御. ダブルパルスの時間間隔をアト秒の精度で操作し励起状態の占有率を制御する. (c) キセノン原子の高速電子緩和の時間観測. 内殻空孔の電子緩和によって, 63 アト秒周期の量子干渉のコントラストが減衰する

UVSOR-III ではレーザー技術とは異なるアプローチで短波長域におけるコヒーレントなダブルパルスの利用を実現した。それが放射光の時間構造である。図 12-2-3a に UVSOR-III に設置されたタンデムアンジュレータを模式的に示す。アンジュレータはどちらも磁石周期数 10 の APPLE-II 型である。このタンデムアンジュレータを通る単一の電子は正確に 10 サイクルだけ継続するコヒーレントなパルスペアを発生する。二つのアンジュレータの間に設置された位相子電磁石で電子軌道を蛇行させれば、パルス間の遅延時間をアト秒レベルで調整できる。このようなダブルパルスで極端紫外波長域で生

成し、放射光による原子の量子状態の制御を世界に先駆けて成功させた(図 12-2-3b)[11,12]. もちろん実際には多数の電子からの放射が重畳されるが、その場合にも個々の電子が発する放射のダブルパルス波形が波動関数の干渉を通じて原子分子の量子状態を支配する[13]. この実験の成功は、物質系の量子干渉の制御や利用にはレーザー光源が必須という常識を覆した. さらに軟 X 線のダブルパルスによる内殻電子の量子干渉を用いて、内殻に空孔が生じた原子が電子緩和(オージェ過程による安定化)する様子を数フェムト秒の時間領域で時間観測することにも成功した(図 12-2-3c)[14]. これは「放射光実験の時間分解能は数十ピコ秒」というこれまでの常識を打ち破る研究成果であり、Nature 誌の Research Highlights [15]に取り上げられるなど大きな注目を集めた. またダブルパルスによる量子状態の制御・計測を連続状態へと拡張し、光電子波束の干渉実験にも成功した[16]. さらに量子制御の研究と並行して放射波形の実測へ向けた研究開発にも取り組み、アンジュレータを通る単一電子が発する光パルス波形の再構築に成功した[17].

タンデムアンジュレータによるダブルパルス発生の大きな利点は、放射源である電子の運動を磁場で制御することで光の波長や偏光状態、光電場のサイクル数を自在に設定できることである. 本手法の短波長化に原理的な制約は見当たらず、内殻励起を用いて元素選択的に量子状態を制御・計測することも容易である. さらに将来的に高エネルギーの放射光源へ展開すれば、サブアト秒幅の X 線ダブルパルスの発生も視野に入るだろう. このようなアプローチは汎用的な高輝度光である放射光の新奇な利用法として、光科学・物質科学・生命科学への波及効果や新たなサイエンスの創出も期待できる.

UVSOR-III のタンデムアンジュレータの典型的な実験条件は極紫外から軟 X 線波長域でパルス幅が 2 フェムト秒程度、パルス間の遅延時間は最大 20 フェムト秒程度である. シード型自由電子レーザーが供給するダブルパルス[7,8,18]と比べるとパルス幅は一桁小さく、波長特性の観点からは波長可変性および 100 eV 以上の軟 X 線波長域をカバーする点で有利とわかる. 高次高調波レーザーで得られるダブルパルスと比べても、多くの場合にパルス幅は同程度[3,5,6], 波長可変性や波長範囲ではタンデムアンジュレータに分がある. つまりタンデムアンジュレータは内殻空孔状態のようなフェムト秒スケールで崩壊する短寿命の量子状態の制御に適しているといえ、元素選択的な量子状態の制御・計測に有効である. 一方、自由電子レーザーや高次高調波レーザーを使えば、高いパルスエネルギーを生かして多光子過程を利用した多彩な制御・計測が可能となる. またパルス間の遅延時間を数百フェムト秒まで長く設定[5, 7, 8, 9]できることや、シード光である赤外レーザーパルスとの同期が容易なこと CEP 制御[7]などパルス波形を精密に操作できることもレーザー光源の大きな利点である. 将来的にはこれら特性が異なる光源を相補的に活用することが重要になるだろう.

## 次期 UVSOR-IV における展開

タンデムアンジュレータによるダブルパルス利用において遅延時間の分解能は電子ビームのエミッタンスが制限する. そのため UVSOR-III では軟 X 線領域での量子干渉のコントラストは乏しく内殻励起の活用は限定的である. またフェムト秒以下の時間スケールで進行する超高速現象の観測も難しい. UVSOR-IV では低エミッタンス化が進み、ビームエネルギー 1 GeV の運転モードも予定されている. つまり現状に比べて遅延時間の分解能は向上し波長範囲も短波長側へと拡張される. そのため

主だった軽元素の内殻電子が量子状態の制御・計測のターゲットに浮かび上がるとともに、アト秒域で進行する超高速現象の時間追跡も実現するだろう。このようなアプローチは元素選択的な反応制御法の開拓や量子状態の時間発展を電子運動の観点から理解することに繋がると期待される[19]。たとえば内殻励起を利用したサイト選択的な分子の結合切断[20]は、時間領域での量子干渉技術との融合で新たな展開が生まれるかもしれない。また原子分子における光電子放出タイミングの軌道ごとの時間差[21]や非指数関数的な励起状態の崩壊[22, 23]など、基礎的な電子ダイナミクスの解明にはタンデムアンジュレータによるアト秒からフェムト秒スケールでの時間観測が有効であろう。さらに表面分子系におけるアト秒高速電荷移動[24]など、電子デバイスや有機エレクトロニクスの開発につながる基礎研究でも、ダブルパルス利用は有効な技術となる可能性がある。一方、光電子の量子制御は電子波束のテーラーメイド制御ともいえる。UVSOR-IV の低エミッタンスビームは電子波束の時空間構造に対する制御性も向上させる。このような電子波束の物質科学への応用は全くの未知数であるが、現段階から様々な可能性を模索すべきだろう。

## 放射光レーザー光コミュニティとの対話

2023年11月17日～18日の2日間にわたり、岡崎コンファレンスセンターにて自然科学研究機構先端光科学研究分野プロジェクト研究会「放射光の量子性・干渉性に基づく革新的計測手法の探索」を開催した。近年、UVSORにおいて、比較的波長の長い紫外・真空紫外線領域で回折限界放射光を生成し、放射光波束が本来有する優れた時空間構造の実験的検証やその応用可能性の原理実証が進んでいる。光渦やベクトルビームといった特異な空間構造を持つ放射光の生成、超高速ダブルパルス時間構造を有する放射光波束の生成と利用、また、最近では単一電子からの放射光の観測による単一光子レベルでの時空間構造の実験研究も開始されている。このような状況の下、応用展開で先行している光学分野の研究者、UVSORで基礎実験を進めてきた研究者、放射光利用技術の研究者・技術者、さらに新しい手法に興味のある幅広い領域の研究者が一堂に会し、新しい利用手法の開拓や、様々な分野への応用展開を議論し展望する研究会を開催することを目的とした。

### 講演者とタイトル:

<超高速・超短パルス>

遠藤友随(QST) 位相制御2色レーザーパルスを用いた分子のイオン化・解離過程の制御

水野智也(東大物性研) 高次高調波を用いた真空紫外から軟X線領域の超高速分光

田中隆次(理研) 単一サイクル自由電子レーザー基本原理の実証

<量子計測・時間構造化光>

飯沼昌隆(広島大) 量子測定の新展開 一定量な量子測定の可能性一

和田雅人(産総研) 光周波数コム基礎と標準や分光への応用

金安達夫(佐賀LS) タンデムアンジュレータによる極紫外ダブルパルスの発生とその利用

藤 貴夫(豊田工大) SPIDER法による放射光電場波形計測

<量子計測・超高速分光>

安井武史(徳島大学) 光コム of の使い方

倉持 光(分子研) 数サイクルパルスを用いた複雑分子系の極限時間分解分光

和田真一(広島大) static な内殻励起分光から探る高速電子緩和

<顕微・イメージング>

西田 純(分子研) 赤外近接場分光によるキャリア・励起子の局所ダイナミクスの解明

西澤典彦(名古屋大) 光干渉断層計測(光コヒーレンストモグラフィ)OCT

田中義人(兵庫県立大) X 線用中空ファイバー光学系の開発と放射光実験への応用の展望

<偏光・空間構造光>

江島丈雄(東北大) 軟 X 線励起による STED とその顕微応用

森下 亨(電通大) 高強度レーザーによるポルテックス電子ビームの生成とその応用

成島哲也(文科省) 高速離散円偏光変調を用いた局所分光イメージング分析の展望

大坪嘉之(QST) 分割型アンジュレータによる偏光制御と軟 X 線分光

加藤政博(広島大・分子研) まとめと展望

## 参考文献

- [1] M. Dantus et al., Chem. Rev. **104**, 1813 (2004).
- [2] K. Ohmori, Annu. Rev. Phys. Chem. **60**, 487 (2009).
- [3] D. Z. Kandula et al., Phys. Rev. Lett. **105**, 063001 (2010).
- [4] D. Gautheier et al., Phys. Rev. Lett. **116**, 024801 (2016).
- [5] L-M. Koll et al., Opt. Exp. **22**, 7082 (2022).
- [6] P. Tzallas et al., Nat. Phys. **7**, 781 (2011).
- [7] A. Withscheck et al., Nature Commun. **11**, 14721 (2020).
- [8] K.C. Prince et al., Nat. Photonics **10**, 176 (2016).
- [9] Y. Nabekawa et al., Nat. Commun. **7**, 12835 (2016).
- [10] L. S. Dreisse et al., Phys. Rev. Lett. **123**, 1143001 (2019).
- [11] Y. Hikosaka et al., Nat. Commun. **10**, 4988 (2019).
- [12] T. Kaneyasu et al., Phys. Rev. Lett. **123**, 233401 (2019).
- [13] T. Kaneyasu et al., New J. Phys. **22**, 083062 (2020).
- [14] T. Kaneyasu et al., Phys. Rev. Lett. **126**, 113202 (2021).
- [15] Research Highlight, Nature **592**, 10 (2021)
- [16] T. Kaneyasu et al., Sci. Rep. **13**, 6142 (2023)
- [17] T. Fuji et al., Optica **10**, 302 (2023).
- [18] D. Uhl et al., J. Phys. Chem. Lett. **13**, 8470 (2023).
- [19] K. Ueda et al., J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **52**, 171001 (2019).
- [20] 和田真一, 田中健一郎, 放射光 **18**, 148 (2005).



- [21] M. Schultze et al., *Science* **328**, 1658 (2010).
- [22] R. Santra et al., *Phys. Rev. Lett.* **85**, 4490 (2000).
- [23] D. Uhl et al., *J. Phys. Chem. Lett.* **13**, 8470 (2022).
- [24] A. Föhlisch et al., *Nature* **463**, 373 (2005).

## 12-3 光電子分光、光電子顕微鏡

### 光電子分光の今昔

光電子分光(photoelectron spectroscopy あるいは photoemission spectroscopy, PES)は、固体表面や気相分子に単色化した光を照射し、光電効果によって放出された光電子から、試料の電子状態や原子構造の情報を得る手法である。1921年に光電効果の研究で A. Einstein にノーベル物理学賞が授与されてから1世紀経つ。1981年に K. Siegbahn が高分解能 PES 法の研究で同賞を受賞した。一本のスペクトルから励起原子の化学的環境や価電子帯の状態密度の情報が引き出せるということで ESCA (electron spectroscopy for chemical analysis)ともよばれた。2006年には G. Ertl が光電子顕微鏡(photoelectron emission microscope, PEEM)を表面化学に応用し、化学賞を受賞した。幾多の技術革新を経て、PES は物質を支配する法則を様々な角度から解き明かす重要な手段に発展した。現在、エネルギー分解能においてはサブ meV、空間分解能においては数 nm の性能を持つ装置が入手できる。

| 100

### 各放射光施設での光電子分光研究の展開について

放射光は光エネルギー可変・集光・偏光・大光量・清浄・安定・パルスといった特徴をもつ。PES は放射光利用ならではの測定手法の一つとして広範囲に利用されるとともに現在でも技術開発が日々続けられている。極低エネルギー (1-10 eV two-photon PES や high-energy-resolution PES)・低エネルギー(10-100 eV angle-resolved PES: ARPES)・中エネルギー(100-1000 eV soft-X-ray photoelectron diffraction/holography)・高エネルギー(1 keV-100 keV hard-X-ray PES: HAXPES)の各光エネルギー帯、それぞれで特徴的な利用や新規のサイエンスの展開が進んでいる。

現在、国内外の放射光施設で光電子分光ビームラインが稼働している。低エネルギー帯では直入射型や斜入射型の回折格子分光器が、高エネルギー帯では二結晶分光器が定番となっている。回折格子型分光器・結晶分光器の端境となるいわゆる Tender X 線領域(1-3 keV)も、分光器の開発でシームレスに利用できるようになってきた。しかし、小型施設では硬 X 線の生成は難しく、逆に大型施設では高次光の混入で低エネルギーの光の利用は限定的である。一つの放射光施設で全エネルギー帯をカバーするのは難しい。表 1 に示すように、国内の大小各種の放射光施設は 8 施設 30 ビームラインで、それぞれが得意とするエネルギー帯で役割を分担している。他施設の連携で全エネルギー帯をカバーする点は

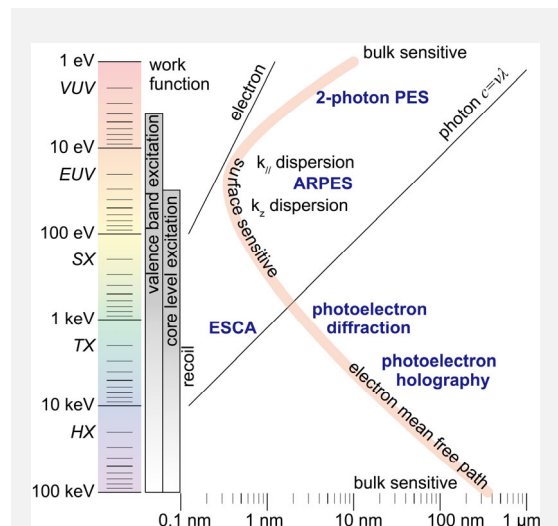


図 12-3-1: 光電子分光法とエネルギー(光・励起される始状態)・長さ(波長・平均自由行程長)の関係

本国の重要なアドバンテージである。

## レーザー光源との協奏

- | 101 低エネルギー帯ではレーザーを光源とした光電子分光測定技術も日進月歩で発展している。測定機側も飛行時間型分析器の登場やポンププローブ測定法の開発が進みフェムト秒・ピコ秒領域の超高速過程の研究が可能になった。かつて光電子分光ではレーザーと放射光の住み分けがあったが、競合から協働へとその関係が変化してきている。それぞれの光源特性を活かした相互利用・同時利用の実施例が増えている。レーザー光源と組み合わせた時間分解測定やスピン偏極の情報を解析する spin ARPES は開発の段階にあり、今後未発掘の物理にであえるであろう。レーザー光源 PES との相補的な発展は今後も注視したい。これまで時間分解測定として、放射光施設の光源仕様から測定の決まる時間スケールに合わせたターゲットを探すデモンストレーション的な実験が展開されてきた。今後レーザーとの協奏により、生体系・量子材料系の自律機能の解明と開発にかかわる未踏の時間スケールの計測環境整備を行う。

表 12-3-1: 国内の放射光施設に光電子分光装置が常設されたビームライン。組織名は日本放射光学会特別賛助会員のリストに準じた

立命館大学 SR センター Ritsumeikan SR					
BL-1	Extreme spectroscopy UV	4-50 eV	BL-8	SORIS: PES /ion scattering	10-700 eV
BL-7	PES	10-160 eV			
広島大学放射光科学研究センター HiSOR					
BL-1	High-resolution ARPES	26-300 eV	BL-9A	High-resolution ARPES	4-40 eV
BL-5	ARPES/PEEM	20-150 eV	BL9B	Spin-polarized PES	15-80 eV
BL-7	PES / IPES	20-380 eV			
分子科学研究所・極端紫外光研究施設 UVSOR					
BL2B	Solid PES	23 - 205 eV	BL5U	Solid PES	20 - 200 eV
BL4B	ARPES/XMCD/gas photoionization	25 eV - 1 keV	BL6U	Momentum Microscopy	45 - 600 eV
			BL7U	High-resolution ARPES	6 - 40 eV
あいちシンクロトロン光センター AichiSR					
BL1N2	SX-XAFS/PES II	0.15~2.0 keV	BL7U	VUV/SX spectroscopy	30~1000 eV
BL6N1	SX-XAFS/PES I	1.75~6 keV			
佐賀大学シンクロトロン光応用研究センター/九州シンクロトロン光研究センター SAGA-LS					
BL10	Polarization variable	40eV ~ 900eV	BL12	Bending magnet	40eV ~ 1500eV
兵庫県立大学高度産業科学研究センター NewSubaru					
BL05B	産業用分析 BL	30-1300eV	BL07A	短尺 undulator 分析 BL	回折格子
高エネルギー加速器研究機構・部室構造科学研究所・放射光科学研究施設 KEK-PF					
BL-2A/B	MUSASHI: 表面・界面 PES、広エネルギー帯域軟 X線分光	35-2000 eV	BL-3B	VUV-PES	20~300 eV
BL-28A/B	高分解能 ARPES 実験ステーション	30-300 eV	BL-13A/B	表面化学研究用 VUVSX 分光ステーション	48-2,000 eV
量子科学技術研究開発機構/東北大学国際放射光光イノベーション・スマート研究センター NanoTerasu (planned)					
BL06U	SX-PES	50-1000 eV	BL-07U	SX-電子状態解析	50-1000 eV
BL-08U	SX-operando spectroscopy	130 eV-2 keV	BL-09U	X-ray operando spectroscopy	2-20 keV
理化学研究所/高輝度光科学研究センター/日本原子力研究開発機構 SPring-8					
BL09XU	HAXPES I	4.9-12 keV	BL23SU	JAEA 重元素科学 II	0.4-1.8 keV
BL16XU	サンビーム ID	4.5-40 keV	BL25SU	軟 X 線固体分光	0.12-2 keV
BL22XU	JAEA 重元素科学 I	4-70 keV	BL46XU	HAXPES II	5-10 keV

## 固体物理とソフトマターへの展開について

低エネルギー帯(10-100 eV)での ARPES は Fermiology の標準的ツールとして物性物理学で欠かせない手法となっている。かつて銅酸化物高温超伝導体が登場し、その物性解明の要請に応えるために高エネルギー・運動量分解能を実現する技術開発が進んだ。近年では逆に光電子分光コミュニティが原子層科学・トポロジカル物性科学の展開の重要な技術基盤となっている。時間分解・空間分解・エネルギー分解・運動量分解の技術改良は現在も続いており、こうした技術基盤から新たな物性科学が生まれると期待したい。

光渦や時空間コヒーレンシーの高い特殊な光が研究されている。こうした光の光電子分光へ応用

はほとんど未着手である。光の空間構造と光電子放出の層間を可視化する顕微イメージングと連携した分光手法開発がブレークスルーとなると期待している。

低中エネルギー帯での光電子分光によるバイオ系への展開は弱い。方法論が確立してきた無機系の計測に対し、有機系の計測法はまだ開拓の段階である。低エネルギー帯は励起断面積の観点から光源として適しているが逆に有機系と相互作用が大きく「放射線損傷問題」が立ちはだかる。低い光フラックスで十分にダイナミックレンジを確保した低ノイズ環境の測定が打開の鍵となる。また「真空の壁」が問題点として挙げられる。回避アプローチ(HX、差圧、メンブレン)は実証されつつあるものの、爆発的な利用につながっていない。円偏光の利用でこれまで XMCD 以外に汎用化した手法はないが、キラリティが分子レベルからマクロな生命現象にまでつながるバイオ系と円偏光はマッチングが本来良いはずである。円偏光スイッチングや偏光制御の有効な利用開拓が待たれる。

ソフトマター分野ではシーズが見えていないためにニーズが顕在化していないのが現状である。「要素還元主義的なアプローチ」の限界にたいして、顕微イメージングとマルチモーダル測定への展開は有効な打開策となる。X線発光分光や顕微ラマン分光、あるいは非放射光的手法(SIMSやTEM)などとの連携で新たな発想の転換を期待したい。

| 103

## 光電子運動量顕微法: 顕微 ARPES と ARPES 顕微鏡

角度分解光電子分光(angle-resolved photoelectron spectroscopy, ARPES)は光照射によって試料内部から飛び出す光電子の角度分布(運動量空間分布)から、試料の原子・電子構造を解明する定石的な研究手法である。試料方位を逐次回転させて測定した角度分解光電子スペクトルを並べると、点つなぎの要領でバンド分散が得られる<sup>1)</sup>。やがてバンド分散をスクリーン上で直に観察できる半球偏向型分析器(hemi-spherical deflection analyzer, HDA)<sup>2)</sup>、光電子の2次元角度分布が一度に計測できる表示型球面鏡電子分析器<sup>3-7)</sup>、微小空間の顕微分光を可能にするPEEMなど、種々の投影型電子分析器が普及し、データの量から質への転換で研究が一変した。

近年、物性を司る原子構造や価電子の振る舞いをミクロ・ナノの視点で明らかにしたい、という物質科学・材料開発の共通の要請を背景に、高分解能分光計測と顕微イメージングの融合がトレンドになっている。集束 X線と試料位置の走査機構を組み合わせると、微小結晶試料表

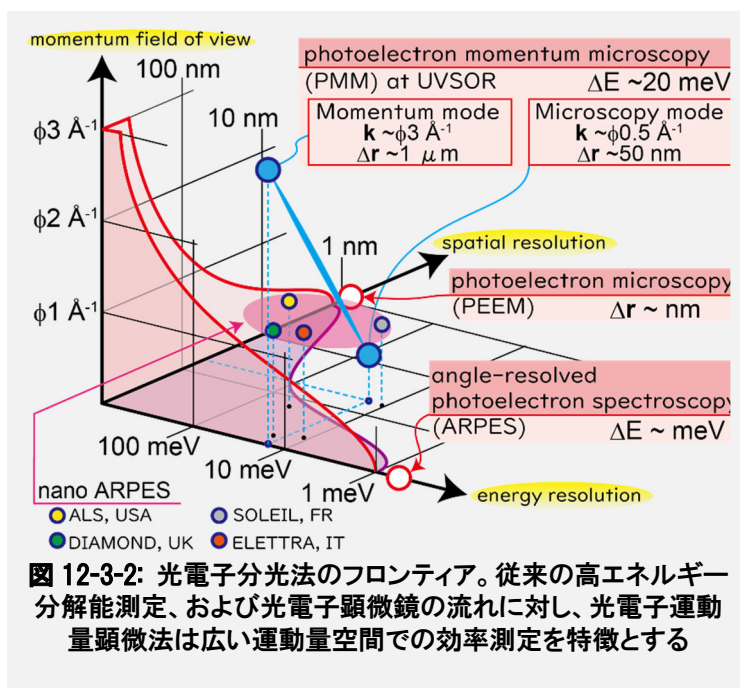


図 12-3-2: 光電子分光法のフロンティア。従来の高エネルギー分解能測定、および光電子顕微鏡の流れに対し、光電子運動量顕微法は広い運動量空間での効率測定を特徴とする

面やナノデバイスの局所電子状態解析が可能になる。図 12-3-2に示すように、国内外での放射光施設では、Fresnel zone plate や Kirkpatrick-Baez ミラーを高度化した新たな集束光学系が開発され、空間分解能数 100 nm の nano ARPES 測定が実現されている。この方式では、すでに確立している高エネルギー分解能の HDA を用いることができる、という利点があるが、化合物材料や有機分子膜などの多くの試料は、このような強力な集束 X 線照射によって測定中に容易に劣化してしまう、という難点があった。

他方、投影型エネルギー分析による顕微光電子測定は走査を必要とせず、短時間で観測できるので、この放射線損傷問題の回避に有効である。PEEM は陰極レンズを用いて光電子を取り込み、光照射範囲の実空間像をスクリーン上に拡大投影する装置で、数 nm の空間分解能を有するものも登場している。電子レンズ系の電位を切り替えることで、スクリーンには同じ観察個所の運動量空間分布が投影される。励起源を電子とした低エネルギー電子顕微鏡 (low energy electron microscope, LEEM) では、運動量空間で電子回折スポットを選択し、特定のドメインの空間分布を可視化する暗視野像法 (dark field imaging) という技術が開発された。しかし、PEEM では運動量空間の投影範囲とエネルギー分解能の両立は難しく、ARPES 測定は不向きとされてきた。その中で光電子運動量顕微鏡 (photoelectron momentum microscope, PMM) は、PEEM が苦手としていた運動量空間の投影範囲やエネルギー分解能を大幅に改善し、微小領域の ARPES 測定に資する新たな装置としてドイツで誕生し、注目を集めている<sup>8-10)</sup>。現在、放射光やレーザーなど先端の光源特性を生かした PMM 開発が世界各地で展開されている。

分子科学研究所・極端紫外光研究施設 UVSOR では軟 X 線ビームライン BL6U (45~700 eV, 分解能  $E/\Delta E$  5,000~10,000) に PMM を設置し<sup>11)</sup>、共鳴光電子分光や分子軌道トモグラフィーなどの独自の研究を展開してきた。最近、LEEM の暗視野像法を PMM に応用し、顕微 ARPES 測定の新展開となる運動量選択光電子顕微法を独自に確立した。

## 独自の装置開発とマルチモーダル測定の実現について

さて、光電子分光における分析器のシェアはほぼ海外 (欧州) 勢で占められている現状がある。欧州の放射光施設の光電子分光ビームラインに地の利があり、装置開発の情報伝達や修理の速度では有利である。そうした中海外の先進ビームラインを拠点とする国内ユーザーも少なくはない。技術交流・人材育成の観点から海外との共同研究は重要であるが、同時に国内コミュニティの空洞化にもつながる。分析器の海外頼みばかりでは、光電子分光コミュニティの成長はない。本来存在していた分析器を開発する力を、再度国内コミュニティで育て、国内に物性研究拠点を築いていかないとないといけない。

