KEK 放射光 暫定版 CDR ver. 2.1

2016年9月9日

※この暫定版は, KEK 放射光 CDR を作成するにあたって参考にするためのものです。 内容は, 今後変更される可能性があります。

目次

- 1. 次世代放射光施設の必要性
- 2. KEK 放射光のコンセプト
- 3. 施設運営
- 4. サイエンスケース
- 5. 産業利用(執筆中)
- 6. 光源加速器
- 7. ビームライン技術
- 8. 測定技術
- 9. 建設予算

1. 次世代放射光施設の必要性

<次世代放射光施設の必要性>

1. はじめに

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

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

2. PF の現状

フォトンファクトリー(PF)は、1982年に運転を開始し、翌1983年には共同利用実験に 供された。これによって日本におけるX線領域を含む放射光利用が本格的に始まり、放射 光科学に精通した先駆的な研究者によって、先端的な放射光利用実験が行われた。その結 果、放射光の特長を活かした独創的な研究成果が次々と発表され、放射光が自然科学にお ける様々な分野に応用できる極めて有用なツールであることが認識されるようになった。 中でも、放射光を用いたX線回折法によってリボソームの構造からタンパク質合成の仕組 みを解明し、2009年にノーベル化学賞を受賞したAda Yonath博士をはじめとして、PF に おける放射光利用研究が、直接・間接的に複数のノーベル賞受賞に貢献していることは特 筆に値する。また、PF においては学術研究と同時に、産業界を主たる対象として施設利用 (有償利用)制度が設けられ、放射光に強い関心を持つ産業界の研究者による放射光利用研 究が進められるとともに、放射光の産業利用を支える人材を育成し、国内の他施設におけ る産業利用の拡大に大きな役割を果たした。

このように産学ともに放射光に強い関心を持つ研究者によって始められた放射光利用 研究は、今日では物理学や化学、生物学、地球惑星科学などの基礎科学分野から、材料科 学やエネルギー科学、環境科学、創薬科学などの応用科学分野、さらには産業利用の分野 へと大幅に拡大し、学術界から産業界にわたる多くの研究者にとって、放射光は日常的か つ必要不可欠なツールとなっている。ここ10年以上にわたって、PFの利用者は年間3000 人以上(そのうち国外および企業の研究者はそれぞれ1割程度)を維持しており、登録論文 数は年間600報程度である。これまでの登録論文数の累計は16000報以上、博士・修士論 文の登録数の累計は2600報程度におよぶ。2015年現在、Photon Factory User Association (PF-UA;2012年4月に、それまでのPF懇談会を改組して設立された、PFの全ユーザー を代表する正式な組織)の会員数は約3,400人に達している。また、PFは新しいアイディ アに基づく試行的、萌芽的な実験も推奨しており、そのための新たな実験装置の持ち込み を積極的に受け入れている。これは、オリジナリティのある研究を展開する上で極めて重 要な点であり、これまでにいくつもの新たな研究手法がPFから生まれてきている。また、 PFで行った試行的実験が、他施設における新しい研究手法・研究分野の開花へとつながっ た例も少なくない。

PF では運転開始から現在までの間に、より高度な放射光利用研究を実現するために、 1988年と1997年の2度にわたってリングの大規模な改造が行われ、高輝度化が進められ てきた。更に,2005 年からの PF リングの直線部増強計画においては,既存の直線部の長 さを延長するとともに、新たに挿入光源が設置可能な短直線部を設ける改造が行われ、 2014 年までにすべての直線部に挿入光源が設置された。また、PF-AR では 2002 年に高度 化改造計画が完了し、常時単バンチ運転を行う世界的にもユニークな蓄積リングとして、 時間分解実験などの特徴的な利用研究が行われている。しかしながら、これらのアップグ レードを経ても、PF リングと PF-AR リングの水平エミッタンスはそれぞれ、35 nmrad と 290 nmrad であり,世界最先端の高輝度光源に比べて2桁から3桁劣っている。残念なが ら、光源性能の面からは、PF は国際的な競争力を失いつつあると言わざるを得ない。最近、 PF リングの大規模な改造が検討されたが、現在の建屋(周長 187 m)を用いる限り、水平エ ミッタンスを 8 nmrad 程度までしか下げることができないことが判明した。また, PF リン グ、PF-AR リングは、両リングの運転や実験を支えるインフラとともに老朽化が深刻とな っており、これらを維持するだけでも多大な予算が必要な状況になっている。さらに、こ の数年における電気料金の高騰と予算の減少による運転時間不足や、慢性的なマンパワー 不足などの問題も深刻である。

3. コミュニティの期待

日本放射光学会は、2013年度に日本学術会議が公募を行ったマスタープラン2014に対し、「新しい時代の科学技術立国を支える放射光科学の高輝度光源計画」を提案し、この提

2/4

案は同会議における重点大型計画の一つに選定された[1]。その概要は,「物質・生命科学 の更なる発展を目指し,低コスト建設,省エネルギー運転を設計基本思想に取り入れた低 エミッタンス運転と挿入光源を基本とした3 GeV クラス高輝度放射光施設の早急な建設・ 運転開始を提案する」というものである。さらに,文部科学省の科学技術・学術政策局は, 2014年6月に次世代放射光施設検討ワーキンググループを設置した。翌年4月にまとめら れた報告書では,各放射光施設の特色を活かした機能分散型の施設間アライアンスを形成 し,幅広い光源性能・利用者層・利用形態をカバーすることで,運営面の課題も含めて柔 軟かつ機動的に対応していくことが重要あること,また,次世代の放射光利用環境の整備 に必要となる光源性能としては,既存の先端大型放射光施設のアップグレード版における 最先端の硬X線光源や,軟X線領域に強みを持つ中型高輝度光源が有力な候補となること などが述べられている[2]。

さらに, PF-UA は 2014 年度に, PF-UA 白書「PF および日本の放射光科学の将来への提言」 を公表している[3]。この白書における主な提言は以下の通りである。

- ・ 放射光利用の量的・質的イノベーションを先導し、世界の放射光科学をリードする ためには、十分な輝度を持ちナノメートル領域まで光を絞り込める蓄積リング型の 新しい高輝度放射光源とそれを効率的に運営する次世代放射光施設を早急に建設す る必要がある。
- 次世代放射光施設では、従来の大学共同利用と共用促進法による利用の各々の長所 と短所を考慮しながら、大学共同利用の精神を活かした21世紀に相応しい新しい共 同利用体制を構築することが必要である。
- 日本の放射光科学が今後も世界を先導していくためには、全国の放射光施設を有機的なネットワーク(放射光協働ネットワーク)で結び、PFとSPring-8がそのネットワークのハブとしての役割を果たす体制を早急に構築する必要がある。また、ネットワーク全体を俯瞰して舵取りを行うための組織(サイエンスボード)の設置が必要である。

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

このような、マスタープランへの提案やPF-UAからの提言によって示されたコミュニティからの期待に応えるためには、世界最先端の低エミッタンス・高輝度といった光源性能を有する次世代放射光施設の実現はもちろん、その性能を活かすためのビームライン技術および測定技術、そして最先端の研究や手法開発を推進するとともに、継続的な技術開発を行うことができる運営体制が必須である。さらに共同利用の観点からは、様々なサイエンスを展開する多くの研究者からなるコミュニティの要望に基づいて、ボトムアップ型の

3/4

研究・開発が推進できるという大学共同利用の長所と,学術界から産業界にまたがる広範 な利用研究を統一的に推進できるという共用促進法の利点を活かした運営を目指すべきで ある。また,日本国内の放射光施設の協働ネットワークを機能させるために,放射光施設 間の人的交流や技術交流を促進し,サイエンスおよび放射光技術における開かれたネット ワークを形成する必要がある。

4. おわりに

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

参考資料

[1] http://www.scj.go.jp/ja/info/kohyo/pdf/kohyo-22-t188-1.pdf

- [2] http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/chousa/gijyutu/022/houkoku/1357455.htm
- [3] http://pfwww2.kek.jp/pfua/katsudo/20150205.htm

2. KEK 放射光のコンセプト

<KEK 放射光のコンセプト>

1. はじめに

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

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

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

2. サイエンス

KEK 放射光において新たに展開すべきサイエンスとして最も重要なものの一つが,機能の 起源の解明,すなわち,主に不均質な系(特に,不均質性を特徴づける界面)において発 現する現象や機能に関する,構造と電子状態の研究である。放射光科学においては,これ までの 30 年にわたって,均質な系(特に周期的な繰り返し構造を持つ結晶)を主な研究対 象として,X線回折法による構造決定や分光法による電子状態決定を中心にサイエンスが展 開されてきた。この間,放射光源の高輝度化によって,研究対象となる試料の大きさは数 ミリメートルから数ミクロンへと拡張されてきたが,KEK放射光は,飛躍的な性能の向上に よって,様々な分野における多様な研究対象に対して,ナノスケールで不均質な構造と電 子状態の本格的な観察を,初めて可能にするものである。特に,電子状態を観察するのに 適した真空紫外から軟X線の領域をカバーすることによって,物質・生命の示す現象や機 能の発現をつかさどる電子状態に関して、ナノスケールの空間分解能に加えて、ミリ eV オ ーダーのエネルギー領域での測定をも可能にする点が大きな特長である。また、KEK 放射光 では十分なコヒーレンス成分を持つ軟X線・X線を供給することができるので、コヒーレ ンスを利用した先端的なイメージング手法を用いることにより、集光したビームを掃引す ることなく、不均質系の構造を一度に観測することができる。物質・生命科学における研 究対象としての不均質系は、これまで主に研究されてきた均質系と比べて圧倒的に種類が 多いのは言うまでもないが、それらの示す現象や機能の多彩さと発現機構の複雑さを考え ると、はるかに深遠な研究対象であり、その理解のためにはこれまでとは質的に異なる研 究手法を開拓していくことが必要不可欠である。KEK 放射光が切り開く不均質系の構造と電 子状態の研究は、これからの 30 年、あるいはそれ以上の期間、物質・生命科学の最先端を 走り続けることができると期待される。また不均質系の研究に加え、伝統的な均質系の研 究においても、KEK 放射光における画期的な空間・エネルギー分解能向上により、新しい構 造や電子状態が次々と発見されると期待される。このように KEK 放射光は、放射光科学の 多様性を拡充し、物質・生命における機能起源の解明という普遍的な価値を創造するため に必要不可欠な光である。

3. 人材育成

KEK 放射光では、先端研究と人材育成のための協働の場として、大学・研究所・企業等の 研究者と施設のスタッフが連携し、学部学生・大学院生・若手研究者とともに最先端の研 究および実験手法・装置の開発を行う。実際に現場で試行錯誤しながら研究・開発を行う ことを通して、日本の未来を支える人材を、学術界から産業界にわたって幅広く育成する ことを目指している。例えば、施設と共同で光源・ビームライン・実験装置の高度化や研 究手法の開発を行い、新たな研究分野を開拓してトップサイエンスを創出することを通し て、将来の放射光施設の開発・整備を支える人材や、放射光を活用した先端的な研究分野 を切り拓く人材を育成することができる。また、放射光を利用して構造・電子状態の解析 を行い、新奇材料の開発やイノベーションにつながる研究成果を創出することを通して、 放射光を活用したた端研究・イノベーションを展開する人材を育成することができる。さ らに、放射光を利用したことのない学生や大学・研究所・企業等の研究者に対して、スタ ッフとユーザーが協力して放射光利用実験の実習を行うことによって、放射光を用いた研 究の有用性を示すことも、人材育成につながる重要な活動である。

4. 光源加速器

最新の HMBA (Hybrid Multi Bend Achromat) ラティスを採用し,各セルに長直線部と短 直線部を持つ独自の設計とする。電子エネルギー3GeV,周長 570m (20 セル) で,水平エミ ッタンス 0.3 nmrad@500mA,輝度 10²¹-10²² photons/sec/mrad²/mm²/0.1%b.w. @1-10keV を実 現する。また,短直線部においても,輝度は 10²⁰以上@10keV に到達する。ビームライン数 としては最大 58 本(長直線部:18本,短直線部:20本,偏向電磁石部:20本)を設置可 能であり,最先端のビームを用いた多種多様な研究を展開することができる。将来的には, 高調波加速空洞を用いて電子ビームのバンチ長を 4-5 倍に伸ばし,バンチ内散乱を抑制す ることによって,水平エミッタンス 0.15 nmrad 以下を目指す。入射に関しては,KEK の既 存の線形加速器(LINAC)を利用して 3 GeV の電子を直接入射する方式と,小型の線形加速器 とブースターシンクロトロンを新規に製作して利用する方式の 2 種類を検討している。

これらの性能を実現するために必要とされる加速器技術のうち主要な部分については, 世界における先端的な放射光施設の建設を通して確立されているが,それらに KEK 独自の アイディアを加えることによって,さらに高い性能を追求している。

なお,建設予算を節減するために周長 440m(16 セル)程度にしたとしても,水平エミッ タンス 0.4 nmrad,ビームライン数 46本(長直線部:14本,短直線部:16本,偏向電磁石 部:16本)が可能であり,長直線部における輝度は 10²¹以上に到達する。

5. ビームラインと測定技術

2 keV 以下の真空紫外~軟 X 線領域においては,2005 年頃に PF で開発され,この 10 年 の間に国内外の放射光施設の軟 X 線ビームラインで相次いで採用されてきた,可変偏角型 の不等刻線間隔平面回折格子分光器を基本として用いることを想定している。標準的なエ ネルギー分解能は1 keV において 50 meV であるが,回折格子(基板)の製作技術の向上によ って 10 meV の分解能を達成できると期待される。長直線部において K-B 集光光学系を用い ることで,ビームサイズ 50 nm におけるフラックスは 10¹¹ photons/s 以上と見積もられる。 一方でビームサイズよりもコヒーレンスを重視した光学系を用いることで,コヒーレント フラックスについても 10¹¹ photons/s 以上が期待できる。ビームサイズについては,ゾー ンプレートを使用することによって少なくとも 25 nm 程度が達成可能と見込まれるが,将 来的には集光ミラーやゾーンプレートの製作技術の向上によって 10 nm 程度が期待される。

2 keV 以上の X 線領域においては,冷却効率を考慮したインクラインド結晶分光器を採用 する。標準的なエネルギー分解能は 10 keV において 1.3 eV であるが,高分解能分光器を 用いることで 50 meV の分解能を達成できると期待される。長直線部において K-B 集光光学 系を用いることで,ビームサイズ 50 nm におけるフラックスは 10¹² photons/s 以上と見積 もられる(エネルギー分解能 1.3 eV の場合)。一方でコヒーレンスを重視した光学系では, コヒーレントフラックスとして 10¹² photons/s 程度が期待できる。ビームサイズについて は,極めて精密に加工した多層膜ミラーを用いることによって 10 nm 以下が見込まれる。 一方,ゾーンプレートを使用することによっても 25 nm 以下,将来的にはゾーンプレート の製作技術の向上によって 10 nm 程度が期待される。

いずれのエネルギー領域においても、光学素子の製作精度(スロープエラー)と熱負荷への対策が重要な検討課題である。(X線領域において)液体窒素冷却のインクラインド結晶分 光器を導入するのはもちろん、第一ミラーの形状変化がビーム性能に影響を与えにくい光

3/5

学設計を行った上で,第一ミラーでなるべく多くの熱負荷を吸収する工夫を行う。さらに, 熱負荷によって多少ビームプロファイルに影響があったとしても,仮想光源によってその 影響を吸収し,試料位置におけるビームサイズやエネルギー分解能を悪化させない設計と する。

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

6. 建設地

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

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

これらの要件に対し、現状での対応の可否、および対応のために必要なコストと時間を検 討した上で、長期間にわたって高い性能およびアクティビティを維持でき、しかも、でき るだけ短期間かつ低コストで建設および利用実験の開始が可能なサイトを選定する必要が ある。

本デザインレポートでは、そのような検討の一環として、下記の理由により KEK つくば キャンパスを想定して設計・検討を行うが、他のサイトの可能性を排除するものではない。 KEK の敷地内には、周長 570m程度の蓄積リングを新たに建設できる土地があり、宿泊施設・ 食堂・図書館・会議室・ホールなどの施設もそのまま利用できる。また、KEK 内の共通基盤 施設(放射線科学・計算科学・超伝導低温工学・機械工学の各センター)の研究資源、お よび事務体制(ユーザーズオフィス、放射線管理室、管理局:研究協力部・施設部・総務 部など、広報、情報資料、知財、産学連携など)が活用できる。立地条件に関しては、つ くばキャンパスは教育・研究機関の集中する東京・関東圏からのアクセスが比較的良い上 に、圏央道の開通および高速バスの運行によって成田国際空港までの所要時間は1時間と なっており、海外や国内遠隔地からのアクセスも容易である(近年、成田空港発着の国内便 が増加している)。また、つくば地区には多くの教育研究機関や企業の研究所が存在し、そ れらの機関との連携も容易である。KEK はすでに、TIA(つくばイノベーションアリーナ)と して、産総研、物材機構、筑波大学、および東京大学との連携を行っている。さらに、KEK 物構研が有する量子ビーム施設のうち、低速陽電子施設はつくばキャンパスに、中性子と ミュオン施設は東海キャンパス(J-PARC)に存在し、KEK 放射光がつくばに建設されれば、複 数のプローブを連携して相補的に利用することによる相乗効果が期待できる。一方、つく ばキャンパスは関東ローム層の上にあるために、地盤が強固な地域に比べると 0.1-10Hz 帯 域の振動が大きい。ただしこのような振動は、大部分がコヒーレントな成分(建物全体が同 じように振動するもの)であるため、建物や架台によって不用意に振動を増幅することがな いように注意深く設計を行うとともに、適切なフィードバックを行うことによって、性能 および実験上の問題を回避するための検討を進める。

7. コスト

建屋,光源加速器,入射路(既存の線形加速器を利用する場合),および当初設置する 15 本程度のビームライン(挿入光源やコンポーネントの一部は現在の PF から移設する)を含め た建設費は,概算で 350 億円と見積もっている。運転のための消費電力は,既存の入射器 を Super KEKB と共有する場合の負担分を含めて 6 MW 程度である。現在の PF と PF-AR の消 費電力の合計は 11 MW 程度であるため,KEK 放射光を年間 6000 時間の運転をした場合でも, 現在の PF と PF-AR の運転経費(運転時間は 4000 時間以下)と比較して,年間 3 億円程度の 電力料金を抑制できる。抑制した光熱水量は,世界標準に比べて極端に貧弱な利用支援体 制の強化に充当できる可能性がある。KEK 放射光全体としての運転経費は,KEK スタッフの 人件費を除いて年間 25 億円と見積もっており,そのうち5 億円程度を利用料収入で賄うこ とを目標とする。すなわち,低消費電力化による運転コストの削減効果と適切な収入によ り,現在の 1.5 倍におよぶ年間 6000 時間の運転を,現在よりも少ない予算で実現すること が可能である。

3. 施設運営

<施設運営>

1. はじめに

これまで PF は 30 年以上にわたって,大学共同利用を主たるミッションとし,放射光利 用研究のための最先端の基盤技術を開発するとともに、国内外の大学、研究機関、および 企業の数多くの研究者に対して放射光利用研究の場を提供してきた。このような技術開発 と利用研究によって、学術界および産業界において独創的かつ先端的な研究成果を創出す るとともに、先端的な研究を行うことのできる優れた人材の育成にも貢献してきた。その 中で、PF における放射光利用のあり方は大きく変化してきた。PF が建設された当時は放 射光科学の黎明期であり,大学,研究機関,企業の研究者が PF のスタッフと力を合わせて ビームライン、実験装置の建設や新しい測定手法の開発を行い、独創的な研究成果を挙げ ることによって放射光の有用性を示すとともに、そのような開発・研究を通して多くの人 材を育成してきた。その結果、放射光は学術界から産業界にわたる多種多様な研究におい て不可欠な基盤的なツールとなったが、その一方、放射光源、ビームライン、実験装置お よび測定手法の開発を行う研究者は相対的に少なくなり、それらは主に PF スタッフが担う こととなった。こうした役割分担は、放射光科学の成熟にともなう必然的な流れであり、 放射光をツールとして利用して定常的に研究成果を挙げるには効率的であるが、放射光を 用いた新たな測定手法による、独創的かつ先端的な研究成果の創出という観点からは問題 も多い。

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

このような状況を踏まえ、本デザインレポートでは、放射光科学における KEK のミッシ

ョンを以下のように整理する。

- (1) 学術研究:放射光科学を牽引する国際的中核拠点として,国内外の優れた研究者を結 集して先端的な放射光利用研究を推進し,独創的かつ先端的な研究成果を創出する。
- (2) 人材育成:先端的な放射光利用研究および放射光利用教育プログラムを通して、高度な研究活動を行うことのできる人材を学術界から産業界にわたる広い範囲において育成する。また、放射光を用いた実験技術を開発・整備し、放射光利用研究を支援することのできる人材や、放射光をツールとして使いこなして研究を行うことのできる人材を輩出する。
- (3) 社会貢献:リサーチコンプレックスを核として、学術界から産業界にわたる多様な研究者が集い、互いに交流することによって、学術研究の展開に源を発する形でイノベーションを創出することのできる場を提供する。さらに、放射光を利用した研究の成果を様々な形で社会に公開し還元することで、持続可能な社会の構築に貢献する。

KEK 放射光では、これらのミッションを遂行し、国際的中核拠点として、世界をリード するに相応しい放射光利用を展開するために、2-1、2-2 に示す利用形態と運営体制を実現し、 充実した研究環境を提供するとともに人材育成に貢献する。

2. 運営の仕組みと組織

2-1. 利用形態

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

(1) フロンティア利用:従来の学術研究利用をベースとし、学術研究(大学・大学院教育等による人材育成を含む)における、新しい測定手法の開発や新分野の開拓などを中心とした利用形態。必要に応じて、大学・研究機関等との密接な共同研究を行う。ビームタイム配分はピアレビューによる評価に基づいて行い、特に挑戦的な研究や放射光科学の発展に資する研究を奨励する。開発的な研究を効率よく行うために、比較的長め(2-3 年程度)の有効期間とする。成果は公開、利用は無料とする。このような利用形態を実現するためには、ビーム性能として先端的であることはもちろん、新しい測定手法に柔軟に対応するために、光源およびビームラインにおいて、実験に応じた新たな技術を積極的に取り入れていく必要がある。

- (2) オンデマンド利用:学術研究の中でも物質開発に重点をおいた研究や,産業応用等における物質の評価測定のための利用を想定した利用形態。それぞれの時点で確立されている先端的な実験手法を用いて,自動測定などを活用した高スループット測定を行う。ビームタイム申請を随時受け付け,審査は安全面のみとすることによってビームタイム配分を迅速に行う。光熱水料や消耗品など,実験に必要な経費を賄える程度の利用料を設定する。成果公開と成果非公開を選択可とし,非公開の場合には利用料を加算する。さらに、利用者が来所せずに試料のみを送付する、メールインサービスを実施する。この場合には測定は施設側で行い、そのために必要な人件費等の費用を利用料に加算する。このような利用形態においては、測定の継続性と結果の一貫性を確保するために、安定したビーム仕様が必須である。そのために急激な変更や試行的な改造は避け、他のビームラインで十分に確立された技術を導入することによって、比較的緩やかな高度化を行う。
- (3) トレーニング利用:放射光科学の普及を目指した利用形態。KEK をはじめとする放射 光施設のスタッフや,放射光を利用した研究・開発を行っているユーザーが講師を務 める。大学生・大学院生の受講者については,所属機関の判断で単位を認定すること を可能とする。大学以外の研究機関や企業からの参加も積極的に受け入れる。放射光 新興国への技術指導も実施する。

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

2-2. 運営体制

KEK 放射光は,最大で 58 本のビームラインを有する最先端の大型放射光施設であり, それらを最大限に活用して,トップサイエンスの創出と人材育成を主なミッションとしつ つ,先端的基盤研究施設として幅広い学術研究および産業応用研究を支えるものである。 これを実現するためには,現有の組織や人員にとらわれない運営体制の構築が必須である。 当然,KEK 内での組織改編や人員の再配置が必要となるが,それと同様に重要なのが,大 学,研究機関,企業などとの密接な連携である。最先端のビームラインを活用するために は,最低 2 名の専属スタッフ(ビームライン担当者)が必須であり,仮に PF の現有の人員(ビ ームラインや利用研究を担当する放射光科学研究系,放射光源を担当する加速器第 7 系に おける常勤職員数として,それぞれ 85名,35名程度)を想定した場合,KEK が直接運営す るビームラインは 25本程度とするのが妥当である。この他に,自動化によるルーチン測定 を基本とするビームラインを5-10本程度設置することを計画しているが,これらに加えて, 大学,研究機関,企業,地方自治体,国プロジェクトなどと KEK との連携によるビームラ インを設置する。この連携ビームラインの設置は、希望する機関からの提案を受け審査を 経て決定する。複数機関の連合体による設置等も可とする。当該機関はその責任の元,一 定期間,連携ビームラインの運営と利用を行う。KEK は連携し,必要に応じて支援する。

また、従来のように、一人または少数のビームライン担当者が、それぞれのビームラインの光学系、実験装置からサイエンスまでを一手に引き受けるという運営形態を改善し、統一的な考え方に基づいて施設全体の運営を行う必要がある。KEK 放射光では、これらを実現するために、以下のような新しい運営体制を構築し、各研究系においては、職務内容に応じた評価基準を導入する。これは、KEK 放射光において最大の成果を創出するとともに、運転や開発に必要な資金の調達能力を強化するために必須である。

学術研究系:

主に利用研究の推進を担当する。リサーチコンプレックス構成機関を中心とするクロス アポイントメント等により大学・研究所・企業と連携して先端的な研究を推進する。ま た,大学院生や学部学生,および企業の研究者を受託学生や研修生として受け入れ,と もに研究を行うことによって,新たな手法開発や先端的な研究を行うことができる人材 を育成する。

基盤技術系:

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

客員研究系:

先進的なユーザー運営ビームラインや大学・研究機関・企業などのサテライト研究室を 主宰する。KEK 以外の機関に本務を持つが,KEK スタッフに準じた責任と権利を持っ てビームライン,研究室の運営にあたる。連携ビームラインを運営する機関からの教員, 研究者等をはじめ,ヘビーユーザー等の参画を想定する。

光源加速器系:

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

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

3. ミッション遂行のための環境

3-1. 利用環境、研究環境

研究成果を挙げて人材育成を進めるとともに、産業利用の拡充を図るためには充分な運転時間の確保が不可欠である。厳しい財政状況下、予算に対して最大限の成果を挙げられ るよう、省電力設計を進め、充分な運転時間確保を可能とする。ユーザーからの要望とし て、充分な運転時間の確保と共に、長期停止期間のないことが重要との指摘がある。夏期 停止期間の短縮等も検討課題である。サイエンスのセレンディピティという点からも、ユ ーザーへの潤沢なビームタイム供給が望ましい。

一方、現在のビームライン運営体制のままでは、長時間にわたる運転を支えるのは困難 である。現在でも1本のビームラインを支えるスタッフ数は0.3から1名と世界標準(3か ら5名)から比べると極めて少なく、ビームライン運営およびスタッフ自身の研究両立へ の懸念がある。上述のように、KEK が直接運営するビームラインについては最低2名の専 属スタッフを確保するとともに、測定の自動化を進めるなどの対応が必要である。ビーム ラインの数のみでなく質との両立が重要であり、所内スタッフ数を考慮して最適なバラン スで整備すべきである。その際に、積極的に常時手を掛けるべきビームラインと自動化、 省力化可能なビームラインとを区別し、それぞれの方向で先鋭化させる必要がある。例え ば、主に学術研究を想定したフロンティア利用を行うビームラインでは充分に手を掛けて 最先端の放射光科学を推進し、物質開発や材料評価を想定したオンデマンド利用を行うビ ームラインでは徹底的に自動化を進めハイスループット測定を実施する。フロンティア利 用では、大学等の研究者が KEK 放射光に積極的に関わることを奨励し、希望に応じて半常 駐可能な体制を構築する。所内スタッフと協力、協奏して研究を推進することを期待し、 KEK 放射光が、学術研究の発展、人材育成の充実に資する場となることを目指す。また旅 費支援についてはこれまで大学共同利用の枠組みで行われてきたが、必要に応じた見直し を行う。

学術研究系の所内スタッフ自身による研究の推進は、放射光科学の発展に寄与するとと もに、ユーザー実験環境の整備に繋がるものである。人材の流動性の観点から、魅力的な 放射光施設であるために、スタッフの充分な研究時間、研究環境の確保が必要である。特 に若手スタッフが魅力を感じ、キャリアパスが描けることが重要である。若手スタッフの キャリアパスの支援制度を導入するとともに、ユーザー支援業務を効率的に行える体制を 構築し、バランスのとれた研究環境を整える必要がある。基盤技術系の所内スタッフが短

5/7

中期のビームラインの建設と高度化だけでなく,国内外の最新の技術動向を調査し,長期 的視点で魅力ある技術高度化を行える環境を整備する。

3-2. 教育環境(人材育成)

KEK 放射光の重要なミッションの一つは人材育成、学生教育である。今日、放射光科学 は国内の科学技術発展、大学教育を支える重要な基盤技術となっている。よって、KEK 放 射光は、これからの国力基盤を支える人材を育成するため、若手研究者や学生が KEK 放射 光を活発に利用し、放射光を用いて研究を遂行できる環境を提供する必要がある。学生の 教育には充実した講義内容とともに充分な講義時間数が必要であるが、同様に充実した放 射光実験環境とともに充分な実験時間数が必要である。じっくり教育に取り組める運転時 間の確保を目指す。

現在、大学共同利用機関である KEK-PF が実施している旅費支給は、これまで多くの学 生に放射光実験を学ぶ機会を提供してきており、KEK 放射光においても十分な旅費支援の 継続は、学生教育の観点から重要である。

現行の制度では、学生教育は、主に所属大学の教員等のG型課題の中で実施されている。 G型課題の有効期間2年間という制度は大学の研究室にとっても学生本人にとっても、例 えば修士課程修了を念頭に中期的視点で取り組める利点がある。一方で、博士課程まで含 めて考えると、修業年数とのマッチングが良くない場合もある、との指摘もある。

このような背景もあり、PFでは博士課程学生を対象とし、人材育成を目的として大学院 生奨励課題(T型課題)が新設された。これは、他大学に所属する博士課程学生の教育に PF 教員が積極的に寄与する制度であり、当該学生は所属大学の教員に加え、放射光科学の 教育を PF 教員から受ける機会を得る。この制度は将来の放射光科学に関わる人材育成に寄 与するものであり、継続、充実を図る。一方で、現状のT型課題は特に優れた博士課程学 生を対象とすることを想定しており、審査のハードルは非常に高い。今後はより幅広く、 多くの学生が利用しやすい制度も検討し、洗練していく。

また、総研大との連携も含め、単位認定や単位互換、および double degree の制度がある と好ましい。大学と協議して制度を整備していく必要がある。

秋入学や4 学期制等の多様化する大学の学事歴への対応や、これまでは実習生としてし か取り扱えなかった学部学生への支援の充実についても、より現実に合ったものに改善す べきである。現在は学部学生を実験に参加させる手続きが煩雑であるが、学部学生が参加 しやすい制度に見直すことが望ましい。

4. KEK 放射光の建設・立ち上げ

4-1. PF から KEK 放射光への移行

PFから KEK 放射光への移行に際し、つくば地区で放射光実験ができない期間をゼロに することを目指す。万が一、放射光実験の停止期間が生じる場合は、PFの停止時期の調整 や、他施設との連携を図り、その停止期間が最小限となるよう努める。KEK 放射光の運転 開始後のビームライン建設については、学術研究と産業利用の割合、外部運営ビームラインの割合等のバランスを考慮する。

4-2. KEK 放射光の建設資金

KEK 放射光が担うミッションに鑑み,国際的競争力の極めて高い放射光施設,リサーチ コンプレックスの核,産学官の多様な人材が交流し刺激し合う場となること目指し,近接 する大学,研究所,産業界と連携して建設構想を具体化していく。建設資金の調達につい て,可能な方法を積極的に模索し,早期実現に向けて全力を挙げて取り組む。

4. サイエンスケース

はじめに

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

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

ここでは、材料・触媒科学、生命科学、ソフトマター科学、強相関電子系科学、表面・界 面科学、原子・分子科学、極限物性科学、地球惑星・環境科学、X線光学の章立てとして、 KEK 放射光で期待される各々の分野でのサイエンスの新展開を紹介する。

第1章:材料·触媒科学

- 1-1 空間&時間のマルチスケール観察と材料特性制御の研究開発 ~材料中の化学状態 の三次元へテロ構造をオペランド(機能発現下)で実時間観察する~
- 1-2 KEK 放射光による磁性材料分野の研究展開
- 1-3 光触媒を用いた人工光合成の研究開発
- 1-4 マルチプローブ光源による蓄電池開発の革新的加速(執筆中)
- 1-5 KEK 放射光を利用した時間分解 XAFS 実験
- 1-6 次世代放射光源に期待される材料研究のための新手法の発展
- 1-7 ナノ集光ビームによる誘電体材料研究の新展開
- 1-8 非線形非弾性 X 線散乱(2光子吸収による非弾性散乱)
- 1-9 次世代放射光源での蛍光 X 線ホログラフィー測定の新展開
- 1-10 社会インフラ・構造材料の観察と材料特性制御 ~材料中の空間的&時間的 階層 構造の観察から、不可逆反応(亀裂,劣化,相転移,拡散)の起点と進展を明らかに する~
- 1-11 次世代放射光源で展開される改質触媒、光触媒研究
- 1-12 次世代 XAFS 法によるサステナブル触媒研究

第2章:生命科学

- 2-1 細胞の運命決定を担う超分子複合体の立体構造解析
- 2-2 膜タンパク質巨大複合体の立体構造解析
- 2-3 医学創薬研究のための生体高分子の構造学的基盤研究
- 2-4 原子レベル動的立体構造解析を基盤とした酵素反応機構の解明
- 2-5 個から集団の理解へ:動的構造解析による細胞内分子集団ネットワークの網羅的 解析
- 2-6 放射線ストレスに対する量子効果に基づくゲノム安定化機構の解明
- 2-7 新しい放射線治療を目指した細胞応答メカニズムの研究
- 2-8 X線イメージング-医学応用を中心に
- 2-9 脳神経科学分野における KEK 放射光の利用
- 2-10 骨科学~形態形成と修復
- 2-11 軟X線発光分光:電子論に立脚した生命科学の構築(執筆中)

第3章:ソフトマター科学

3-1 石油資源からバイオベースマテリアルへの転換を目指して:異常 X 線小角散乱に よって解明する未踏破ソフトマター構造解析

- 3-2 ソフトマターの時空間階層ゆらぎの解析
- 3-3 複雑系ソフトマター構造の時空間ゆらぎを放射光で見る ~見かけ倒しか本物か、 見極める!~
- 3-4 ナノビーム X 線散乱で高める QOL (Quality of Life) (執筆中)
- 3-5 ソフトマター材料の破壊を予測する! ~ 破壊予防、材料の信頼性獲得に貢献する! (執筆中)
- 3-6 アクティブマターの運動と構造
- 3-7 自然をまねる材料創製 ~生命科学現象の徹底解明!筋収縮の理解に向けた筋内の 微細構造変化(執筆中)
- 3-8 分光的小角散乱及び小角高角散乱によるナノスケールでの化学状態・局所構造分 布の解明
- 3-9 GI-SAXS 法を活用した界面の構造ダイナミクス解析に基づく界面反応過程の解明

第4章: 強相関電子系科学

- 4-1 準粒子の高精度分散測定による電子間相互作用解明
- 4-2 不均質系の機能発現機構
- 4-3 本質的な不均一性を示す強相関電子系の電子状態研究の新展開
- 4-4 コヒーレント共鳴軟 X 線回折による磁気テクスチャダイナミクスの観測
- 4-5 マルチフェロイックスにおける動的交差相関物性の微視的解明
- 4-6 強相関エレクトロニクスの開発に向けた電子・構造物性を同時に解明する複合放 射光実験
- 4-7 硬 X 線光電子顕微鏡による強相関デバイス研究
- 4-8 強相関酸化物デバイスの表面・界面物性:高輝度放射光による多自由度一括解析に むけて

第5章:表面·界面科学

- 5-1 表面・界面における原子移動の時空間構造研究
- 5-2 固液界面におけるエネルギー変換反応のオペランドX線解析
- 5-3 走査型大気圧光電子分光による表面反応のオペランド観測
- 5-4 太陽エネルギー変換材料表面における時空間キャリアダイナミクス
- 5-5 局在電子状態の原子分解能イメージングと特異励起状態の選択的創成
- 5-6 単原子シートの開拓とデバイス展開
- 5-7 スピン・バレートロニクスデバイスの実現に向けた新奇スピン偏極電子バンド構 造解析
- 5-8 3次元空間を伝わるスピンのダイナミクスの観察と制御

第6章:原子·分子科学

- 6-1 サイズ選別した孤立クラスターに対する時分割 X 線吸収分光測定
- 6-2 強いレーザー場中の原子・分子・クラスターの電子的構造とダイナミクスの解明
- 6-3 内殻二重空孔状態の精密分光による新しい化学分析法の創出
- 6-4 Cold Electron Collision 微分断面積測定実験

第7章:極限物性科学

- 7-1 多重極限(高圧力・低温/高温・強磁場)環境下でのサブ nm 及び数十 ns 分解能を 有する核共鳴散乱法を用いた電子・フォノン物性研究
- 7-2 衝撃圧縮下における不均一状態の観察
- 7-3 テラパスカル下での構造解析を目指したナノビーム利用と超高密度水素および水素化合物の超伝導状態の解明
- 7-4 高圧下での多次元分解非弾性分光法による軽元素物質科学の新展開
- 7-5 超高圧試料中の重要元素とその化学状態の高分解能 3D イメージング
- 7-6 高温高圧下におけるメルトの相転移と粘性の変化
- 7-7 高精細 XAFS イメージングによるフルイドーケイ酸塩間の元素分配の高圧下その場 観察
- 7-8 高圧変形その場観察による固体物質の応力場・配向性測定とレオロジーの理解

第8章:地球惑星·環境科学

- 8-1 X線顕微測定による太陽系の物質進化過程の解明
- 8-2 4 次元 X 線イメージングによる火山噴火素過程の解明
- 8-3 鉱物表面/流体界面の構造・物性から読み解く地球表層のダイナミクス
- 8-4 地球内部・表層環境進化史の精密理解のための多元素状態分析
- 8-5 資源探査・開発に向けた極微量元素の化学状態観察と循環過程の解明
- 8-6 気候変動の機構解明と将来予測への貢献
- 8-7 高空間分解 X 線顕微鏡による環境微生物学の新展開
- 8-8 植物を利用した環境浄化や資源回収
- 8-9 放射光 XRF-XAFS を用いた生体組織中微量金属元素の分布と化学状態評価および微 量金属の生体影響の解明
- 8-10 福島環境回復を目指した放射光研究
- 8-11 次期光源における食品科学 ~ナノビームを用いた極低濃度元素の化学状態、局所 構造分析~

第9章:X線光学

- 9-1 先端的X線波面計測
- 9-2 先端的X線結晶光学素子
- 9-3 自己組織化構造によるスーパーオシレーション現象を利用した X 線光学素子 (執筆中)
- 9-4 マルチコントラスト・マルチスケールの関心領域X線イメージング
- 9-5 X線反射率法を用いた先端的光学素子・測定法の開発
- 9-6 半導体素子等のナノスケールひずみ・欠陥解析
- 9-7 ピンポイントX線トポグラフィ(執筆中)