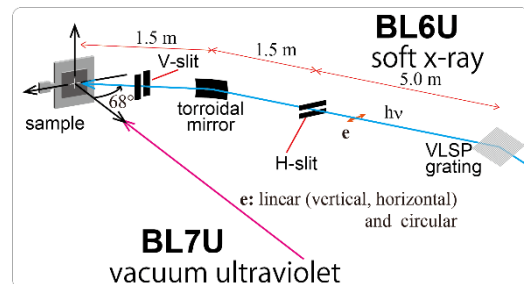
\*現在 UVSOR でスピン光電子運動量顕微鏡法の開発を進めているが、分析器そのものはドイツからの舶来品である。独自の展開で、光電子運動量顕微鏡の拠点の一角と認識される技術水準の確保を目指したいところである。

光電子分光には汎用手法としての側面と、先端手法としての側面がある。施設側とユーザー側とでそれぞれの力量に合わせて整備・開発していく必要がある。具体的な課題を下記に上げる。



**スピン偏極測定:**スピンの自由度を含めた完全測定の嚆矢はスイス放射光施設の COPHEE (Complete photoemission experiment)システムである。その後、Okudaら(現広島大)が開発した高スピン感度のスピン検出ターゲットを用いた ESPRESSO (efficient spin-resolved spectroscopy observation)や Tuscheら(現 Forschungszentrum Jülich)が開発した 2 次元スピン検出器を装備する PMM が登場した。UVSOR では ESPRESSO にスピン回転器を導入した 3 次元スピン解析システム(BL5U)及び SX-VUV 二刀流のスピン偏極 PMM(BL6U+7U)を開発している。

**マルチビーム測定:**現 BL6U にて斜入射配置にて直線偏光軟 X 線を光電子運動量顕微鏡に導入し、顕微光電子分光・軟 X 線共鳴光電子分光などを展開している。さらに現 BL7U を分岐し、直入射配置で光電子運動量顕微鏡に導入した。これによって光電子遷移行列要素を高対称の条件で測定・解析できるようになり、バンドを構成する原子軌道・スピンの情報へのアクセスがより正確にできるようになる。



**超高速時間分解測定:**現 BL3U では放射光と同期したレーザー(現 BL1U 付設)を導入した時間分解 XAFS の開発を進めている。また現 BL1B ではレーザースライシング技術を用いた時間分解テラヘルツ分光に挑戦した実績がある。現 BL6U にて軟 X 線内殻励起共鳴光電子分光とレーザーを組み合わせた時間分解測定の展開を計画中である。

**偏光変調測定:**Matsuda ら(東大物性研)が開発した PINEAPPLE (Phase Interferometric Ensemble of APPLE)をベースにした 4 重連アンジュレータの導入は魅力的である。Phase shifter を用いて偏光(ヘリシティ)を高速で切り替えることができる。光電子回折の円二色性から原子構造や価電子帯の軌道角運動量の情報が得られる。キラル表面構造や分子構造と電子状態の関係を解き明かすことができる。

**超低ノイズ高感度測定:**強力な集束光と同時に、測定環境のノイズを極度に取り除くことは易損傷試料における光低フラックスでの測定で重要である。同じダイナミックレンジが確保できれば、試料を破壊する強力な光を用いずとも同じ質のデータが得られるからである。検出器の高効率化も同じ意味で重要である。

今後の光電子分光研究の展開として、データ科学を取り入れた展開は魅力的である。マルチチャンネル検出器やデータ収集の高速化に伴い、大規模データが得られるようになったが、データ科学を取り入れた効率的な特徴量の抽出を通じて埋もれた情報の発掘が期待できる。オートメーション化やデータ標準化も次の技術的な課題である。光電子分光にとどまらないコミュニティの横の連携が重要である。他の手法(TEM, SPM, NMR, SIMS など)と複合させた研究事例を蓄積する観点も重要で放射光施設外の大型設備のコミュニティとの対話が重要である。マルチモーダルの利用を展開するユーザーに依拠して、連携を強化していきたい。

## 産学連携と基礎学術について

高エネルギー帯(1 keV–10 keV)での HAXPES は産業・バイオとの接点大きい手法である。HAXPES はバルク敏感な手法で試料の前処理が不要となるため、材料評価分野での利用が瞬く間に広がった。また多段真空排気による雰囲気下光電子分光は触媒の動作条件での電子状態計測として、その開発に期待がかかる。高エネルギー帯の施設では材料評価や蛋白質構造解析で産業・医工分野への展開が顕著である XAFS・XRD も標準的な手法として利用され、産学連携の実施例が多い。

他方、低エネルギーの放射光施設では学術的利用の比重が大きく、民間利用数は多くないが\*、同時に手法や装置開発を通じて新しい技術や人材が育っていく重要な場でもある。社会連携として「役に立つ研究」が強求められ、学術・産業利用どちらも一律に有償利用とする動きもある中、基礎学術の重要性を丁寧に訴え続けなければならない。

- \* 利用法のコンサルティングを通じて、軟 X 線光電子分光を利用する産業界からのニーズが発掘される。ただ成果を占有し、測定内容を秘匿しなければならない制約があり、こうした施設での民間利用の成果が見えづらい。民間利用で役に立っている点を放射光コミュニティー内外にアピールする機会を設ける作業は大変重要である。

## 光電子分光コミュニティーとの対話

2023年7月29日～30日の2日間にわたり、岡崎コンファレンスセンターにて分子研研究会”明日の放射光光電子分光研究展開のシーズとニーズ Seeds and Needs for Tomorrow’s Synchrotron Radiation Photoelectron Spectroscopy Research”を開催した。光電子分光は、放射光の特徴を活かした物性科学の重要な技術基盤として広範囲に利用されてきた。現在でも技術開発が続けられて、顕微イメージング、ソフトマテリアルの非破壊計測、準大気圧雰囲気下での化学反応解析技術、機械学習を活用したデータマイニング、レーザー光源の相互利用や軌道角運動量光などの新規光源開発など、次の展開の芽が続々と登場している。そこでこうしたシーズの開発に携わっている先端の研究者に集まっていただき、闊達に議論を行った。国内外から60名ほどの参加者、15名の招待講演を含む17件の口頭発表、19件のポスター発表があり、充実した研究会となった。

### 講演者とタイトル:

#### Deepening of condensed matter physics

出田真一郎 [広島大] ARPES Studies and Developments at HiSOR: Towards HiSOR-II Projects

一ノ倉聖 [東工大] Intercalation-driven Superconductivity in Graphene

堀尾真史 [東大物性研] Space-resolved ARPES on strongly correlated materials

#### PEEM & Momentum Microscopes

福本恵紀 [高工研] Operando observation of organic transistors using femtosecond PEEM

M K Man [OIST] Imaging in real and momentum space with ultrafast XUV light source

S Ito [Marburg Univ.] Momentum-Space Movies of Electrons at Surfaces and Interfaces

M Hoesch [DESY PETTRA-III] Active Sites of Te-hyperdoped Silicon

T H Chuang [TPS] Transition of soft X-ray photoelectron microscopy from TLS to TPS

松井文彦 [分子研] Multimodal Valence Stereography for Cutting-edge Spin Materials Science  
New Light

金安達夫 [佐賀 LS] Spatio-temporal control of undulator radiation and its application

#### Soft materials

中山泰生 [東京理科大] Inter-molecular electronic bands in crystalline organic semiconductors probed by synchrotron radiation photoelectron spectroscopy

山田洋一 [筑波大] Photoelectron angular distribution measurements of highly ordered organic films

#### Data science

松下智裕 [奈良先端大] Observation of atomic arrangements of dopants and interfaces using photoelectron holography and sparse modeling

二木かおり [千葉大] Establishment of analytical method for Wave-number Resolved Photoelectron Spectroscopy

永村直佳 [物質・材料研究機構] Development of data analysis methods for multi-dimensional spectral imaging techniques

#### Future Plans

小澤健一 [高工研] Photoelectron Spectroscopy in the 21st Century and Beyond

解良聡 [分子研] Prospects required for future light-source facilities: Research Center for Autonomous Functions by Tailor-made Photon Science

#### ポスター

H. Daimon Development of Display-type Analyzer CoDELMA

E. Saleh Lattice Design of the UVSOR-IV Storage Ring

S. Suzuki Photoemission spectroscopy of insulators using enhanced environmental charge compensation

S. Tanaka Momentum-resolved resonant photoelectron spectroscopy of  $\text{TiSe}_2$ : Interatomic interaction and negative  $q$  in Fano resonance

T. Nakamura Two-dimensional heavy fermion in a monoatomic-layer Kondo lattice  $\text{YbCu}_2$

R. Nakazawa Observation of electronic and exciton states of semiconductor and insulator materials via high-sensitivity photoemission spectroscopy using deep UV-vis photons

S. Suga SX-RIXS under external perturbations and extended spin resolved PMM

K. Kiyosawa Interfacial electronic states of F6TCNNQ molecular crystalline films on  $\text{TiSe}_2$

S. Tsuda Current Status of Imaging-type Photoemission Microscopy with nano-ESCA in NIMS

K. Takagi Development of Measurement Techniques at the Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy in BL46XU

T. Ito Angle-resolved Photoemission Study of Solid Electrolytes  $\text{Li}_{3x}\text{La}_{2/3-x}\text{TiO}_3$  Bulk Single Crystal

K. Hagiwara Spin- and orbital-dependent band structure of unconventional topological semimetals

K. Hagiwara Development of Photoelectron Momentum Microscope with Soft X-ray & VUV Dual Beams at BL6U & BL7U

K. Fukutani Elucidations of electronic structure and the many-body interactions of organic molecular materials

K. Fukutani Explorations for spontaneously formed excitons in narrow-gap semiconductors and semimetals

Jaseela Palassery Ithikkal Observation of electronic band dispersion in crystalline PTCDI-C8 thin film

- P. Krüger      On light-electron angular momentum transfer in Auger electron spectroscopy  
S. Yamamoto    Development of time-resolved ambient pressure X-ray photoelectron spectroscopy system at SPring-8 BL07LSU  
K. Tanaka      Current status and recent progress of ARPES beamlines BL5U&BL7U at UVSOR

講演では、強相間物質・機能性表面・原子層・エキシトン・有機半導体デバイスキャリアダイナミクス・光特性のアト秒制御・界面・ドーパント・フロッケエンジニアリング・光電子理論・データ科学などなど、第一線で展開されている新進気鋭の方々からの研究成果が次々と紹介された。さらに「明日の研究展開」を研究会の表題に掲げましたが、講演者・参加者がその意をくんで「研究成果発表会」にとどまることなく、それぞれの将来展開像や課題を大いに議論していただいた。

今回、国内全放射光施設から光電子分光研究に関わる方の参加を頂くことができ、先端の研究展開及びこれからの展望について情報共有を進めることができたことは大変重要な成果であると考えている。国内 30 余の光電子分光ビームラインが広範囲の光エネルギー帯を切れ目なくカバーし、それぞれ特徴のある測定環境が整備されている。技術共有・人材交流・データベース構築に向け連携は重要であることは論をまたない。それだけになおさら各施設には、それぞれのミッションと戦略を明確にし、社会に欠かせない科学・技術の基本インフラであることを提示していく活動が求められている。講演では、国内で連携を進めている学術三施設（広島大学 HiSOR、高エネルギー加速器研究機構 Photon Factory、分子研 UVSOR）からそれぞれの将来ビジョンが紹介された。分子研の次期計画として解良施設長から、これまで積み上げてきた UVSOR の光・量子・マテリアル科学研究をマルチモーダルな先端光源設備群で発展させるとともに、これまで放射光分野では利用法の開拓が進んでいなかった生命科学の自律性機能解明の研究分野に様々な仕掛けで切り込んでいく詳細な提案がなされ、聴衆からも斬新な提案に対する高い評価を得た。総合討論セッションでは、こうした学術系施設の我が国における位置づけや国際的な重要性などが意見交換され、今後どのような科学・技術のトレンドや科学目標を目指すべきか、そのためにどのような施設群や支援体制を充実させ展開させていくべきか、そして若手研究者をどのようにこの光科学分野に魅了して引き込んでいくか、大きな課題が議論された。

## 最後に：今後の発展の方向性について

放射光施設間で人・技術・利用の発展的な共有が鍵となる。特に技術スタッフ・ビームラインサイエンティストの充実（補充）は急務である。今後の在り方として、

- [A] 光電子分光の物理を理解して開発できるオペレータ層
- [B] 様々な系に展開する工夫のできるヘビーユーザー層
- [C] 光電子分光法を確立した手法として利用する一般ユーザー層・企業ユーザー層

をバランスよく充実させていきたい。

また、ネガティブにとらえられがちであるが、老朽化対策・技術の伝承も喫緊の課題である。材料開発や民間利用では実験・計測データの再現性が求められる分野が多くある。制限されたリソースの

中でも、先端計測をとがらせるとともに、すそ野を有効に拡げるのが理想である。それぞれの放射光施設単独で全ビームライン開発を担うばかりではなく、複数の大学にわたる研究コンソーシアムがビームラインとエンドステーションを建設し、人を育てるような例が中小型放射光施設にてもっと展開されてもよいのでは、と考える。

## 12-4 軟 X 線イメージング

### 12-4-1 軟 X 線吸収分光・分光イメージング・共鳴散乱

今日、数十 eV から 2keV、2keV から 5keV、更に高い数百 keV までの、それぞれを軟 X 線(以降、SX)、テンダー X 線(TX)、硬 X 線(HX)の 3 つのエネルギー領域と区別している。技術的には、大気による吸収を避けるために通常、真空中またはヘリウム雰囲気中で測定が行われ、光の単色化には回折格子によることが多い 2 keV 程度までと、2 keV 以上のシリコンなどの単結晶による分光が行われ、試料チェンバーと上流の超高真空のビームラインがベリリウム窓で仕切られていることが多い TX・HX とに分けられる。TX の低い側 3keV 程度までは回折格子分光器でもカバーされることもあるが、その多くは HX 同様、2 結晶分光器が用いられている。本章では、次期計画の MPW で十分にカバーする Ca K-edge 程度までの SX・TX 領域まで扱うこととする。

参考までに、UVSOR-III の軟 X 線吸収分光ビームラインのエネルギー範囲は、BL3U: 60 - 800 eV、BL4U: 55 - 770、4B: 40 - 1000 eV、BL2A: 0.8 - 4 keV となっている。

12-4 から 7 までの章では X 線吸収分光法(XAS: X-ray Absorption Spectroscopy)をベースにした手法、分光イメージング/3D 吸収コントラストイメージング、分光散乱、そしてより高次の分光法である発光分光と円偏光を

利用した XMCD: X-ray Magnetic Circular Dichroism の話となっている。XAS は放射光施設で最もよく使われる手法の一つであり、試料の空準位の電子状態を反映する。例えば、主に、炭素、窒素、酸素などから構成されるポリマー試料を例として考える。図 12-4-1 は基礎骨格に C=O、カルボニル基を含んだポリマーの C K-edge XAS のスペクトルを示している [1]。XAS は、X 線励起による内殻準位から空準位への電子遷移であり、赤線で記したスペクトルに見られるピークは、炭素の 1s 内殻準位からカルボニル基由来の空準位への遷移に帰属される。これ

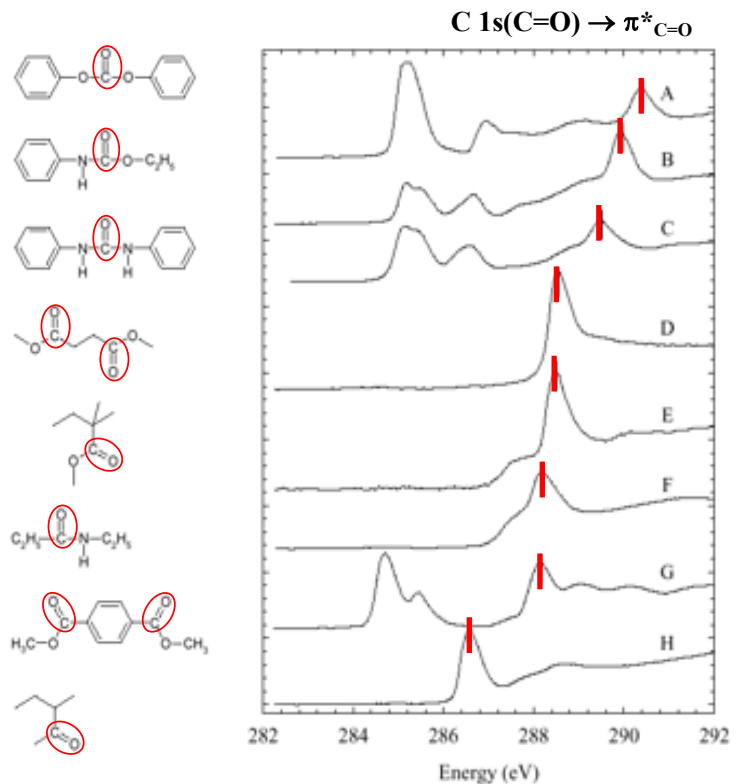


図 12-4-1: カルボニル基を含んだポリマーの C K-edge NEXAFS スペクトル



ら各種ポリマーではカルボニル基周りの局所的な化学結合が異なるため、対応するピーク位置がそれにつれて変わることが分かる。ポリマーに含まれる化学結合・官能基によってそのスペクトル形状が決まるということは、逆にスペクトル形状を指紋としてポリマーをある程度予測することができる。直線偏光した X 線を利用し、その偏光依存性を測定することで、その化学結合の向き、つまりその分子の配向状態を決めることも可能となる。遷移金属の L-edge XAS を測定すれば、そのスペクトル形状(ピーク位置)からその酸化状態を決められる。12-7で扱っている XMCD では XAS の中でも円偏光を利用することで磁性を担う電子スピンの情報が得られる。

簡単に XAS からどんな情報が得られるかを述べたが、これをイメージング・マイクロコピーに拡張してやれば、2 次元ではそのピクセル、3 次元ではそのボクセルが一本のスペクトルに対応することになり、試料の電子状態マッピング、例えば化学状態マッピングが可能となる。この発想を散乱に適用してみる。HX で行われる小角 X 線散乱(Small Angle X-ray Scattering: SAXS)では、その電子密度差を散乱コントラストに利用している。例えば、相分離したポリマーを考えてみると、ポリマーは C,N,O から主に構成されるため、異なるポリマーでもその電子密度に大きな差はなく、そのため散乱コントラストは小さくなり、そのままでは有用な情報が得られない。そのため、電子密度が大きく異なる重元素でラベリングをしたりするわけである。しかし、先に示したポリマーの C K-edge XAS で、その電子状態(官能基、化学結合)を反映した異なるスペクトルが得られるのであれば、その吸収コントラストを散乱に利用できれば、異なるポリマーを見分けることが出来るはずである。この考え方を推し進めてきたのが軟 X 線共鳴散乱(Resonant Soft X-ray Scattering: RSoXS)である。詳細は 12-5-1 を参照いただきたい。

表 12-4-1: 軟 X 線イメージングの種類

軟X線顕微鏡の種類とその特徴			
		空間分解能	光学素子など
密着型	試料の透過光強度を密着させた検出器で測定	シンチレータ+ CCD/CMOS : < 1 μm フォトレジスト : ~10 nm	X線光学素子は不要
投影型	点光源からの発散光内に配置した試料の拡大等映像を測定。装置は簡便で視野も広い	数百 nm	
結像型	キャピラリーなどのコンデンサーにより試料を照明し、透過したX線を結像素子により検出器に結像する	数十~100 nm	結像素子: Zone plate, Schwarzschild mirror 位相差像 光電子の結像: PEEM
走査型	集光素子によりX線を試料上に集光し、通常試料を走査しながら透過光や蛍光X線強度を測定する	数十 ~ 数百 nm	集光素子: Zone plate, Wolter mirror マルチモーダル測定 光電子の検出: SPEM
回折型	コヒーレントX線を試料に照射し、試料からの散乱イメージを二次元検出器で測定。その散乱パターンから計算機により像を再構成する。または、参照光を利用したホログラフィー	数~数十 nm	集光素子: Zone plate, Wolter mirror 走査型: Ptychography

## 12-4-2 軟 X 線イメージング

ここから軟 X 線イメージング、特に分光イメージングについて概観していきたい。表 12-4-1 に挙げたように、1)密着型、2)投影型、3)結像型、4)走査型、5)回折型と大別する。

3-5の3種類の手法については、図12-4-2に模式図を示す[2]。

1) 試料の透過 X 線強度を試料に密着させた検出器による検出する方法で、X 線光学素子が不要となるため歴史的にも古くから用いられている。PMMA のようなフォトレジストを使用することで約 10 nm の空間分解能が早くから実現されていたが、顕微分光を行う上では時間がかかることと定量性に問題があった。その後、電子ズーム管の開発によってサブミクロンレベルでの顕微分光測定が行われ、CCD や CMOS といった二次元検出器と高品質なシンチレータとの組み合わせにより、1  $\mu\text{m}$  以上の高分解能かつ高速に定量性のある測定が可能となった(2-5-5 バイオの手法開拓参照)。2) 点光源から発散する光によって試料の投影拡大像を得るため、同じく簡便な手法となるが、フレネル回折によるボケが生じる点は密着型と同様である。ZP を利用した走査型の場合でも EMCCD や sCMOS のような 2 次元検出器を備えている場合は焦点位置をずらすことで簡単に実現できる。3) 集光した X 線に対して試料を走査してイメージングを行う走査型 X 線顕微鏡: SXM(Scanning

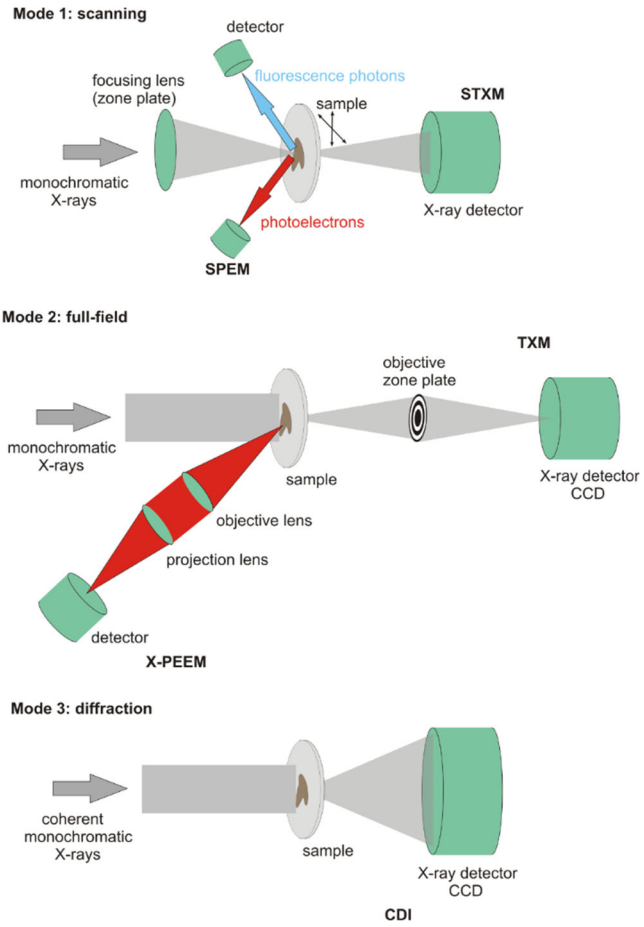


図 12-4-2: 3種類の軟 X 線顕微鏡の模式図

表 12-4-2: 国内の放射光施設に STXM または SXT が常設されたビームライン

Ritsumeikan SR		
BL-12	SXT	4-50 eV
UVSOR		
BL4U	STXM	55 - 770 eV
KEK-PF		
BL-19A	STXM	160 - 1900 eV (90-2000 eV)
NanoTerasu (under preparation/planned)		
BL013U (QST)	SXM?	180-3000 eV (PINEAPPLE type)
BL-14U (PhoSIC)	SXM for Magnetism (from SPring-8 BL25SU)	200 eV-1400 eV (Twin Helical)
SPring-8		
BL17SU (RIKEN)	STXM	225 - 2000 eV (Helical 8)
BL23SU (JAEA)	STXM	400 - 1800 eV (Twin Helical)
BL07LSU (RIKEN)	Ptychography (ISSP)	220 - 2000 eV (SCU)

X-ray Microscopy) は、その空間分解能は集光 X 線のサイズによって決まる。試料への照射量を最小限に抑えることができ、複数の検出器を配置することでマルチモーダルな展開が容易である。そのため、集光光学素子の開発が進み、2000 年初期からはフレネルゾーンプレート(以下、ZP)による 100nm 以上の高空間分解能を利用した応用研究が展開され、第 3 世代以降の放射光施設では必須の装置となっている。特に、ALS で開発されたレーザー干渉計による試料位置の精密制御が可能となってからは、その使い勝手も格段によくなり、その後の ALS の装置をベースにした商用機が SLS を皮切りに多くの施設に導入されている。SX 領域の Spectromicroscopy と呼ばれる分光イメージングは次に述べる結像型よりも ZP を集光素子に用いた走査型で専ら行われている。表 12-4-2, 3 に国内と国外の施設の一覧を挙げる。4) 結像型の場合、光学顕微鏡に似た配置で測定を行う透過型の TXM: Transmission X-ray Microscopy と数十ミクロン程度の光を試料に照射し、試料表面から発生する光電子を静電レンズ系によって蛍光板上に拡大結像する PEEM: PhotoElectron Emission Microscopy がある。PEEM については電子分光の章を参照いただきたい。TXM でも入射 X 線エネルギーを走引して SXM と同様な 2 次元のイメージ x エネルギーの 3D データセットを取得可能である