第1章 材料·触媒科学

本章では、KEK 放射光で可能となる高輝度/高コヒーレントの放射光ビームとそれを 活用する関連装置/設備/運営組織を活用することにより、材料および触媒科学分野に期 待できる展開について述べたい。

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

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

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

このような内外の状況を考えると、材料・触媒科学分野の日本の国際競争力を維持・ 発展させ将来にわたりイノベーションの創出を継続していくためには、(a)空間的・時 間的両面で材料のマルチスケールでの階層構造を明らかにし、(b)そうした膨大な構造 情報を有機的に結びつけ早期のイノベーションにつなげる研究拠点の構築が不可欠で ある。KEK 放射光の実現によりそれらが実現可能であることを、以下の各分野で期待 される展開に基づいて提案したい。

1-1. 空間&時間のマルチスケール観察と材料特性制御の研究開発

~材料中の化学状態の三次元へテロ構造をオペランド(機能発現下)で実時間観察する~

(1) 背景

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

例えば、排ガス浄化触媒を例にとると、実際の排ガス流れと同等にガス雰囲気が酸化雰 囲気<定示雰囲気と変化している環境において、排ガス中の NOx, CO, 炭化水素が N₂, CO₂, H₂O に変化(酸化還元)している状況(=オペランド(機能発現下))で、実際の時間スケー ル(msec~min)で、触媒のどの部位の化学状態や結晶構造が変化しているか(=化学状 態の三次元へテロ構造)を明らかにすることができると、貴金属クラスターそのものの構 造だけでなく、貴金属クラスターと担体との相互作用が触媒活性に関与している—そんな メカニズムが明らかになる。

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



図1 現状での観察法は、連続的にスケール領 域をカバーできず、限られた範囲のスケール領 域に限定されている。測定可能なそれぞれのス ケール領域間には観測できない"計測の隙間(谷 間)"の領域が存在している。



図2 化学状態の三次元ヘテロ構造 をオペランド(機能発現下)で実時間 観察 するインパクト: 新観察技術 により活性に寄与する部位を特定し (例えば、(左)貴金属(赤)の特定構造 部と担体との界面に生成した反応層 (緑))、その部位だけから構成される 新形態の触媒を設計する(右)。そし て省元素や反応効率アップを実現す る。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

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

"化学状態"や"結晶の配列"の異なるドメインが形成する"階層構造(三次元ヘテロ構造)"が明らかになると、電荷移動や原子拡散の素過程の観察結果と総合化することで新たなサイエンスの展開が可能となる。従来はそれぞれの階層構造にのみ有感な平均的な測定のため discrete な階層構造(図1)にとどまっていたが、各階層間をつなぐマルチスケールでの"階層構造(三次元ヘテロ構造)"の観察により、それぞれの階層をまたいだ相関により生じる現象を理解する理論体系の構築へと展開が期待できる。

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



- 図3 化学状態の三次元ヘテロ構造をオペランド(機能発現下)で実時間観察 するイメージ
 - (3) 必要とされるビームライン・実験設備
 - A. ビームライン

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

B. データ処理系

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

C. 材料評価実験ラボ

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

1-2. KEK 放射光による磁性材料分野の研究展開

(1) 背景

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

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

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

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

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

1. X線顕微鏡を用いたバルク磁性材料の磁気構造可視化

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

2. X線磁気円二色性 (XMCD) による磁性材料の高効率評価

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

3. X線回折による磁性材料の構造解析

永久磁石などの磁性材料においては、結晶粒界などに存在する副相と呼ばれる主相と異な る介在物相や不純物相が組織形成や磁気特性発現に重要な役割を果たしており、これらの 副相の構造や体積分率の定量評価、さらには結晶粒の配向度の評価が材料パラメータとし て重要なものであり、これらの材料パラメータを高効率で測定可能な X 線回折ビームライ ンが望ましい。しかしながら材料組織のサイズは数ナノメートルから数マイクロメートル であり、これらの組織の定量測定は従来の光源を使った測定では簡単ではない。KEK 放射 光によって得られる微小スポットサイズの X 線ビームのスキャニングによる分光や回折等 の測定や、高コヒーレンスを用いたタイコグラフィ等の手法を活用することにより、結晶 粒界などに存在する副相などの結晶構造を局所領域で測定可能になる。これらの評価は電 子顕微鏡やラボ X 線回折装置による予備実験と合わせて行うことでより高効率化すること が期待されるため、放射光実験室とは別に材料評価実験ラボを整備し、TEM, SEM/EBSD などの最先端の材料評価を可能にし、相補的な測定をオンサイトで実施することが必須で あると考えている。

4. 高温高圧 in situ 回折による製造プロセスの評価

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

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

その他に KEK 放射光での新展開についてここで述べておきたいことはデータ解析の重 要性である。現状の放射光利用研究では実験データ解析のスループットが律速になってい ることも多い。このような状況では単に光源性能が向上しても、サイエンスのアウトプッ トが飛躍的に向上することは見込めない。そこで、実験データ解析を最先端の情報処理技 術と融合することにより、これまで観測できなかった物理量の可視化や、スパースモデリ ングなどを用いて少ない情報やノイズに埋もれた情報から有用な知見を取り出す技術の開 発を強力に推進すべきであると考えている。さらにはロボットなどを用いた高効率測定に より大量のデータ取得を行い、得られたデータからデータマイニングなどの方法で帰納 的・発見的な材料科学研究へとつなげるべきであると考えている。さらには、測定やデー タの評価・解析に職人芸を要する従来の放射光実験の世界から脱却し、機械学習などを用 いて実験データ取得、データ解析などを自動化することにより、材料科学研究に真に役立 っKEK 放射光となることを期待している。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

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

1-3. 光触媒を用いた人工光合成の研究開発

(1) 背景

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

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

Artificial photosynthesis pathway from sunlight to fuels



© Royal Society of Chemistry

www.rsc.org/solar-fuels

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

光触媒反応は光エネルギーによって光触媒の中に生成する励起電子と正孔が活性種とな り、触媒近傍にある反応物との酸化還元反応により生成物を作り出す反応である。金属錯 体等の均一系光触媒においては、その多くは、光励起状態において配位子が外れた不飽和 なサイトに反応物が結合し、励起電子が反応物に移動(還元)することで触媒反応が進行 すると考えられている。しかしながら、このような基本的な配位子交換や、電荷移動であ っても、ほとんどの反応における反応中間体の構造は基底状態の分子構造と生成物から推
論されているに過ぎず、高機能な錯体合成を論理的に進めていくためには、これらの反応 における励起状態の可視化が不可欠であることは言うまでもない。

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

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

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



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

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

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

A. ビームライン

[リング性能]

大電荷孤立バンチを含む長期運転モード

低エミッタンス性能を確保した短パルス性能

[ビームライン性能]

孤立バンチ利用専用ビームライン2本(硬X線,軟X線)

X線時間分解計測で必要なサンプル上でのパルスエネルギー:>10⁶ photons/pulse 可変集光サイズ(50マイクロメートル ~ 10ナノメートル)

B. 実験設備

サンプル励起用波長・周波数可変レーザー(UV~NIR, 10Hz~1MHz) 硬X線、軟X線用高速検出器およびデーター処理システム 軟X線大気圧測定用差動排気測定系

1-5. KEK 放射光を利用した時間分解 XAFS 実験

(1) 背景

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

太陽電池や光触媒の性能の大きな部分は、光を吸収し電子などのキャリアに変換する物 質(半導体や光増感剤など)が決めている。そのため、これらの光励起状態を捉え、キャリア がどのように伝搬するかを明らかにすることは、太陽電池や光触媒の高効率化において重 要な知見となる。これまで、半導体や光増感剤など有機金属錯体の光励起状態は、主にレ

ーザーを用いた分光法 によって調べられてき た。これらの分光法では、 キャリアの寿命などを フェムト秒オーダーの 時間分解能で捉えるこ とが可能である。ところ が、レーザーによる分光 法では、光キャリアのレ ーザーへの応答を観測 しているために、光キャ リアの生成量などは推 定できるものの、光吸収に 伴うキャリアが物質内のど



色素増感太陽電池における各プロセスの模式図

こにいるのか、またどのようなプロセスで消費されるかなど、周辺情報を含んだ知見を得 ることが出来ない。一方で放射光から得られる X 線を用いると、レーザー分光では得られ ない物質内の原子・分子の情報とともに、光キャリアの寿命や消費過程等を議論すること が可能となる。例えば、色素増感太陽電池では、N719 色素などの金属錯体上が光吸収を起 こし光キャリアが発生する。発生した光キャリアは、担体である TiO₂ へと伝搬する。X 線 を用いると、金属錯体上と担体上の光キャリアを区別して測定することが可能である。そ のため、キャリア生成~キャリアの伝搬という一連の過程を追跡することが可能である。 太陽電池や光触媒の素過程を解明するには、fs オーダーの光吸収によるキャリア生成、 ps~ns オーダーのキャリア伝搬、µs オーダーの再生プロセスと幅広い時間領域をカバーす る必要がある。後述のように、fs オーダー及び ps~ns オーダーの実験については、可能と なりつつある。一方で、µs オーダーについては現在のところ有効な解決策がない。新たな 光源では、µs オーダーで進行する現象について適用可能な方法論の開発が望まれる。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

[時間分解 XAFS の現状]

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

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

[マイクロ秒領域の時間分解 XAFS]

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

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

反応終了後の計測データを時系列整理することにより時間分解 XAFS スペクトルを取得す ることが考えられる。光励起によって生じたキャリアがマイクロ秒オーダーで消費される 過程を観測するには、励起レーザーの間隔が十分長ければ(例えばレーザーを 10 kHz など)、 次の励起レーザーが来るまでには試料の状態は基底状態に戻っている。放射光 X 線が 500 MHz のマルチバンチである場合には、2 ns おきに X 線が試料に照射されているので、X 線 が検出器に入った瞬間の時刻と強度を計測することが出来れば、最速で 2 ns の時間分解能 で XAFS スペクトルを取得することが可能となる。この実験方法には、まず X 線を高感度 に検出し、かつ 2 ns で応答する高速な検出器と 2 ns おきにやってくる検出器からの信号を 処理できる計測システムが必要である。検出器については、2 ns 間隔の X 線パルスを追随 できるものはあるものの、現状の計測機器では 2 ns おきに X 線パルスを取り込むことが出 来ない(現状では 1 秒あたり 10⁶ イベント程度が限界)。

こうした手法の実現には高度な計測機器の整備が必要であるが KEK 放射光ではそれが 実現可能である。KEK はこれまで素粒子物理学の実験のために、高度な計測機器の開発を 行っており、その技術を活かしたベンチャー企業も創出されている。そのノウハウを活か すことで、これまでにない計測システムを構築することが可能である。また、計測される データはX線を検出する毎に記録されるため、1秒間で最大500×10⁶のイベントが生成し、 データが非常に膨大なものとなる。大規模データを集積し高速に処理するには、高性能な 計算機が必要である。KEK には、既に共用計算機が完備されており、更に申請すればスー パーコンピュータも使う事が可能である。計測機器と処理システムを統合して、全く新し い高度な測定システムの創出が期待できる。

更にこの検出方法は、X線フォトンを検出する実験に応用することが可能である。例えば、 X線回折のような手法も、X線をパルスとして検出し、検出時間を決定することで上述と同 様な実験を行うことができる。KEK 放射光の高いコヒーレンスを活かした回折実験などに も適用可能である。例えば、金属-絶縁体相転移を示す VO2では、均一な薄膜材料を作成し



KEK 放射光のマルチバンチを利用した時間分解 XAFS 計測システム

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

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

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

・ピコ秒時間分解 XAFS 実験ステーション

▶ エネルギー範囲: 4 keV ~ 30 keV

▶ 10 W@1 MHz 出力の高出力レーザー(基本波: 1030 nm もしくは 1064 nm、2 倍波・ 3 倍波)

- ▶ レーザーブース、レーザー光学系設備
- ▶ flux: 孤立バンチで、10¹¹ 10¹² photons/s
- ビームサイズ: 10 μm 未満
- ・マイクロ秒時間分解 XAFS 実験ステーション
- ▶ エネルギー範囲: 4 keV ~ 30 keV

▶ 10 W@100 kHz 出力の高出力レーザー(基本波: 1030 nm もしくは 1064 nm、2 倍波・ 3 倍波)

- ▶ レーザーブース、レーザー光学系設備
- ▶ flux: マルチバンチで、10¹² 10¹³ photons/s
- ビームサイズ: 10 μm 未満
- ▶ KEK 共通計算機を使用した解析システム及び大容量記憶媒体設備

1-6. 次世代放射光源に期待される材料研究のための新手法の発展

(1) 背景

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

例えば、エネルギーデバイスは、従来の電気化学的手法に頼った分析から、放射光を利用 して、温度・反応ガス・電位・電流などを制御しながらデバイス動作下でその場分析を行う ことにより、分子レベルでの直接的な観察が実現されるようになってきている。エネルギー



図1 エネルギー技術と空間スケールごとに解決すべき課題[1]

デバイスは、様々なサイズの要素か ら構成される複合構造体であり、 nmからmmオーダーの空間的な階 層構造をもつ。図1は、代表的なエ ネルギーデバイスの性能向上に向 けた課題について、空間スケール毎 に整理したものである(JST低炭素 社会戦略センター[1])。これらの課 題に対して、放射光を用いた構造・ 状態分析に基づく解決が試みられ てきている[2,3,4]。中でもX線吸収 分光法(XAS法)は結晶および非 結晶試料双方に高感度に適用でき



図2 走査型 XAS 法により得た SOFC 空気極内の 電気化学反応空間分布[2]

るため、両者から構成されるエネルギーデバイスに対して有効であり、多くの成果を挙げて いる。図2は、固体酸化物形燃料電池(SOFC)に対し、KBミラーによる集光X線ビーム (1µm)を用いた走査型XAS法により明らかにされた空気極内の電気化学反応の空間分布 を示す[2]。この研究では、電極内のmmオーダーの反応領域で反応が進行する様子を空間 分解能:µm、時間分解能:秒で観察することに成功しており、現在ではさらに100nmオー ダーの空間分解能での分析へと発展している。しかしながら、電池動作の鍵となる電極表面 界面で起こる反応を直接的に観察するには、現状の計測法の空間分解能(数 10nm~100 nm)・ビーム強度では不十分であり、実施に至っていない。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

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

また、KEK 放射光では、コヒーレント X 線フラックスの増大により、コヒーレント X 線回折イメージング (CDI) 法を用いた分光イメージング法の利用が期待される。CDI 法 は、原理的には波長限界の空間分解能(原子分解能)が達成できる手法であり、特に走査型の CDI 法である ptychography 法は、広い測定視野が必要な観察対象に対して適用可能な手

法として、最近、第3世代放射光施設で手法開発・利用 研究が開始されつつある。図 3 に、PETRAIII での ptychography 分光イメージング法の事例を示す。1 μm 程度の視野を 20×20 のステップで ptychography 計測

(計測時間:600s)し、空間分解能:19 nm で、Au-NPs の Au 価数判別を行っている[5]。しかしながら、多くの 第3世代放射光施設では、コヒーレンスフラックス比率 は 0.1%程度で、計測に使用できる実効的フラックスは 10⁹ phs/s 程度であるため、各エネルギー点での ptychography 計測を必要とする分光イメージング計測 には多大なビームタイムが必要となっている。図3の例 では、1イメージを測定するのに、20 点×20 点×1.5 秒 = 10 分を要し、それを多くのエネルギー点(数 10 点) で測定するための時間が必要となる。そのための現状で は、反応や経時変化を観察するのは事実上困難である。



KEK 放射光では、コヒーレントフラックスが現状の 図 3. Ptychography+XAFS 法に数 10 倍以上に向上することが期待されるため、 よる Au-NPs の再構成像と得ら ptychography 分光イメージング法(空間分解能:サブ 10 れた位相シフトスペクトル[5]

nm)を用いた実試料に対する利用研究展開(in-situ/operando計測)の実現が期待される。 さらに、試料の厚さ方向の heterogeneity を考慮した multi-slice の方法や、3D XAFS-CT、 3D 蛍光測定等の測定を併用することにより、高分解能かつ3次元での観察法の実現も夢で はない。

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- CDI/ptychography-XAFS 用実験ビームステーション(スペックルフリーな光学系、 集光光学素子、大面積高ダイナミックレンジ2次元検出器等)
- ・大容量画像データ解析設備(大面積2次元検出器の画像の保存・複数並列処理に耐 え得るサーバー、高速データ処理システム及び自動画像解析プログラム)
- [1] JST 低炭素社会戦略センター資料 (<u>http://www.jst.go.jp/lcs/</u>)
- [2] K. Amezawa et al. *ECS Transactions*, **66**(2), 129 (2015).
- [3] K. Ohara et al. Sci. Rep. 6 21302(2016).
- [4] T. Miyadate et al. Nano Lett., 2015, 15 (8), 563.
- [5] R.Hoppe et. al., APL **102**. 203104(2013)

1-7. ナノ集光ビームによる誘電体材料研究の新展開

(1) 背景

【概要】

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

【本研究提案のねらい】

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

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

【空間分解能に対する期待】

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

【エネルギー分解能・輝度に対する期待】

誘電体の電子状態研究では、入射光の空間分解能の高さだけでなく、エネルギー分解能 と輝度も重要な要素である。エネルギー分解能と輝度は逆相関の関係にあるため、例えば 誘電特性と密接に関係する微小なスペクトル構造の空間分布を精度良く測定することは、 既存の放射光施設では現実的ではない。KEK 放射光ではこの状況が改善され、特に二次光 学過程ゆえ強度の弱い発光分光では、刷新的な結果が期待できる。例えば、誘電体物質の 主要元素である Ti K 吸収端[5 keV]におけるエネルギー分解能 0.1 eV を十分な強度で測定 できる。 【単一ドメインの物質機能と電子状態の相関】

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

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

【ナノ集光ビームを用いた単一ドメインX線分光研究】

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



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

【実験手法の組み合わせによる研究の発展】

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

こうした使用中に進行する電子構造や結晶構造の数 nm レベルでの不均一 (heterogeneity)をオペランド測定により明らかにすることで、材料の劣化メカニズムを 明らかにすることができる。本提案で計画している研究は、「原子スケールの局在的な情報 に敏感な X 線分光 (XAS, XES など)」と「ランダウ理論などで説明される巨視的な物理量 (誘電率、ドメイン構造)」の間を取り持つ中間スケール (mesoscopic scale)の挙動を直

接調べる新たな研究手法として展開していくことが期待される。さらに、測定手法が確立 していくことで、同じドメイン構造を持つ磁性体分野のサイエンスへの展開も図れる。

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

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

1-8. 非線形非弾性 X 線散乱

(2光子吸収による非弾性散乱)

(1) 背景

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

光散乱は、励起・輻射で双極子遷移 (Δℓ=±1)がコヒーレントに連続する過程であるので、 基本的に偶パリティの素励起(単極子・四重極子)が活性である。奇パリティである双極 子励起は本来不活性であるが、共鳴状態では強度増大により観測可能になる場合もある。 それは、いわゆる共鳴非弾性 X 線散乱 (RIXS)であり、別の言い方をすれば共鳴 X 線ラマ ン散乱である。

非線形効果は、レーザーを用いた可視ラマン散乱では既に利用されている。高強度のレ ーザーによって 2 光子吸収を誘起し、その励起状態からの輻射を観測することで非線形散 乱であるハイパーラマン散乱が観測される。この散乱は双極子遷移を励起で 2 過程、輻射 で 1 過程の計 3 過程含むため、奇パリティの素励起が活性となる。非共鳴状態で双極子励 起が活性になるだけでなく、通常の光散乱や光吸収法で観測できない 8 重極子励起も活性 になる。具体的には、SiO₂中のSiO₄クラスタやペロブスカイト中のMO₆クラスタの揺らぎ などが観測されている。