表 12-4-3: 世界の放射光施設に STXM または SXT が常設されたビームライン

<b>Advanced Light Source (ALS) USA</b>		
5.3.2.2 & 5.3.2.1	STXM	250 – 780 eV / 600 - 2000 eV
11.0.2.2	STXM	160 – 2000 eV
7.0.1.2 COSMIC	STXM / Ptychography	250 – 2500 eV
6.1.2 (CXRO)	TXM	300 – 1000 eV
2.1 XM-2 (NCXT)	CryoSXT	400 – 1300 eV
<b>National Synchrotron Light Source-II (NSLS-II) USA</b>		
SXN	STXM / Ptychography under construction	250 – 2500 eV
QCT	CryoSXT under preparation	200 – 1000 eV
<b>Canadian Light Source (CLS) Canada</b>		
SM	STXM / Ptychography / PEEM	130 – 250 eV
<b>BESSY-II Germany</b>		
UE46 MAXYMUS	STXM / Ptychography	130–2500 eV
MYSTIC	STXM under Energy Materials in situ Lab (EMIL)	250 – 1500 eV
U41 XM	TXM/CryoSXT	270 – 1500 eV
<b>Swiss Light Source (SLS) Switzerland Upgrading to SLS 2.0</b>		
PoILux	STXM	250-1600 eV
SIM	STXM / Ptychography / PEEM	90 – 2000 eV
<b>Diamond Light Source (DLS) UK</b>		
I08/I08-1	SXM / Ptychography	250 - 4400 eV
B24	CryoSXT + CryoSIM	200 - 2600 eV
CSXID	STXM / Ptychography under Diamond-II Upgrade	250 – 3000 eV
<b>Elettra Italy</b>		
TwinMic	STXM / TXM / Ptychography	400 – 2200 eV
<b>SOLEIL France</b>		
HERMES	STXM / Ptychography / PEEM	70 – 2500 eV
<b>Solaris Poland</b>		
Demeter	STXM / Ptychography	10 – 2000 eV
<b>MAX IV Sweden</b>		
SoftiMAX	STXM / Ptychography / CXI	275 – 2500 eV
<b>ALBA Spain</b>		
MISTRAL	TXM/CryoSXT	270 – 1200 eV
<b>SSRF China</b>		
BL08U1-A	STXM	250 – 2000 eV
<b>Pohang Light Source-II (PLS-II) Korea</b>		
10A	STXM	100 – 1500 eV
<b>Taiwan Photon Source (TPS) Taiwan</b>		
27A1	STXM / Ptychography under commissioning	90 – 2500 eV
24A	CryoSXT + CryoSIM under commissioning	260 – 2600 eV

が、どちらかといえば固定したエネルギーでのイメージ取得が多い。特に、試料を 2 次元走査するのでなく、試料を回転させてながら透過拡大像を取得する Tomography 測定を行い 3D イメージングすることが特徴となる。特に、生物試料に対して、水の吸収の低い、炭素や窒素の吸収コントラストが支配的な「水の窓」のエネルギー領域の固定したエネルギーで Tomography を行う 3D バイオイメージングが欧米では特に活発に行われている。5)最後に回折型と呼ぶのは、これまでの 1-4 の実空間イメージングと異なり、透過配置で試料からの散乱を二次元検出器で測定し、結像光学系の代わりに計算機によって象の再構成を行う手法となる。入射 X 線には高いコヒーレンスが必要とされる。走査型のファミリーとなる Ptychography は孤立しない物体に対しても適用できるため、現在開発が進みリチウムイオンバッテリーなどにおいて利用研究が行われている。高角側の散乱信号が高空分解能に寄与するため、散乱能が高く、照射損傷の影響の少ない試料への適用が先行し、遅れてソフトマテリアルの炭素の吸収端での研究が進みつつある[3]。

### 12-4-3 SXM

HX 領域での集光は専ら、全反射を利用した KB (Kirkpatrick-Baez) ミラーで行われることが多いが、SX ではほぼ全て ZP によって行われている。ZP は円型の透過型回折格子であり、窒化ケイ素のような軟 X 線の透過する薄膜上に電子線リソグラフィによって描画された主に金属の輪帯(Au, Ni, Ir など)から成っている。ZP は回折格子のため、色収差があり、その焦点距離は X 線のエネルギー、ZP の直径と最外輪帯幅に比例する。また、通常 ZP からの一次回折光を集光ビームとして使用するが、その効率は数%から高くても 10%程度である。全く回折しない直進する光や他の次数の光を取り除くために、適当なサイズのピンホール、OSA(Order Sorting/Selecting Aperture)を ZP と焦点(試料)の間に配置して、一次回折光だけを集光する。エネルギーを変える場合には ZP の位置も計算式に沿って光軸方向に動かすことで焦点位置が変わらないようにするため測定上の問題はない。現実的な問題は、回折限界条件下では ZP による集光サイズは ZP の最外輪帯幅で決まるが(典型的な幅は数十 nm)、十分な WD(Working Distance)を低エネルギーで保つためには、より大きな ZP が必要となるが、作製上困難がともない、実際には分解能を犠牲にして現実的な WD を実現することになる。例えば、炭素の K 吸収端の領域で用いられる ZP は、直径が 240  $\mu\text{m}$ 、最外輪帯幅が 25nm 程度であり、300eV で、式で計算すると、焦点距離は約 1.45mm となる。WD、OSA と試料の間隔は、400  $\mu\text{m}$  である。同じ ZP を使って、硫黄の L 吸収端を測定すると、180eV では焦点距離は約 870  $\mu\text{m}$  となり、理想的な OSA-試料間隔は 240  $\mu\text{m}$  程度となる。ビームラインとしてとれるスペース(長さ)にもよるが、色収差のない 2D Wolter ミラーによる集光スキームが三村らにより実現されており[4]、WD を大きく取れることや効率が高いことを考えると有力な解決策となるだろう。そのような光学系を利用した分光タイプの Ptychography: Spectro-Ptychography が木村らにより発表されており、得られている ~数百 nm の集光はコヒーレントイメージングを実現する上では既に十分な性能をもっており、更なる開発が進められている[5]。

UVSOR-III では 2012 年のリングのアップグレードに合わせて BL4U に STXM ビームラインが建設された。真空封止アンジュレータを光源とし、不等間隔刻線回折格子分光器を用いて 50 - 770 eV

のエネルギー範囲をスペクトル分解能:  $E/\Delta E > 5000$  でカバーする。集光光学素子には、透過型回折格子の Fresnel Zone Plate (FZP) を用いて、数十ナノメートルのビームサイズに  $10^7$  photon/sec の光強度を実現している。エンドステーションには ALS ベースの商用機である Bruker 製の装置が導入され、2013 年から稼働中である。民間:30%、アカデミック:70%(内、4割が海外)のユーザー分布で、バイオマテリアル、ナノマテリアル、エネルギー材料(蓄電池)、環境科学、惑星科学などのサイエンスが行われている。

Li K-edge の STXM のデモンストレーションがなされるなど、炭素の K 吸収端以下の B K-edge, Si, P, S, Cl L-edges などの測定が常時行われているのが特徴である。サブ百ナノメートルの硫黄の化学状態分析が同一の試料で炭素などと合わせて行えることは非常に有用(ユニーク)であり、大気中のエアロソルやゴムなどの分析に用いられている。また、 $10^7$  の光強度は第 3 世代の中規模施設と比べて低く、ALS のベンディングのビームラインである Polymer STXM (BL5.3.2.2) とよく似たものとなるが、特筆すべきは高次光が十分に抑えられており、ベンディングの Polymer STXM や PolLux (SLS) では困難な炭素の K 吸収端以下の低エネルギーでの測定が可能となっている点である。また、これは、高次光による余分な試料の照射損傷が少ないことを意味しており、例えば TEM (EELS) では電子線による照射損傷のために測定が不可能なゴムのようなソフトマテリアルの高空間分解能での化学状態分析に役立っている。はやぶさ2の帰還試料の有機物分析において脂肪族炭化水素の存在を明瞭に発見できたのもこのような特徴が活かした成果だと考えられる。

## 次期計画のビームライン・エンドステーション仕様

次に、次期計画での主要な SXM の仕様と検討すべき課題について述べる。

UVSOR-IV で検討されているリングのエミッタンスは 17.5 nm rad から 2-3 nm rad と一桁向上するが、この値は第 3 世代の中規模リングである現在の Diamond Light Source の 2.7 nm rad に近い値で、10%のコヒーレント比を 1 keV で担保する 1 nm rad よりも低い。そのため、挿入光源の仕様にもよるが、SX 領域では VUV 領域とは異なり、コヒーレンスの利用は限定的なものとなる可能性も考慮の上で検討した。

**概要:**実空間の分光イメージングによって、K-edge: Li - F, L-edge: Al - Cu (Zn)をカバーする。透過法だけでなく蛍光 X 線収量法、(転換)電子収量法の利用を可能とする。コヒーレントイメージングにより 10 nm かそれ以上の高空間分解能を実現することを目指す、但し限定的な利用で十分とする。以下の項目はそのために必要とされる仕様である。

- 1) エネルギー範囲: 50 - 1000 eV 以上(1500 eV まで、Na, Mg K-edge がカバーできる)
- 2) エネルギー分解能: 全域で、0.1 eV 以上 ( $E/\Delta E = 5,000 - 10,000$ )
- 3) 試料位置での光強度:  $10^9$  以上 (リング/アンジュレータ/光学素子のアップグレード)
- 4) 偏光制御: APPLEII (or PINEAPPLE) 任意の角度の直線偏光と円偏光
- 5) 集光光学素子: ZP & 2D Wolter mirror
- 6) 検出方法: Transmission/FY/CEY

現状では、特に高エネルギー側に位置する Ni や Cu L-edge については十分な光強度が得られない。リングの高度化による1桁以上の輝度の向上、アンジュレータと集光素子の性能向上によって、試料位置で2~3桁上の強度を実現し、2 ms/ピクセルが典型的な dwell time であるが、これを数百  $\mu$ s レベルにしてスループットを上げる。任意の角度の直線偏光利用による分子配向の評価(試料側は回転させない)と円偏光利用による生体磁性(高い磁場の印加は必要としない)の評価を実現する。(もちろん、磁性材料一般に適用できる)軟 X 線を透過法で利用する場合に、どうしても試料を薄くする必要があるため、ウルトラマイクロームや FIB: Focused Ion Beam などによる試料の超薄切片化が必要となる。この制限を打破するためには、試料から放出される蛍光 X 線またはオージェ電子を検出する EY や FY の利用が一つの解決策となりうる。CEY: Conversion EY を利用することで試料の導電性問題はクリアできる。FY の場合はより深い数百 nm から数  $\mu$ m まで検出できる。軽元素では蛍光収量確率はかなり低いが、SPring-8 の高分子/金属の接着界面の評価などの利用も行われていることから進める価値があると考ええる。Wolter ミラーの利用は、WD を大きくし、集光効率を上げることが目的である。

ビームラインと同様に重要な試料環境については、各施設において温度制御、湿度制御、電気化学セル、溶液セルなど各種の特殊セルの開発が進められている。UVSOR においても同様の特殊セル開発が行われてきたが、今後はよりユーザーフレンドリーで信頼性あるセルの開発を進めたい。TEM 用に作られたものや、他の施設・ユーザーとの共同開発も積極的に行っていききたい。

また、次に議論する CryoSXT では必須となる液体エタンによる急速凍結による細胞の形状を保った水を結晶化させない方法での凍結試料の作製と測定チェンバーへの試料移送は SXM でも同様に必要となる。これは、照射損傷の軽減、化学固定不要の試料作製法という意味で重要である。

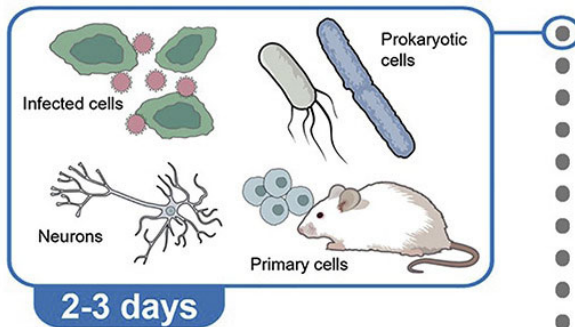
#### 12-4-4 CryoSXT

先に述べた TXM の利用法としては大きく二つに分けられる。1) SX 全域を利用した3D イメージング、分光イメージング(磁気イメージングも含む)、2D の時分割イメージングなど行う TXM ビームラインと2)水の窓を利用した生体試料の3D イメージングに特化した CryoSXT: Cryo Soft X-ray Tomography ビームラインである。

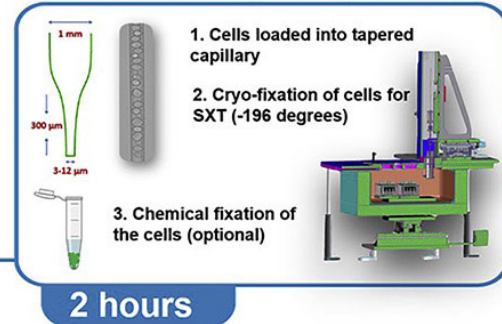
CryoSXT では、エネルギー固定でイメージングを行うため、スペクトル分解能もそれほど必要とせず、むしろ十分なフラックスを稼ぐことを優先し、図 12-4-3 にあるようにベンディングマグネットを光源として、ZP をコンデンサーとして分光も兼ねて行い、結像にマイクロ ZP を使って、30-60nm の空間分解能を達成している。(ALS-NCXT XM2 ビームライン[6])また、試料をキャピラリーに入れて測定を



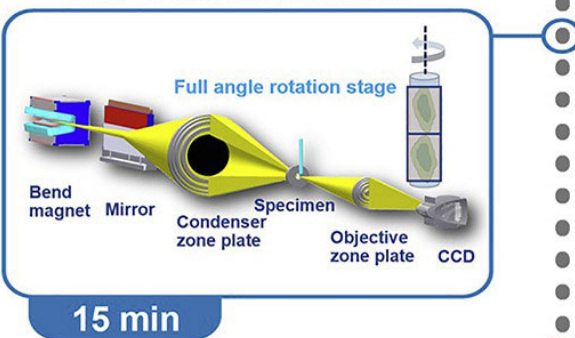
**STEP 1: Cell harvesting and preparation**



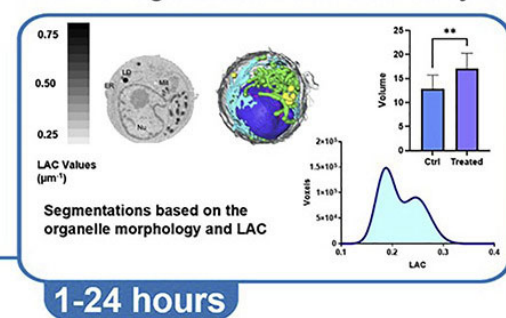
**STEP 2: Cell loading and cryo-fixation**



**STEP 3: SXT data collection**



**STEP 4: Segmentation and data analysis**



**図 12-4-3: ALS XM-2 ビームラインにおける CryoSXT のワークフロー**

行うため、360 度の回転が可能となりミッシングウェッジの問題も生じず高品質な3D イメージが取得できる。一方で、光源にアンジュレータまたはベンディングを用い、分光器には SX で一般的な斜入射型の回折分光器を用い、その後にキャピラリーレンズをコンデンサーに使用するビームラインが現在の主流である。また、これらの施設では TEM グリッド上に試料を作製している。そのため、±60 度までしか試料を回転させることが出来ないが、全く同一の試料を他の顕微鏡で観察することが容易な利点もある。表 12-4-2、3に国外の現在稼働中のビームラインを挙げる。日本では、水の窓領域の生体試料観察が古くから行われているが、残念ながら国内で利用できる SXT ビームラインは立命館大学SRセンターの BL-12 だけであり、先行する欧米の施設からは遅れをとっている。米国では NSLSII でも現在、新規ビームラインが建設中で、タンパクの結晶構造解析などと同様にハイスループットを狙って準備が進められている。

CryoSXT が必要とされる理由は、ラベルフリーで、ネイティブに近い状態の細胞丸ごとについてオルガネラレベルの3D イメージングできる唯一といえる手法だからである。水の吸収の始まる前の～520 eV エネルギーを使うことで、比較的大きな10～20  $\mu\text{m}$  弱の細胞全体をX線が透過することができ、そのX線エネルギーでの試料に含まれる炭素や窒素で決まる線吸収係数: LAC(Linear Absorption Coefficient)を使ってオルガネラを区別し、Tomographyによって3D像を取得する生体試料に特化した使い方である。再構成されたオルガネラの3D像から、個々のオルガネラの形状・分布・体積・相関関係などを定量化して議論することができる。

ALSの実験プロトコルを紹介した文献[7]から概要を図に示す。

一つのTomographyデータセットをとるのに10–20分程度と比較的早くデータ取得ができ、Plunge-freezing/High pressure freezingなどの試料作製、Raw dataから3Dイメージを再構成し、さらにセグメンテーションすることで細胞内のオルガネラを3D可視化するまでのソフトのパイプラインも提供と、試料準備からデータ解析まで自動化も積極的に行われている。また、大半の施設で、CryoSIM: クライオ構造化照明顕微鏡などの相補的な顕微鏡設備が提供されている。構造生物学がバックグラウンドのタンパクのX線結晶構造解析から参入するビームラインサイentiストも多く見られ、放射光の分野でこれまで最もシステムティックにロボットによる試料の操作、データ解析などの自動化といったビームラインの運用を行ってきたやり方がここでも急速に進められている。施設全体としてはHXの3D-XFM: X-ray Fluorescence Microscopy(金属元素の3Dマッピング)や、クライオ電顕などと共にCorrelative Imagingの一つの手法として活用されている。ビームラインの仕様としては、コヒーレンスは必要としないが、ハイスループットのために十分な光強度は必要となる。先に述べた通り、水の窓の限定利用とするか、より一般的なTXM利用かによって光学設計は異なってくる。よりフラックスを重視する場合はベンディングよりもMPWのビームラインの方が好ましいかもしれない。光学素子の開発状況では、SXMでも触れた2D Wolterミラーを利用することも検討すべきである。

## CryoSXTの更なる高速化に向けて

(ここではTomographyの更なるハイスループット化の方法としてHXでのマルチビーム利用を進められている東北大学の矢代先生にSXに適用した案を頂いた。)

CT再構成を行うためには、多くの方向(通常、数100方向)からの投影像が必要なため、放射光ビームに対して試料を回転する必要がある。最近、硬X線の領域で、白色放射光ビームを数10のビームレットに分割し、同時に数10方向から投影像を取得する方法が提案された[8, 9]。このようなマルチビーム光学系の利点は、試料を回転する必要がないため、1 kHz程度の比較的低いフレームレートのカメラでミリ秒オーダー時間分解能の4D(3D+時間)X線CTが実現できること、様々な試料環境の導入が可能であること、偏向電磁石からの広いエネルギーバンド幅の横長放射光を有効に

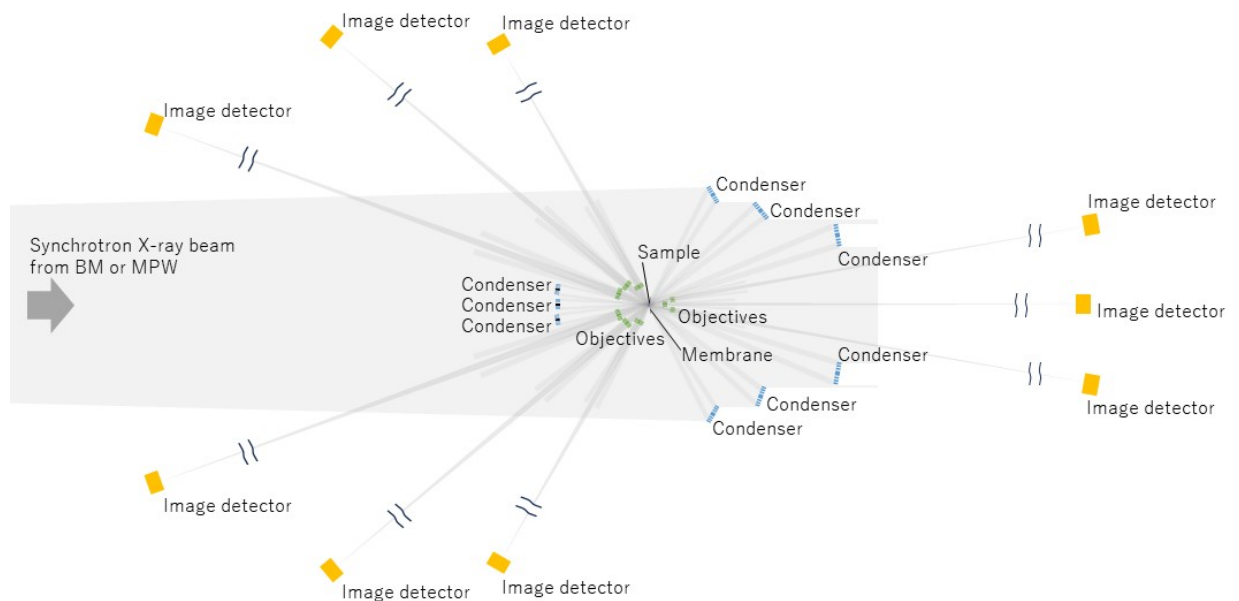


図 12-4-4: 軟 X 線マルチビーム結像顕微 CT 光学系の模式図

活用できることなどが挙げられる。欠点としては、投影数が少ないため、いわゆる不完全投影データ CT 再構成法の一つであるスパース・ビュー CT 再構成のアルゴリズムが必要であること、各ビームレットのエネルギーが異なることなどが挙げられるが、今世紀に入って圧縮センシング[10]に基づく CT 再構成法が飛躍的に発展し、投影数が数 10 程度でも CT 再構成ができるようになり、かつ、最先端においては各ビームレットのエネルギーに対応するそれぞれの CT 再構成画像がワンショットで得られるようになっている。

このようなマルチビーム光学系を軟 X 線顕微鏡に応用すれば、偏向磁石(BM)あるいはマルチポールウィグラー(MPW)からの白色・横長ビームをフル活用して、これまでの CT 撮影の 1 投影の撮影時間程度でスペクトル軟 X 線 CT が実現できるようになると考えている。図 12-4-4 は軟 X 線顕微鏡のためのマルチビーム CT のための光学系の一案(概念図)で、BM あるいは MPW からの横長のビームを波面分割して、広い角度範囲にわたってコンデンサーレンズ系を構成し、試料を回転することなく結像顕微鏡を実現するというものである。模式的に示した図であるため、少ない投影数で描いているが、軟 X 線顕微鏡の場合、試料サイズが小さいため、透過型のコンデンサー、反射型のコンデンサーなどをうまく組み合わせることによって、数 10 投影のマルチビーム光学系が実現できると考えている。CT 再構成結果における各ボクセルのスペクトルデータから化学状態の分布などもワンショットで三次元可視化できると期待され、新リングの光源特性から、1 試料あたり数秒～数 10 秒のハイスループットの CT 実験が可能になると期待される。

図 12-4-5 は試料内部を三次元的に非破壊で観察する方法をまとめた図で、上述の軟 X 線マルチビーム結像顕微 CT の位置づけを示す。TEMトモグラフィでは観察が難しい 10  $\mu\text{m}$  サイズの試料を、数 10 nm 空間分解能、秒オーダー時間分解能で 3D 観察する手法はこれまでなく、まずはこの領域を開拓することで、将来的に生物の細胞内の 10 nm 空間分解能 in vivo での 4D 観察など、夢のイメージング法に発展すると期待される。

また、MPW を光源とする～2 keV から始まる TX 領域までをカバーするビームラインにおいて、P、S K-edge の分光イメージングと3D XFM による金属のマッピングが行えるビームラインを運用することで、より包括的なアプローチが出来るようになる。図 12-4-6 は先に述べた NLSII で準備が始まっている QCT: Quantitative Cellular Tomography ビームラインの NSLSII のある BNL: Brookhaven National Laboratory の構造生物学グループとしての各手法の位置付けを示している。タンパク質の構造解析の原始分子のレベルを X 線結晶構造解析やクライオ電顕など、数十  $\mu\text{m}$  以上は HX の TXM や蛍光 X 線顕微鏡でカバーし、その間の数十 nm から～10  $\mu\text{m}$  を SXT で行う放射光と電子顕微鏡を総動員したパッケージとなっていることが分かる

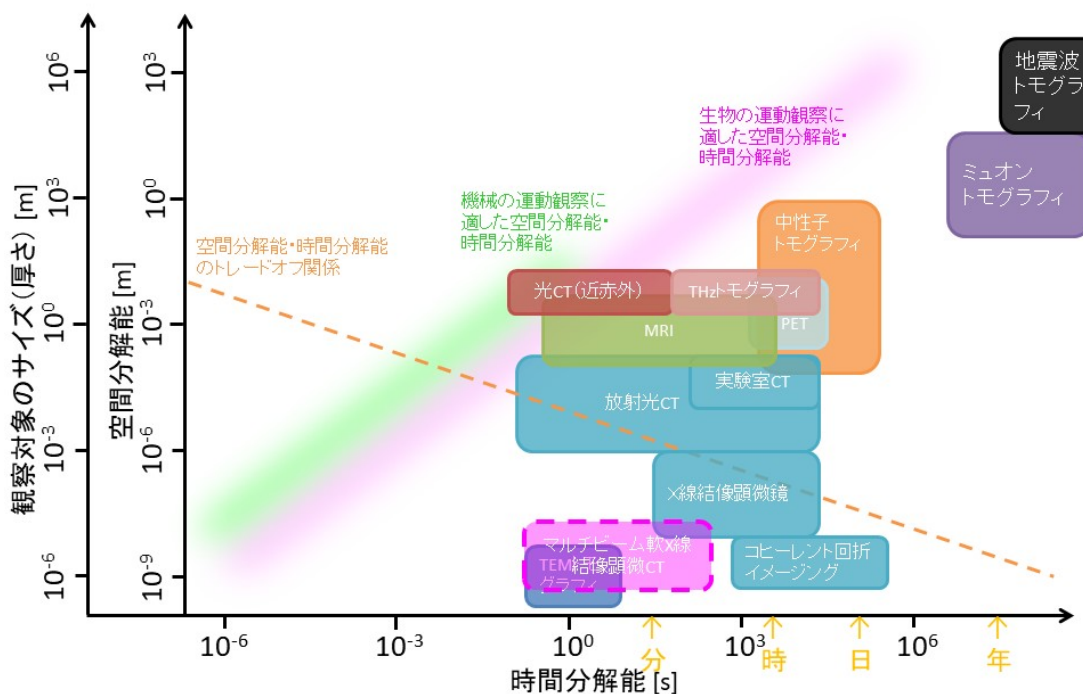


図 12-4-5: 試料内部を三次元的に非破壊で観察する方法をまとめた図と、図 2 の軟 X 線マルチビーム結像顕微 CT の位置づけ

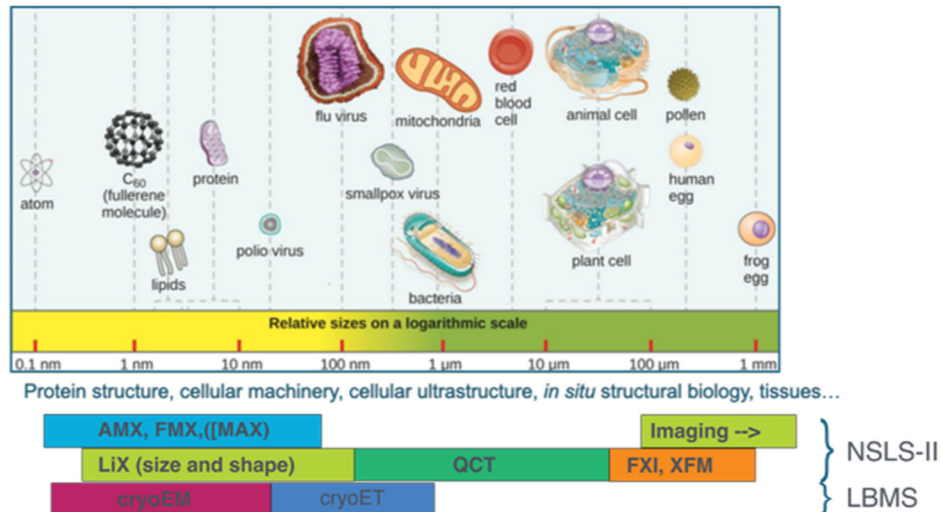


図 12-4-6: QCT: Quantitative Cellular Tomography ビームラインを含めた NSLSII での構造生物学

特に、生命科学へのアプローチについて、SXM による分光イメージングや CryoSXT による3D イメージングも共に有効だと考えている。共に、試料を改変することなくラベルフリーなイメージングを高空間分解能で行えることが強みであるが、その化学状態弁別性が十分でない場合や、試料の厚みの問題など解決すべき点も多く残されている。そのため、他のイメージング手法で行われている染色やタグなどを SX でも同様に行うことも一つのアプローチであり、そのような研究例もある[11]。回折限界を超えたイメージングに使われる超解像技術(STED、非線形、近接場、構造化照明など)といった技術を X 線分野に適用することも考えられる。一方で、様々な手法の特徴を上手く組み合わせて使えばよく、SX イメージングだけで全てを解決する必要はないことも理解する必要がある。但し、そのためには対象とする試料と各種手法をよく理解し、試料作製に工夫することが必要となるだろう。次期センターで描く放射光や卓上レーザーを用いた様々な光計測手法と電子顕微鏡や走査型プローブ顕微鏡などをワンループに集約する意義がそこにあると思われる。

- [1] S. Urquhart et al., J. Phys. Chem. B **106**, 8531 (2002).
- [2] P. Guttman et al., Beilstein J. Nanotechnol. **6**, 595 (2015).
- [3] N. Mille et al., Commun. Mater. **3**, 8 (2022).
- [4] Y. Takeo et al., Appl. Phys. Lett. **117**, 151104 (2020).
- [5] T. Kimura, et al., Opt. Express **30**, 26220 (2022).
- [6] M.A. Le Gros et al., J. Synchrotron Radiat. **21**, 1370 (2014).
- [7] J.H. Chen et al., STAR Protoc. **3**, 101176 (2021).
- [8] W. Voegeli et al., Optica **7**, 514 (2020).
- [9] X. Liang et al., Appl. Phys. Express **16**, 072001 (2023).
- [10] [https://ja.wikipedia.org/wiki/圧縮センシング#cite\\_note-4](https://ja.wikipedia.org/wiki/圧縮センシング#cite_note-4).
- [11] H. Kong et al., Natl. Sci. Rev. **7**, 1218 (2020).



## 12-5 軟 X 線散乱・発光

### 12-5-1 軟 X 線共鳴散乱分光

#### X 線散乱による原子レベルの結晶構造解析

1895 年にヴィルヘルム・レントゲンが X 線を発見し、1913 年にヘンリー・ブラッグとローレンス・ブラッグの父子が、波長  $\lambda$  の X 線が結晶面の間隔  $d$  と散乱角  $2\theta$  に対して回折が起こるブラッグの条件  $2d \sin \theta = n\lambda$  ( $n=1,2,\dots$ )

を発表し、X 線回折による構造解析に理論的な基礎が与えられた。以来、X 線回折法(XRD: X-Ray Diffraction)は現在においてもっとも重要な構造解析手法のひとつである。その適応範囲は広く、無機材料だけでなく有機材料やタンパク質の原子レベルの構造解析において活用されている。特に DNA の二重らせん構造の発見において重要な役割を果たし、1962 年にジェームズ・ワトソン、フランシスクリック、モーリス・ウィルキンスはノーベル生理学賞を受賞し、また同年の化学賞ではジョン・ケンドリューがヘモグロビンの構造決定で、1964 年にドロシー・ホジキンがペニシリンなどの構造決定で受賞している。

放射光 X 線は、実験室の X 線発生装置(回転陽極 X 線管)に比べ 10 億倍もの明るさがあり、特にタンパク質の結晶などの微小な試料に対して無くてはならない光源である。

#### 数 nm から数 100nm のメソスコピック領域のソフトマターの構造解析

ソフトマターと呼ばれる高分子、生体分子、液晶、コロイド、界面材などの物質群が、今日において学術的および産業的に非常に重要な研究対象である。1992 年には、ノーベル物理学賞受賞者であるピエール＝ジル・ド・ジェンヌが受賞の際に「ソフトマター」というタイトルの受賞講演を行い、これにより「ソフトマター」という言葉が広く認識され、より多くの研究者を惹きつけた。ソフトマターの構成単位は巨大分子、または自己組

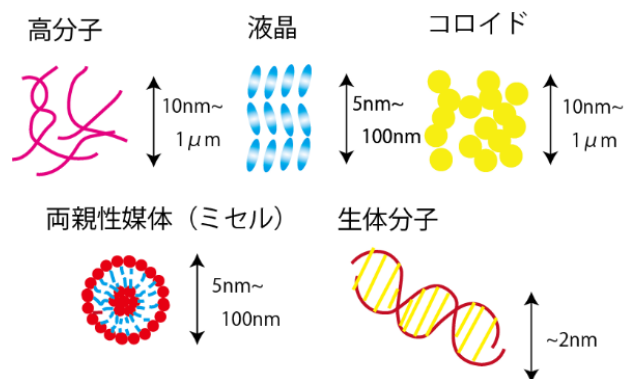


図12-5-1: ソフトマターの概図要

織化による分子の大きな集合であり、このような巨大分子または分子の大きな集合では固体結晶で見られるような 3 次元の長距離的秩序がないが、図 12-5-1 に示したように数 nm から数 100nm 程度のメソスコピック領域に特徴的な構造をもつ。そのため、XRD による 0.1nm 以下の原子レベルの構造解析に加え、数 nm から数 100 nm のメソスコピック領域の構造解析の重要性が増した。

このようなメソスコピックの構造解析手法として、小角 X 線散乱法(SAXS: Small Angle X-ray Scattering)が挙げられる。ブラッグの条件により、特徴的な空間スケール  $d$  から散乱角度  $2\theta$  を見積もると、Cu K  $\alpha$  線(波長 0.15 nm)では空間スケール  $d \sim 100$  nm は、散乱角度  $2\theta \sim 0.1^\circ$  程度に



相当する。SAXS の理論的な解析手法は、1930 年代にアンドレ・ギニエによって与えられていたが、広く一般的に活用され始めたのは、ソフトマターの台頭および放射光源の高度化による 1990 年代中頃になってからである。SAXS は現在、高分子やタンパク質分子などのソフトマターの構造解析において、なくてはならない手法のひとつとなった。

## 複雑・複合系への研究展開とその課題

近年、研究対象として理想的なモデル系から、より現実的な複雑・複合系へシフトしている。例えば、高分子材として炭素繊維強化プラスチック(CFRP: Carbon Fiber Reinforced Plastics)は、金属より丈夫で軽量なことが多く、自動車や航空機などで多く利用されている。この CFRP はエポキシ樹脂やフェノール樹脂などに、炭素繊維などを複合して強度を向上させたものであり、多成分で構成される。また生体試料としてリン脂質では、水に対してリン酸などが持つ強い極性により親水性を示す部位と、炭化水素など無極性のため疎水性を示す部位とがある。その結果、周囲の環境によりリボソームやミセル、二重膜と数 nm から数 100 nm の多様な形態を示す。このような、CFRP 内の炭素繊維や、リン脂質の親水部位と疎水部位など、特定の成分・部位の構造解析の必要性が高まっている。しかしながら通常の SAXS では特定の成分・部位の構造を観測することが難しく、特定の成分・部位の散乱能に変調をかけるために重水素置換や重元素置換が行われているが、時間的・コスト的負担が大きく、そもそも元素置換が試料を変質させてしまうおそれもあり、そのままの状態を観測できる方法が必要である。

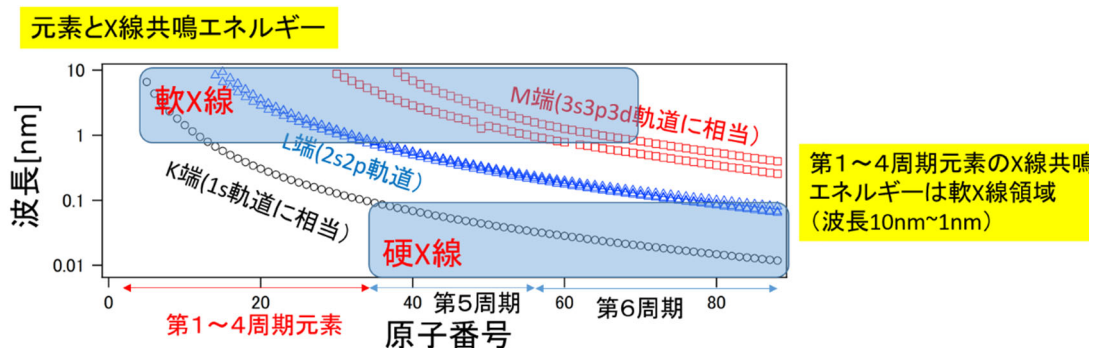


図 12-5-2: 各種元素の共鳴エネルギーと軟 X 線・硬 X 線領域の比較

## 共鳴散乱による選択的構造観測

元素・分子種選択的な観測は、放射光実験のもつ最も魅力的な長所のひとつである。X 線管と比較して、放射光は桁違いに高輝度であること以外に、波長可変性や偏光制御が挙げられ、波長および偏光を適切に制御・選択することで共鳴散乱によって特定成分の散乱能(コントラスト)に変調をかけることができる。歴史的には小角 X 線異常散乱(ASAXS: Anomalous Small Angle X-ray Scattering)として扱われてきており、合金などで利用が始まり、ポリマーでも臭素などに置換してそのコントラストが用いられてきた。ASAXS では、元素コントラストを利用することに特化してきたようである。

また、軟 X 線領域では、磁気共鳴散乱として磁性研究では XMCD のような X 線吸収分光と並んでよく利用されている。

当然のことだが、これまで ASAXS で使われてきた 10 keV ていどの硬 X 線では、炭素や窒素、酸素などの軽元素で構成される高分子や生体分子試料ではコントラストがつかない。

そのため、近年、軟 X 線(光エネルギー100~1000eV)を利用した共鳴散乱が注目を集めている。この手法は、元素、分子種、分子配向選択性を有しており、共鳴軟 X 線散乱法(RSoXS: Resonant Soft X-ray Scattering)とよばれ、2004 年頃から米国の放射光施設 Advanced Light Source (ALS) において複数のグループによって開発が始まり[1, 2, 3, 4]、その後 ALS に専用のビームラインが建設された。[5] 現在、NSLSII の

NIST にも専用のビームライン[6]が建設され、この二つのビームラインにおいてポリマーなどのソフトマテリアルの構造研究が推進されている。UVSOR においても 2019 年ごろから BL3U において RSoXS の開発を行い、高分子や液晶材、生体試料について実験を進めている。ここでは、UVSOR で行った RSoXS 測

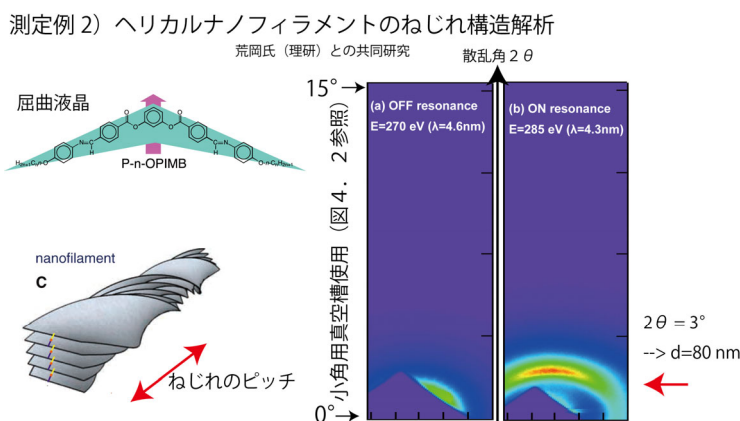


図 12-5-3: ヘリカルナノフィラメントのねじれ周期長の解析

定の例として、自己組織化した液晶分子のヘリカル・ナノフィラメントの構造解析を示す。図3に示した屈曲型液晶 P-n-OPIMB の構造については、自己組織化によりヘリカルナノフィラメント構造を取っているが、らせん軸方向のねじれによる電子密度に差がほとんどないため、小角 X 線散乱ではただの円筒としか観測できず、このヘリカル構造のねじれの周期は見ることができなかった。一方、分子配向のねじれによる散乱強度の強弱により、共鳴 X 線散乱ではそのねじれ周期を捉えることができた。この実験の例ではおおよそ散乱角度  $2\theta$  が  $3^\circ$  でねじれのピッチがおおよそ 80 nm であることが明らかになった。このように、従来の SAXS では観測できなかった構造解析が、今後、元素・分子種・分子配向選択性を有する RSoXS によって複雑・複合系の試料が解析されていくと考えられる。軟 X 線共鳴散乱と反射率の詳細については文献7、8の総説をご覧ください。

### 次世代光源の高コヒーレンス性の活用

次世代光源では、より空間コヒーレンスが高い放射光が期待される。コヒーレントな X 線を試料に入射させると、スペックル (Speckle) と呼ばれる粒状の散乱が観察される。その時間変化や相関関係を調べることで系のダイナミクスについての情報を得ることができる。

X 線光子相関法(XPCS:X-ray Photon Correlation Spectroscopy)や SVS: Speckle Visibility Spectroscopy といった手法が第3世代放射光で始まり、回折限界リングではその高いコヒーレンスを利用した手法として注目されている。次世代光源では、XPCS や SVS に共鳴条件で測定することで、

特定の官能基・化学結合に関係した構造ダイナミクスを測定することが期待される。一般に、空間的にメソスコピックな構造を持つ物質は、数マイクロ秒から数秒のゆらぎのダイナミクスを持っていると考えられる。このように軟 X 線領域の共鳴過程における X 線光子相関法を開発することで、ソフトマターの特定部位の空間的構造だけでなく時間的構造についての観測が期待される。

## 分光イメージングと共鳴散乱の相補利用

12-4 の軟 X 線イメージングで取り上げた STXM などの分光イメージングでは、その空間分解能は数十 nm と光学素子によって制限されている。RSoXS では、波数空間で観測するため、照射 X 線サイズで平均化された構造情報を与えるが、測定可能な大きさは放射光 X 線の波長で決まり、軟 X 線であれば数 nm までの構造が観測可能である。実空間のイメージングはその解釈は直感的であるが、SAXS のデータはモデルを用いたデータ解析が必須となる。そこで、共に X 線吸収分光によるコントラストを使った手法を相補的に利用することで、より総合的な試料の化学状態を弁別したナノ〜メソ構造の理解が得られると考える。

## 産業における重要性

経産省の資料によると、わが国の化学産業は、従業員数(約95万人)、製品出荷額(約46兆円)で製造業全体の一割を占め、欠くことのできない重要な産業である。その化学産業の約 50%を石油化学が占めるが、現在、脱炭素や廃プラスチック問題の観点から、石油化学から機能性化学への大きなシフトが求められている。機能性化学品とは、感光性、強磁性、高導電率、絶縁性、高遮熱性、反応促進性能等、特定の機能面に着目して用いられる付加価値の高い化学品の総称であり、半導体等のエレクトロニクスや自動車産業、ヘルスケアなどへの展開が期待されている。半導体封止材料や炭素繊維複合材料などの機能性化学品を開発するにあたり、その構造は極めて精密に制御する必要があり、構造解析はますます重要になってくる。特定の成分・部位の構造解析を可能にする RSoXS は需要が増えることが期待でき、また波長可変な光源が必要であるため、放射光施設でしか行えない解析手法である。

また医薬品産業においても、生体分子のメソスコピックな構造解析は重要である。例えばアルツハイマー病患者は現在日本で 80 万人おり、その治療薬の市場規模は 2030 年には世界で 1 兆円を超える見られる。アルツハイマー病はアミロイド  $\beta$  タンパク質が凝集してアミロイド繊維が形成され、それが蓄積されてくるといつかの過程を経て神経細胞の変性・消滅が生じ、脳が委縮して発症すると考えられている。このアミロイド繊維は 100 nm 程度のピッチのねじれた構造をしており、従来の SAXS ではねじれ構造の観測は難しいが先で述べたように RSoXS はねじれ構造の解析で非常に有効である。また電子顕微鏡では、凍結・乾燥などの処置をしなければいけないが、RSoXS ではそのまま観測することができるため、ねじれ構造の成長やダイナミクスの構造解析を通して、アルツハイマー病の理解および治療薬の開発に貢献できると期待できる。

## コミュニティとの対話：日本国内の RSoXS の展開を目指して

2022 年 11 月 8 日に、主催：分子科学研究所 UVSOR、協賛：高分子学会、応用物理学会、後

援：分子科学会で、講演者と所内関係者だけが現地、一般参加者はオンライン(Covid-19 対策を考慮)で、分子研研究会「軟 X 線共鳴散乱・反射率/Resonant Soft X-ray Scattering and Reflectivity」を開催した。所内 20 名を含む 80 名余りの参加者、講演は以下の通り、ALS の Dr. Cheng Wang 氏による基調講演の後、国内の放射光施設とユーザーの 9 名の講演があった。民間からも 18 名の参加者があり、この手法への関心の高さがうかがえた。

#### プログラム

- Probing Morphology and Chemistry in Complex Soft Materials with In Situ Resonant Soft X-ray Scattering  
Cheng Wang (Advanced Light Source (ALS), Lawrence Berkeley National Laboratory)
- ニュースバルにおけるフォトレジストの軟X線共鳴散乱／反射率測定  
原田哲男(兵庫県立大学)
- UVSOR および Photon Factory における共鳴軟 X 線散乱装置の開発  
岩山 洋士(分子科学研究所)
- 軟 X 線反射率/吸収分光による wet 環境対応薄膜解析装置の検討～中性子や陽電子を組み合わせたマルチプローブ解析を目指して  
山田悟史(高エネルギー加速器研究機構)
- Tender X-ray 領域での合金の ASAXS 測定  
奥田浩司(京都大学)
- BL15A2 におけるテンドーX 線による散乱・反射率法による高分子構造解析  
山本勝宏(名古屋工業大学)
- 中性子を用いた固体高分子形燃料電池の解析  
原田雅史(豊田中央研究所)
- 共鳴軟 X 線散乱による液晶相精密構造解析への試み  
高西陽一(京都大学)
- 屈曲液晶における超分子カイラル多型ナノ構造  
荒岡史人(理化学研究所)
- DDS ナノ粒子の構造解析  
櫻井和朗(北九州市立大学)

#### 参考文献

- [1] C. Wan et al., Appl. Phys. Lett. **87**, 214109 (2005).
- [2] T. Araki et al., Appl. Phys. Lett. **89**, 124106 (2006).
- [3] G. E. Mitchell et al., Appl. Phys. Lett. **89**, 1 (2006).

- [4] J. M. Virgili et al., *Macromolecules* **40**, 2092 (2007).  
 [5] E. Gann et al., *Rev. Sci. Instrum.* **83**, 045110 (2012).  
 [6] E. Gann et al., *J. Phys.: Condens. Matter*, **33**, 164001 (2021).  
 [7] S. Rongpipi et al., *MRS Communications* **11**, 1 (2021).  
 | 127 [8] B. A. Collins et al. *J. Polym. Sci.* **60**, 1199 (2021).

## 12-5-2 軟 X 線発光分光

### RIXS, RXES, XES(X 線蛍光)

物質に X 線を入射すると、ブランク条件に該当しなくても物質からの X 線放出が観測される。この現象は共鳴非弾性 X 線散乱(Resonant Inelastic X-ray Scattering, RIXS)、共鳴 X 線発光(Resonant X-ray Emission Spectroscopy, RXES)、(非共鳴)X 線発光(X-ray Emission Spectroscopy)あるいは X 線蛍光(X-ray Fluorescence Spectroscopy, XRF)のように様々な名称で

表. RIXS, RXES, XES, XRF の区別

手法名	入射光	観測対象	装置
<b>RIXS</b>	共鳴X線	素励起 ポテンシャルエネルギー曲線	発光分光器
<b>RXES</b>	共鳴X線	占有軌道 (励起状態選択)	発光分光器
<b>XES</b>	非共鳴X線	占有軌道 (イオン化状態)	発光分光器
<b>XRF</b>	非共鳴X線	元素比	シリコンドリフト検出器など

呼ばれている。これらは入射光のエネルギーと注目している観測対象によって下表のように分けられる。実際には同じ実験装置で観測され、重複して起こることから厳密に用語を使い分けられることはなく、RIXS, RXES, XES を総合して RIXS あるいは XES と呼ばれることもある。ただし、XRF は測定装置が異なることから明確に区別される。本項では RIXS, RXES, XES を区別する必要がない場合には RIXS・XES と表記する。

RIXS, RXES は内殻電子が特定の非占有軌道に励起したあと、価電子が内殻正孔に緩和する際に光を放出する。いわゆる直接 RIXS 過程では、始状態と終状態を比較すると価電子が別の準位に遷移したように見える(凍結コア近似)。入射光、散乱光と見かけの遷移(素励起)の間でエネルギー保存則と運動量保存側が成り立つため、散乱光のエネルギーと運動量の観測から素励起を評価できる。近年 RIXS, RXES による素励起評価から、分子のポテンシャルエネルギー曲線を評価できることが分かってきた。基底状態から特定の励起状態に遷移させると、励起状態のポピュレーションは基

底状態と励起状態のポテンシャルエネルギー曲線の重なり合いで決定される。緩和過程では、複数の振動励起状態に振り分けられた励起状態のポピュレーションを反映した非弾性散乱スペクトルが得られる。ここから、励起状態のポテンシャルエネルギー曲線が評価できる。なお、RIXS に代えて X 線ラマン散乱と呼ばれることもある。歴史的な背景から、硬 X 線 RIXS を X 線ラマン散乱と呼ぶこともある。

物質のイオン化閾値を超える非共鳴 X 線を入射すると、内殻電子がイオン化した励起状態が生成する。緩和過程や発光のメカニズムは RIXS, RXES と同じように考えることができ、価電子が内殻正孔に遷移することでエネルギー緩和する。したがって、発光過程は価電子のイオン化と等価であり、XES スペクトルと光電子スペクトルは類似する。XES では励起された電子は光電子として放出されるため、近似的には残されたイオンの励起状態は入射光のエネルギーに依存しない。このため XES スペクトルは入射光のエネルギーに依存しない。ただし、励起状態の間に分子ダイナミクスが存在するため、光電子分光と完全に等価とはならない場合があることに注意すべきである。

RIXS・XES は X 線を入射し、X 線を検出する“photon-in-photon-out”な測定手法である。このため、光電子分光法では難しい電場・磁場印加試料のオペランド測定が可能である。さらに一般に、光電子分光法が表面敏感な手法として用いられるのに対し、物質からの X 線脱出深さは電子の脱出深さよりも深いため RIXS・XES はバルク敏感である。近年は軟 X 線領域を透過しながら 1 気圧の圧力差に耐える  $\text{Si}_3\text{N}_4$  や  $\text{SiC}$  のような X 線透過窓が市販されているため、試料を完全大気圧下など特定の環境下に置きながら RIXS・XES 測定が行えるようになった。このような RIXS・XES の特徴は、生物・生体関連資料や量子材料解析の強力なツールとなることを意味している。

## RIXS・XES の現状

RIXS・XES は近年、マグノンやスピノンなど準粒子計測に対するアプローチを目指してエネルギー分解能競争が加速している。ただし、エネルギー分解能が向上すると信号強度としては弱くなり、光学系、分光器は巨大化する。超高エネルギー分解能を必要とする測定は固体が中心である。一方で、近年、電池材料解析の需要が高まっており、充放電試験中のオペランド計測によるその場分析が可能となっている。前項でも触れたように、試料を必ずしも真空中に置く必要がないことから、雰囲気制御下 RIXS・XES 実験が容易に可能である。現在は湿潤高分子試料や水溶液の酸素 K-edge XES の需要が多い。この分野の測定では現在のところ、超高分解能を必要とする測定は未開拓である。すなわち、水の酸素 K-edge 測定では、 $1b_1$  の軌道スプリッティングが明確に判別できる程度のエネルギー分解能で十分とされている。このように、現在の RIXS・XES は超高エネルギー分解能によって X 線分光の新しい学理を追求する流れと、オペランド計測に代表されるような、これまでにない新しい分析手法としての利用を追求する流れに分けることができる。溶液の RIXS・XES では生物・生体関連試料の測定需要が旺盛であるが、この場合のターゲットは硫黄、リン、3d-遷移金属が中心であり、試料中の微量元素の測定を求められているが、現状では発光の量子効率や捕集効率の問題から信号強度が十分でなく、分野の需要に応えられていない。