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

図は、巨大誘電率を示す CaCu₃Ti₄O₁₂の Cu K 共鳴 X 線 ラマン散乱(XRS)スペクトル((b), (c), (d))を吸収スペ



図 XRS スペクトルと XAS スペクトルの比較[1]

クトル(XAS)((a),(b))と比較したものである[1]。ここでは Cu 2p3d 及び 2p4p の内殻素 励起(下線は正孔の意)による散乱を測定している。(d)は K 吸収端以下で励起された非共 鳴スペクトルであり、(e)の Cu K 吸収スペクトルとよく似た非占有 4p 状態を反映している。 (b)と(c)は吸収端で励起したスペクトルであり、それぞれ異なるピーク(P₁, P₂)が共鳴増大 している。それぞれが異なる 3d 状態を反映していると考えられる。ここで重要なのは、K 吸収スペクトル(e)で弱く観測されているピーク(~0 eV)が、ラマン散乱スペクトルで大き く増大している点である。吸収スペクトルでは本来禁制で観測が難しい 3d 状態を、ラマン 散乱では強調して観測することができることを示している。同様の測定は Ti K 端でも観測 されており、Cu-O 及び Ti-O 間の共有結合性を示唆している。更に、この物質は低温で構造 相転移を伴わずに誘電率が約 1/100 に減少する異常を示す[2]が、XRS における各 3d 状態が 温度変化しており、電子構造と誘電率異常の関連性が示唆される。このように XRS は、埋 もれた電子状態や測定が難しい絶縁体の電子状態を抽出可能であるが、同様の測定を放射 光による 2 光子吸収で行えば直接 3d 状態に励起することが可能であり、他の状態に埋もれ て観測が難しい 3d 状態を選択的かつ明瞭に抽出することが可能であると考えられる。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

放射光を用いて 2 光子吸収の測定を行うためには、高い光子密度と時間コヒーレンスが 重要である。励起寿命の時間内で一つの原子に 2 光子が吸収されなければならない。励起 ビームは、高フラックスで高輝度であることが必要である。一般に先端的放射光は空間コ ヒーレンスが向上するが、短パルス化することで時間コヒーレンスの向上も期待される。 もう一つ重要なことは、散乱光は励起光のエネルギーのおよそ 2 倍のエネルギーを持つこ とである ($\hbar\omega_{rad} = 2\hbar\omega_{ex} - \Delta$)。つまり、共鳴させるためには、吸収端の半分のエネルギー で励起する必要がある (下記テーブル参照)。また、中間状態が d 殻や f 殻であると共鳴効 果が大きいと考えられるので、遷移金属や希土類金属の s→d や p→f の励起が研究対象にな る。ここで、最も重要な 3d 遷移金属の K 吸収端や希土類金属の L 吸収端は、励起エネルギ ーが 2~5 keV の領域であるので、このエネルギー領域のビームラインの開発がぜひ望まれる ところである。一方で、希土類金属の M 吸収端であれば 3p→4f 吸収端が軟 X 線領域になる。 そのとき、4d4f などの双極子励起が活性になり、加えて 8 重極子励起(4f 状態の揺らぎ?) の観測も期待される。

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

[1] submitted to J. Elec. Spec. Relat. Phenom.; PF Activity Report 2013 #31-B, 323 (2014)
 [2] A.P. Ramirez, et al., Solid State Commun.,115, 217 (2000).

	励起内殻	中間状態	吸収端/検知 エネルギー (eV)	励起エネルギー(eV)
軟X線	3d 遷移金属 2p	(4f) or 連続準位	400 ~ 1000) 200 ~ 500
	希土類金属 3d	連続準位	800 ~ 1500) 400 ~ 750
	希土類金属 3p	4 <i>f</i>	1200 ~ 2200) 600 ~ 1100
硬X線	3d 遷移金属 1s	3 <i>d</i>	4500 ~ 9000) 2250 ~ 4500
	希土類金属 2p	4 <i>f</i>	5800 ~ 1000	0 2900 ~ 5000
	4d 遷移金属 1s	4d	17000 ~ 2500	0 8500 ~ 12500

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

X線非弾性散乱測定装置(軟 X線、硬 X線)
 ワイドなエネルギーレンジ
 高コヒーレンス・高輝度(高フラックス)ビームライン
 時間コヒーレンスが重要
 短パルス化して光子の時間密度を上げることが重要

1-9. 次世代放射光源での蛍光 X線ホログラフィー測定の新展開

(1) 背景

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

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



図1 電圧印加型磁気デバイス



図2 マイクロビーム利用 XFH 測定

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

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

または、

・硬X線サブマイクロ・ナノビーム汎用実験ビームステーション

(1 m ×0.5 m の持ち込み測定装置が設置利用できる硬X線マイクロビームライン)

- [1] K. Hayashi, et al., J. Phys.: Condens. Matter, 24, (2012) 093201.
- [2] T. Maruyama, et al., Nature Nanotechnology, 4 (2009) 158.

1-10. 社会インフラ・構造材料の観察と材料特性制御 ~材料中の空間的&時間的 階層構造の観察から、

不可逆反応(亀裂,劣化,相転移,拡散)の起点と進展を明らかにする~

(1) 背景

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





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

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



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

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光では、空間的&時間的階層構造をマルチスケールで観察可能となる(図3)。 例えば、10秒~数分程度で、組織や欠陥構造だけでなく化学状態を三次元 CT 観察する on-the-fly 測定が可能になり、数時間で材料三次元内の任意の位置でのエネルギースペクト ルからなる化学状態の"階層構造(三次元ヘテロ構造)"を高空間分解能(~50nm)で得る ことが可能になる(1-1参照)。 さらに KEK 放射光では、こうした階層構造の観察を ms~ns の広範囲で時分割測定が可 能となる。弾性域を超えた領域での弾性変形から塑性変形への移行に伴うナノレベルの原 子構造の変化、さらに局所で発生した原子レベルでの変形が synchronize してマクロの協 調現象(例えば、破壊や相転移)へと変化していくメカニズムを明らかにすることができ る。KEK 放射光による 10 ピコ秒のパルス幅の X 線とナノビームの利点を使用することに より衝撃波の立ち上りや、衝撃波面での原子移動などの不均一な状態から発生する破壊初 期過程を現象論としてではなく不均一系の物理現象として議論が生まれる。その結果、従



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

来欠けていた破壊のメカニズムをシームレスにつなぐサイエンスの構築が可能になる(図 3)。さらに、パルスナノビームを用いた局所構造解析+マイクロ構造解析と多量データ 解析により破壊ダイナミクスの空間階層構造を統一的に解明することが可能になる。不均 ーな反応が発生し構造が安定化するまでの原子の移動、ずれの初期過程の物理現象を理解 することでクリープから衝撃破壊までの材料破壊における初期破壊過程を KEK 放射光の パルス性とナノビームにより明らかにすることが出来る。さらに、10 ピコ秒レベルでの準 安定・非平衡状態の観察と非平衡状態を可視化することにより、パルス外場による材料の 準安定・非平衡状態を介した材料創製という新たな展開も期待できる(図 4)。 こうしたサイエンスは、(1) 構造物の重要な構造材料であ る鉄鋼等の金属系材料やセメ ントなどの製造や劣化の制御、 (2)航空機の次世代材料である SiC/SiC,CFRP,耐熱合金,耐環 境セラミックスコーティング の製造と亀裂の制御、(3)発電 やプラントのシステムの省 CO₂・省エネ化、(4)自動車や 鉄道の軽量化によるに省エネ 化、と広く社会的インパクトを 与えることが期待できる。



原子相関距離

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

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

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

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

1-11. 次世代放射光源で展開される改質触媒、光触媒研究

(1) 背景

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

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

反応物質の導入をトリガーとする時間分解XAFS法での触媒反応の動的解析に関しては、 より高精度な DXAFS 測定法を確立する必要がある。湾曲結晶をポリクロメーターとして 用いる DXAFS 法では、波長分散した X 線が集光する位置に試料を配置するものの、集光 位置での X 線の収差によって、異なるエネルギーの X 線が異なる試料位置を通過してしま うことが現在の問題点である。光源サイズの大きさが収差を生み出す主要因であるため、 約 100 pm rad の低エミッタンスを達成する KEK 放射光を適切なポリクロメーター湾曲機 構と組み合わせて用いることにより、従来は困難であったマイクロ秒の時間分解能での EXAFS 解析が可能な DXAFS 測定が達成される。また、反応系によってはミリ秒までの時 間分解 XAFS 解析が不可欠であり、通常の XAFS 測定環境を備えたクイックスキャン型ス テーションは、多くの触媒材料の解析に用いられる汎用測定環境として整備が不可欠であ る。マイクロ秒~ミリ秒の広い時間域での測定法を複合的に用いることで、動的構造変化 の詳細な知見を基にした触媒反応解析が可能になる。反応の過渡過程に存在する短寿命中 間体が存在する場合には、その原子間距離や配位数などの構造情報を指標とする反応メカ ニズムの直接解析が可能となる。中間体が存在しない場合にも、触媒活性種の動的時間変 化の反応条件に対する応答を解析することで、反応メカニズムにアプローチできる。改質 触媒についての反応メカニズムの理解は、炭化水素から水素への物質変換に必要な触媒の 状態を明らかにすることになり、近未来の社会で必要となる量の水素を生成し、それをモ バイルで達成するための技術革新を導くものと期待される。

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

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

- (3) 必要とされるビームライン・実験設備
 - DXAFS 解析用ビームステーション(1 keV 以上のバンド幅を持つ幅広 X 線、2~約 25 keV 域、10¹³ photons/s 以上)
 - ・ ポンプ・プローブ XAFS 解析用ビームステーション(単色、2~約 25 keV 域、300 ~600 nm 域の fs パルスレーザー)
 - 汎用クイックスキャン XAFS 解析用ビームステーション(単色、2~約 25 keV 域、1 ms までのクイックスキャン計測環境)

1-12. 次世代 XAFS 法によるサステナブル触媒研究

(1) 背景

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

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

触媒科学の目から見て XAFS 法の今後の目指すべき道としては,

- (a) 触媒表面の解析に必要な高時間,高空間分解測定の両立と深化
- (b) 化学種選択・サイト選択・結合選択性の付与と化学状態分析の高度化
- (c) 実試料の"そのまま解析"と産業の活性化につなげる
- (d) 新しい制度・運営体制の創設

があげられる。

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

i) 2 次元高時間分解能測定ないしは 3 次元空間分解測定

触媒反応は,不均一な表面で進行する。KEK 放射光で実現可能なことは,最高 10 nm 程 度の微小焦点を持ち,200 nm x 100 nm で 10¹⁴ photons/s である。これにより不均一な 表面を解析することができる。たとえば,1-10 nm 程度の金属ナノ粒子触媒を 1 つずつ解 析することが可能になる。大きな立体角で試料からの信号を計測可能な Bent Crystal Laue Analyzer (BCLA)などの結晶分光器により,しかも数秒-数+分程度の時間分解の XAFS を 実現させ,反応条件下での定常状態 1 ナノ粒子解析や非定常下(温度,圧力ジャンプ)に よる秒オーダのダイナミック in situ 測定を実現する。さらに今後の技術開発により,ms か ら µs のオーダの時間分可能を達成することで,反応メカニズムの詳細を解析できると期待 される。これにより様々な活性構造の平均構造をえる今までのアプローチから、反応中ダ イナミック変化する 1 個 1 個の粒子の表面・内部の不均一構造を明らかにするアプローチ が可能となる。こうした進歩は触媒理解を進める全く新たな計測技術が可能となり,ブラ ックボックスとして扱われた触媒の 1 面が明らかになる。また,反応サイトのナノレベル の特定から TEM や SEM などを実験ハッチや施設内に整備し,同視野分析を可能にするこ とにより総合的な触媒研究が可能となることから、KEK-LS ではその整備が必須である。

ii) 多次元高エネルギー分解能発光分光

発光分光法は、高輝度化し点光源が得られることで、さらに深化する。この手法によ り期待されるサイエンスは、吸光・発光分光法による電子状態、結合状態の高度解析(一例 として Pt ナノ粒子の吸着種の同定研究など(Nanoscale 5 8462、2013)特定の発光スペク トルエネルギーに基づくサイト選択測定、2 種類の元素の間の相互作用に基づく結合選択ス ペクトル、和周波混合界面選択 XAFS(SFG-XAFS for Interface analysis), X 線ラマンに よる軽元素の XAFS の高エネルギー測定の実用化など KEK-LS やその次の CW-XFEL など の光源で新たな可能性が広がることが期待される。

iii) 実触媒のハイスループット解析によるイノベーションの創出

透過型電子顕微鏡(TEM)の飛躍的進歩(大気下,超高分解能化,3次元測定,超高速測定, 低ダメージ化)により,従来 XAFS でしかわからなかった情報が次々と明らかになり, XAFS の必要性は薄れつつある。高性能 TEM でできず, XAFS でしかできないことは,唯一実サ ンプルを薄片化処理なしで観測することである。すなわち,実サンプルをそのまま実条件 下で測定することである。さらに、動作中の触媒粒子をそのまま透過 X線による高度解析

(chemical imaging および ptychography による 10nm 以下の空間分解能での微細組織観 察)により、触媒粒子の表面/内部のどの部分が変化して反応に寄与しているかを明らかに することができるのも、電子線では不可能なことのひとつである。XAFS が実サンプルを解 析し,それが大きな進展をもたらした例として,化学センサーの例が挙げられる。(Physical Chemistry and Chemical Physics, 18,7374,2016)) さらに、サンプルをそのまま測定に加 えて、一括して処理,同時測定する high throughput 測定技術は、high throughput 解析技 術と相まって、構造・物性と活性相関の取得やビックデータベースの創出など産業界への インパクトの大きな技術として発展するであろう。

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

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

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

第1章 材料·触媒科学

*担当一覧 監修:田渕 雅夫(名古屋大学) 執筆分担: まえがき 木村 正雄 (KEK 物構研) 木村 正雄(KEK 物構研)、武市 泰男(KEK 物構研) 第1節 第2節 小野 寛太(KEK 物構研) 第3節 野澤 俊介(KEK 物構研) 第4節 (執筆中) 第5節 上村 洋平 (分子科学研究所) 第6節 新田 清文(公益財団法人高輝度光科学研究センター) 第7節 中島 伸夫 (広島大学)、手塚泰久 (弘前大学) 手塚 泰久(弘前大学) 第8節 第9節 八方 直久 (広島市立大学)、林 好一 (名古屋工業大学)、 細川 伸也(熊本大学) 第10節 木村 正雄(KEK 物構研)、一柳 光平(KEK 物構研)、 丹羽 尉博 (KEK 物構研)、その他1名 第11節 稲田 康宏(立命館大学) 第12節 朝倉 清高(北海道大学)

(日本 XAFS 研究会、XAFS 将来検討委員会の答申をふまえて作成)

校閲協力:

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

第2章 生命科学

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

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

このような状況下で重要な研究アプローチが,原子分解能で座標情報(立体構造情報) を知ることができるX線結晶構造解析である。1953年に,Max Perutz,John Kendrewに より初めてタンパク質の結晶構造が解明されて以来,これまでに10万件あまりのタンパク 質の立体構造が解明され,数多くのノーベル賞が授与されてきた(1962年:Max Perutz, John Kendrew, 1964年:Dorothy Hodgkin, 1982年:Aaron Klug, 1988年:Johann Deisenhofer, Robert Huber, Hartmut Michel, 1997年:Johnnie Walker, 2003年:Roderick MacKinnon, 2006年: Roger Kornberg, 2009年: Venkatraman Ramakrishnan, Thomas Steitz, Ada Yonath, 2012年:Brian Kobilka)。これらの研究成果は,生命が持つ基本原 理の一端を解き明かしただけでなく,医療分野においては「構造に基づく創薬」という新 たな概念を生み出し,近年の医学創薬研究の強大な推進力となっている。

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

今後,生体内により近い状況で生命現象を理解するためには,超分子複合体の立体構造 解析が必須である。また,細胞外の状況を細胞内の超分子複合体へと伝えて物質生産の制 御を行うネットワークを理解するために,細胞膜を貫通して細胞内外をつなげる膜タンパ ク質の働きを知ることが重要である。さらに,医学創薬分野への応用に向けて,得られた 立体構造情報に基づいて薬剤となる化合物を発見するために,タンパク質と化合物の複合 体の立体構造解析を大規模スクリーニングとして行うことが肝要であり,現在よりもさら に自動化された迅速な立体構造解析パイプラインの構築が必要となる。加えて,分子集団 ネットワークの動的構造を,近年特に発展の著しいX線小角散乱法などによって理解するこ とや,得られた立体構造情報と細胞・個体を対象とした放射線科学の研究成果と組み合わ せることによって,生命現象の背後にある分子機構を幅広い階層性で理解することが求め られている。しかしながらこれらの研究課題は,後述する通り,既存施設の延長線上に想 定される研究では解決が困難であり,強度10¹² ph/sec以上かつビーム径が1-50 μmで可変な ど高い能力を有する新しい光源と,それを最大限に生かすための付帯設備の整備を行うこ とで初めて解決されうる課題である。以上のような生命科学分野の最先端の状況を踏まえ て,本項目では,KEK放射光における生命科学研究について記述を進めたい。

2-1. 細胞の運命決定を担う超分子巨大複合体の立体構造解析

(1) 背景

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

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

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

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

(2)KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光で利用可能となる下記のビームライン・実験設備 によって上述の問題点を克服し,超分子複合体の立体構造解明 とそれに基づく生命の基本原理解明を行う(図 2)。KEK 放射 光では④に対応して,結晶サイズに合わせて 1-100 µm 径のビー ムを自由に選択可能で,かつ高輝度で平行性の高いビームが利 用可能となる。その結果,得られた結晶が数 µm 程度の微小結 晶であってもデータ収集が可能になる(図 3)。さらに,高速・ 高感度・低バックグラウンドでデータ収集を遂行できる検出器 を導入することによって,放射線損傷の影響を軽減できる。ま



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



図2 超分子複合体の立体構造解析に向けた戦略。

た KEK 放射光では,結晶の位置を発見するラスター スキャンなどのシステムを導入することによって,視 認困難な結晶からもデータ収集が可能になる。加えて, Serial Crystallography に対応した装置および解析ライ ンを導入することによって,1つの結晶からではフル セットのデータを得られない場合でも,複数の結晶か ら集めたデータを重ね合わせることによって解析が可 能になる。

 C,
 放射光 X 線
 高速・高感度の

 イ
 ノレ
 溶液

 小さい結晶しかできない場合、
 - 周辺の溶液がノイズになるので「細いX線」が必要

 6 可」
 ・ 周辺の溶液がノイズになるので「細いX線」が必要

蛋白質結晶

になる。 図3 タンパク質のX線結晶解析に必要なデータ測定装置。 また、放射光での研究を支える技術として、以下の

点においても KEK 放射光では改善が望まれる。①については,KEK 放射光では数百リットル規模での 大量培養装置や大量精製装置を備えた付属施設を設置し,出発材料の量を増やすことによって,発現量 が少ないという問題点の克服が可能になる。また,ナノリットルスケールでの結晶化スクリーニングが 可能な自動微量結晶化ロボットを導入することによって,大量の精製標品を得にくい超分子複合体であ っても網羅的な結晶化スクリーニングが可能になる。②については,KEK 放射光では動的光散乱や静的 光散乱などの装置に加えて,現状の1割程度の濃度で測定可能な高感度かつサンプルへの放射線損傷が 少ない BioSAXS ビームラインを構築することによって,精製標品の単分散性や粒子サイズの均一性が 測定可能になる。また,CryoSAXS(抗凍結剤中で100 K で測定)を導入することによって,露光時間 を数百倍に延長することで,少量かつ低濃度でしか得られない精製標品からのデータ測定が可能になる。 ③については,KEK 放射光では超分子複合体の形状を確認するのに最も適した方法である極低温電子顕 微鏡を備えた付属施設を設置することによって,超分子複合体が均一な形状となる条件を検討すること が可能となる。