RIXS・XES と超短パルスレーザーを組み合わせたポンプ-プローブ実験は、硬 X 線を中心に意欲的な挑戦が行われており、新たな分光手法として利用されることが期待される。しかしながら、一般的な



放射光利用ではパルス幅が ps 程度と長い上に、パルス間隔が短く十分な遅延時間を取りにくいことから、現在は主に自由電子レーザーが使われている。ただし、遅延時間が ps から ns の実験であれば放射光と超短パルスレーザーを組み合わせることで十分達成可能であり、生物・生体関連試料の光化学反応解析に貢献できる。

| 129

## 生物・生体関連試料のための階層横断的試料導入システム

RIXS・XES はその特徴から生物・生体関連試料の測定に適している。既存のビームラインではすでに薄膜の SiC や Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> などの X 線透過窓を介した完全大気圧かつ雰囲気制御発光分光が実現されている。X 線透過窓を用いた測定は、気相・液相・固相すべての試料にマルチに対応できる、雰囲気制御が可能である、試料回収・循環・測定中の試料交換が容易である、真空を汚染しにくいなど多くのメリットがあり、次期 UVSOR 施設においても整備する。次期施設では VUV から軟 X 線が中心となるので、これまでの SiC や Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> に代えてダイヤモンド窓を中心とした新しい窓材の整備も検討する。

X 線透過窓を用いたセル測定は多くの利点がある一方で、光源の高度化(高フラックス、極端集光)に伴い X 線透過窓へのダメージが無視できなくなると予想されている。そこで近年注目されているのが液体ジェットの活用である。これは直径 10 から数十 μm のキャピラリーから溶液試料を真空中に噴出し、励起光を直接照射するものである。液体は常に流通しているため、測定は常にフレッシュな試料で行うことができ、試料の劣化や放射光による試料ダメージを考慮する必要がない。真空中に噴出された液体ジェットは直下で回収もしくは液体窒素トラップで凍結させることでチャンバー内の真空度悪化を防ぐ。適切な真空ポンプと液体窒素トラップの使用で 10<sup>-3</sup> Pa 程度の真空度を維持可能と考えられている。液体ジェットを用いた X 線分光はすでに光電子分光で実現されており、バルク水や水とイオン由来の光電子の直接観測に成功している。したがって、RIXS・XES においても液体ジェットによる試料導入システムを整備する。この際、液体ジェットを直下で回収して再利用する回収型ノズルと、液体ジェットを回収せず直下の液体窒素トラップで凍結させる従来型ノズルの両方を整備し、目的に応じてユーザーが選択できるようにする。

生物・生体関連実験では、試料の大量調製が困難な場合が多く、回収型ノズルを使用したとしても液体ジェットの実現に必要な試料(おおむね 50 mL 以上)を用意できない場合があると予想される。そのため、ごく微量の試料を効率的に導入する手法の開発を行う。具体的には、インクジェット技術を応用した「入射光同期液体ドロプレット法」を検討中である。これは、入射光が試料位置に到達するタイミングで、液体試料を μL から nL の微少な液滴としてチャンバーに導入するものである。これによって試料の浪費を極限まで削減し、希少な生物試料の効率的な利用につながると考えられる。次期施設ではバイオ系ユーザーの声を適切に反映させつつ、試料形態や測定パラメータに応じて機動的な対応が可能な、階層横断的試料導入システムを整備する。

## 生物・生体関連試料のためのマルチ時間階層測定

生物・生体関連資料、量子材料では光応答や光化学反応ダイナミクス of 解明が求められている。RIXS・XES はポテンシャルエネルギー曲面やスピントロニクス of 直接観測が可能であり、赤外

から紫外による励起とそれに伴う応答を RIXS・XES で観測するポンプ-プローブ RIXS・XES システムを整備する。すなわち、放射光と同期し、任意の遅延時間を持たせた超短パルスレーザーを整備する。具体的にはパルス幅 ps~fs, 波長を 200~800 nm あるいは 1100 nm 程度で可変できること、放射光と同期させるために 100 kHz 以上の高繰り返しパルスとする。

ポンプ-プローブ法による光化学反応の測定では、光励起による励起状態から緩和するプロセスが重要である。緩和プロセスはエネルギー的に近接した複数の過程を経由することが多く、それぞれのプロセスのアサインと分岐比の決定が重要である。しかしながら、RIXS・XES は内殻正孔の短い寿命を反映してスペクトルの自然幅が広い傾向にある。その影響で、分子軌道を完全に分離できない可能性があり、発光エネルギー以外で電子軌道(分子軌道)をアサインする手段が求められる。そこで、特に XES における偏光依存性測定や偏光分離測定による新しい発光分光測定が可能となるように整備する。

## 省力化機構

RIXS・XES では入射光の極端集光が求められるので試料の位置合わせが重要であり、現状では実験開始や試料交換時に実験者もしくはオペレーターによるアライメント作業が必要となる。しかしながら生物・生体関連試料では多試料の連続測定が想定されることから、実験者の負担が過大となると予想される。そのため、測定の省力化・自動化を機構に整備する。具体的には以下の項目に分けられる。

### 計測 DX 化戦略

- ・ 測定準備・アライメントの自動化
- ・ 測定およびクイック解析の自動化
- ・ 遠隔地からの実験状況確認・測定パラメータの設定
- ・ 多試料連続測定のためのオートサンプラーの導入
- ・ 実験トラブルの検知・自動通知

### 分光器とビームライン

本ビームラインで対象とする主な元素と吸収端(BE / eV)

- ・ P (L1: 189, L2: 136, L3: 135)
- ・ S (L1: 230.9, L2(1/2): 136.6, L3(3/2): 162.5)
- ・ Fe (M1: 91.3, M2,3: 52.7)
- ・ Co (M1: 101.0, M2: 58.9, M3: 59.9)
- ・ Ni (M1: 110.0, M2: 68.0, M3: 66.2)
- ・ Cu (M1: 122.5, M2: 77.3, M3: 75.1)
- ・ Zn (M1: 139.8, M2: 91.4, M3: 88.6)

RIXS・XES ではオージェ過程と競争的な発光・蛍光過程を利用するため L, M 吸収端での実験では効率が低下する。更に、検出器に到達するのは試料から放出された発光のごく一部( $\sim 10^{-4}$ )であり、入射光に対する検出効率は  $10^{-6} \sim 10^{-7}$  以下であると考えられる。このため、入射光のトータルフラックスを向上させることおよび、測定試料(対象元素)を高密度にする必要がある。超高エネルギー分解能を追求する RIXS・XES ビームラインでは入射光のエネルギー分解能も求められるために、入射光のトータルフラックスの向上には限界がある。そこで近年、フラックスと分解能を両立させる 2D-RIXS 法が開拓されつつある。これは入射光を高度に単色化せず、一方向にエネルギー分散した光を使用し、分光された発光を 2 次元検出器で観測するものである。この方法では、入射光の出射スリットを事実上使用しないので、最大でこれまでの 100 倍のフラックスを確保できるとされている。

非共鳴 XES については別の手法も利用できる。非共鳴 XES においては入射光のエネルギー分解能を追求する必要がない。非共鳴 XES は入射光のエネルギーがイオン化エネルギーより十分大きいとき、励起状態の分子軌道や緩和過程は入射光のエネルギーに依存しなくなる。したがって、非共鳴 XES では入射光の極端な単色化は重要ではなくなる。一方で、入射光の集光サイズの拡大は分光器側の分解能を悪化させ、ドロップレットのような微少な試料には対応しづらい。そこで、入射光にはエネルギー分散されたハイフラックスな光を用い、下流に色収差の小さい集光系を配置することで極端集光したハイフラックス入射光を用いる計測も可能となる。以上のように、EUV から超軟 X 線領域では生物・生体関連試料、量子材料ともに注目されている元素の RIXS・XES が可能であり、低い発光・捕集効率を補うために 2D-RIXS および極端集光に対応した光学系を整備する。本手法によって、これまでと比較にならない高速な XES 測定が可能となると考えられ、多試料測定への対応、ポンプ・プローブ実験が実現される。

ここまで UVSOR の光源特性と NanoTerasu や SPring-8(II)でのアクティビティを念頭に、より低エネルギーを利用した UVSOR の特性を生かしたビームライン・エンドステーションデザインを検討した。ここでは触れていないが、現在、試料中に含まれる水の状態分析にフォーカスして行われてきた原田、徳島らによる RIXS のアプローチについては、生命科学研究を考える上で重要と考える。但し、装置デザインとしては別立てを考える必要があるため、今後の議論とする。

## 12-6 軟 X 線オペランド分光

### 溶液 XAFS 分光

軟 X 線吸収分光法(XAFS)は、軟 X 線の試料への透過吸収を計測する手法であり、内殻電子が非占有軌道へ遷移する過程を観測するため、元素選択的な電子状態解析が可能である。特に、2 keV 以下の軟 X 線領域には、Li, B, C, N, O などの軽元素の K 吸収端と共に、Mn, Fe, Co, Ni などの遷移金属の L 吸収端が存在するため、化学試料の分析に重要である。しかしながら、軟 X 線は大気や水に強く吸収されるため、試料を真空中におく必要があると共に、液体層の厚さを 1  $\mu\text{m}$  以下にする必要があるため、液体試料の XAFS 測定は非常に困難であった。UVSOR-III の軟 X 線ビームライン BL3U では、長坂らを中心にして、液体層の精密厚さ制御法(20 - 2000 nm)を独自に開発することで、透過法による液体の XAFS 測定に成功した[1, 2]。これにより、触媒反応、電気化学反応、光化学反応などの溶液の化学現象のオペランド XAFS 計測を行った。本稿では、我々が開発してきた溶液 XAFS 法のこれまでの研究成果を報告すると共に、新たな UVSOR 施設での実現が期待される、溶液 XAFS 法の研究の方向性について議論する。

| 132

### 溶液 XAFS の測定方法

液体の XAFS スペクトルを得るうえで、液体試料を透過した軟 X 線強度を収量する透過法が最も基本的な測定方法である。しかしながら、液体層の厚さを 1  $\mu\text{m}$  以下にしなくては、軟 X 線が液体試料を透過できないため、透過法による XAFS 測定は困難であった。そのため、これまでは軟 X 線吸収後の二次過程で発生する蛍光[3]やオージェ電子[4]を収量することで、液体試料の XAFS 測定は行われてきた。最近では、軟 X 線照射後の液体中のイオン電流を計測する方法[5]や、電気化学セルの作用極の電流変化を計測する方法[6]も開発されていて、固液界面を強調した計測など新たな XAFS 測定法が発展してきている。

一方、透過法による XAFS 計測は、2 つの方向性で近年急速に発展している。一つ目は軟 X 線を透過できるフラットジェットを生成して、その XAFS 測定を行う方法である。フラットジェットの生成には、2 種類の液体ジェットを組み合わせる方法[7]や、マイクロ流路において液体ジェットの両側から気流で押す方法[8]がある。窓材が必要ないため、軟 X 線やレーザー照射による試料の損傷がなくて、高強度のレーザーと放射光を組み合わせた光化学反応の XAFS 測定に適している。

二つ目は、液体試料を 2 枚の窒化シリコン( $\text{Si}_3\text{N}_4$ )膜(100 nm 厚)で挟んだ液体セルを用いて、透過法による XAFS 測定を行う方法である[9, 10]。液体セルを用いる場合には、軟 X 線照射による窓材の損傷について注意する必要があるが、液体の温度制御や、電気化学反応における電位制御など、溶液の化学現象のオペランド測定を行う上で有利である。長坂らは、UVSOR-III の BL3U において、溶液の化学現象のオペランド計測を目指して、透過型液体セルによる XAFS 測定を推進してきた[1, 2]。図 12-6-1 に開発した液体の透過 XAFS 測定装置の模式図を示す。液体セルは常圧のヘリウムを満たした試料槽にあり、超高真空下の軟 X 線ビームラインとは、小さい窓サイズ(0.2  $\times$  0.2 mm<sup>2</sup>)の  $\text{Si}_3\text{N}_4$  膜で分離している。液体セルにおいて、液体層は 2 枚の  $\text{Si}_3\text{N}_4$  膜で挟むことで構成している。透過した軟 X 線の強度は、背後に設置されたフォトダイオード検出器により測定する。液

体の XAFS 測定は、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 膜だけの軟 X 線透過強度(I<sub>0</sub>)と、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 膜で挟まれた液体試料の軟 X 線透過強度(I)を基にして、Lambert-Beer 則  $\ln(I_0/I)$ により求まる。溶質の XAFS 測定の際には、溶媒を I<sub>0</sub>とする。

液体層の厚さは周りを満たすヘリウムの圧力制御により、精密に制御できる。ヘリウムの圧力を上げると、2枚の Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 膜が強く押されることで、液体層が薄くなる。これにより、溶液が高濃度の時には液体層を薄くして、低濃度の時には液体層を厚くすることで、常に最適な軟 X 線吸光度に調整できるため、広い濃度領域で溶液の XAFS 測定が可能である。透過法による XAFS 測定では、透過する軟 X 線強度を収量するため、高強度の軟 X 線でなくても透過できれば測定できる利点がある。そのため、放射線損傷しやすい錯体試料や生体試料の測定の際に軟 X 線強度を調整することが可能である。一方、現在の軟 X 線強度では、10 mM 程度の濃度が XAFS 測定の下限となる。金属錯体や生体試料では 1 mM 以下の濃度しかない試料が大半であり、溶液 XAFS 法の適用は困難である。次世代の放射光源を用いることで、軟 X 線の強度が飛躍的に向上すれば、液体層を厚くすることで、溶媒による軟 X 線の吸収も増えるが、低濃度の溶質の軟 X 線吸収を測定できる可能性が高い。これにより、溶液 XAFS 法を金属錯体や生体試料などの新たな測定対象に展開できることが期待される。

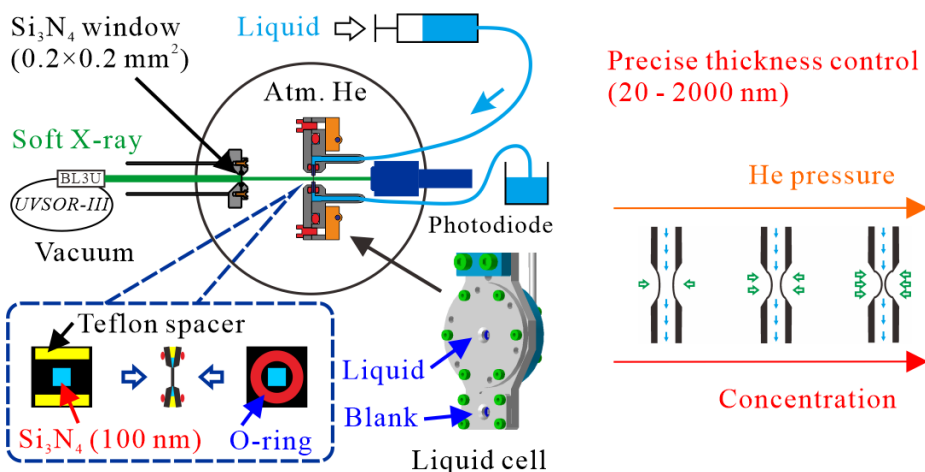


図 12-6-1: 透過型液体セルを組み込んだ溶液 XAFS 法の測定システム。液体層の精密厚さ制御法の模式図も示す

### 光化学反応のオペランド計測

放射光から発生する軟 X 線は数十ピコ秒の時間構造を持つため、放射光と励起レーザーを同期した時間分解 XAFS 法は、光化学反応のオペランド計測に最適である。UVSOR の次期計画においても、レーザーと放射光の同期を重視しているため、溶液中の光化学反応の時間分解 XAFS 測定は非常に進展すると期待される。金属錯体溶液の光化学反応の時間分解 XAFS 法は、実験が比較的容易な硬 X 線領域で、金属錯体の中心金属の測定を行うことが一般的であった[11]。一方、軟 X 線領域では遷移金属の L 吸収端と共に、配位子の C, N-K 吸収端があるため、金属錯体の中心金

属と配位子の両方から電子状態解析を行える利点がある。しかしながら、鉄錯体溶液の Fe-L 吸収端 XAFS 測定がこれまでの主流であり[12]、配位子側の XAFS 測定はあまり行われてこなかった。

長坂らは、KEK-PF の軟 X 線ビームライン BL-13A において、レーザーと軟 X 線を同期した数十ピコ秒スケールの時間分解 XAFS 法を開発した[13]。図 12-6-2(a)に示すように、鉄フェナントリン錯体水溶液の N-K 吸収端 XAFS スペクトルを、基底状態とレーザー励起して 60 ps 後の状態で測定した。配位子の C=N  $\pi^*$  ピークを観測することで、鉄フェナントリン錯体の配位子側の電子状態変化を観測している。基底状態では低スピン状態であるのに対して、レーザー励起により高スピン状態になり、XAFS スペクトルでも変化がみられる。図 12-6-2(b)に 398.97 eV のスペクトル強度の経時変化を示すが、高スピン状態から低スピン状態への緩和過程が観測できていることが分かる。この緩和過程の時定数は、550 ps となることが分かり、硬 X 線領域の Fe-K 吸収端 XAFS 測定[14]で得られた中心金属の電子状態変化から得られた時定数(690 ps)と近い値となることが分かった。

UVSOR の次期計画による時間分解 XAFS 法の高度化により、光化学反応の素過程だけではなく、それぞれの素過程をつなぐエネルギー・電子移動過程の解析が進むことが期待される。天然の光合成システムは、数多くの有機分子・金属錯体が関与する極めて複雑なエネルギー・電子移動過程からなるため、その機構解明に大きく貢献できると期待される。

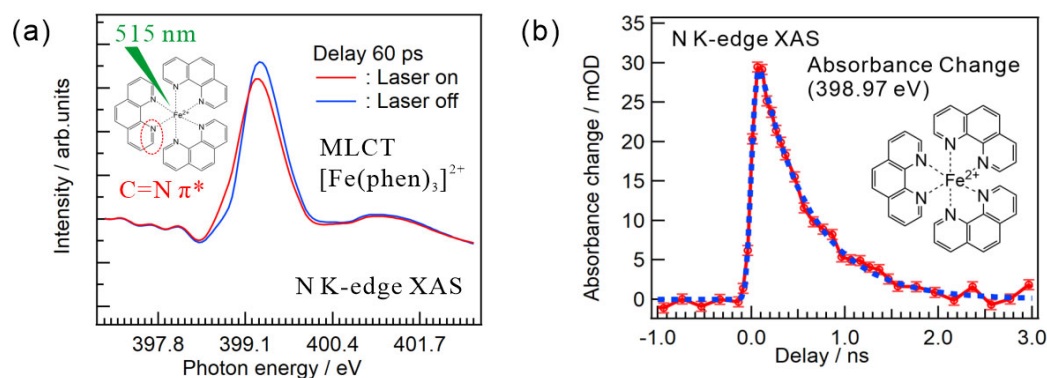


図 12-6-2: (a) 鉄フェナントリン錯体水溶液の光励起過程の N-K 吸収端 XAS スペクトル。  
(b) 398.97 eV のスペクトル強度の経時変化

### 電気化学反応のオペランド計測

長坂らは、UVSOR の BL3U において、電気化学反応の軟 X 線 XAFS 測定に世界で初めて成功した[15, 16]。開発した透過型の電気化学セルでは、液体層を構成する Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 膜を金(20 nm)蒸着したものにして作用極として、対極と参照極を入れることで、ポテンシostatで電極電位を制御している。図 12-6-3(a)に示すように、硫酸鉄水溶液の Fe-L 吸収端 XAS スペクトルを異なる電極電位で測定している。そして、図 12-6-3(b)に示すように、Fe(II)と Fe(III)の割合を XAS スペクトルで求めることで、電位変化による鉄イオンの酸化還元過程を議論している。透過法による XAFS 測定では、電極



固液界面と共に、電解質溶液の寄与も含まれる。液体層の厚さを極限まで小さくすることで、電極固液界面を強調した XAFS 測定も可能である。一方、電気化学反応では、電極固液界面の寄与だけを取り出すことが非常に重要である。最近、作用極における微小電流変化を観測する電子収量法が提案された[6]。電子の脱出震度の関係で、電子収量法では、作用極の固液界面を強調した測定が可能であり、電極固液界面の電子状態変化を詳細に調べることができる。これは、バルクの電解質溶液の電子状態変化も含む透過法による XAFS 測定と相補的な情報となる。電子収量法の測定では、軟 X 線照射により生じる微小電流を計測する必要があるため、次世代の放射光施設による高強度の軟 X 線を用いることが、精度よく XAFS 測定を行う上で、必要不可欠である。

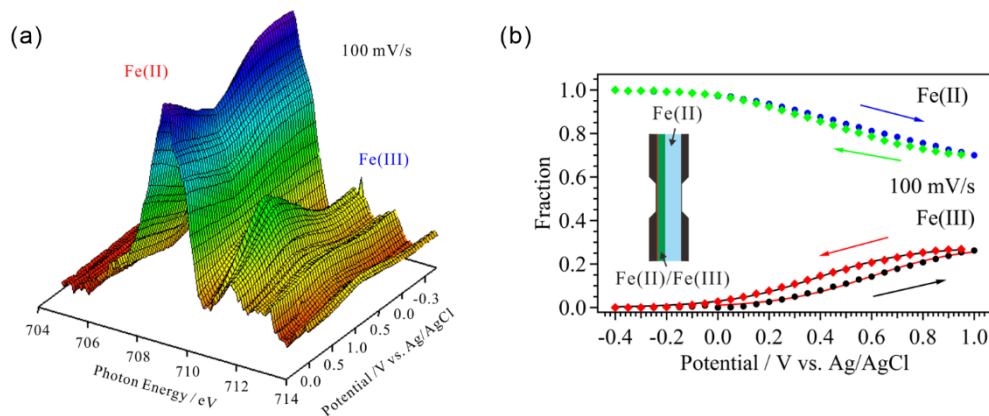


図 12-6-3 (a) 硫酸鉄水溶液の電気化学反応の Fe-L 吸収端 XAS スペクトル。(b) 異なる電極電位における Fe(II)と Fe(III)の割合変化。XAS 測定する電極固液界面と電解質溶液の模式図も示す

### マイクロ流路の顕微 XAFS 測定

マイクロ流路は、2 液の混合や層流を利用することで、高効率な溶液反応を実現する有用な化学環境である[17]。長坂らは、UVSOR の BL3U において、マイクロ流路上の液体の分析を行うために、マイクロ流路の顕微 XAFS 法を開発した[18]。マイクロ流路は PDMS 樹脂で作製しているため、軟 X 線を透過できない。そこで、マイクロ流路上に Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 膜を接着したマイクロ流路セルを作製して、蛍光

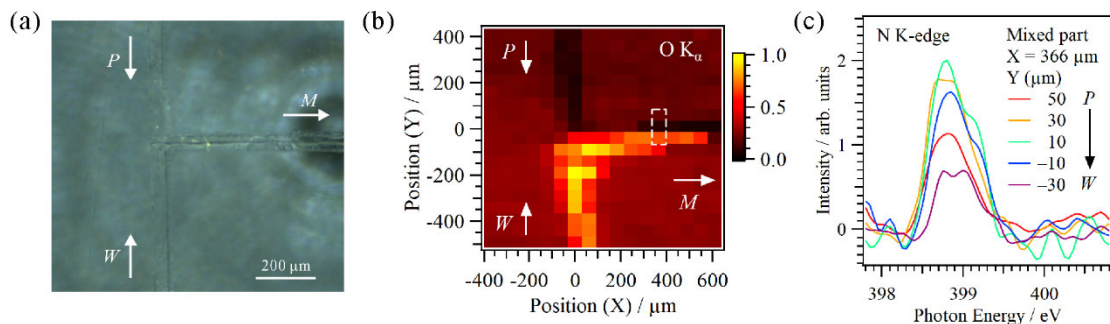


図 12-6-4: (a) マイクロ流路の光学顕微鏡像。(b) 同じ空間領域の軟 X 線蛍光イメージ。(c) 混合部 (b の四角で囲った領域)における N-K 吸収端 XAS スペクトル

収量法で XAFS 測定を行った。

図 12-6-4(a)にマイクロ流路の光学顕微鏡像を示す。そして、図 12-6-4(b)に同じ空間領域における軟 X 線蛍光イメージを示す。550 eV の軟 X 線を照射して放出される O K  $\alpha$  の蛍光を異なる位置ごとに観測した。これにより、ピリジン(P)と水(W)が混合して、混合流路(M)でピリジンと水の層流を確認した。図 12-6-4(c)にマイクロ流路の混合部での、N-K 吸収端 XAFS スペクトルを示す。ピリジンの C=N  $\pi^*$ ピークが、ピリジンと水の水素結合の割合により、異なる位置で異なるエネルギーシフトを示している。

マイクロ流路の顕微 XAFS 測定は蛍光収量で行う必要があるため、高強度の軟 X 線を利用できる次世代光源が必要である。また、マイクロ流路を高い空間分解能で観測するには、軟 X 線のビームサイズを小さくする必要があり、これも次世代の放射光源が必要である。マイクロ流路の顕微 XAFS 測定が高度化されたら、層流を利用した触媒反応[19]のように、マイクロ流路特有の化学反応の機構解明につながると期待される。

## 溶液 XAFS の生命科学への適用

溶液 XAFS 法は、実環境下の溶液試料の測定が行えるため、生命科学への適用も期待できる。図 12-6-5(a)に示すように、膜タンパク質再構成の手法[20]を基にして、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 膜上にタンパク質を包埋した脂質二重膜を担持することができれば、膜タンパク質の XAFS 測定が実現する。光合成反応に重要な役割を果たす光化学系 II (PSII)タンパク質などは、葉緑体のチラコイド膜中に含まれる膜タンパク質であり、脂質二重膜に包埋された状態で正しい構造と機能が維持される。図 12-6-5(b)に示すように、長坂らは脂質二重膜に包埋した PSII タンパク質の O-K 吸収端 XAFS スペクトルを測定した。532 eV に鋭敏なピークがあり、これは C=O 基由来だと考えられる。また、527 eV 付近と 530 eV 付近にもピークがあるのが分かる。しかしながら、現状では脂質二重膜に包埋した PSII の量が少ないため、O-K 吸収端の測定のみ行っている状況である。今後は、PSII の量を増やすことで、PSII 中の酸素発生中心である Mn<sub>4</sub>CaO<sub>5</sub> クラスターの Mn-L, Ca-L 吸収端 XAFS 測定の実現が望まれる。