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- ・タンパク質のX線結晶解析用ビームライン(エネルギー:12.4 keV,ビーム径:1-50 μm 径を自由に選 択可能,強度:10¹² ph/sec 以上,その他:ラスタースキャン対応・Serial Crystallography 対応・結晶化 プレートからの直接測定対応・自動マウント,自動センタリング,自動測定,自動解析が可能)
- ・DNA 組み換え実験・大量培養・大量精製が可能な付属施設
- ・低濃度で測定可能な BioSAXS 用ビームライン(CryoSAXS 対応)
- · 極低温電子顕微鏡
- ・自動微量結晶化ロボット

2-2. 膜タンパク質巨大複合体の立体構造解析

(1) 背景

細胞は脂質二重膜によって外界と厳密に隔てられており、細胞内と外界との情報や物質の交換は、す べて膜を介して行われている。これらの情報/物質交換の役割を担うのが細胞膜を貫通して存在する「膜 タンパク質」である。膜タンパク質は、細胞外の情報受容伝達、物質の取込みや細胞内の不要物の排出、 エネルギー変換など、生命活動維持に必須な機能を担っており、その機能と構造の理解は生命科学にお いて重要な課題と認識されている。また、受容体・イオンチャネル・輸送体などの膜タンパク質は多く の疾患に関連することが知られているが、細胞表面に露出していることから薬剤の標的となりやすく、

現在市販されている薬の半数以上は膜タンパク質 が標的となっている(図1青・オレンジ)。近年, 薬剤の設計・改良において,標的タンパク質の三 次元構造を基にしたアプローチの有効性が示され ており,膜タンパク質の立体構造の解明が強く求 められている。しかしながら現時点において膜タ ンパク質の立体構造解析は水溶性タンパク質に比 べて大きく遅れている。ヒトゲノムには 20-30%の 膜タンパク質の遺伝子がコードされているが(約 4000-6000 種類に相当),構造決定されたヒトの膜 タンパク質でユニークなものは約 70 種類しかない (2016 年 2 月 1 日時点)。



■Gタンパク結合型受容体 ■酵素 ■ホルモン・因子 ■イオンチャネル ■核内受容体 ■DNA結合・修復 ■不明

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

(2)KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光で利用可能となる以下のビームライン・実験設備によって上記の点を克服し、膜タンパク

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



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

図1 現存する薬剤の標的タンパク(BioMed 社調べ)。

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

さらに、現在の世界的な水準では単独で働く膜タンパク質の構造解析でさえ困難であるが、多くの膜 タンパク質は生体内で複合体を形成して働くことが知られている。KEK 放射光においては高輝度・低エ ミッタンスのビームおよび超分子複合体の立体構造解析に必要な付属施設を設置することによって、膜 タンパク質を複合体の状態で構造解析することが可能になる。2011年に初めて β-アドレナリン受容体 とGタンパク質との複合体構造が決定され、その功績によりブライアン・コビルカ博士は 2012年にノ ーベル化学賞を受賞しており、KEK 放射光においてこれらの結晶構造解析を行うことで、同等の医学的 にも重要な成果が得られるものと期待する。また、現状では生物学的に重要な電子伝達系複合体、病原 性に関わる病原菌外膜複合体などの構造学的知見も十分に得られていないが、KEK 放射光ではこれらの 膜タンパク質複合体の結晶構造解析が大きく加速されるであろう。これらの構造に基づき、細胞内外を つなぐ情報伝達の様子や、薬剤の作用機序の解明が可能となり、そのような知見が蓄積することで、生 物学に新しい展開をもたらすと思われる。さらに、回折実験と分光実験とを同時に行えるビームライン を構築し、構造と化学的機能とを直接結びつけることが可能になる。加えて、光源の高輝度、高コヒー レンスなX線を用いた時分割ラウェ法を導入して、結晶構造解析の分野においては比較的苦手とされて きたタンパク質の動的な情報も収集することが可能になり、ミリ-ナノ秒単位での構造変化を伴う反応 現象の中間、前駆過程が解明されることが期待される。

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- ・タンパク質のX線結晶解析用ビームライン(エネルギー:12.4 keV,ビーム径:1 μm×1 μm 程度,強度: 10¹² ph/sec 以上,その他:ラスタースキャン・結晶化プレートからの直接マウント・自動結晶判定から データ解析が可能)
- ・自動微量結晶化ロボット,自動観察システム,結晶回折実験-データ処理を有機的に結びつける処理 システムとデータベース
- ・白色X線ビームライン(ラウエ回折実験測定)
- ・超低エネルギービームライン(4.6 keV)(天然タンパク質に含まれる硫黄原子を用いた SAD に用いる)
- ・BioSAXS 用ビームライン

(1) 背景

疾病発生の理解やその知見に基づいた創薬を行 うために、ターゲット分子である生体高分子(ほ とんどはタンパク質)の立体構造情報は極めて重 要である。タンパク質の立体構造を決定する手法 としては、X線結晶解析、NMR、電子顕微鏡があ るが、測定の迅速さ(生産性)、原理的に分子量の 制約がない、などの点で、X線結晶構造解析が現

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

図1 医学創薬研究における様々な構造生物学的手法。

在の主流である(図1)。上記目的のために、タンパク質単体の立体構造情報はもちろん重要であるが、 タンパク質複合体やタンパク質とリガンドとの複合体の原子レベルでの立体構造情報がますます重要と なっている。さらに加えて、生体内でタンパク質は単体のみで機能しているのではなく、他のタンパク 質と相互作用ネットワークを作ることやシグナル分子などの低分子化合物と結合解離することにより、 生命機能が発現している。創薬においては、どの分子がどの分子と相互作用するかを理解した上で、多 数の候補化合物とターゲットタンパク質との複合体構造を決定する必要がある。

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

①まず運転時間については、年間ビームタイムを維持しつつも、運転時間のさらなる有効利用法を模 索する。②性能面については、世界的に標準となっている top-up 入射を常時執り行う。また、供給され るX線ビームは、太いものと細いものそれぞれ専用のビームラインに分かれているが、一般に細いビー ムの方が適応範囲は広いが現状では強度が弱いため、より高輝度のビームが必要である。現状より高輝 度で、ビーム径が数 µm から 100 µm 程度まで自由に選択可能であれば、膜タンパク質を含む多様な大き さの結晶と多様な測定法に対応できる。また、波長の選択についても、native-SAD に対応する長波長側 でのより幅広い波長域、セレン、ヨウ素、臭素、重原子などに対応する短波長域、がより自由に選択で きることが望ましい。③ この他に考慮すべき点は、未経験者による構造解析の希望が増加している点で ある。現在、当該分野における放射光施設のユーザーのほとんどはX線結晶解析の経験者であり、各自 の研究室でタンパク質の発現精製結晶化を行い、得られた結晶を凍結して放射光施設に持ち込んで測定 を行うケースが多い。しかし未経験者の場合、サンプルの純度や物性の点での事前評価が不十分である ことや結晶化自体についてのノウハウがないことが多い。今後、X線結晶解析を幅広い層に普及させ、 放射光ユーザーの拡大を図るためには、技術的なサポートを行うことが必要である。また、結晶化プレ ートを用いて直接X線回折データ測定を行う in situ 測定においては、結晶化を行うサイトと放射光ビー ムラインが隣接していることが重要である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

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

タンパク質 結晶化 化合物 結晶 溶液 試薬 +× 結晶化前にその 結晶にX線 性を評価 を照射 多数の薬剤候補 化合物との組合 回折強度データ 多数の結晶化試薬 せが必要 との組み合わせで 結晶化条件を探索 立体構造 に基づいた 創薬 立体構造

また、①については、KEK 放射光においては様々 図2 立体構造に基づいた創薬研究のワークフロー。

な物理化学的実験装置が設置された付属施設を設置し、X線照射前にサンプルの事前評価を行うことで ビームタイムを有効利用することが可能になる。さらに、最終的な結晶の評価をX線回折によって行う が、KEK 放射光では迅速な測定が可能となるため、多様なタンパク質 - リガンド複合体の結晶の評価を 効率的に行うことが可能になる。それだけではなく、得られた結晶の質が悪い場合の post-crystallization treatment を効果的に行い、迅速に必要十分な回折データ収集を行うことが可能になる。その結果、タン パク質 - リガンド間相互作用の原子レベルでの情報を迅速に得ることができるようになり、タンパク質 の機能や基本的生命現象の理解へとつながることが期待される。③について、KEK 放射光においては、 隣接した施設でタンパク質の発現精製結晶化および性状評価を行える設備を利用可能とすることで、よ り迅速に結晶化に適したサンプルの調製を行うことができるようになる。これらの設備とX線回折デー タ測定と合わせて構造解析パイプラインを形成できれば、幅広いユーザーが効率的に成果を出すことに つながる。以上の技術は、医学創薬における利用にとどまらず、前項の超分子複合体や膜タンパク質の X線結晶解析にも適用可能であり、全体として世界の科学水準を引き上げる効果が期待される。

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・以下の性能を有するビームライン(幅広い波長選択性と十分なエネルギー分解能を有する・高輝度(10¹² ph/sec以上の強度)かつ結晶サイズに応じて 5~100 µm 径を自由に選択可能・最新の大面積ピクセルアレイ検出器と高精度の試料ステージを有する・高速のシャッターレス測定に対応・自動測定装置を備えカセットに入った凍結サンプルおよび結晶化プレートからのX線回折データの自動収集が可能・1日で 1000 程度のサンプルについて自動回折データ収集,回折能チェック,自動構造解析に対応・増大する回折データを取り扱うことのできるデータサーバー,高速ネットワーク,解析用計算機なども併設)

- ・ビームラインあるいは放射光施設に隣接したタンパク質発現精製結晶化の装置を備えたラボ(サンプ ルの事前評価のために CD(円偏光二色性),光散乱装置, ITC(熱量計), SPR(生体分子相互作用装置) などを備える)
- ・数千枚以上の結晶化プレートの保存と観察が可能な自動結晶化観察システム
2-4. 原子レベル動的立体構造解析を基盤とした酵素反応機構の解明

(1) 背景

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

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

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

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



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



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

X線による還元力を逆手にとって、X線照射(による電子の発生)をトリガーとして酵素反応を開始させる場合もある(図 3)。さらに、窒素やヘリウムのクライオ装置をユーザーが制御して結晶の温度を目的温度に上昇させることにより、続く中間体まで反応を進めた後に低温に戻し、次の反応中間体を捕捉する方法も考えられる(図 3)。それには結晶試

料を動かさずに温度制御と結晶の分光測定を 同時に行えることが必要である。以上のこと が可能になれば酵素の各反応中間体構造を高 分解能で、"スナップショット"として解析で きる。また、KEK 放射光の高輝度な X 線とシ ャッターレスの検出器の利用により、タイム ラグなく連続して吸収 X 線量に応じた酸化還 元状態を追跡でき、"スナップショット"では なく"分子ムービー"として反応を可視化す



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

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

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

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・高輝度(10¹² ph/sec 以上の強度)かつ 1-100 µm 径の微小かつ可変ビームサイズのビームラ イン

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

2-5. 個から集団の理解へ:

動的構造解析による細胞内分子集団ネットワークの網羅的解析

(1) 背景

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

構造生物学は、生化学の素反応を担う原子・分子の解析から生物の最小単位である細胞 応答まで、実にサブナノからマイクロメータースケールに至る空間階層まで対象を広げて きた。ここでは、単に結晶構造解析から得られる蛋白質や安定複合体の「個」の情報のみ ならず、超解像光学顕微鏡等で得られる細胞内での多種多様な蛋白質「集団」の振る舞い

(動的挙動)に関する情報を関連づけることで生物システムの原理的理解を目指す学問へ と発展を遂げようとしている。BioSAXSにおいては、近年、Ab initio 構造解析や Ensemble modelingに代表される様々な革新的解析手法の開発や、HPLCと組み合わせた SEC-SAXS 測定等の一般化による測定インフラの最適化が行われてきた。その結果、現在では、X線結 晶構造解析が苦手とする困難な複数のドメインから構成される蛋白質や明確な構造を示さ ない蛋白質等を対象とした構造解析を実現することで、互いに相補的な手法として広く認 知されている。今後は、新世代の構造生物学の実現に向け、BioSAXSも「個」から「集団」 に測定対象を拡張し、「ありのままの状態」に近い蛋白質群の動的構造解析を実現すること で、「個」の理解と「集団」の理解の橋渡しを担わなくてはならない。

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

細胞内では、多種多様な蛋白質が互いに相互作 用しネットワークを形成している。ネットワーク 中では、必ずしも安定な複合体を形成しているわ けではなく、1つの生理機能を実現する複数の蛋白 質群(動的機能モジュール)が多成分平衡状態に 有り、他のネットワークからの摂動を受けること で、その自由エネルギーランドスケープを変調さ せ生理機能を調節している。すなわち、「ありのま まの状態」を理解するためには、個々の蛋白質の 解析に加え、それらが集団として振る舞う状態(多 成分平衡状態)の解析が必要となってくる。平衡 状態にある各成分を分離するためには、組成比率



や活性化因子の濃度を変える等して、平衡状態をシフトさせた多数の試料を測定し、多変 量解析やビッグデータ解析を活用することによって、応答する成分を区別し定量化するこ とが可能となる。このような測定・解析を実現するには、濃度が薄い試料条件でもデータ 収集が可能な高輝度ビームと流体を利用したハイスループットな自動測定が必要不可欠と なってくる。流体を利用することで超高輝度化に伴うダメージを軽減でき、結果として、 試料精製が困難な場合でも、少量で測定・解析する道が開ける。

ハイスループットな測定環境と X 線結晶構造解析を始めとする生体高分子の構造解析手

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



(3) 必要とされるビームライン・実験設備

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

2-6. 放射線ストレスに対する量子効果に基づくゲノム安定化機構の解明

(1) 背景

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

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

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

軟 X 線反応素過程分光ビームライン

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

2 真空紫外円偏光二色性ビームライン

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

③ 軟 X 線スペックル測定による DNA 相転移の観測

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

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



図1 KEK 放射光における放射線生物分光研究の概略

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

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

2-7. 新しい放射線治療を目指した細胞応答メカニズムの研究

(1) 背景

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

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

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

(2) KEK放射光における新展開と期待される成果

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

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

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

・細胞培養実験が可能な実験室(ビームラインに併設)

2-8. X線イメージング-医学応用を中心に-

(1) 背景

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

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

例1:吸収コントラストイメージング

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

ヒトの循環系は内径 2.5 cm の大動脈から、10 µm の毛細血管まで連続してつながり、循 環している。赤血球のサイズが全哺乳類で 10 µm と一定のため、動物のサイズによらず、 たとえば、体重 25 g のマウスでも毛細血管は 10 µm である。現行の放射光血管造影システ ムでは、in vivo では 50 µm までしか撮像できず、その先の前毛細血管(動脈系)~毛細血 管~後毛細血管(静脈系)は、画像上ブラックボックスである。全身の毛細血管の総表面 は 6,000 m²におよび、横断面績の総和は大動脈のほぼ 800 倍に相当する。血液はこの広い 面積で細胞に対し酸素と栄養素を供給し、二酸化炭素と代謝産物を受け取る。それにより、 それぞれの細胞はエネルギーを産生し、細胞の特質に沿って機能を発現する。組織循環系 で重要な分野は、心臓、肝臓、腎臓、脳組織、骨格筋、ついで消化管、内分泌組織、骨髄 となる。とくに血管径 50 µm 未満の微小循環系研究分野としては、生理的には、運動、老 化における変化、病理学的には、糖尿病の細動脈病変、がんの血管新生、心臓虚血、脳虚 血、腎障害があるが、これらの in vivo での血流研究においては直接的な画像化によるア プローチはなされていない。

例2:位相コントラストイメージング

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

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

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

その数や保管状況において日本が世界に誇る数万体の京都大学ヒト初期胎児標本(世界三 大標本センターのひとつとなっている)を用いた立体画像の位相イメージング法による撮像 を試みていて、新しいヒト発生に関する知見が得られているが、ヒト初期胎児試料(摘出さ れた標本試料)を大量に撮像し、再生医療につながる形態学的な知見を得ることが今後の課 題となっている。現在、倫理的もこれらの標本を収集することは困難であり、人類として特 にアジア地区の標本として大変貴重な標本となっている。また、ヒト初期胎児以外にも各種 がんと正常組織の無造影観察と識別、アルツハイマー病モデルマウス脳内に蓄積されたβア ミロイドの可視化と加齢に伴う定量変化などの知見も得られていて幅広い医学分野への応 用も期待される。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

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

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

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



図1 大型放射光施設における医学応用研究に関する社会的役割の概念

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

これらの社会的背景のもとで、今後は、X線イメージングシステムの開発・評価とともに、 具体的な個々の疾患に関する機序の解明、診断率向上への寄与の評価が、より重要になると 考えられる。また、将来的な小型装置によるX線イメージング法に関する知見提唱も大型放 射光施設の大きな役割であると考えられる。小型専用放射光源の設計や逆コンプトンX線装 置、タルボ干渉計を用いたX線発生装置などへの知見の提供も行われつつある。また、各大 学研究室の独自性を活かした大型放射光施設とのネットワーク化が望まれる。

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

1) 再生医学分野(ティッシュエンジニアリングと血管)

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

2) がんの血管新生(がんの生物学、がんの早期診断、がんの治療)

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

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

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

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

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

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

運動は、主に骨格筋を収縮一弛緩させて、エネルギーを消費する活動である。この活動 を維持には、酸素とグルコースによるエネルギー産生要素の供給増加が必要であり、その 流通基盤として微小血管径の拡張、増加、機能亢進は必須である。運動が適切に実行され ると、インスリン抵抗性の改善、血圧低下、血中脂質異常の改善、運動機能の改善、アン チエイジングなど、ほとんどすべての疾患に有効である。一部のがん(大腸がんなど)で も進展抑制効果がある。運動の基本単位である骨格筋束は、高度に微小血管に覆われてお り、運動による骨格筋の要求に応じて流量と血管数が増加する。たとえば、運動によって、 骨格筋の血流は数秒で最大 100 倍まで増加する。それには、正常な血管内皮細胞機能が必 要であるが、生活習慣病では損なわれている。運動を継続的に行う事で糖尿病も心不全も 改善する可能性がある。文明化による不活動と高齢化社会が生み出した問題について、微 小血管系はどのように影響をうけ、運動という非薬物治療でどのように改善していくのか を、直接微小血管レベルで検証し、運動の最適化を図ることは大切である。

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

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

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

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

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

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

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

研究目的、対象試料に最適なX線エネルギー、照射面積は、過去の例が示すように研究 の進展により、大きく異なってくると考えられる。<u>X線エネルギーの可変性</u>(15-50 keV 程 度)、<u>大きな照射面積</u>(20 mm 角程度以上、10⁸⁻¹¹ photons/mm²/sec at 30 keV)の確保は、 医学イメージング用ビームラインの特性として必須であると考える。また、同時にこれら の特性は産業試料イメージングへの応用へも期待される。

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

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

2-9. 脳神経科学分野における KEK 放射光の利用

(1) 背景

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

現在の高分解能コネクトミクスは、電子顕微鏡が主力装置として活躍しており、特に MultiSEM 505の導入により、並列化による高速 SEM イメージング(1 G pixel/sec)が可 能になった(図 2)。得られる空間分解能は所望の 4nm を達成しているが、1mm³サイズの 3 次元画像を取得するには 6 ヶ月程度かかり、例えば、正常群と疾患群のマウス脳を比較す るには、膨大なデータ取得時間が予想される。一方、X 線による結像型顕微鏡により電子顕 微鏡の分解能に近い画像も取得されているが、MultiSEM に比べて画像取得スピードは圧 倒的遅く、高い空間分解能による低コントラスト画像の安定した取得は未だ困難である。