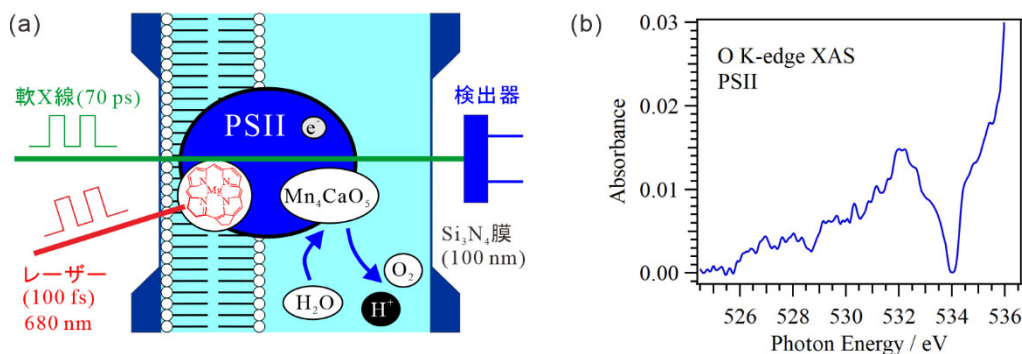


図 12-6-5: (a) PSII タンパク質の光合成反応の時間分解 XAS 測定の様式図。(b) PSII タンパク質の O-K 吸収端 XAS スペクトル

光励起によるエネルギー・電子移動の時間分解 XAFS 法が確立すれば、天然の光合成反応の反応機構を直接観測することも可能になる。光合成反応の明反応は、PSII タンパク質中のクロロフィル a 分子が 680 nm の光を吸収して電子を生成して、酸素発生中心である  $Mn_4CaO_5$  クラスターにより、水から酸素とプロトンが生成することにより開始する。軟 X 線 XAFS による元素選択的な電子状態解析から、それぞれの素過程を分離して、そのメカニズムを調べることができる。このように、溶液中の光化学反応の時間分解 XAFS 法は、そのまま天然の光合成反応などの生体系への適用もできるため、高強度、高コヒーレントな軟 X 線を用いることで、その研究も飛躍的に進展することが期待できる。

## XAFS コミュニティーとの対話

2023 年 10 月 2 日～4 日の 3 日間にわたり、岡崎コンファレンスセンターにて分子研研究会 “溶液の化学現象の軟 X 線分光測定の前線：UVSOR-III + MAX IV International Workshop: Frontier of Soft X-ray Spectroscopy for Chemical Processes in Solutions” を開催した。UVSOR とスウェーデンの放射光施設 MAX-IV の研究者の意見交換を目的とし、軟 X 線吸収、イメージング、大気圧光電子分光、軟 X 線発光分光、小角散乱など、化学に関係する幅広い手法について、MAX-IV の研究者および国内からの 25 件の招待講演、16 件のポスター発表があり活発な議論が行われた。また在スウェーデン日本国大使館から国際連携の支援プログラムについて説明があり、今後の連携活動強化にむけた良い布石となった。

### 講演者およびタイトル

**Ryugo Tero** (Toyohashi University of Technology) Soft X-ray absorption spectroscopy to investigate artificial biomembranes in aqueous solution

**Yitao Cui** (Institute of Advanced Science Facilities, Shenzhen, China) Photon-in-photon-out spectroscopy and synchrotron radiation project in Shenzhen

Takehiko Sasaki (The University of Tokyo) XAS study for aqueous cellobiose: Experiment and theory

**Jun-ichi Adachi** (High Energy Accelerator Research Organization) Measurements with utilizing soft X-ray pulse at the Photon Factory 2.5 GeV ring

**Tomás S. Plivelic** (MAX IV Laboratory, Lund University, Sweden) Small angle X-ray scattering experiments at the 3 GeV diffraction-limited storage ring at MAX IV Laboratory: Recent results and new opportunities

**Masahiro Kobayashi** (National Institute for Fusion Science) Study of chirality emergence and structural change of organic molecules by circularly polarized Lyman-alpha (121.6 nm) irradiation in UVSOR-III

**Yuta Uetake** (Osaka University) Electronic structure analysis of square planer Ni complex bearing tris(pentafluorophenyl)borane as a Z-type ligand

Fumitoshi Kumaki (High Energy Accelerator Research Organization) Time resolved soft X-ray

absorption spectroscopy system for liquid sample in Photon Factory

**Shinji Kohara** (National Institute for Materials Science) Very sharp diffraction peak in liquids and glasses

**Tohru Araki** (Institute for Molecular Science) UVSOR BL4U STXM Beamline: Status and Future Outlook

| 138

**Osamu Takahashi** (Hiroshima University) Structure of aqueous ethanol solution: Soft X-ray emission spectroscopy measurements and theoretical calculations

**Yuka Horikawa** (Yamaguchi University) Acetic acid in 1-methylimidazole observed by soft X-ray emission spectroscopy

**Hikaru Takaya** (Teikyo Science University & Institute for Molecular Science) Mechanistic investigation of homogeneous iron-catalyzed organic reactions based on solution-phase XAS analysis

**Masanari Nagasaka** (Institute for Molecular Science) Operando soft X-ray absorption spectroscopy for observing chemical processes in solutions

**Yasuyuki Yamada** (Nagoya University) Direct observation of electrochemically generated high-valent iron-oxo species applicable to CH<sub>4</sub> oxidation reaction

**Hiroshi Onishi** (Kobe University & Institute for Molecular Science) Soft X-ray spectroscopy for semiconductor photocatalysts

**Daisuke Asakura** (National Institute of Advanced Industrial Science and Technology) Transition metal L-edge operando RIXS studies of electrode materials for Li-ion batteries

**Zhong Yin** (Tohoku University) Tracking chemical dynamics through soft X-ray spectroscopy

**Morihisa Saeki** (National Institutes for Quantum Science and Technology) Development of structural analysis in solution by combining soft X-ray absorption and Raman spectroscopies

**Naoya Kurahashi** (Institute for Molecular Science) Observation of interactions between functional polymers and water molecules using soft X-ray emission spectroscopy under real atmospheric conditions

**Gunnar Öhrwall** (MAX IV Laboratory, Lund University, Sweden) Liquid jet photoemission at FlexPES beamline, MAX IV

**Andrey Shavorskiy** (MAX IV Laboratory, Lund University, Sweden) Soft X-ray operando characterization electrochemical interfaces by ambient pressure photoelectron spectroscopy at MAX IV

**Shota Tsuru** (RIKEN Center for Computational Science) Geometry sampling and modeling methods to simulate transient X-ray absorption spectra of molecules dissolved in a solvent

**Yukio Kajihara** (Hiroshima University) A new perspective for understanding the thermodynamics of liquids: Mesoscopic fluctuation

**Hiroshi Iwayama** (Institute for Molecular Science) Time-resolved and nonlinear soft X-ray absorption, reflection and fluorescence spectroscopy at SACLA BL1 by using ultrathin flat jets

**Conny S  the** (MAX IV Laboratory, Lund University, Sweden) Veritas: A versatile beamline for high resolution Soft X-ray Resonant Inelastic Scattering at the MAX IV Laboratory

**Jun Miyawaki** (National Institutes for Quantum Science and Technology) New resonant inelastic soft X-ray scattering facility at NanoTerasu

| 139 **Stephan Th rmer** (Kyoto University) Photoelectron spectroscopy of liquids: Accessing electronic energetics and surface properties

**Masaaki Yoshida** (Yamaguchi University) Operando observation for water splitting electrocatalysts using hard/tender/soft X-ray absorption spectroscopy

### Poster Presentations

**Kiyohiro Adachi** (RIKEN, Japan) Hybrid structure analysis: Accurate and precise structure determination of mono- and bimetallic spinels by iterative and alternating refinements of PXRD and XAFS

**Yuta Uetake** (Osaka University) Electronic structure analysis of square planer Ni complex bearing tris(pentafluorophenyl)borane as a Z-type ligand

**Takahiro Nishio** (DENSO Corporation) Coherent X-ray imaging of the nanostructures of covalent organic frameworks in the initial synthesis process

**Takato Maeda** (Kyoto Prefectural University) In situ dynamic analysis of acid base equilibrium shift in a microflow platform

**Yu Kinjo** (Toyohashi University of Technology) Sodium ion coordination to lipid bilayers investigated by X-ray absorption spectroscopy in water

**Nobuyuki Ichikuni** (Chiba University) XAFS study of cobalt oxide catalysts for effective liquid phase oxidation reactions

**Masaya Takeuchi** (University of Hyogo) Imaging and spectroscopy of liquid water using X-ray PEEM

**Ailong Li** (RIKEN) In-situ characterization of water electrolysis for hydrogen production across a current density range from 0 to 2000 mA cm<sup>-2</sup>

**Masahiro Kobayashi** (National Institute for Fusion Science) Study of chirality emergence and structural change of organic molecules by circularly polarized Lyman-alpha (121.6 nm) irradiation in UVSOR-III

**Yasunori Miyazaki** (Japan Atomic Energy Agency) Investigation of the electronic structure of HONTA in the n-dodecane media by soft X-ray absorption spectroscopy and quantum chemical calculation

**Yasunobu Sugimoto** (Institute for Molecular Science) Attempts at structural analysis of biological macromolecules using resonant soft X-ray scattering

**Naoya Kurahashi** (Institute for Molecular Science) Observation of interactions between functional polymers and water molecules using soft X-ray emission spectroscopy under real atmospheric

conditions

**Morihisa Saeki** (National Institutes for Quantum Science and Technology) Development of structural analysis in solution by combining soft X-ray absorption and Raman spectroscopies

**Yoshiyuki Seimiya** (Chiba Prefectural Public Enterprises Bureau) Measurability of chloramines using soft X-ray spectroscopy

| 140

**Ryo Fukaya** (High Energy Accelerator Research Organization) Development of high-repetition-rate time-resolved resonant soft X-ray scattering measurement system at the Photon Factory

**Kentaro Fujii** (National Institutes for Quantum Science and Technology) Cu L-edge XANES spectra of Cu protein solutions

**Jun-ichi Takahashi** (Doshisha University) Polarized Quantum Beam Irradiation and High Magnetic Field Application on Chiral Organometallic Coordination Complexes

## 参考文献

- [1] M. Nagasaka et al., *Anal. Sci.* **36**, 95 (2020).
- [2] M. Nagasaka et al., *Chem. Lett.* **50**, 956 (2021).
- [3] T. Tokushima et al., *Chem. Phys. Lett.* **460**, 387 (2008).
- [4] K. R. Wilson et al., *J. Phys. Chem. B* **105**, 3346 (2001).
- [5] D. Schön et al., *J. Phys. Chem. Lett.* **8**, 2087 (2017).
- [6] L. Kao et al., *Surf. Sci.* **702**, 121720 (2020).
- [7] M. Ekimova et al., *Struct. Dyn.* **2**, 054301 (2015).
- [8] J. D. Koralek et al., *Nat. Commun.* **9**, 1353 (2018).
- [9] B. X. Yang et al., *Phys. Rev. B* **36**, 1361 (1987).
- [10] J. W. Smith et al., *Chem. Rev.* **117**, 13909 (2017).
- [11] C. J. Milne et al., *Chem. Rev.* **277**, 44 (2014).
- [12] N. Huse et al., *J. Am. Chem. Soc.* **132**, 6809 (2010).
- [13] F. Kumaki et al., *J. Chem. Phys.* **158**, 104201 (2023).
- [14] S. Nozawa et al., *J. Am. Chem. Soc.* **132**, 61 (2010).
- [15] M. Nagasaka et al., *J. Phys. Chem. C* **117**, 16343 (2013).
- [16] M. Nagasaka et al., *Rev. Sci. Instrum.* **85**, 104105 (2014).
- [17] G. M. Whitesides, *Nature* **442**, 368 (2006).
- [18] M. Nagasaka et al., *J. Chem. Phys.* **151**, 114201 (2019).
- [19] Y. Uozumi et al., *J. Am. Chem. Soc.* **128**, 15994 (2006).
- [20] R. Tero, et al., *Sci. Rep.* **7**, 17905 (2017).



## 12-7 X線磁気円二色性

### XMCD 開発の歴史

| 141

軟 X 線・硬 X 線領域の円二色性として最も典型的な計測手法は X 線磁気円二色性(X-ray magnetic circular dichroism, XMCD)であろう。古くから X 線領域の磁気円二色性は可視・紫外領域の磁気円二色性と比べて桁違いに高い感度で観測できることが知られていたが、以前はシンクロトロン放射光で円偏光を供給することの困難さから実測データが皆無であった。1987 年 Schütz ら[1]は金属 Fe の Fe-K 吸収端 XMCD を初めて観測することに成功し、1990 年には Chen ら[2]が金属 Ni の Ni-L<sub>2,3</sub> 吸収端 XMCD の測定に成功し、これは軟 X 線領域としては初めての観測であり、Fe-K 吸収端 XMCD の感度は 10<sup>-4</sup> 程度であったが、Ni-L<sub>2,3</sub> 吸収端 XMCD は 10<sup>0</sup> オーダーの感度であったため極めて大きな注目を集めた。その後、欧米日各国で観測が進められ、1992 年に Thole ら[3]が L, M 吸収端における軌道磁気モーメントの総和則、翌 1993 年には Carra ら[4]が L, M 吸収端におけるスピン磁気モーメントの総和則を理論的に示した。今日に至る間、XMCD は定量的な磁化解析が可能な分析手法として一般的な計測手法と言えるまでに発展してきた。

XMCD は X 線吸収スペクトルであり、通常の XAFS (X-ray absorption fine structure, X 線吸収微細構造)と同様に、X 線吸収原子の局所的情報が得られる特徴を有し、他の手法では計測しにくい元素選択的磁化が得られるという長所をもつため、超強力永久磁石など多元素を含む磁性体の磁気物性研究に不可欠な手法となっている。また、やはり他の手法では計測しにくい元素選択的な軌道磁気モーメントに関する定量的情報が得られ、スピン軌道相互作用が起源である磁気異方性の研究にも有効に活用されてきた。磁気異方性は現在のハードディスクが垂直磁化によって達成できている高密度化に直接関連する基本的な物性であり、XMCD の貢献は極めて高かった。

XMCD は 20 世紀末には汎用的な手法と言えるまでに成長を遂げたが、21 世紀に入ってもシンクロトロン放射光のさらなる技術革新の恩恵を受けてますます発展した。硬 X 線領域では、X 線移相子の開発により直線偏光から円偏光を生成し、高速スイッチングを行うことが簡便となり、交流検出感度が飛躍的に向上し原理的な低感度を克服した。また、光電子放出顕微鏡(Photoelectron emission microscope, PEEM)を利用することで数 10 nm の空間分解能で磁区構造が直接可視化できるようになり、さらには、軟 X 線・硬 X 線とも第3世代光源では集光鏡の革新によりナノメートルサイズの放射光ビームが利用可能となったことから走査型の磁区構造観察も行えるようになった。一方、放射光のパルス性を用いたピコ秒～ナノ秒の高速時間分解磁化測定も実施されるようになり、今日では X 線自由電子レーザー-SACLA を利用することでフェムト秒超高速時間分解磁化測定[5]も可能となっている。磁化のスイッチングは原子内・隣接原子間の超高速スピン反転過程からメゾスコピック・マイクロ秒スケールの磁壁移動による伝播過程まで広い時空間域での現象であり、今後さまざまな時空間磁化計測が進展していくものと期待できる。

XMCD 以外の二色性としては、反強磁性体にも適用できる X 線磁気線二色性(X-ray magnetic linear dichroism, XMLD)が一定のレベルまで確立した手法として利用されている。また、可視・紫外光と同様に、光学活性体で観測される X 線自然円二色性(X-ray natural circular dichroism, XNCD)、光学活性体の吸収係数が磁場によっても変化する現象である X 線磁気キラル二色性(X-ray

magneto-chiral dichroism, XMChD)などが知られており、これらの手法も今後の展開が期待される。

## UVSOR における成果例

UVSOR においては、21 世紀はじめ頃から不等間隔回折格子分光器を有する偏向電磁石軟 X 線ビームライン BL4B において XMCD 測定が実施されてきた[7-27]。UVSOR は真空紫外～軟 X 線領域の光源であり、硬 X 線を供する大規模施設と比べて 1 回あたりの利用ビームタイムが長いことを踏まえ、XMCD 測定槽に直結した超高真空試料準備槽で作製した磁性薄膜等をそのまま測定できる環境を重視した設備導入を行った。超高真空試料準備槽では、単結晶等の基板の清浄化に必要な Ar スパッタリング・加熱操作と試料評価のための低速電子回折・Auger 電子分光器や反射高速電子回折を有し、磁性薄膜調製用の金属蒸着源、分子導入用の蒸着源・気体導入なども行えるようになっている。2003 年に導入した XMCD 測定槽は $\pm 0.3$  T の常伝導磁石を利用した[7-10]が、2006 年に $\pm 7$  T スプリット型超伝導磁石とし、測定温度も 5 K 程度の極低温で行えるようにした[11-27]。XMCD は今日では極めて汎用的な放射光測定手法の 1 つであり、国内の放射光施設でも SPring-8, KEKPF, HiSOR で利用可能(NanoTerasu でも設置中)であるが、大気非暴露・保護膜なしで作製した試料をそのまま超高真空・高磁場・極低温環境下で計測できる施設は国内だけでなく海外を含めても大変希少な機器としてこれまで有効に国内外の共同利用に活用されてきた。本装置を用いて、分子等の吸着誘起スピン再配列転移[8-14]、常磁性フタロシアニン単分子薄膜の特異な磁気挙動[17-19,21]、遷移金属窒化物強磁性超薄膜の磁性[13,21-24,26-27]、磁性薄膜の厚みと磁気異方性の周期的相関[20]などで高い評価が得られている研究成果が挙げられている。

| 142

## 今後の展開

以上の経緯と UVSOR でのこれまでの実績を活かして、新たな UVSOR における円二色性に関する期待を考えたい。まず学術・科学的な観点からの期待として、最近分子研・山本 G が精力的に検討を進め大きな成果が挙げられているキラル誘起スピン選択性(chirality induced spin selectivity, CISS)の放射光計測が想定される。この現象はキラル物質の電気伝導ではスピンの向きによって差が生じるというものであり、その起源はスピン軌道相互作用に由来するはずであるが、従来の理論では全く再現できない桁違いに巨大なスピン選択性が実測されており、これを新しい電子デバイスとして実用化させるためにも今後の詳細な起源解明が期待される。放射光を利用した解析としては先述の X 線磁気キラル二色性 XMChD がまさに直接対応するものである。また、キラル物質の円二色性が双極子禁制(光学遷移理論として双極子近似を用いると光学異性体間で円二色性が生じない)であることは、キラル物質の配向が完全に無秩序でかつ全空間にわたって積分した結果であって、終状態の波動関数の角度依存性を、たとえば放出光電子の角度依存性計測によって行えば、双極子近似の範囲で極めて巨大な円二色性が生じ得る。その意味から、光電子放出円二色性の角度依存性さらにはスピン依存性を計測することで、CISS 効果の起源を詳細に検討できると考えられる。Mn, Fe フタロシアニンなどの金属錯体は中心金属イオンの 3d 軌道角運動量が消失しておらず、球対称原子に匹敵する巨大な値を保持しており、また、配位子構造によりキラル分子としたり、キラルでない錯体分子を結晶としてキラル化できることも知られており、新たな UVSOR が掲げる生命現象への展開も想

定されることから、放射光 X 線分光解析による多彩な研究が可能となろう。

次に、磁性薄膜の表面界面磁化の詳細検討研究が考えられる。磁性は3次元的な原子対ネットワークに基づいて生じる物性であるため、表面(磁性体と真空との界面)あるいは磁性体と非磁性体(電極等)の界面のように磁氣的ネットワークが切断されている境界では、バルク磁性体の性質がそのまま反映されるとは限らない。強磁性体であっても表面は反強磁性的に振る舞い得るし、あるいは、バルクではスピンの完全に偏極しているハーフメタルにおいても表面・界面がこの性質を保持できているとは限らないのである。このような表面近傍の磁気構造を詳細に観測するには、磁性薄膜の磁化を原子層毎に分離観測する必要がある。XMCD 計測手法として通常用いられる電子収量法では、電子の放出角度依存性を計測することにより磁化の深さ依存性が観測可能(放出光電子の平均自由行程に由来して斜出射電子は表面敏感、直出射電子はバルク敏感である性質を有する)であり、これまで広く有効に活用されている[28,29]。しかしこの方法では原子1層毎の磁化を分離観測することは分解能的に困難であり、方法論的な抜本的革新が求められる。最近、軟 X 線反射率の入射 X 線エネルギー依存測定が報告され、原子層毎の化学状態変化が追跡できることが示されるようになった。これを XMCD に適用することで原子層毎・元素毎の磁性薄膜垂直方向層毎の磁化観測が可能となる。さらには、ナノメートルサイズの集光 X 線ビームを用いれば、薄膜垂直方向のみならず薄膜面内方向の顕微磁化観測も可能となり、複雑な磁性体磁気構造のより詳細な理解が可能となろう。

最後に、磁化の時空間発展について言及したい。何らかのパルス状外部刺激による磁化の反転現象を考える。その刺激は外部からの電磁場あるいは隣接原子のスピンの反転等が想定できる。このとき、結晶性固体状態を表す波動関数は無限に履歴したブロッホ周期関数で記述されるが、外部からの刺激に対して履歴波動関数がそのままの形で応答変化するわけではない。たとえば、磁壁移動のように、時間的にゆっくりで、かつ、目に見えるほどの広い空間を伝播する動的過程が結晶の単一ドメイン内で生じる場合、たとえ波動関数がある程度履歴的であっても元のドメイン内に新たな境界が生じる。単一の履歴的定常状態波動関数で記述されていた系が、外部刺激を受けることによってドメイン中に特異点のようなものが生じ、時間の経過に伴って、局所的な励起状態が伝播していくと考えられる。量子力学においては、空間位置と運動量の間の不確定性に加えて、時間とエネルギーの不確定性が存在する。外部刺激が局所的でなくとも刺激に応答する部位は局所的であり得る。この応答部位は原子レベルで局所的かもしれないし、ある程度の空間にわたって同期した遷移が起こっているかもしれない。さらには、異なる原子が混在する磁性体では応答確率が元素の種類に依存するであろうし、時間的な発展を伴って伝播する際には元素が異なることで応答速度も場所によって異なるであろう。サブナノメートル・サブフェムト秒スケールの波動関数の位相まで揃った量子状態の遷移が、時間発展を伴ってマイクロメートル・マイクロ秒スケールの伝播変化をしていく過程を追跡することは、次世代に課せられた学術的に極めて重要な課題であると考えられる。

次期 UVSOR 計画では、シンクロtron放射光源のみならずレーザーや試料環境まで総合的な研究施設を構築し、最適な方法で各研究課題に取り組んでいくことになる。多くの国内外の研究者が一堂に集い、時空間的な条件、試料環境条件に依存する現象に対して最適な計測手法・計測条件を探索しながら新しいサイエンスを展開していける場が分子研に構築できることを切に期待したい。

## 参考文献

- [1] G. Schütz et al., Phys. Rev. Lett. **58** (1987) 737.
- [2] C. T. Chen et al., Phys. Rev. **B42** (1990) 7262.
- [3] B. T. Thole et al., Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 1943.
- [4] P. Carra et al., Phys. Rev. Lett. **70** (1993) 694.
- [5] K. Yamamoto et al., New J. Phys. **21** (2019) 123010.
- [6] M. Kubota et al., Phys. Rev. Lett. **92** (2004) 137401.
- [7] T. Yokoyama et al., Int. Rev. Phys. Chem. **27** (2008) 449.
- [8] T. Nakagawa et al., Phys. Rev. B **71** (2005) 235403.
- [9] T. Nakagawa et al., Surf. Sci. **599** (2005) 262.
- [10] X.-D. Ma et al., Surf. Sci. **600** (2006) 4605.
- [11] T. Nakagawa et al., Phys. Rev. B **74** (2006) 134422.
- [12] X. D. Ma et al., Phys. Rev. B **78** (2008) 104420.
- [13] Y. Takagi et al., Phys. Rev. B **81** (2010) 035422.
- [14] I. Yamamoto et al., Phys. Rev. B **81** (2010) 214442.
- [15] Y. Matsumoto et al., Chem. Phys. Lett. **511** (2011) 68.
- [16] K. Eguchi et al., Phys. Rev. B **85** (2012) 174415.
- [17] K. Eguchi, et al. J. Phys.: Conf. Ser. **430** (2013) 012129.
- [18] K. Eguchi et al., J. Phys. Chem. C **117** (2013) 22843.
- [19] K. Eguchi et al., J. Phys. Chem. C **118** (2014) 17633.
- [20] M. Dabrowski et al., Phys. Rev. Lett. **113** (2014) 067203.
- [21] K. Eguchi et al., J. Phys. Chem. C **119** (2015) 9805.
- [22] Y. Takahashi et al., Phys. Rev. B **95** (2017) 224417.
- [23] S. Nakashima et al., Adv. Func. Mater. **29** (2018) 1804594.
- [24] T. Hattori et al., J. Phys.: Condens. Matter **31** (2019) 255001.
- [25] T. Uchihashi et al., Mol. Syst. Des. Eng. **4** (2019) 511.
- [26] K. Kawaguchi et al., Phys. Rev. Materials **4** (2020) 054403.
- [27] K. Kawaguchi et al., Jpn. J. Appl. Phys. **61** (2022) SL1001.
- [28] K. Amemiya et al., Phys. Rev. B **71** (2005) 214420.
- [29] F. Matsui et al., Phys. Rev. Lett. **100** (2008) 207201.