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



図1、3次元画像から再構成され た神経ネットワーク構造



図 2、MultiSEM の並列ビームで 高速撮影された高分解能画像

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

硬 X 線を用いたマイクロ CT においては、現状の 10 倍速に相当する 1 分間で 1mm³ ボ リュームをサブミクロン分解能(可視光分解能)で撮影できることが期待できる。本ボリュ ームサイズで使用するエネルギー領域は、脳のような軟組織の場合、通常 8~12 keV であ る。1mm³/min という高速 3 次元画像化が実現すれば、マウス全脳(< 1cm³)を半日程度 で撮影し切ることができ、複数の全脳を測定することも現実的である。それにより、病態グ ループ毎にラフな神経ネットワーク構造を比較した統計学的な解析等が可能となり、脳機 能と構造の関係をより詳細に明らかにすることができる。このような測定には、30Hz 以上 のフレームレイトで安定的に供給される十分な X 線フラックスが必要であり、さらには、 それを高速で撮影できる画素数の多い X 線検出器の設置が要求される。さらに、cm ボリュ ーム規模の体積を可視光分解能で高速に処理できる計測系の確立により、光学顕微鏡と電 子顕微鏡を橋渡しする受容能力も高くなり、脳神経科学分野を超えて、多様な光源と光学系 を使用した生体マルチスケールイメージング技術の発展に貢献できる。

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- ・硬X線高速マイクロCT専用ビームライン
 - 1 mm³/min (サンプルサイズ: 0.5~1 mm 以上)
 - サブミクロン分解能 (< 0.5 μm/pixel)
- ・軟X線高速回折顕微鏡・ホログラフィー専用ビームライン
 - 100 G pixel/sec (サンプルサイズ:1 mm 以下、サンプル厚:1 μm 以下)
 - 4nm/pixel 分解能

2-10. 骨科学~形態形成と修復

(1) 背景

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

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

骨基質だけでなく細胞を KEK 放射光で見る

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

骨形成性血管を KEK 放射光で見る

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

微細構造から高次構造への連関を見る

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



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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・X線顕微位相イメージング用実験ビームステーション(Grating interferometer 搭載による位相イメージングモードを備えた結像型顕微鏡として常設されていることが望ましい。空間分解能<100nm以下。撮影視野>500µm。X線エネルギー:5-20keV。 トモグラフィによる三次元観察を可能とする。複数試料の自動交換。オンラインでの 画像再構成。)

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

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

第2章 生命科学 *担当一覧 監修:清水 敏之(東京大学) 執筆分担: まえがき 安達 成彦、千田 俊哉 (KEK 物構研) 第1節 安達 成彦、川崎 政人、千田 俊哉 (KEK 物構研) 第2節 田辺 幹雄、松垣 直宏、湯本 史明、安達 成彦、千田 俊哉 (KEK 物構研) 第3節 加藤 龍一、山田 悠介、千田 美紀、安達 成彦、千田 俊哉(KEK 物構研) 第4節 海野 昌喜(茨城大学) 第5節 上久保 裕生(奈良先端科学技術大学院大学)、清水 伸隆(KEK 物構研)、 杉山 正明(京都大学) 横谷 明徳、藤井 健太郎 (量子科学技術研究開発機構) 第6節 第7節 宇佐美 徳子 (KEK 物構研) 松下 昌之助(筑波技術大学)、山田 重人(京都大学)、 第8節 兵藤 一行(KEK 物構研) 第9節 水谷 治央(University of Chicago) 第10節 松尾 光一 (慶應義塾大学)、百生 敦 (東北大学) 第11節 (執筆中)

校閲協力:

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

第3章 ソフトマター科学

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

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

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

一方、ナノフィラーを含んでいるようなナノコンポジット材料、結晶性のポリマー材料 の研究では、外部刺激に対する構造の応答性の問題として「材料の耐久性や破壊」が重要 な課題である。例えば、破壊のイニシエーションはいかにして起こるのかを解明するため に、力学的負荷状態での階層構造の変化の初期状態を明らかにする必要がある。このよう な破壊のメカニズムの詳細を解明できれば、安心・安全な社会の構築に寄与できる。また、 持続成長可能な環境調和型社会形成に資するポリマー材料(サステナブルポリマー材料、 脱石油由来ポリマー材料、バイオベースポリマー材料などと呼ばれている)も21世紀の ソフトマター研究として注目に値する。ポリマー材料がどのようなメカニズムで合成され て行くかを分子レベルで解き明かした実験は今までになされていないので、次世代の放射 光性能を活用することができれば、固・液界面はもちろんのこと、液・液界面で高分子が 合成される過程を解き明かすことが可能である。そのための実験手法は、気・液界面、す なわち表面で起こるナノ構造変化の研究にとっても非常に有益なものとなり得るのは間違 いない。それは、生物学、化学、物理学、工学の分野の研究者やエンジニアが集うソフト マター科学の分野で、共通の実験手法になり得る。

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

3-1. 石油資源からバイオベースマテリアルへの転換を目指して: 異常 X線小角散乱によって解明する未踏破ソフトマター構造解析

(1) 背景

高分子材料(プラスチック、高強度繊維など)、ゴム、液晶、ゲル、生体や医薬品、食品 などに含まれる両親媒性分子や、脂溶性分子が作り出す分子集合体といったソフトマター は、nmからµmにわたる空間スケールで階層的高次構造を形成し、各階層が空間・時間的 に相関し協働することで系全体の物性や機能が決まる。この複雑で不均一な時空間階層構 造を形成機構(微細構造と機能発現の相関)から理解することで、機能を最大限に引き出す ことが期待できる。また、石油資源を原料とした材料開発から持続可能な社会の実現に不可 欠な微生物・植物などから得られる再生可能資源を利用したソフトマター材料開発(バイオ ベースマテリアルサイエンス)への転換も重要である。ソフトマターは、炭素を中心に窒素、 酸素、硫黄、リン等により構成されており、他 Na、Mg、K、Ca、Si などのイオンが相互作 用することで構造・機能・物性に影響を及ぼすため、標的元素が材料中にどのように分布し 相互作用しているかを知ることが重要である。これらの元素のX線吸収端は、主に軟X線 (数100 eV)からテンダーX線(1~4 keV)領域にあるため、各元素の異常分散効果を活用 した異常X線小角散乱(Anomalous SAXS=ASAXS)によって、構造の形のみならず、特定 元素の空間分布、様々な結合環境、機能性原子団、配向性の評価が可能である。しかしなが

ら、ソフトマターでの ASAXS 実施例は極めて少ないのが現状である。また、サブµm ビー ムによる Scanning ASAXS による構造不均一性を理解することや、X 線光子相関分光法 (XPCS)によるダイナミクスの理解により、ソフトマターの"ありのまま"の姿が描ける。 KEK 放射光は、軟 X 線からテンダーX 線までの領域において高輝度で高いコヒーレンス性 能を持つ光を利用できるため、このような測定解析に関して、さらなる発展が期待される。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

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

通常の SAXS では、階層的高次構造解析において各成分の空間分布を直接得ることはで きないため、多成分でより複雑な実用材料では特定成分の配置を確定することは不可能で あるが、これを解決する手法が ASAXS である。ソフトマターの主な構成元素の X 線吸収 端は、軟 X 線からテンダーX 線領域にある。また、天然生体高分子セルロースを代表とす る多糖類等では、溶媒中のイオンによりコンフォメーションが変化すると知られており、イ オンによって構造状態が制御されることを示唆している。従って、標的とする種々の元素の 吸収端近傍での ASAXS により、イオンを含む溶液中の高分子鎖のコンフォメーションのみ ならず、イオンの空間配置を明らかにできる。また、X 線吸収微細構造解析 (XAFS) と組 み合わせることができれば、化学構造分析とともに階層構造と物質の空間分布を知ること もできる。さらに、炭素の吸収端を活用すれば高分子鎖間自体にコントラストが生まれる (Fig.1)ため、より複雑な系(多成分・多相系) のソフトマターにおける各成分の空間配置を解 析し、新しい構造制御手法および機能性材料の 創製プロセスを開拓するための重要な知見が得 られると期待できる。測定として、元素のマッピ ングを行うために組成(機能)傾斜型材料のサブ µmの極小ビームによる Scanning ASAXS 測定も 非常に有用であるが、SEC-MALLS、精密熱量計、 屈折率計、旋光度測定及び円偏光二色性測定と 組み合わせたマルチプローブで、その場観察や



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

オペランド観察により、多様な構造とその動的変化を追跡することができれば、ソフトマタ 一分子設計に対する有効な足がかりを得ることが可能である。

②自己修復機能を持つ有機/無機ナノハイブリッド材料の創製

自己修復機能には従来型の結合・破断と独立した状態が当てはまらず、結合と解離が準静 的に生じる、ある種の平衡状態であることが重要であり、高分子マトリックス中での無機ド

メインの正確な運動性の評価が求められる。 従来の非コヒーレントな光源では、平均化し た構造情報しか得られず、無機ドメインの微 視的な挙動が平均化されてしまい正確な運 動性の評価には繋がらない。新光源による高 コヒーレントなX線を利用したX線光子相 関分光法(XPCS)を利用すれば、その運動 性評価が可能となり、構造のみならず、ハイ ブリッド材料の自己修復機能との相関が明 らかになる。これにより機能制御制、材料の 長寿命化などが期待でき、資源、環境問題に 対する新たな糸口になり得る。



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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

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

3-2. ソフトマターの時空間階層ゆらぎの解析

(1) 背景

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

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

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

(A)<u>複雑液晶構造におけるゆらぎの解析</u>液晶では、全体的な分子配列は秩序性を有するが、構成分子は液体のように運動している。近年では複雑な液晶構造を形成する化合物が次々に合成されており、基礎・応用の両面から精力的に研究されている。例え造 ば双連結型キュービック(Cubbi)液度



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

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

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

超臨界状態はゆらぎが最も顕在化する物質相で ある。このゆらぎを主因として広範な機能デザイナ ー性を有し、特殊な反応場特性を発現するため、数 密度揺らぎや溶媒和挙動の時間変化の解明が求め られている。超臨界混合溶液の数密度ゆらぎは、従 前の方法論では解析できないが、KEK放射光により、 超臨界状態等の異常分散小角散乱を時分解測定し、 溶媒和状態を実時間観測できる。さらに超臨界相に 特異的に観測される溶媒和状態と反応特性との関 連が解明される。超臨界溶液のゆらぎの解明は広範 な特殊環境液体の研究の進展に寄与し、数密度ゆら ぎや溶媒和挙動の時間分割直接観察は、ゆらぎを定 性的な変化挙動から定量的な数密度ゆらぎとして



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

解析できることとなる。tender X線を活用することで実用系に近い軽元素に対する実験が可能となり,重元素単原子分子液体から軽元素複雑分子系への実験展開が可能となる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

A. ビームライン

- コヒーレント小角X線散乱ビームライン(ビームサイズ:数μm~数+nm、エネ ルギー:0.2-10 keV)
- ・ 高強度および広エネルギー帯 X 線解析用ビームライン(エネルギー:1-50 keV)
- ・ 小角広角散乱時間分解同時測定ビームライン (q-range: 0.006-50 nm⁻¹)
- B. 実験設備
- · tender X 線大気圧測定用差動排気測定系

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

・高精度透過光ビームモニター装置

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

(1) 背景

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

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

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

(1) ソフトマターに特徴的な不均一構造(ゲルの架橋点分布,コンポジット材料中のフィ ラー界面と周囲の高分子鎖の凝集,液晶の欠陥周囲,極細繊維の表面と内部など)の局所ご とに CXDI で散乱データを収集することで,不均一性とそれぞれの構造の知見が得られる。 また材料の吸収端に波長を合わせることで,組成分布計測も可能である。特に,膨潤したゲ ルの架橋構造等のソフトマター特有の構造を,その自由度を保持したまま観測するには散 乱法が唯一の手段であるが,すべての散乱データはモデルに基づく解釈と考察を必要とす る。この種の構造は他の観察手法(重金属染色が必要な電子顕微鏡など)で可視化すること は不可能であり,モデルの一意性が保証されないという根本的な課題をはらんでいる。ソフ トマターの三次元像に基づく時空間揺らぎが解明できれば,これまで推測の域を出なかっ た構造(ゲルの架橋構造,コンポジットの界面構造や分散状態)と巨視的物性(力学物性な ど)の相関に関する種々の科学的課題が一挙に解決する。 (2)極小領域における結晶性高分子はその特有の不均一構造と格子定数の統計的な乱れに由来して、低分子単結晶に対して一般化した「直接法」による解析が適用できず、その構造解析には現在もなお膨大な時間と経験を要する。マイクロ(ナノ)ビームコヒーレントX線によって、超薄切片化し奥行き方向への不均一性を排除した高分子の多結晶中のできるだけ狭い(ナノスケール)領域、究極的には一枚のラメラ結晶(厚さ約10 nmの単結晶)からの回折データを得ることができれば、高分子結晶構造解析に対して直説法が適用可能なほどの飛躍的な精度向上とそれに伴う構造決定の迅速化が期待される(図1)。さらに、ナノスケールの高分子結晶の加熱時や応力下での構造変化を時分割WAXD/SAXS同時測定で追跡することで、各種転移や破壊のメカニズムの解明が期待される。

(3) X線非弾性散乱実験では,試料室サイズが 100 µm 程度の高圧セルを用いた超高 圧・高温下の種々の材料の弾性率・音速などの物性値の定量評価,広いレンジでの動的構 造因子 *S*(**q**, *ω*)(固体結晶であれば格子振動と波数の分散関係,モデルを必要とする)の評 価を通じたダイナミクス解析が可能になる。この測定は,ビーム径が cm オーダーである 中性子線では困難であり,X線を用いることで,水素による非干渉性散乱を低減するため に高価な重水素化試料が必須である中性子散乱の制約から解放されるため,幅広い試料

(高分子ガラス)のダイナミクスの解明を可能とする。さらに軟 X 線を非弾性散乱実験に 適用できれば、平滑試料への斜入射により最表面領域(侵入長)における動的構造解析へ の展開も考えられ、KEK 放射光独自の技術になり得る。



図 1

(4) マイクロ・ナノビームコヒーレ ントX線と以下の様なレオメータを組 み合わせれば,ずり流動化での不均一 構造も解析できる。ずり流動下にある 試料は数 nm~数+µm のスケールでは不 均一であり,速度勾配も壁面からの距 離に応じて不連続に変化することもあ る(図2(c))。図2(a)のセルの回転中 心を 90 度傾けた図2(d)のような水平配



置型レオメータで回転中心方向に径 50 nm~50 μm (試料に依存)のビームを通し,セル を上下に微動させることにより,散乱パターンを壁面からの距離の関数として測定する。 これにより,例えば転移や配向が起こり始めるときの位置と局所構造の特定が可能とな る。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

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

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

3-6. アクティブマターの運動と構造

(1) 背景

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

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



nm - mm order in a single pillar

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

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・マイクロビーム小角散乱用ビームライン

ビーム焦点位置の長作動(数 mm 程度)顕微観察および試料の二次元スキャンがで きる必要がある。顕微観察の際には、多様な界面活性剤系の観察に対応できるよう位 相差観察、偏光観察、暗視野観察、蛍光観察ができるものが望ましい。また、ビーム
径は光学顕微鏡の解像度と同じ 0.5 μm で、観察対象を自動追尾するために自動 XY ステージの導入が望まれる。

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



図2:提案する装置の模式図。

3-8. 分光的小角散乱及び小角高角散乱による ナノスケールでの化学状態・局所構造分布の解明

(1) 背景

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

(2) KEK 放射光における展開と期待される成果

新軽量構造合金の候補材料は数ナノ〜数十ナノメートルの強化相が分散している。複雑 な構造をもつ新規構造材料群、例えば Mg-LPSO(Long-Period Stacking Ordered Structure: 長周期積層秩序構造)などは、その安定性の基盤となる単位構造がどのように 形成されるか、どのような熱的安定性を持つかについては不明な点が多く、非経験的な新 材料探索の指針を立てづらい状況にある。さらに複合化や複雑な組織制御によって強化相 周辺での材料の強化/破壊機構と界面偏析や局所構造がどのようにかかわるか、加えて疲労 破壊などの信頼性にかかわる転位や空孔・ボイド形成がこのようなナノ構造とどのように 相関を持って進行するかという問題は重要である。異常分散効果を利用した異常 X 線小角 散乱法(ASAXS 法)は特定元素の吸収端での散乱因子を変化させることによって多元系、 あるいは通常ではコントラストのつかない合金系のナノ構造評価を可能にしている。エネ ルギー分解能をさらに上げることにより、吸収端近傍での化学シフトなど、化学状態に起 因するコントラスト変調を利用した散乱像を得ることができるため、次期光源での高輝度 化、低エミッタンス化を利用することによる、高精度(ケミカルシフト)ASAXS とマイク ロビーム ASAXS マッピング、最終的には Tomographic ASAXS(ASAXS 信号を用いた トモグラフ)の実現はこのような実用材料開発の上で非常に大きな寄与をすると期待される。金属ならびに無機(セラミック)材料の多くは有機材料と比べて照射損傷耐性が高く、直接的にこのような手法の拡張が可能であると予想される。さらにエネルギー領域を下げ、いわゆる tender 領域と呼ばれる X線領域(1~4keV)を利用することにより、Na~Sの領域での ASAXS を実現すると、従来の XAFS、非共鳴の散乱解析、中性子などに加え、これらの軽元素についての元素識別、価数識別の可能な小角散乱解析が可能になる。現在 PF の

BL-15A2においてこれらの エネルギーのうち、高エネル ギー側(2.1keV以上)での 共鳴散乱は実験が開始され ているが、分光測定を同時に おこない、化学シフトに対応 する共鳴散乱測定を実現す ることにより、化学状態の情 報が重畳されることによっ て得られる構造情報は格 段に豊かになる(図1)。 例えば太陽電池の電極構 造やナノ構造に担持され た触媒膜構造などにおい て、どの深さまでが化学変



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

化に寄与しているか、価数や結合状態の分布をナノ構造との相関を持って解析する可能性 が期待される。また、薄膜材料が Si 基板上に形成される場合が多いことを考えると、薄膜 に対するすれすれ入射(GISAXS、GIXD)測定で基板(Si)と高分子/有機薄膜や水の X線 屈折率をほぼ一致させることのできる Si 吸収端でのコントラストマッチングは、詳細構造 解析に対して有力な実験手法になると期待できる。さらに 100-800eV 領域までの低エネル ギー領域には C、N の K 吸収端や Fe などの L 吸収端が存在する。C の吸収端での化学シ フトを利用することによって高分子の内部構造にコントラストをつけた小角散乱構造解析 は ALS のグループがおこなっており、有力な解析手段であることが示されている。また、 Fe や Co の磁区構造による小角散乱が L 端の共鳴磁気散乱の利用によるコントラスト変化 で観察されることはハンブルグで FEL の高調波を利用した実験で報告されている。

これらの先行例を踏まえて KEK 放射光でさらに進んだ材料研究の観点から望まれるの は、(I)反応過程/形成過程などの In-situ 解析を実現するための時分割測定(時間変化) と、拡散/構造揺らぎを解析するための Photon Correlation(定常/平衡)の切り替え、(II) トモグラフィックな GI 配置の小角および小角高角散乱測定を偏光スイッチングや化学シフ トの利用によって、深さ/元素/化学状態/磁気構造/キラリティーの3次元分布評価を実現す ることである。トモグラフはデバイス構造などのようにトップダウンで材料を加工したヘ テロ構造の中にナノ構造が分布しているような場合、動作中の各位置での構造・状態を評 価するために重要であり、GIに限らず透過でも重要な手法となると期待される。