## 12-8 赤外線分光・イメージング

### テラヘルツ・赤外線分光

| 145

X線・軟X線の利用が主となる放射光において、高輝度かつ広帯域光源として特徴がある赤外線領域放射光は、その利点が1980年代に着目され、UVSORは1985年、世界に先駆けて赤外ビームライン(BL6A1 当時)の共同利用を開始した[1]。こうした技術は他施設へと転用され、2000年に大型放射光施設 SPring-8 で赤外ビームライン BL43IR が稼働し、また、UVSOR では2012年に行われた UVSOR-III へのアップグレードに際し、赤外ビームラインの更新も行われ、BL1B と BL6B として、現在に至るまで活発に運用されている。世界に目を転じると、現在20程度の放射光施設において、赤外ビームラインが稼働し、先端研究が行われている。

一方で、遠赤外線領域(テラヘルツ光)では、高出力レーザー光源の開発と競争下にある。レーザーでは、VUV光源との複合利用によるポンププローブ計測による電子励起ダイナミクスの先端研究が賑わいを見せている。今後の学術展開としては、リング型放射光の利点として、それ以外の広帯域の光源との複合利用の可能性があり、マルチビーム利用やビームアシスト計測など、多彩な応用展開が期待される。一方で、Spring-8II 計画を始めとして、前述の赤外利用可能な放射光施設のうち先端利用施設では同様の第四世代へのアップグレードが数年後に計画されており、高輝度化を目的とした MBA ラティスの導入により赤外線領域の光取り出しが極めて困難な仕様となる。来年度からの運転開始を予定している NanoTerasu も同様の仕様であり、近未来に向けた挑戦的な光の多元・複合利用等を実施可能な施設がほぼ消失することになる点は留意すべきであろう。

赤外分光自体は汎用性が高く、基礎的な測定として多くの研究に利用されている。分子振動や格子振動から組成や結合状態に関する知見が得られ、また、バンド間遷移や自由電子に基づくドルーデ成分の観測などにより低エネルギーの電子状態に関する情報も得られる。放射光を光源として利用する場合、高輝度特性を活かした顕微分光が世界的にも主流で、生物・物性物理・化学・薬学・産業利用・医学利用など多くの研究が実施されている[2]。室温・大気環境下で回折限界に近い空間分解能の赤外顕微分光を行うことも利点ではあるが、赤外線は波長が長く、回折限界の空間分解能は波長に依存して数 $\mu\text{m}$ から数百 $\mu\text{m}$ となり、昨今進展が著しいX線や軟X線を利用した顕微測定に比べるとインパクトに欠ける。現在も開発を進めており、将来達成されるべき技術や利用環境を以下に挙げる。

1) 顕微分光手法を、多様な試料環境で行えるようにする。室温・大気条件に加えて、高圧・低温・高温・加湿・紫外線照射・溶液などの試料環境を選択可能とする。また、赤外分光は測定配置も様々行われているが、顕微分光で基本となる吸収・反射に加え、高屈折率結晶を試料に押し当てて密着部位でエバネッセント光を利用してスペクトルを得る全反射測定方(ATR法)、金属基板に斜入射で赤外光を照射して表面敏感測定を行う表面増強赤外吸収法、などを実施可能とする。さらに光源がカバーする波数領域全体を通じて、上記の試料環境・測定配置での測定を行えるようにする。赤外線は慣用的に近赤外・中赤外・遠赤外に大別されるが、それぞれの帯域で、分光器や窓材の材質や検出器が異なっており、それぞれ適した材質・検出器を切り替える。図12-8-1に多様な試料環境・測定配置・広帯域をカバーする検出器を列挙した図面を示す。試料環境×測定配置×波



数領域の組み合わせで実現されるケースは非常に多く、実現すれば、ユーザーのニーズに応じたオンデマンドの測定が可能となる。個々の項目自体に開発的要素は少ないが、多くの条件を切り替えて光路調整し、測定実施に至るには熟練を要し時間もかかる。将来計画として、短時間でユーザーが切り替え容易なシステムを構築することにより、基礎科学から産業利用まで、広範な利用に寄与する。



図 12-8-1: 多様な試料環境と測定配置および広帯域をカバーするための検出器

さらに、顕微分光をベースにした放射光利用で注目される先端計測の一つとして、赤外トモグラフィ測定が挙げられる[3]。試料を針先に固定し、回転させながら2次元赤外イメージング測定を行い、特定の分子振動バンド強度に着目して作成した画像を再構築して3D 画像を取得する。赤外スペクトルに現れる様々な振動子について、非破壊で試料内部の分布を解析することができるため、重要な技術として開発が進んでいる。

2) 波長によって制限される回折限界を打破し、ナノメートルオーダーの空間分解能を達成する近接場分光装置を導入する。これは、原子間力顕微鏡(AFM)と赤外分光器(FT-IR)を組み合わせたもので、空間分解能は波長によらず、AFM チップ先端の曲率半径で決まり、ナノメートルオーダーを達成することができる。ナノスケールの空間分解能を達成する方式はいくつかあり、図 12-8-2にそれぞれのチップ近傍の模式図を示す。(a)は散乱型方式、(b)は赤外照射による熱膨張を AFM チップで検知する方式、(c)は熱膨張を同軸入射の可視光の散乱で検出する方式である。(a)の散乱型は、海外の放射光施設における赤外ビームラインで導入が進んでおり、化学組成や分子配向のナノイメージング、ナノスケールの微小試料、メタマテリアルにおける電場分布、プラズモンやフォノンポラリトンなど研究報告数が増加している[4]。今後の展開として、測定効率を向上させるためのチップ改造や、試料環境制御、波数帯域の拡大が挙げられ、これらを達成して、高分子や電池材料、強相関物質、生物試料、環境物質、医薬品などより多くの物質の測定を行い、通常の赤外分光では達成できないナノ物質解析を行う。近年、プローブ顕微鏡装置群の機能強化はめざましく、原子摩擦力、



原子発光などの先端成果が発信されている。一方で、これらの手法と光を組み合わせた新手法の開拓も盛んであり、上述の赤外線以外の広帯域光による研究展開は興味深い。

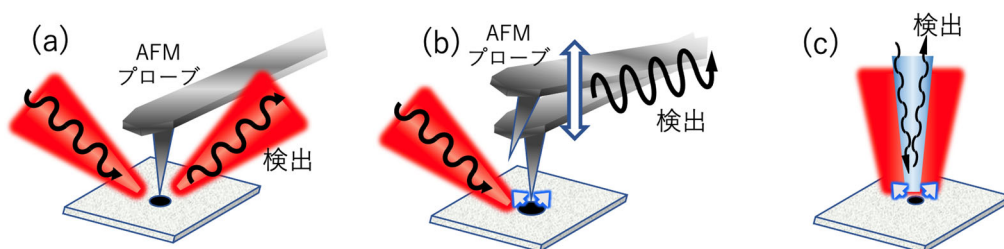


図 12-8-2: 近接場装置のチップ近傍の模式図。(a)は散乱型方式、(b)は赤外照射による熱膨張を AFM チップで検知する方式、(c)は熱膨張を同軸入射の可視光の散乱で検出する方式

3) 偏光解析を推し進め、他の赤外ビームラインと差別化した特色ある測定を行う。キラル分子の構造決定などに利用される振動円二色性分光だが、直線異方性の信号を除去するために、通常は液体試料にするか、試料を微小粉末にして測定を行う。SPring-8 の赤外ビームラインで実施した磁気光学効果測定では、異方的な結晶試料の測定を行うために、光弾性変調器 (PEM) を利用し、さらにその配置や解析手法の開拓を行った[5]。この経験を活かし、固体試料の振動二色性測定の手法を開拓し実施する。キラリティを持つ物質の中には、液晶など、溶液や粉体にできない試料が多数ある。また、キラリティを持つ結晶が細孔を有する物の場合、細孔中に吸着した水等の分子がやはりキラリティをもつ配列になっているかどうかなど、解明すべき課題は多く、これらの研究を遂行する。さらに、二色性にとどまらず、PEM を利用した吸収・反射測定の実施を通じて、赤外の広い範囲にわたって、異方結晶の光学テンソルスペクトルを決定する手法を開拓し、海外を含めて他の赤外ビームラインでは行われていない特色ある実験を行えるようにする。

4) 加速器をベースにした赤外線光源として、放射光の他に自由電子レーザー (FEL) が挙げられる。現在国内では、京都大学 (KU-FEL) と日本大学 (LEBRA) で稼働している。また、東京理科大学で稼働していた装置 (FEL-TUS) は高エネルギー加速器研究機構への移設が行われている。高い輝度が特徴の放射光は分光測定に適した光源である一方、高い強度が特徴の自由電子レーザーは、物質に変化を与える励起光として利用されたり、非線形光学測定に利用されたりする[6]。既に、両光源を含む測定技術・利用研究を議論する国際会議 (International Workshop on Infrared Microscopy and Spectroscopy with Accelerator Based Sources[7]) を、世界各地の主要な施設がホストとなり、隔年で 20 年継続して開催し、良好なコミュニティを形成している。タンパク質のアミロイド線維の分解に関する研究など[8]、FEL と放射光の両方の特徴を活かした相補利用研究も実施されており、これをさらに進展させていく。

5) レーザー光源の進展は目覚ましく、赤外線領域においても、利用が広がっている。これまでのレーザーは基本的にはシングルラインで、波長掃引によってあるバンド幅をカバーするものが主流で、励起光源としての利用あるいは非線形光学研究を行うものが多かった。しかし昨今、中赤外のおよそ

7000–2500  $\text{cm}^{-1}$  程度の領域を一気に(波長掃引することなく)カバーするスーパーコンティニューム光源も市販されており、十分、分光光源として機能する[9]。しかも数百 mW の強度を持つため、FEL と放射光の利点を併せ持つような側面がある。今現在の立ち位置としては、帯域が放射光の方が広く、7000–2500  $\text{cm}^{-1}$  はレーザーとしては非常にバンド幅が狭いが指紋領域をカバーできてない。しかし、今後急速に発展する技術を注視してくとともに、レーザーの方が適した測定技術を積極的に取り込んでいく必要がある。レーザー光源が威力を発揮する測定技術として、チップ先端に高効率で集光できる利点から3)に示した近接場分光が挙げられる。赤外ナノ分光技術には方式がいくつかあるが、散乱型意外に光の熱膨張を利用する方式があり(図 12-8-2(b)および(c))、これらへの適応も進むと考えられる。また、界面分析の際に利用される和周波発生(SFG)分光も非線形光学で強度が必要な実験で、適応が期待される。全ての先端計測をビームライン測定に取り入れることは現実的ではないが、圧倒的に強い白色光源の利用技術の確立は進めておく必要があり、多様なサイエンスを展開できる顕微分光、3D トポグラフ測定、ナノ空間分解能を達成する近接場分光への適応を進める。

## 赤外分光コミュニティとの対話

2023年9月29日、分子科学研究所研究棟201号室において、SPring-8 とのはじめての合同研究会”UVSOR/SPring-8 赤外ビームライン合同ユーザーズミーティング”を開催した。UVSOR と SPring-8 をあわせると、国内のほとんどの放射光赤外ユーザーをカバーしており、放射光赤外ユーザーの声を集約した貴重な会議となった。会議は現地とオンラインのハイブリッドで開催され、15件の講演があり参加者は合計60名を超えた。会議では化学、物理分野に加えて、薬学、医学、法科学、地球生命や産業(民間企業)といった幅広い分野の講演者にご参集いただき、それぞれの分野の最前線の研究について紹介していただいた。ユーザー同士の交流を推進すると共に、最先端の研究状況や装置開について情報を交換するよい機会となった。また参加者内訳では、10社を超える民間企業からの参加があり、民間利用の観点でも放射光赤外分光への期待がうかがえる。

### 講演者とタイトル:

田中清尚[UVSOR] 趣旨説明とUVSOR赤外BL紹介

池本夕佳[JASRI] SPring-8赤外利用の展望

西田純[分子研] 赤外ナノ・超高速分光の現状と赤外放射光の可能性

小幡誉子[星薬科大学] 皮膚角層赤外吸収特性の解析と製薬開発への応用

瀬戸康雄[理化学研究所] 顕微FT-IRイメージングによる薬物粉末の異同識別

宇山允人[株式会社資生堂] Visualization of glyoxylic acid in human hair by using BL43IR

Aina Reich [neaspec/attocube] The neaSCOPE as a tool for near-field imaging and spectroscopy at the synchrotron

伊藤廉[株式会社ミルボン] 放射光赤外顕微鏡を用いた毛髪の実験と製品への応用

松葉豪[山形大学] マイクロビームFT-IRを用いたポリ乳酸表面における水分子の吸着の評価

児島千恵[大阪公立大学] 赤外分光法による PEG および PEG 修飾 dendrimer の水和状態の解析

川崎平康[高エネ研] 赤外波長選択的振動励起による生体関連物質の化学変換

松井広志[東北大学] フォノンが関わるプロトン移動機構

井口敏[東北大学] BL43IR における赤外磁気光学スペクトル測定:円二色性と旋光性

岡村英一[徳島大学] SPring-8 BL43IR を用いた高圧での分光実験

木村真一[大阪大学] UVSOR での先端赤外分光の試みと今後の期待

講演では、赤外磁気光学スペクトルの解析法の開発や、圧力などの外場環境下での測定など、物理、化学分野の先端分光研究の紹介があった一方、それ以外の分野、特に薬学、医学などの分野では空間分布測定や微量不純物の測定など、顕微機能を利用した研究が多く見られた。現在、UVSOR と SPring-8 では数マイクロメートルの空間分解能を利用した実験が行われているが、より高空間分解能での測定や高効率(短時間)での測定を望む声が、特に民間利用のユーザーから寄せられた。会議では nearSpec/attocube 社の製品紹介の講演と現地での企業展示があり、ナノスケールのプローブ顕微鏡装置の紹介をしていただいたが、放射光赤外分光の目指すべき方向性の一つと考えられる。また SPring-8 では高輝度化を目指して SPring-8 II へのアップグレードを計画しており、SPring-8 II では電子ビームパイプが細くなることで赤外光を取り出す大きな開口部が確保できなくなることが予想され、赤外ビームラインが消滅する可能性が高い状況である。SPring-8 からの装置の移設やユーザーのスムーズな UVSOR への誘導を含めて今後の SPring-8 と UVSOR の協力体制についても議論を開始した。

## 参考文献

- [1] 難波孝夫, 日本物理学会誌 **46**, 1991, 578.
- [2] H. Okamura et al., Phys. Rev. B, **107**, 045141 (2023). 他
- [3] M. C. Martin et al., Nat. Methods, **10**, 861 (2013).
- [4] H. A. Bechtel et al., Surf. Sci. Rep. **75**, 100494 (2020).
- [5] S. Iguchi et al., Jpn. Phys. Soc. Conf. Proc. **38**, 011148 (2023).
- [6] R. Miyagawa et al., Sci. Rep. **12**, 20955 (2022). 他
- [7] Latest WIRMS URL: <http://www.spring8.or.jp/ext/en/WIRMS2021/>
- [8] T. Kawasaki et al., Int. J. Mol. Sci. **24**, 3686 (2023).
- [9] F. Borondics et al., Optica **5**, 378 (2018).

## 12-9 ガンマ線分光

### 概要

電子ビームとレーザーの逆トムソン散乱(Inverse Thomson scattering: ITS)(逆コンプトン散乱やレーザーコンプトン散乱とも呼ばれる)によってエネルギー連続可変かつ準単色ガンマ線を発生する。また、偏光レーザーを用いることで、直線偏光及び円偏光ガンマ線の発生が可能である。同様の方法でエネルギーMeV 領域のガンマ線を発生しユーザー利用が可能なのは 2023 年時点で UVSOR-III、米国 Duke 大学 HgS、NewSUBARU 放射光施設、中国 SSRF のみであり、世界的にも希少な光源である。SPring-8 では、2 GeV ガンマ線の発生が行われている。

レーザーを真空ダクト内部に入射するために、電子蓄積リングの一部に光学窓を取り付け、電子ビームと衝突する。ガンマ線の減衰を最小限にするため、ガンマ線のビーム軸である 0 度ラインと真空ダクトが干渉しない構造にする事が重要である。エネルギーMeV 領域のガンマ線には実用の集光光学系が存在しないため、発生したガンマ線を大気中に取り出し、鉛コリメータを用いて空間的に切り出したガンマ線をそのまま使う事になる。そのため、ガンマ線ビームラインは単純な構造であり、真空と大気を仕切る真空窓、ガンマ線を単色化するための鉛コリメータ、放射線遮蔽ハッチで主に構成される。UVSOR-III では、BL1Uにおいてガンマ線とアンジュレータ光の利用が行われているが、UVSOR-IV では、ガンマ線専用のビームラインを構築する。

### ガンマ線源性能

エネルギー範囲: 0.3~17 MeV

エネルギー広がり: 2% @ 9.1 MeV (コリメータ径 1 mm)

ビーム径: 鉛コリメータの径による。直径 1 mm 以上。

試料での強度:  $1.3 \times 10^6$  photons/sec @ 9.1 MeV (コリメータ径 1 mm)

偏光: 直線偏光または円偏光

試料環境: 大気中で測定可能

検出器: ゲルマニウム半導体検出器、BaF<sub>2</sub> 検出器、2 次元検出器など

### 利用研究例

#### 原子スケール欠陥の分析

エネルギー 1.022 MeV 以上のガンマ線を試料に照射すると、対生成によって試料内部で陽電子が発生する。陽電子が消滅するまでの時間(寿命)は陽電子密度と電子密度の重なりに依存するため、電子密度の低い材料中の欠陥に捕獲された陽電子の寿命は長くなる。一方で、陽電子が電子と消滅した時に発生する消滅ガンマ線のエネルギーは、電子の運動量によってドップラーシフトする。内殻電子の運動量分布が元素固有であるため、消滅ガンマ線のエネルギースペクトルを測定することで欠陥周囲の元素分析が可能である。

従来の放射性同位元素から発生する陽電子や加速器を用いて発生する陽電子ビームを試料に照射する方法に対して、ガンマ線を用いて試料の内部から陽電子を発生する方法はガンマ線誘起陽電子消滅寿命分光法(GiPALS)と呼ばれる。UVSOR-III では、90 度衝突の ITS によって発生する超短パルスガンマ線を用いた GiPALS の開発とユーザー利用を行っている。GiPALS は従来法に比べて、厚さ数 cm のバルク試料の測定が可能、放射性同位元素を用いた陽電子消滅分光法で問題になる線源成分が存在しない事、ガンマ線の発生がレーザーによって完全に制御可能といった利点がある。これらの特徴を活かすことで、従来法では実施困難であった環境、例えば応力負荷や水素添加時の欠陥形成をその場測定する事が可能となり実際の水素脆化の現場ではどのような種類の欠陥が形成され成長し破壊に至るのかを明らかにできる。

UVSOR-III に比べて UVSOR-IV のビームサイズが小さくなる。また、高繰り返し高出力レーザーを新たに導入する事で GiPALS の計数率が現状に比べて 10 倍以上向上する。限られたビームタイムの中で様々な条件の試料を測定できるようになる。加えて、ガンマ線のビーム径を絞って試料に照射し、試料を走査しながら測定することで欠陥の分布を測定できるようになる。

2 ビーム利用としては、外部レーザーや極端紫外光の照射によって形成される欠陥を超短パルスガンマ線でプローブする事が想定される。例えば、試料に加工用レーザーと超短パルスガンマ線を照射することで、レーザー加工の初期段階でどのような種類の欠陥が形成されるのかをその場測定することができる。

## 原子核物理

準単色かつ偏光可変のガンマ線を用いた原子核物理実験は電子技術総合研究所(現 産業技術総合研究所)や米国 Duke 大学などにおいて実施されてきた。報告書[1]では、ガンマ線を用いた原子核物理の基礎科学研究から産業利用についてまとめられている。MeV のエネルギー帯には、原子核共鳴蛍光散乱や光核反応といった原子核とガンマ線の相互作用が存在する。原子核共鳴蛍光散乱は、測定対象となる核種の励起状態のエネルギーに等しいガンマ線を照射すると、それとほぼ等しいエネルギーをもつガンマ線が放出される現象である。原子核は、核種によって励起エネルギーが異なるため、原子核共鳴蛍光散乱によって同位体の識別が可能となる。また、ガンマ線は透過力が高いため、隠匿された核物質の検知が可能であり核セキュリティ技術への応用が期待される。UVSOR-III においても、核セキュリティ技術に資する同位体のイメージング技術の開発が行われている[2]。

## ガンマ線検出器の評価

ガンマ線の検出は、基礎科学研究のみならず産業用途においても欠くことのできない重要な技術である。その中で偏光ガンマ線の検出は、消滅ガンマ線の偏光を検出し陽電子断層法(PET)の性能を向上する量子もつれ PET や、今後観測が進むと考えられる MeV ガンマ線天文学用のガンマ線検出器にとって重要になる。エネルギー連続可変かつ準単色の偏光ガンマ線を発生できるのは ITS が唯一の方法であり、偏光ガンマ線に対する検出器の応答評価に重宝されると期待できる。UVSOR-III では、PET 用検出器を用いた直線偏光ガンマ線の偏光検出実験が行われている。

### ビームライン概要

レーザーは簡単に分割できるので、高出力レーザーを 2 つに分割すれば 2 つのビームラインでガンマ線を同時に発生できる。図 12-9-1 に現状の UVSOR-IV のデザインを示す。一つは、1.5 m の短直線部を使用し、もう一つは高周波加速空洞が設置される直線部の利用可能なスペースを有効活用することで、2 つのビームラインを確保できる。短直線部では、レーザーの入射角度を可変にすることで、エネルギー可変ガンマ線を発生する。高周波加速空洞のある直線部では、利用できるスペースが限られるのでレーザーの入射角度は 90 度に固定してエネルギー固定ガンマ線を発生する。どちらのビームラインでも電子ビームとレーザーのタイミングを合わせる必要がある。片方はレーザーの同期システムの位相調整によって合わせ、もう片方には光学遅延を設ける。

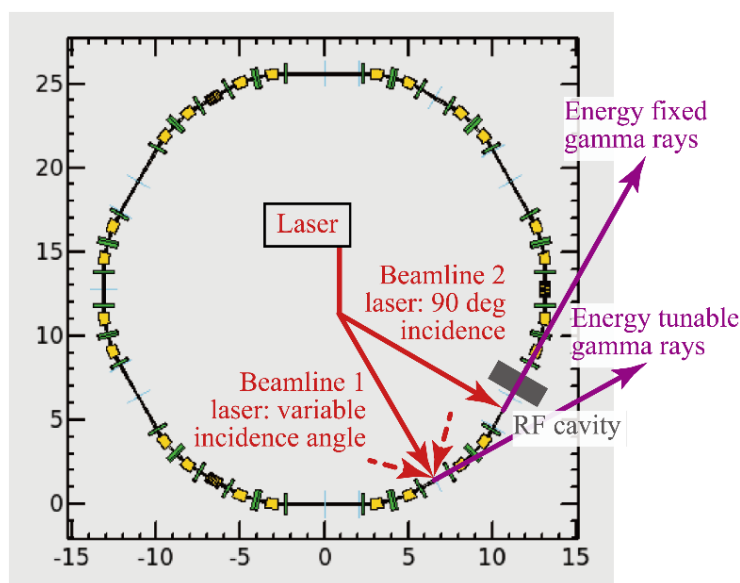


図 12-9-1: Overview of gamma-ray beamlines.

### エネルギー可変ガンマ線の発生

BL1U のガンマ線ユーザーのアンケート結果では、エネルギー可変ガンマ線発生の要望が多くあった。ガンマ線のエネルギーを可変にするには、①電子ビームのエネルギーを変える、②レーザーの波長を変える、③レーザーの入射角度を変える、④コリメータの位置及び形状を変えて中心から外れた位置のガンマ線を利用する方法が挙げられる。

方法①は、放射光とガンマ線の同時利用を考えると電子ビームエネルギーを細かく変えて放射光源加速器を運転する事は非現実的である。1 GeV と 0.75 GeV の運転を日によって切り替える事はあり得る。

方法②は、今後のレーザー技術の発展次第では実現する可能性はある。波長可変レーザーを電



子ビームの正面方向から入射することで、エネルギー可変ガンマ線を発生できる。50 W 近いレーザーパワーの波長可変レーザーが将来製品化されれば、後述するように  $10^8$  photons/sec オーダーのガンマ線の発生が可能である。現状では、例えば Light conversion の波長可変パルスレーザー ORPHEUS は、650~950 nm の範囲で 5~9 W の出力が可能である。

153 方法③は、UVSOR-III においてその原理実証が行われ[3]、中国 SSRF において実用化されている[4]。レーザーの入射角度を変える駆動機構は、真空チャンバーの内部または外部に設ける事が想定される。SSRF では駆動機構を真空チャンバー内部に設けている。この方法ではレーザーの入射角度を連続的に変えられるが複雑な駆動機構になることが懸念される。駆動機構を真空チャンバーの外部に設ける方法は、構造は単純化できるが、広範な入射角度に対応するための真空窓の形状や配置について熟慮する必要がある。一方で、ガンマ線強度を向上するためには、焦点距離の短いレンズでレーザーを集光し電子ビームとの衝突点でビームサイズを小さくする必要がある。焦点距離が短いとレーザーの入射角度の中心値に対して無視できるほど小さくない分散値をもつ。その効果によってガンマ線のエネルギー分布が広がる点に注意が必要である。

方法④は、ガンマ線のエネルギーが散乱角によって同心円状に変化することを利用する。ピンホール型のコリメータをガンマ線の中心軸からずれた位置に移動する場合は、同心円状に分布するエネルギーの等しいガンマ線の内、一部のガンマ線のみを取り込むことになるので、必然的に試料位置でのガンマ線強度は低下する。ピンホール型のコリメータとアブソーバーを前後に並べることでガンマ線をリング状に切り出す方法も検討されている(Fig. 3 and 7 in [5])。この方法では、単色性の高いガンマ線を得る事は難しく、また、消滅ガンマ線も大量に発生するため原子核物理と陽電子消滅分光どちらの利用にとっても適さないと考えられる。

したがって、方法③の入射角度可変を第一候補として検討し、今後のレーザー技術の発展次第では方法②の波長可変レーザーを採用する方針が適当だろう。ただし、方法②を採用した場合、正面衝突で発生するガンマ線のパルス幅は数 100 ps になるため GiPALS の光源には使えない。そのため、45 度や 90 度など斜め入射による超短パルスガンマ線発生も併用すべきであろう。

## RF バケットハイト

電子蓄積リングでは、偏向電磁石で電子ビームの軌道が曲げられる際に光を放射し、電子ビームのエネルギーが失われる。失ったエネルギーは、電子蓄積リングの一部に設置される高周波加速空洞によって加速されることで補われる。高周波加速空洞で安定的に加速できるエネルギー範囲が存在し、これがバケットハイトと呼ばれる。

放射光源加速器を使ってガンマ線を発生する際には、ガンマ線のエネルギーが電子蓄積リングのバケットハイトを超えないようにする必要がある。ガンマ線のエネルギーがバケットハイトを超えると電子バンチ内部の電荷量の低下を引き起こし、放射光とガンマ線の同時利用が難しくなる。NewSUBARU では、ガンマ線のエネルギーがバケットハイトを超える実験を行う場合は、放射光利用と共存できず放射光利用後の深夜にガンマ線実験が行われている。UVSOR-IV の現在の設計では、バケットハイトは 1 GeV に対して 2.3 % である。従って、電子ビームのエネルギー損失が 23 MeV 以下であれば、ガンマ線発生によってエネルギーの失われた電子ビームは高周波加速空洞によって加速され安定的

に電子蓄積リングを周回し続ける事ができる。

### 計算結果(レーザーの入射角度可変)

表 12-9-1 に示す UVSOR-IV の設計値とレーザーの仕様値を使ってガンマ線のエネルギーと強度の計算を行った(図 12-9-2)。レーザーは、Light Conversion の Carbide の仕様値に則っている。90 度衝突においても  $10^8$  photons/sec に近いガンマ線強度が得られる。

表 12-9-1: Calculated parameters of an electron beam and a laser.