(3) 必要とされるビームラインと設備

- 1.中エネルギー領域(5-10keV) 高フラックスマイクロビーム SWAXS ビームライン 必要な装置:高精度試料位置/角度制御機構つき小角・高角複合散乱計測装置
 - →XAFS との組み合わせの場合には蛍光との分別手法(湾曲結晶光学系か数百 eV のエネルギー分別が可能な2次元検出器)
- 2.低エネルギー領域(A:100-800eV、B:1~4keV) 偏光制御単色マイクロビーム散乱ビーム ライン
 - A: 高精度位置制御機構つき偏光制御小角(広領域) 散乱測定装置/クライオステージ
 - B. 高精度位置角度制御機構つき小角・高角散乱吸収測定装置

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

4. Off-line 予備評価/加工ステーション

FE-SEM/EBSP、FIB(試料のマイクロビーム用の予備評価(方位だしなど)と微細切 り出し加工。低レベルクリーンブースとAr/N2置換グローブボックス

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

3-9. GI-SAXS 法を活用した界面の構造ダイナミクス解析に基づく界面反応過程の解明

(1) 背景

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

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

(1) 気体-固体界面

(1-1) 化学気相法(CVD 法)による各種炭素材料の生成過程の解析(グラフェン, CNT 等) (1-2) 各種高分子のプラズマ処理過程の解析(プラズマ処理による表面改質・接着性向 上)

(2) 固体-液体界面

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

(2-2) 表面開始重合(ATRP 法など)過程と高分子鎖形態の追跡

(3) 液体-液体界面, 気体-液体界面

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

(3-2)物質輸送:抽出・分離のダイナミクス解析,層間移動触媒の空間分布

(3-3)液界面上のダイナミクス:コロイド粒子の界面における自己組織化など 上記のうち特に(3)については、重力により液界面が常に地面と平行になるため、X線ビ ームを試料に対して傾斜させる必要があり困難を伴うが、実現すれば極めて優位性の高い 技術となり得る。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

(1) 気体-固体界面における構造と反応解析

グラフェン, カーボンナノチューブ(CNT)等の低次元ナノ炭素材料は, 特異な電気的特性 や高い力学強度を有することから、次世代の機能性電子材料(透明電極など)や高機能性 フィラーとして高い注目を集めている。特に、グラフェンの先駆的物性研究成果は2010年 のノーベル物理学賞対象となった。当時の研究に用いられたグラフェンは、黒鉛からセロ ファンテープで剥がし取って得られた小さな破片であり、その優れた電子物性をデバイス へ応用することは困難であった。しかし近年,極めて清浄な基板上での CVD 法による 450 φ にも及ぶ大面積単層グラフェン合成(Lee et al. Science 2014, 344, 286-289)や数百 µm 長の CNT の量産化技術(http://www.zeon.co.jp/press/151104.html)が報告され,技術的には極めて高 い水準に達しつつある。この CVD 法の詳細な科学的知見を得ることができれば更なる飛躍 的発展が期待できる(二次元のグラフェンの核が基板上にどのように出現し、成長するの かは未解明な点が多い)。CVD 過程における, その場 GI-SAXS および軟 X 線 XAFS 測定(お もな対象は炭素,窒素,酸素等の軽元素,Si,及びTi,Ni,Coなどの遷移金属)が実現す れば、GI-SAXS を活かしたグラフェン・CNT の分子配向・結晶構造等の構造解析と、XAFS を適用した基板(触媒)の電子状態やグラフェン・CNT の反応機構の定量解析(成長末端 における炭素一炭素結合状態, sp², sp³の分率,基板との結合状態の評価)が達成され,大 面積化に不可欠な核生成・成長過程機構を解明できると期待される。すなわち、大面積化・ 欠陥の制御には核形成機構の理解とそその知見に基づく基板の形状・物理化学的性質(ど の結晶面が最適なのか,核形成に有効な不均一核となり得る欠陥構造の解明など)の制御, 核成長機構(成長末端の化学状態)の理解に基づく反応条件の最適化が不可欠である。ま

た,本技術は高分子表面の改質技術とし て広く利用されているプラズマ処理工程 における表面の組成・化学結合変化と構 造変化の追跡にも適用できる。

(2)液体-固体界面におけるダイナミク スと反応解析

あらゆる機械の摺動部に存在する液体 -固体(潤滑油-基材)界面で起こる摩擦・ 摩耗は,機械のエネルギー損失の主たる 原因であるため,その低減が常に望まれ



図1 高分子ブラシ成長過程の模式図.

ているが、摩擦・摩耗機構に関する詳細な科学的知見は未だに乏しい。摩擦・摩耗には界 面の分子のダイナミクスや化学反応が深く関与していると考えられ、マイクロビームコヒ ーレント X 線による摺動部の極小空間におけるその場ダイナミクス解析が望まれる。摺動 部の基材間隔は nm ~ μm スケールであるため,極小サイズ(10 nm ~ 1 μm)の X 線が必要 となる。また、摺動部界面における添加分子(MoS 等の無機平板状結晶や、界面活性剤・ 両親媒性ブロック共重合体などの有機分子)の定常状態におけるダイナミクスの解析には コヒーレントX線を活用したX線光子相関法(XPCS)が適している。特に,高分子添加物は 末端・側鎖等を介して基材界面に吸着することで潤滑性を発揮する(基材に吸着した高分 子ブラシ層が潤滑油で膨潤し浸透圧を生じる結果、基材間に斥力が作用する)と推測され るため、この摺動時の吸脱着過程を捉えることができれば合理的な分子設計に不可欠な知 見が得られる。さらに,これらと軟 X 線 XAFS(対象は高分子を構成する炭素,窒素,酸 素などの軽元素)を併用できれば基材の化学反応(摩耗)の追跡が可能となり、これまで未踏 であった構造と反応の相関を解明できる。また、この手法は高分子分野で近年盛んに研究 が展開されている高分子ブラシ(固体界面に高密度にグラフトされた高分子)の反応機構・ ダイナミクス解析にも適用可能と考えられる(図1)。高分子ブラシは高分子潤滑剤の理想的 なモデルでもあり、また基板に拘束された高分子鎖はグラフト密度に応じてバルク・溶液 系と異なる特異的な挙動(膨潤に伴う高い伸長度、大きな浸透圧など)を示すことから、 生成過程や膨潤過程を定量評価が望まれている。高分子ブラシの多くは表面開始原子移動 ラジカル重合(ATRP)法により溶液中で作製されるが、その成長過程を直接評価した例はほ とんどない(Limpoco et al. JACS 2011, 133, 14864–14867. 光リング型共振器の共振周波数と 外部屈折率の相関を利用してブラシ層を評価)。ATRP 法は成長末端が Br 等のハロゲン原子 であり、Br 末端の解離・結合によって反応が進行する。したがって、 Br 吸収端近傍の X 線による液中 GI-SAXS 測定を実施できれば、高分子鎖形態と成長度の相関をリアルタイム で観測が実現し, 鎖成長の均一性についての知見が得られる (X 線を溶液表面から入射する ことになるため, ブラシ層に対して任意の角度で X 線を入射するには, 基板ではなく線源 を傾ける必要がある)。

(3) 液-液界面,気-液界面におけるダイナ ミクス

液界面は固体界面と異なり,物質の並進・ 回転運動が極めて活発であり,ダイナミクス に特化した計測が特に望まれる。液-液界面で はナイロン 6,6 に代表される界面重合反応や 光合成の鍵過程である電荷分離過程など,界 面を通じた物質の輸送に関わる興味深い現 象が測定対象となる。界面重合は水層と油層



図 2 ナイロン 6,6 の界面重合の模式図.

に各々溶けている塩基性モノマーと酸性モノマーが界面で反応することで反応が進行し, 層間移動触媒(塩)を添加することで飛躍的に重合度が向上する(図 2)。また,重合対象は不 溶・不融の高分子であるため,界面において秩序化(固化)が重合と同時に進行する。波長可 変の GI-SAXS を適用すれば,層間移動触媒の空間分布,および高分子の成長・秩序化過程 を同時に捉えられると期待できる。また,液界面におけるダイナミクス(拡散,凝集など) が関わる興味深い現象として,コロイド微粒子の秩序化が挙げられる。コロイド結晶はフ オトニック材料,イオン輸送材料へ応用展開され,極めて多くの論文が報告されている分 野である。コロイド粒子は臨界濃度を超えると Alder 転移により結晶化し rhcp (random hexagonal close packing)構造を形成することが理論的に予測されているが,液界面やメニス カスにおいてはより低濃度で秩序化し,面心立方格子を形成しやすいことが知られている。 この秩序化過程には液界面におけるコロイド粒子の特異的な運動と凝集が関わっていると 推測されるため,GI-SAXS, XPCS を併用した構造ダイナミクス解析が極めて有効な手段と なり,コロイド化学の飛躍的進展に大きく寄与すると考えられる。

(4) まとめ

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

(3) 必要とされるビームライン・設備

10 nm ~ 1 μm サイズのマイクロビームコヒーレント X 線(高空間コヒーレンス性の光源)。 XPCS 測定に適用可能な高感度・高速応答・高解像度検出器。

X線の入射角を変更可能な光学系(液体界面)。

XPCS 測定のための単色光と, **XAFS** 測定のための軟 X 線~テンダーX 線 (100 eV ~ 4 keV) にわたる広波長域の X 線の即時切替が容易な光学系 (**XPCS** 測定と **XAFS** 測定を同一の光 学系で実施することを想定)。

窓材の影響を極小化するための試料周りの工夫(線源,試料,検出器を全て真空環境,または He ガス環境とする一体式チャンバなど)。

第3章 ソフトマター科学

*担当一覧

監修:櫻井 伸一(京都工芸繊維大学)

- 執筆分担:
- 第1節 山本 勝宏(名古屋工業大学)、相澤 秀樹(摂南大学)、市川 創作(筑波大学)、
 秋葉 勇(北九州市立大学)、綿岡 勲、浦川 宏(京都工芸繊維大)、
 伊掛 浩輝、原 秀太、高田 昌子、室賀 嘉夫、清水 繁(日本大学)、
 清水 伸隆(KEK 物構研)
- 第2節 三輪 洋平(岐阜大学)、沓水 祥一(岐阜大学)、森田 剛(千葉大学)、西川 惠子(千葉大学名誉教授)、篠原 佑也(東京大学)
- 第3節 戸木田 雅利、石毛 亮平、丸林 弘典、野島 修一(東京工業大学)、 加藤 直、川端 庸平(首都大学東京)
- 第4節 (執筆中)
- 第5節 (執筆中)
- 第6節 瀬戸 秀紀(KEK 物構研)、北畑 裕之(千葉大学)、住野 豊(東京理科大学)、武仲 能子(産業技術総合研究所)
- 第7節 (執筆中)
- 第8節 奥田 浩司 (京都大学)
- 第9節 石毛 亮平、戸木田 雅利(東京工業大学)

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

第4章 強相関電子系科学

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

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

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

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

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

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

4-1. 準粒子の高精度分散測定による電子間相互作用解明

(1) 背景

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

結晶の外部刺激応答は、周期配列からの動的なずれとし て捉えられ、量子化された準粒子の振る舞いとして理解さ れる。例えば、フォノン(格子振動)やマグノン(スピン



波:右図)は準粒子の代表例である。半導体中の電子や正孔も準粒子の一種である。準粒子 は物質における情報・エネルギーの検出・伝達・変換を支配しており、応用の観点からも重 要な役割を果たす(右下図)。強相関電子系物質では、電子や正孔がそのスピンや軌道を通 じて、他の準粒子と強く相互作用する。その結果、準粒子間で頻繁な相互変換が生じ、時に

は、複数の準粒子が結合した複合準粒子 として振る舞う可能性があり、電気マグ ノンや多極子波などが盛んに研究され ている。このような強相関電子系の準粒 子の特徴は、高速な情報・エネルギー変 換を可能にするものとしても注目され ている。

ブロッホの定理により、結晶における 準粒子は結晶運動量とエネルギーを固



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

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

既に述べたように、強相関電子系の準粒子計測に際しては、波動関数に関する知見も重要 である。放射光計測においては、光子のストークスパラメータ(偏光状態)と分光強度の関 係に関する情報取得が望ましい。硬 X 線領域では結晶を用いた移相子や偏光解析素子の技 術開発が進んだが、10nmより短波長の軟X線領域では、そのような技術が未開拓である。

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

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

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

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

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

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- ・軟X線偏光解析素子開発用ビームライン
- ・エネルギーおよび位置分解能の高い軟X線用二次元検出器開発実験設備
- ・軟 X 線非弾性散乱用ビームライン(入射偏光制御、偏光解析、温度可変機構)
- ・スピン・角度分解光電子分光用ビームライン(集光機構)

4-2. 不均質系の機能発現機構

(1) 背景

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

強相関効果と自由度混成の効果により発現する量子相転移点近傍の相競合状態では、ナ ノスケールでの相分離・2相共存というドメイン状態の存在が常に報告され、このドメイ ン状態が物性発現の鍵を握っていることが示唆されてきた(図1)。この相競合により出現

(nm-µm)・時間 (ns-ms) スケールでの測定が 必須である。しかしながら、コヒーレントX線イ メージングやその時間変化を測定するスペック ル散乱法、ナノビームイメージングといった先端 的測定は、光源性能の制約のため限られた例しか なく、物性発現と相競合との関係は未解明の問題 として残されている。

する不均質なドメイン状態の観測には、広い空間

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



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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

これまで国内では利 用できなかった軟 X 線 領域での高輝度光が、 KEK 放射光では利用 可能となり、空間分解 能(~10nm)でのドメ イン状態やドメイン壁 まで含めた電子秩序状 態、さらにエネルギー 分 動的状態の観測が、 共鳴軟 X 線非弾性散乱 イメージング装置(図 2)を用いることで可 能となる。この非弾性



図2:共鳴軟 X 線非弾性散乱イメージング実験ステーション。ナノビーム(~10nm)と高エネルギー分解能を組み合わせ、不均一系の静的・動的状態の空間分解イメージングを可能にする。右下の図にあるように、静的状態(E=0)と動的状態($E\neq0$)の違いとしての相分離状態特有の電子状態の観測が期待される。

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

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

・上述の実験に加え、相補的な実験が重要

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

4-3. 本質的な不均一性を示す強相関電子系の電子状態研究の新展開

(1) 背景

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

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

このような現状から微小領域の測定が可能な ARPES 実験への需要が日々高まっており、 国外のいくつかの放射光施設では数µm 程度の微小集光光源による ARPES 装置の開発が 進められている。しかしこれまで挙げたような不均一電子構造の観測を目指すためには、 軟 X 線領域で回折限界に到達しうる 100 nm 以下の光源が求められる。これまでこのよう な軟 X 線領域のナノスケール集光については、ゾーンプレート光学系により行われること が一般的であり、現在の技術で数 10 nm 程度の集光が可能である。しかしながらゾーンプ レートでこのレベルの集光を行う場合には、仮想光源のピンホールやゾーンプレートの透 過時に光子フラックスの大部分をロスしてしまい、ARPES 測定のために必要な光子フラッ クス (>10¹⁰ photons/s)を得ることが困難である。従って、数 10 nm のスポットサイズと ARPES 測定に耐えうる高フラックスを両立するためには、光源及び光学系の技術革新が必 要不可欠である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

次期光源では、ARPES 測定に適した真空紫外~軟 X 線領域において、数 10 nm 以下の ビームサイズと 10¹⁰ photons/s 以上の光子フラックスを兼ね備え、更にデータ積算中の長 時間にわたってビームサイズと同程度の位置安定性を有する光源を実現することが可能で ある。これにより従来の ARPES 測定における空間分解能の制約を打破し、新たに 1 µ m 以 下の微細構造を持つ物質の電子構造を空間的に分離したうえで決定することが可能となる。 また、高い再現性でナノ集光ビームと拡散ビームの切り替えを行うことで、同一試料表面 において結像型光電子顕微鏡 (PEEM) によるドメイン構造の実空間イメージングと、ナ ノビーム ARPES による各局所位置のバンド構造を直接対応させることが可能となり、不均 一電子構造の全貌を理解する上で大きな役割を果たすことが期待できる。

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

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

- ARPES 測定に適した、30 eV ~ 1 keV のエネルギー範囲で高エネルギー分解能
 (*E*/Δ*E* > 10,000) と高フラックス (> 10¹³ photons/s) を両立したビームライン
- ii. 100 μm程度の拡散ビームと数十 nm
 程度のナノ集光ビームを同一試料位置
 に照射可能な集光光学系
- iii. 1 nm レベルの移動精度と位置安定性 を持つ超高真空試料位置決めステージ と、PEEM 分析器、ARPES 分析器を 備えた PEEM-ナノ集光 ARPES 複合 システム
- iv. 超高真空中で準備した試料清浄表面を 評価するための、STM 装置や低速電子 線顕微鏡(LEEM) – 低速電子線回折 (LEED)装置等の付帯設備



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

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

(1) 背景

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

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光では、共鳴軟 X 線散乱による磁気テクスチャの実空間可視化で求められる高 フラックスコヒーレント軟 X 線ビームラインの実現が期待される。例えば、KEK 放射光で 想定される軟 X 線ビームラインでは、コヒーレント軟 X 線の純度 (Fe の L 吸収端では 30 % 程度)が高輝度 SPring-8 軟 X 線ビームラインよりも 1 桁以上向上し、高い軟 X 線フラッ クスを有する PF 軟 X 線ビームライン BL-16A よりもコヒーレントフラックスで 3 桁程度 の増加 (10¹¹ phs/s 以上)が見込まれている。そのため、既存の PF や SPring-8 の軟 X 線 ビームラインよりも、格段に高速・高精度・高空間分解能で磁気テクスチャの可視化が可能 になるであろう。

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

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

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

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

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



4-5. マルチフェロイックスにおける動的交差相関物性の微視的解明

(1) 背景

電子間の相互作用が強い強相関電子系では電子は局在し、その電荷、スピン、軌道占有自 由度、軌道角運動量、が自由度となる。これらは互いに強い相関をもち、競合あるいは協奏 することで巨大な外場応答や高温超伝導等の多彩で興味深い物性を示す。複数の自由度が 同時に秩序化(マルチフェロ状態)するとき、単体で高度な機能を実現することができる。実 際に、歪みー電圧、歪み一磁場の応答を利用したピエゾ素子、磁歪アクチュエータが実用化 されている。磁性と強誘電性は相関が弱いためにデバイスとしての利用は難しいと考えら れていたが、最近、スピン配列により誘電性を発現する物質群が発見され、飛躍的にその性 能が上がっている。当初は静的あるいは準静的な動作に限られていたが、測定技術の進歩に より動的な領域まで拡張され、光の巨大非相反吸収、磁場による誘電率の制御、電流による スピン構造の駆動、光誘起相転移などの動的な交差相関物性がつぎつぎと発見されている。 近年では動作する周波数領域が可視光~GHz~THz まで広がり、新規エレクトロニクスデ バイスとしての実用化が期待されている。



図1 マルチフェロイックスにおける動的交差相関と交流外場応答の概念図

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

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



図2 マルチフェロイックスにおける光の非相反吸収効果

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

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

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

4-6. 強相関エレクトロニクスの開発に向けた電子・構造物性を同時に解明する 複合放射光実験

(1) 背景

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

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

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

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

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

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

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

などが考えられる。

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



図. ナノビーム電子状態・構造状態同時解析ステーションの概略

- (3) 必要とされるビームライン・実験設備
- i. 数 100 eV ~ 10 keV 領域の広いエネルギー範囲で数 10nm のナノ集光ビームを同一焦 点位置で実現できるビームライン
- ii. 蛍光測定や全電子収量測定等のX線吸収分光、角度分解光電子分光や硬X線光電子分 光などの電子状態測定装置
- iii. 表面·界面構造解析用回折計
- iv. 磁気構造・軌道秩序などの電子秩序を観測するための共鳴 X 線散乱装置
- v. レーザー照射や強磁場・強電場などの複合環境下での測定システム
- vi. サンプル交換システムや In-situ 測定システムなど試料回りの自由度向上
- vii. 試料(デバイス)作製から、各種物性測定といった付帯設備の充実