Electron beam of UVSOR-IV	
Energy (MeV)	1000
Bunch current (mA)	12
Revolution frequency (MHz)	3.46
Beam size in rms (mm)	150 (hor), 10 (ver)
Divergence in rms (mrad)	29 (hor), 4.2 (ver)
Bunch length in FWHM (ps)	600 (estimated)
Energy spread in rms	0.000576

Laser	
Wavelength (nm)	1030
Pulse energy (mJ)	0.8
Repetition rate (kHz)	100
Power (W)	80
Beam size in rms (mm)	10
Pulse width in FWHM (fs)	250
Line width in FWHM	0.8%
Injection angle (degree)	18 - 162

ガンマ線の発生点から 9 m 下流に長さ 180 mm の鉛コリメータを置いた場合のガンマ線のエネルギースペクトルの計算結果を図 12-9-3 に示す。シミュレーションには EGS5 を使用した。直径 1 mm のコリメータ通過後のガンマ線強度は、 $1.3 \times 10^6$  photons/sec であり、エネルギー広がり率は 2.1% (FWHM) である。レーザーの入射角度は、平均値 90 度に対して標準偏差 0.01 rad のガウス分布と仮定して計算した。標準偏差を 0 としたときのエネルギー広がり率は 1.7% である。

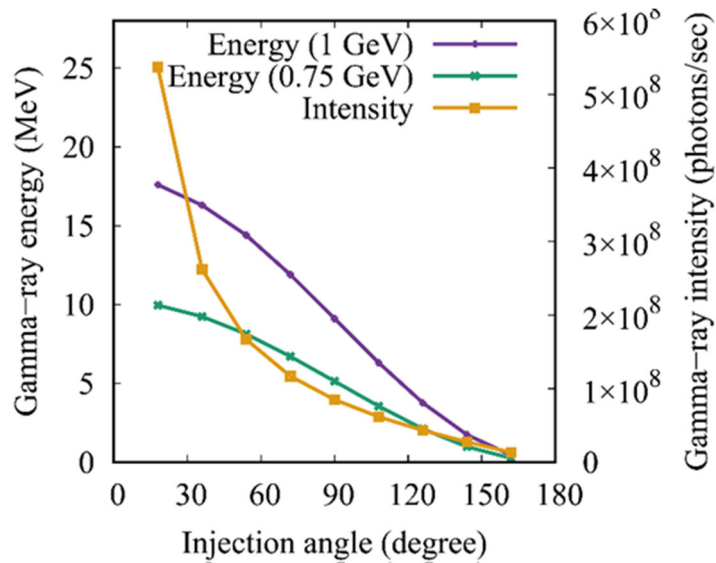


図 12-9-2: Calculated maximum gamma-ray energy and intensity (at the generation point) as a function of laser injection angles for electron beam energies of 1 GeV and 0.75 GeV.

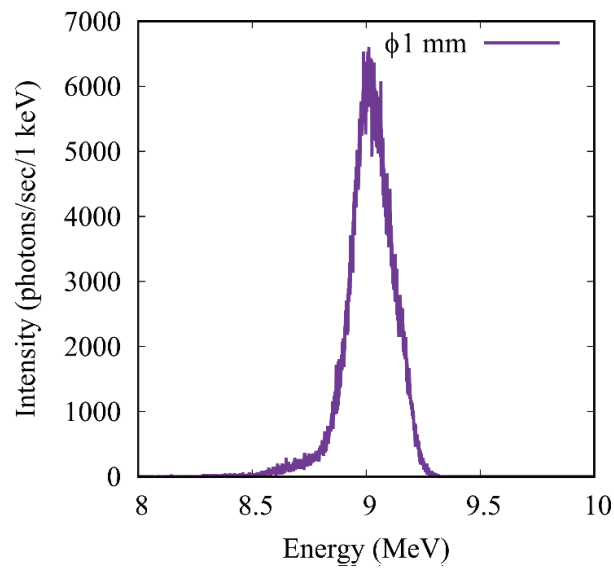


図 12-9-3: Calculated energy spectrum after a lead collimator.

**計算結果(波長可変レーザー)**

波長可変レーザーを用いた場合の計算結果を図 12-9-4 に示す。電子ビームのパラメータは表 12-9-1 と同じであり、レーザーのパラメータで表 12-9-1 と異なるパラメータのみを表 12-9-2 に示す。レーザーパワーは全ての波長で同一の 50 W と仮定して計算した。また、レーザーのビームサイズは 0.5 mm とし、レーザーの入射角度は正面入射としている。レーザーの波長が長くなるに従ってガンマ線強度が向上しているのは、レーザーのパルスエネルギーが波長によらず一定のためである。ガンマ線のエネルギーはレーザーの波長に反比例するため、波長が 5000 nm の場合でも電子ビーム

が 1 GeV のときガンマ線エネルギーは 3.8 MeV である。さらに低エネルギーのガンマ線が発生する場合は、さらに長波長のレーザーを利用する必要がある。

表 12-9-2: Calculated parameters of a laser.

Laser	
Wavelength (nm)	826 - 4960
Pulse energy (mJ)	0.5
Power (W)	50
Beam size in rms (mm)	500
Injection angle (degree)	0

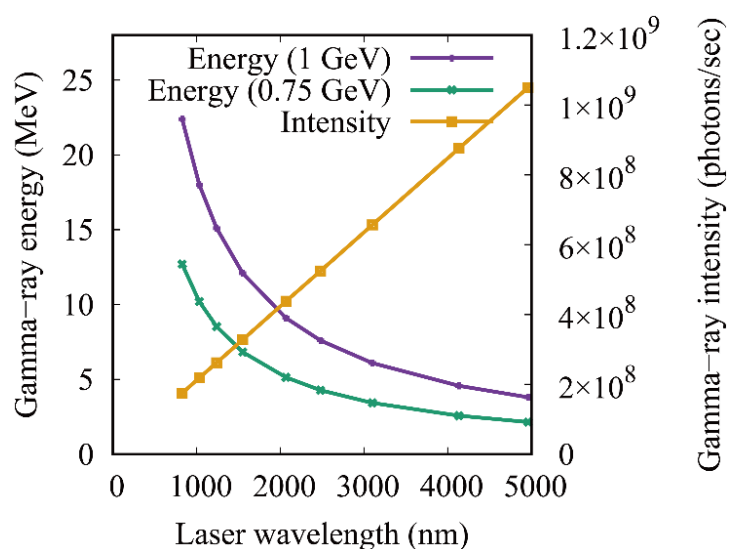


図 12-9-4: Calculated maximum gamma-ray energy and intensity (at the generation point) as a function of laser wavelength for electron beam energies of 1 GeV and 0.75 GeV.

### 光共振器を用いた大強度ガンマ線の発生

既存の電子蓄積リングと外部レーザーとして数 10W クラスのレーザー光源を使う場合、ガンマ線の強度は  $10^8 \sim 10^9$  photons/sec のオーダーで頭打ちとなる。kW クラスのレーザーを使えばガンマ線強度は向上するが、レーザーの安全な輸送方法の構築や、真空窓の損傷の点で懸念が生じる。

世界の潮流としては、電子ビームとの衝突点に光共振器を構築し、数 10kW ものレーザー

パワーを共振器内部に蓄積して  $10^{11} \sim 10^{12}$  photons/sec のオーダーのガンマ線発生を目指す研究開発が行われている [6, 7]。放射光源加速器にこれを適用しエネルギー可変ガンマ線を発生するには、光共振器の角度を連続的に変えるか、共振器内部のレーザー波長を連続的に変える必要がある。放射光源加速器の運転と光共振器の動作が問題無く併用できるのであれば、将来導入を検討すべき事項であろう。

### バックグラウンド低減

電子蓄積リング内では、残留ガスとの制動放射によってガンマ線が発生する。これは ITS ガンマ線にとってはバックグラウンドとなる。制動放射と ITS ガンマ線は、どちらも電子ビームの進行方向に発生し、それらの角度広がりも同じなので、図 12-9-5(a)のように電子ビームが直線上を運動する場合両者を分離する事は難しい。図 12-9-5(b)のようにレーザーと衝突する部分のみ直線部の電子ビーム軌道からずらすことで、制動放射ガンマ線と ITS ガンマ線を分離することができる。ガンマ線の角度広がりには電子ビームが 1 GeV の場合、1 mrad であるため、最低限その角度だけ電子ビームの軌道をずらせば制動放射ガンマ線と分離できる。蓄積リングの一部にシケインを設ける方法は、文献[6]において検討されている。また、制動放射ガンマ線の発生を抑えるため、真空ダクト内部の真空度を上げる事も効果的である。

ITS ガンマ線起因の信号のみを測定する方法としては、上記のように空間的に制動放射ガンマ線と ITS ガンマ線を分離する方法も有効であるが、パルスガンマ線の場合、レーザーに同期した信号のみを測定する方法が最も効果的である。GiPALS では、レーザーに同期して出力される検出器の信号のみを数 10 ns の狭い時間窓で測定しているので、制動放射ガンマ線由来の信号の検出頻度は  $1/10^4$  以下である。

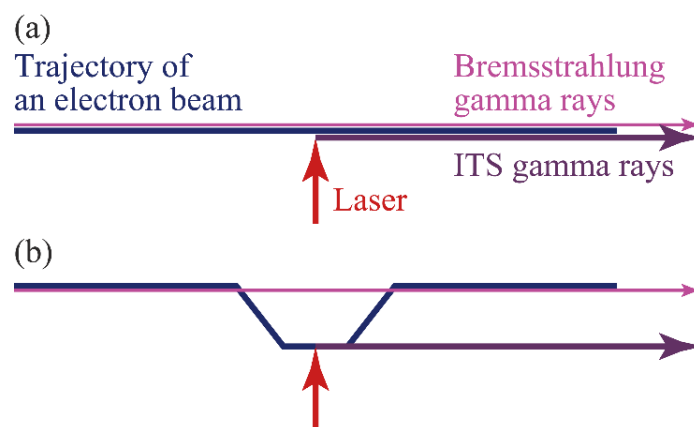


図 12-9-5: (a) Bremsstrahlung gamma rays generated on the same axis as ITS gamma rays. (b) Separation of the two by chicane.

## ガンマ線の光渦発生

通常の光は横方向の平面内で位相は一様であるが、位相構造を持つ光も発生可能である。この特殊な光は光渦と呼ばれ、らせん状の波面を形成し軌道角運動量を運ぶ。UVSOR においても円偏光のアンジュレータから発生する高次高調波が、らせん波面を形成する光であることが実測されている。アンジュレータの代わりに高強度の円偏光レーザーを用いれば、非線形逆トムソン散乱によって高次高調波ガンマ線が発生し、その光はらせん波面を形成する。これは理論的に確認されている[8]が、実測はされていない。ガンマ線の位相構造を測定する点に大きな課題がある。また、高エネルギー電子加速器とテラワット級の高強度レーザーが整備されている施設は稀である。一方で、光渦レーザーを電子ビームに入射して光渦のガンマ線が発生する方法も提案されている。新しい特性をもつガンマ線渦の発生及びその測定が実現できれば、ガンマ線の新たな利用を切り開くことが期待される。

## 参考文献

- [1] 秋宗秀俊, 他, “次世代レーザーコンプトン散乱ガンマ線源とその利用” (2013) 京都大学エネルギー理工学研究所
- [2] K. Ali et al., Appl. Sci. **11**, 3415 (2021).
- [3] Y. Taira et al., Nucl. Instr. Meth. A **652**, 696 (2011).
- [4] H. W. Wang et al., Nucl. Sci. Tech. **33**, 87 (2022).
- [5] H. Ohgaki et al., J. Nucl. Sci. Tech. **44**, 698 (2007).
- [6] C. R. Howell et al., J. Phys. G **49**, 010502 (2022).
- [7] [https://www.eli-np.ro/rd2\\_second.php](https://www.eli-np.ro/rd2_second.php)
- [8] Y. Taira et al., Sci. Rep. **7**, 5018 (2017).



## 12-10 4重連アンジュレータ光源利用

| 159

放射光を用いた光物性実験においてプローブ光の偏光に依存した測定は様々な物質情報を与える。例えば X 線吸収分光における円二色性の測定は磁性体を構成する元素の軌道およびスピン磁気モーメントの定量評価を可能にし、直線偏光の X 線の入射角依存性から分子の配向を調べることができる。そのため、近年の挿入光源は APPLE(Advanced Planar Polarization Light Emitter)型など偏光制御型のアンジュレータが採用させることが多い[1,2]。直線偏光や円偏光などの制御は蓄積リング中の電子の軌道を変化させることで行われ、これらのアンジュレータでは磁石列を機械的に動作させている。例えば直線偏光の X 線を発生させる場合は電子を蛇行させ、円偏光の場合は螺旋運動をさせる。最近、新たな原理に基づいた偏光制御型アンジュレータが開発された[3-5]。これは複数のアンジュレータから発生した電磁波を重ね合わせることで偏光を制御するものである。例えば円偏光を発生させる場合は縦と横の直線偏光を組み合わせ、直線偏光の場合は左右の円偏光を用いる。このような挿入光源は分割型アンジュレータと呼ばれ、一般的には 4 台以上のアンジュレータセグメントで構成させる。このアンジュレータセグメントとして APPLE 型を採用した場合、従来の APPLE 型アンジュレータを用いた偏光実験に加えて新たな放射光利用が可能となる。

### <特徴>

- 1) 円偏光発生時の光エネルギー範囲が3倍になる
- 2) 逆に円偏光を重ね合わせると低エネルギー側に直線偏光のカバー範囲が拡大する
- 3) ミリ秒での偏光切替が可能となり、従来の磁石列を機械的に移動させる方式の APPLE 型に比べて 1000 倍以上高速になる
- 4) 高速偏光切替を用いたロックイン検出など、従来の放射光実験では不可能であった高感度な光物性実験が可能となる
- 5) 偏光切替に伴う電子軌道の揺動がないため、低エミッタンス蓄積リングでの運用が容易である

分割アンジュレータについては、縦横の直線偏光アンジュレータセグメントを用いたものが SPring-8 BL07LSU で建設された[3,4]。世界最速の偏光切替を実証しただけでなく、偏光制御特性を活かした X 線磁気分光の円二色性/旋光性の同時測定による X 線誘電率の決定など新たな測定法も開発された[6-9]。特に直線偏光の角度を任意回転させた測定は、共鳴光電子分光、NEXAFS、XMLD のデータ量を著しく向上させることに成功した。このような研究達成から、APPLE-II アンジュレータを 4 重連にした分割アンジュレータとして PINEAPPLE (Phase Interferometric Ensemble of APPLE) アンジュレータが提案された[5]。そして、次世代放射光施設 NanoTerasu にて「APPLE-II ベース分割アンジュレータ」として、上記の特徴を有したビームラインの建設が進められている[10,11]。

次期 UVSOR ならではの分割アンジュレータ利用の一例として、まず光電子運動量顕微鏡を発展させた円偏光軟 X 線による XMCD と X 線励起共鳴光電子分光の融合技術の開発に取り組みたい。軟 X 線円偏光を利用した光電子運動量顕微鏡実験ステーションとしては、すでに TPS(台湾)で建設中であるが、高速偏光スイッチングを活用することで、円二色性の高感度・高速測定が可能という

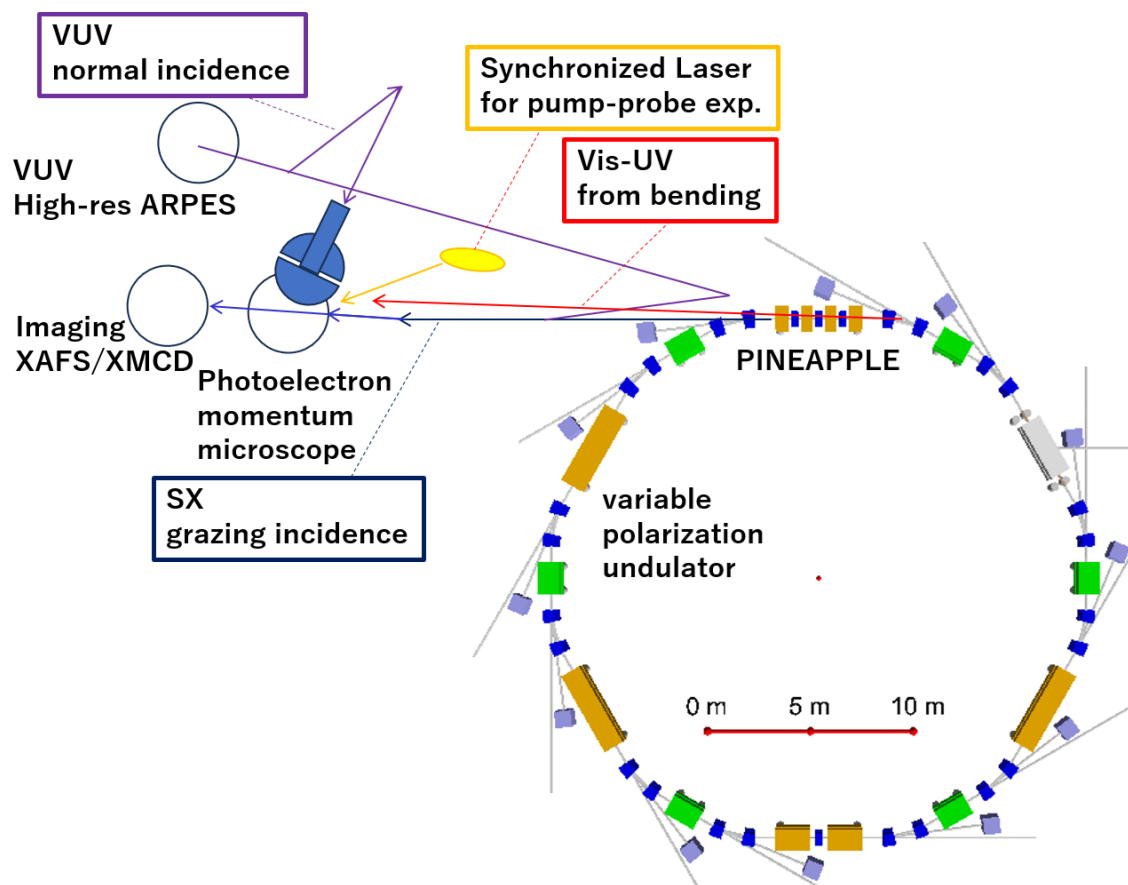
利点がある。ロックイン検出による円二色性・線二色性の PEEM/ARPES 観察により、磁性体表面だけではなくキラル誘起スピン選択効果(CISS)などによる natural circular dichroism を通じたキラルナノ構造の電子物性研究が展開できる。

また、光渦・軌道角運動量光を利用した計測技術の創発が待たれている。光渦を試料表面に集光し、 $\mu\text{m}$  スケールで様々な偏光励起が同時に実現できる。光電子運動量顕微鏡の顕微機能を活用することで同一試料(温度)での偏光依存性を計測することができる。

最後にマルチビーム利用の可能性について検討する。UVSOR-III では光電子運動量顕微鏡ステーションにて SX 斜入射(BL6U)と VUV 直入射(BL7U)の同時利用が可能になった。同じ試料に対し、異なる光エネルギー帯・偏光を利用した光電子実験が展開されている。提案の配置図では PINEAPPLE からの VUV 光を直入射分光器ブランチに導入し、光電子運動量顕微鏡に直入射で供給できるようにする設計案を示した。

SR 光に同期したレーザーによるポンプ・プローブ実験も予定する。

偏光磁石由来の迷光がビームラインの途中でビームカレントモニターなどに当たることもある。これを積極的に利用する励起状態の光電子分光計測を標榜したビームライン設計も面白い。



## 参考文献

- [1] S. Sasaki, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **347**, 83 (1994).
- [2] M. Calvi et al., J. Synchrotron Rad. **24**, 600 (2017).
- [3] S. Yamamoto et al., J. Synchrotron Rad. **21**, 352 (2014).
- | 161 [4] J. Miyawaki et al., AAPPS Bulletin **31**, 25 (2021).
- [5] I. Matsuda et al., e-J. Surf. Sci. Nanotechnol. **17**, 41 (2019).
- [6] Y. Kubota et al., Phys. Rev. B **96**, 214417 (2017).
- [7] M. Horio et al., J. Phys. D, in press (2023).2023 Jul 21;35(42). doi: 10.1088/1361-648X/ace600.
- [8] Y. Kudo et al., e-J. Surf. Sci. Nanotechnology, **20**, 124 (2022).
- [9] Y. Kudo et al., Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A **1018**, 165804 (2021).
- [10] Y. Ohtsubo et al., J. Phys.: Conf. Ser. **2380**, 012037 (2022).
- [11] QST ビームライン:BL13U: 軟 X 線ナノ吸収分光ビームライン (XMCD)  
<https://www.qst.go.jp/site/3gev/41279.html>

### 13. 結言

40周年記念事業をきっかけに、分子科学研究所の設立当初の資料を読み返す機会を得た。UVSOR の年間出版誌である Activity Report の第一号に放射光施設コンセプトが記載されている。その中の一節を引用する。“…分子科学研究所は中型器の UVSOR を計画し、フォトンファクトリ (原文ママ) や SOR-RING と協力しあい、分子科学とその関連分野の発展につとめるとともに、とくに中部地区にある特徴を生かした共同研究の実をあげたいと念じている。SOR による分子科学研究はまだ始まったばかりであるので、UVSOR の建設は国内の分子科学とその関連分野の研究を飛躍的に発展させると考えられる…”。このように UVSOR はもとも他の施設建設ミッションとは大きく異なり、ニーズを意識した斬新なスタイルであったことがわかる。

放射光は、あらゆる超広帯域の光を安定に供給できるかけがえのない光源であり、それをを用いた多角的・複合的な精密解析・イメージング技術は今日の学術・科学技術・産業を支える社会的基盤となっている。自然科学分野のみならず、考古学・文化財検証などの人文科学分野においても放射光の利用が進み、放射光は我々人類の文化的生活のために不可欠なインフラに成長した。小型光源はエネルギー消費率が良く、省エネルギー社会の要請に答えるための解である。光科学により切り拓かれる学術分野は、現代社会が直面しているエネルギー・環境問題、食・薬の安全問題等に対して挑む課題解決型の研究開発において極めて有用な情報を提供し、国民生活の安心・安全を支える基盤となる。光による分析・計測の強化のみならず、光による操作や制御によって、多彩な領域の融合学理が構築され、技術革新が著しい微小試料あるいは不均一試料中の極微細領域のイメージング法の確立を促進し、特に生体機能にリンクする複雑階層系の複合的な諸要因を紐解くことで、原子・分子レベルでの物質の理解を可能とする。社会還元として、新材料や医薬品の基礎科学的理解に基づいた、「科学的根拠に立脚したものづくりの実用化」を実現し、既存材料への付加価値の創出、さらには新薬の創成を強力に後押しすることで、国内産業の国際的な優位性と競争力を強化する。科学技術的側面から国内産業の国際競争力を支援することで、新たな市場の創出や社会的価値を創出し、経済効果に結び付けるものとなる。科学技術の発展は、社会構造やその成長理念へ多大な影響を及ぼし、またその逆もしかりである。エネルギー環境問題が露呈したことで、持続性社会 (Sustainable) が叫ばれ、コロナウイルスによる危機が適応型社会 (Resilience) の社会概念を生んだ。本申請で科学目標に掲げた「自律性」は宗教概念にもあるが、人間社会における根本的かつ重要な概念でもある。我々自身が生きる意味を考えるうえで、もともと我々のボディが構築している複雑な生体機能を模倣する自律型社会 (Autonomy) を意識することは、前述2つの社会問題提起を多面的に考察するうえで一考に値するであろう。



図 13-1: UVSOR 施設の設置計画(1979 年 4 月)から Activity Report が発行され、今年記念すべき 50 号となった

## 執筆担当者名一覧

秋山修志(分子科学研究所)  
荒木暢(分子科学研究所)  
池本夕佳(SPring-8/JASRI)  
石崎章仁(分子科学研究所)  
岩山洋士(分子科学研究所)  
上野直人(基礎生物学研究所)  
片柳英樹(分子科学研究所)  
加藤政博(分子科学研究所・広島大学)  
倉橋直也(分子科学研究所)  
解良聡(分子科学研究所)  
平義隆(分子科学研究所)  
田中清尚(分子科学研究所)  
長坂将成(分子科学研究所)  
松井文彦(分子科学研究所)  
松田巖(東京大学)  
西田基宏(生理学研究所)  
横山利彦(分子科学研究所)  
宮町俊生(名古屋大学)