4-7. 硬 X 線光電子顕微鏡による強相関デバイス研究

(1) 背景

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

これまで軟 X 線領域において走査型光電子顕微鏡が開発され、グラフェン等の新規電子 材料や酸化物抵抗変化メモリ材料等の次世代機能性材料の電子構造探索に対して大変な成 果が上がっている。しかしながら、ナノ集光実現の為にゾーンプレートを用いるため、入 射光のフラックスが大幅に損なわれる。また、実用的なデバイス構造の電子状態を決定す る為には、キャップ層に埋もれた機能性材料の電子構造を直接観測する手法が求められる。 以上の課題を解決する為には、5 ナノメートル程度の検出深さをもつ硬 X 線光電子分光

(HAXPES)が適している。KEK 放射光の高輝度低エミッタンス放射光源によるナノ集光 ビームと試料位置をナノメートルオーダーで制御するピエゾステージを組み合わせる事で、 ゾーンプレートを利用する事無く高効率で顕微 HAXPES が可能となる。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

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

また、材料評価の観点からは、特定のナノ構造を選んで不純物混入等の材料評価を行う 事が期待できる。HAXPES に加えて、同程度の検出深さをもつ軟 X 線吸収分光も利用でき ると、価数の同定等を行う上で大変効果的である。また、内殻吸収スペクトルの直線偏光 依存性を測定する事で、結晶場分裂や軌道占有量の評価に加え、波動関数の実空間分布を 可視化することが期待できる。円偏光まで利用できれば磁気円二色性の測定も可能であり、 デバイスの磁気特性まで評価できる事は論を待たない。さらに、硬 X 線と同じ位置に軟 X 線を照射する事ができれば、光電子の脱出深度を軟 X 線から硬 X 線領域まで連続的に変化 させた光電子分光や、入射 X 線と反射 X 線により生成される定在波を利用した X 線定在波 光電子分光を利用して、ナノデバイス構造や界面の電子構造を深さ方向に分解した計測が 期待できる。また、励起エネルギーを内殻吸収端に選ぶ事で、価電子帯の電子状態を共鳴 光電子分光により元素選択的に決定できる。以上に加えて、より固体内部の電子構造に敏 感な軟 X 線共鳴非弾性散乱(RIXS)と組み合わせた研究の展開も興味深い。例えば、ピエゾ ステージで試料位置を走査しながら顕微 RIXS を測定することで、電荷励起を利用した実空 間イメージングを計測できると考えられる。

また、光電子分析器側に、二台の静 電半球型電子分析器をタンデムに組み 合わせた運動量マイクロメーター型光 電子分光装置(図1)を導入すれば、特 定の運動エネルギーを持つ光電子の二 次元実空間マッピングを計測し、高効 率で顕微 HAXPES を行う事が可能で ある。また、光電子分析器中の電子の 飛行時間も補償されることから、検出 される二次元面は等エネルギー面であ りながら等時間面でもある。このため、 フェムト秒パルスレーザーとX線チョ



図1 硬X線光電子顕微鏡の測定配置の例

ッパーを組み合わせた時間分解スペクトロスコピーへの展開も期待される。HAXPES では 高い運動エネルギーの光電子を検出するため、微小な印加電圧や磁場であれば影響は比較 的小さく、外場中でもスペクトルを計測可能と予想される。実際のメモリの駆動状況を想 定した数ボルト程度のパルス電圧や磁場を印加した際のデバイスの電子状態の動的変化を 計測できれば、デバイス開発において必要不可欠な評価技術になると考えられる。また、 角度分解モードで内殻光電子スペクトルを計測すると、特定元素周辺の局所結晶構造を反 映した回折パターンを得る事が可能である。以上の技術を融合すれば、強相関化合物の電 子、スピン、格子の全ての自由度、およびそれらの動的挙動を一台の光電子顕微鏡で計測 することができ、デバイス研究が飛躍的に発展すると考えられる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

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

4-8. 強相関酸化物デバイスの表面・界面物性: 高輝度放射光による多自由度一括解析にむけて

(1) 背景

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

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

これらの研究を推進するためには、x-y 面内に nm スケールのサイズを持つデバイス構造 の表面・界面の深さ方向(z)数 nm 領域で発現する新奇な低次元量子(電荷・スピン・軌 道・格子)状態を精密に決定することが鍵となる。そのためには、KEK 放射光におけるナ ノビーム(分析径~数+ nm 程度)を用いたナノ放射光電子分光で、ピンポイントに電子 状態を観測するのが極めて有効である(図1)。電子・化学状態のみの計測で十分であった 従来の半導体デバイスとは異なり、強相関酸化物デバイスの場合、その本質が電子の電荷・ 軌道・スピン・格子の多自由度にあるた め、これらをそれぞれの自由度毎に決定 する必要がある。具体的には、電荷の自 由度を光電子分光(PES)および X 線吸 収分光 (XAS) で、スピンの自由度をス ピン分解 PES および XAS の磁気円二色 性で、軌道の自由度を XAS の線二色性お よび共鳴 X 線散乱で、格子の多自由度を X 線回折で決定する。そのためには、こ れらの放射光解析を,真空紫外(PES,ス ピン分解 PES)、軟 X 線(XAS)、および硬 X線領域(共鳴X線散乱,X線回折)の広エ ネルギー帯域放射光を用いて複合的に一 括で行う必要がある。特に、デバイス界 面の測定は「埋もれた界面」の計測とな るため、一般的にはシグナル強度が弱く 困難を極めるが、これを KEK 放射光の大 きなフォトンフラックスにより可能にす る。さらにナノビームを用いた表面回折



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

から同一試料・同一領域の原子配置を測定することで、電子状態と構造を実験的に観測す ることが可能となる。これは、従来標準的であった理論と実験の比較である「パラメタを 選べば、この理論で実験結果と矛盾しない」というレベルを超え、「実験を説明するにはこ うでなくてはならない」という高いレベルでの議論を可能にする。

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

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

○広いエネルギー範囲(30 eV ~ 10 keV)を高分解能かつ高輝度(30 ~ 2,000 eV 領域で分解能 > 30,000 かつフラックス > 10¹²、2 ~ 10 keV 領域で分解能 > 50,000 かつフラックス > 10¹³)でカバーする、広エネルギー帯域ビームライン

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

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

第4章 強相関電子系科学

*担当一覧 監修:若林 裕助 (大阪大学) 執筆分担: まえがき 熊井 玲児(KEK 物構研) 第1節 有馬 孝尚 (東京大学) 第2節 中尾 裕則(KEK物構研)、石井 賢司(量子科学技術研究開発機構)、 藤田 全基 (東北大学) 第3節 石坂 香子 (東京大学)、堀場 弘司 (KEK 物構研) 第4節 山﨑 裕一(東京大学/理研) 第5節 佐賀山 基(KEK 物構研) 第6節 堀場 弘司(KEK 物構研) 藤原 秀紀 (大阪大学) 第7節 第8節 組頭 広志 (KEK 物構研)、若林 裕助 (大阪大学)

校閲協力:

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

第5章 表面·界面科学

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

「表面・界面」利用のおそらく最初の全世界的な恩恵は,20世紀初頭にもたらされてい る。19世紀末に人類が直面していた課題は,増大した人口を支えるための食糧増産と,そ のための窒素肥料の増産であった。しかし,当時の窒素源であるチリ硝石は枯渇が懸念さ れており,空気中の窒素固定法が模索されていた。そのような状況において,鉄触媒を用 いて N₂ と H₂ガスからアンモニアを合成する Haber-Bosch 法の工業化が成功し,窒素の安 定供給が保証されるようになった。通常では全く進行しない(あるいは極めて進行が遅い) 化学反応が,鉄触媒をはじめとする不均一触媒では固体"表面"が反応場となることで促 進される。しかも触媒自体は反応前後で変化しないように見える。触媒作用がなぜ,どの ように発現するのかを追及する学問が「表面科学」として花開き,その成果の一つは,2007 年に G. Ertl に授与されたノーベル化学賞(固体表面における化学プロセスの解明に対する 業績)として結実している。

表面・界面科学は、固体表面、固液界面、あるいは固固界面のような境界面で特異的に 発現する物理現象、化学現象を理解した上で、新規物性を開拓しその利用を追及する研究 分野である。この分野では、技術革新による大きな進展がいくつかあった。一つは超高真 空技術の確立である。これにより電子ビームやイオンビーム、真空紫外光や軟 X 線などを プローブやシグナルとして利用できるようになり、様々な表面・界面評価法が確立した。 走査トンネル顕微鏡をはじめとする走査プローブ顕微鏡の登場は、それまでは想像でしか なかった固体表面の原子構造を実際に"見る"ことができるようになり、固体表面の認識 を一変させた。さらに、その応用技術として原子一つ一の操作が可能であることが示さ れ、「機械による原子操作で化学合成をする」という Feynman が 1959 年の講演 "There's plenty of room at the bottom"で概念を示した物質設計を一気に現実味のあるものとした。

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

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

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

5-1. 表面・界面における原子移動の時空間構造研究

(1) 背景

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



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

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

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

KEK 放射光では, 高フラックスのナ ノ集光X線を用い た時分割顕微表面 回折や, コヒーレン ト表面回折による X 線光子相関分光 (XPCS)によって、固 体表面や界面にお ける物質移動過程 の時空間構造の理 解が飛躍的に進む ことが期待される。 表面付近の構造を 反映する Crystal Truncation Rod (CTR)散乱强度分布



図 3:(a) 単純立方格子 10 nm 四方の平滑な表面からのコヒーレ ント散乱強度分布,(b)(a)の表面に原子を一つ付け加えた構造か らのコヒーレント散乱強度分布。*l*=0.8 の面での計算。スペック ルパターンより細かい *Q*分解能で得られる強度の時間相関は,付 け加えた原子がどれだけの時間同じ場所に留まっているかを反映 する。(c) 10¹² photons/sec 程度の入射強度である PF BL-3A で測 定した CTR 散乱。中心の強い強度の周りに,面内の構造乱れを 反映した散漫散乱が観測されている。

をナノビームでマッピングする事により,表面近傍の構造を,面内方向数十 nm,面直方向 サブAの分解能で三次元的に観測できる。これを時分割測定することで、図2に示すよう に物質移動過程の時空間構造が明らかになる。一方、表面に吸着する原子・分子一つ一つ の動きを観測するには、コヒーレント X 線回折が適切である。極めて狭い領域に集光した コヒーレントX線によって生じるX線散乱はスペックルパターンを示し,その強度分布は, 図 3 に計算例を示すように、表面に付着する原子一つからの散乱ではっきり変化する。そ のため、スペックル強度の時間相関を見る XPCS 測定で、付着した原子がどの程度の時間 で移動しているかがわかる。これにより単一原子/分子スケール, ns 時間分解能の原子移動 を観測できる。CTR 散乱に対する XPCS 測定について,実現可能性を確認するため,フラ ックスの検討を行った。現実の遷移金属酸化物試料について,現在の PF BL-3A における 10¹² photons/sec 程度の入射強度で、図 3(c)に示すように CTR 散乱周辺の散漫散乱が数秒 の露光時間で観測されている。KEK 放射光ではコヒーレントフラックスで 10¹² photons/sec 程度の強度が見込まれるため,現在の BL-3A での測定がそのままコヒーレント光で実現で きると期待され、CTR 散乱周辺の散漫散乱に該当する領域の XPCS 測定が可能である。こ のような時間相関を様々な散乱ベクトル(Q)で測定する事で、反応中にどこがどのような時 間スケールで運動しているかが解明できる。

KEK 放射光を用いたこれらの計測により以下のような成果が期待される。全固体二次電 池においては、時間分解能 µs~ms の時分割 CTR 散乱測定によってイオン輸送に伴う電極 界面の格子再編を観察することで、界面イオン輸送ダイナミクスを明らかにできる。高繰 り返し測定が可能なメモリ材料においてはポンプ・プローブ法による ps スケールの時分割 測定が可能であり、界面原子移動やドメインダイナミクス観察により、メモリ動作の律速 過程を解明できる。触媒反応過程で現れる不均一表面構造は、XPCS による緩和時間の測定 で反応の途中経過を追跡でき、理論と比較する事でより深い解釈が可能になると期待され る。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

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

5-2. 固液界面におけるエネルギー変換反応のオペランドX線解析

(1) 背景

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

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

高輝度かつ高コヒーレントな KEK 放射 光を利用した新規ビームライン・設備によ って上記の問題点を克服し、高い空間/時 間分解能を有して固液界面のその場構造/ 電子状態の追跡を実施できれば、固液界面 におけるエネルギー変換反応のより詳細 な反応機構が解明され、実用化に通じる高 容量/高耐久性を有する電池や高感度セン



図1 KEK 放射光による固液界面研究の新展開。

サ、高活性触媒開発に展開できると期待される。例えば、燃料電池の正極触媒である白金 の溶解過程と白金の電子状態との関係を、これまで以上に高い空間/時間分解能を有する測 定、特に KEK 放射光の短パルス(ピコ秒レベル)を用いた高い時間分解での測定によって 解明できれば、高耐久性を有する燃料電池開発につながる。また、リチウム系蓄電池にお いて、実用化へ通じる最大の壁となっているリチウム負極のデンドライト形成反応のメカ ニズムが、高い空間/時間分解能測定、特に KEK 放射光の高フラックスのナノビーム(~30 nm)を用いた測定によって、場所に依存したデンドライト成長状態を追跡することで解明できれば、高容量/長寿命/高安全性の蓄電池開発が可能となる。KEK 放射光の利用によって、これら現代社会の課題解決に直結する物理化学・表面科学の諸問題解明が可能となることは明確である。

サイエンスケースの具体例:

(i) 電極反応に伴う表面構造のオペランド SXS 測定

電極表面の構造は、電位によって 吸着、電析、溶解に加えて電極その ものの原子の再配列などが起こり大 きく変化する。このような電極表面 の変化は、溶液中、電位印加状態の まま crystal truncation rod (CTR) 散乱測定や表面 X 線回折 (SXRD) 測定により、非常に高い分解能で原 子構造を決定しながら追跡すること が可能である。図1はAu(111)電極 表面への AgCl の電析過程を追跡し た例であるが、Au(111)上に AgCl



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

が√13×√13)*R13.9*°構造をとって析出していることがわかる。今後は高輝度 KEK 放射光に対応した検出器の高度化とともに、高コヒーレントな KEK 放射光を利用した X 線回折イメージングと時間分解測定を組み合わせたオペランド実空間イメージングによって、電位走査に追随した電極反応に伴う表面超構造形成/崩壊過程の実時間ダイナミクス解析への展開が期待される。

(ii) 固液界面反応のオペランド軟 X 線分光測定

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



図 3. 固液界面反応のオペランド 軟 X 線分光測定の模式図。

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

また図3に示すように、励起パルスレーザーと同期した高輝度軟X線パルスによる時間 分解測定をすることで、光触媒反応などのナノ粒子と溶液の間の固液界面における光励起 ダイナミクスを明らかにすることも興味ある課題の一つである。例えば、短パルス(~100 フェムト秒)紫外光レーザーと10ピコ秒の軟X線パルスを組合わせた時間分解軟X線分光 測定を水溶液中に分散したTiO2ナノ粒子に対して行うことで、O-K吸収端から固液界面に 存在する酸素種(水および反応によって生じる中間体)の、またTi-L吸収端からはTiO2ナ ノ粒子の電子構造の過渡的な状態変化が追跡可能であり、TiO2ナノ粒子と溶液との間の光 励起電荷移動に伴う化学反応の素過程を明らかにできるものと期待される。このように、 固液界面の光反応の反応機構を解明するためにも、高エネルギー分解能、高輝度、ナノ集 光の3つの特徴を備えた軟X線分光測定を可能にすることが必要である。なお、図3に示 したセルと同様の超薄膜窓材を用いた電気化学セルと、硬X線を組み合わせて可能となる オペンランド電気化学XPSも電子状態の追跡の有力な手法である。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

A. ビームライン

- ・数 100 eV~20 keV の広いエネルギー領域における輝度:>10¹² photons/sec。
- ・低エミッタンス性能を確保した短パルス性能。
- ・時間分解計測で必要なパルス輝度:>10⁶ photons/pulse。
- ・可変集光サイズ:100 μm~30 nm。
- ・分光器のエネルギー分解能: < 0.1 eV。
- ・ヘリウム置換対応軟X線ビームライン(挿入光源)
- B. 実験設備
- ・高精度多軸高速回折計。
- ·多素子高速X線検出器、二次元高速X線検出器。
- ・時間分解測定用波長可変短パルスレーザー(UV~IR、10 Hz~1 MHz)。
- 軟X線大気圧測定用差動排気装置。
- ・ヘリウム置換対応 XAFS 測定装置

5-3. 走査型大気圧光電子分光による表面反応のオペランド観測

(1) 背景

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

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

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

圧力上限は試料からの光電子がガスによって非弾性散乱を受ける度合いによって決まり、 試料から差動排気系の入口までの距離が重要な因子になる。この距離は、現在は1 mm か らサブ mm 程度であるが、ビーム径が絞られていれば、さらに距離を縮めることが可能で ある。距離に大よそ反比例して圧力上限が決まるので、例えば10 μm の間隔で実験を行う ことができれば数百 Torr 程度での実験が可能になる。大気圧下での実験を行うことができ れば、実作動環境と同じ条件で観測できる触媒の範囲が拡大し、実性能の解析が必要な産 業界での有用性も増す。 集光性の大幅な向上によりビーム径がミクロンオーダーからナノメートルオーダーにな れば、位置敏感性を活かした様々なサイエンスの展開が可能になる。例えば、触媒表面反 応のミクロスケールの時空間発展の観測やコンビナトリアル化学と組み合わせて、組成や 調製条件を系統的に変えた触媒が同一反応条件下でどのように応答するかを調べることが できる。組成を系統的に変えた合金触媒の測定の模式図を下に示す。多くの実用触媒に合 金微粒子が用いられているが、どのような組成にすればよいかは重要な問題である。図の



図 走査型大気圧光電子分光による組成勾配をつけた合金触媒のオペランド観測.

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

励起光として 10 keV 程度の硬 X 線を使えば、大きな運動エネルギーの光電子を測定する ことによって、表面近傍だけではなく、10 nm 程度の深さの埋もれた物質からの信号を得 ることができる。これによってゼオライトのような多孔質材料の細孔の中の反応や固体高 分子形燃料電池のような高分子に包まれている白金微粒子の上での反応など、埋もれた界 面の上での化学プロセスを観測することができる。このような系は不均一な構造を特徴と しており、複数のミクロスケールの材料のコンポジットになっていることが多いので、見 たいものにスポットを当てられる空間分解能は重要になる。軟X線から硬X線までの幅広 い光を同一の場所に集光できるようなビームラインができれば、表面だけでなくある程度 の深さまでの3次元的な空間の化学状態が大気圧近い圧力下で位置分解的に観測できるよ うになる。そうなると、適用できる材料は触媒に留まらず、広範囲の材料のその場解析に 活かすことができる。例えば、多層構造を持った電子デバイスやスピントロニクス材料な どに対しても、雰囲気下・外場印加下で動作させながらのオペランド観測が可能になるだ ろう。新材料やそれを組み込んだ各種デバイスの性能発現機構の解明や、劣化や耐久性に 関する知見を得ることもできるだろう。このように、本手法が触媒だけでなく、幅広い材 料・デバイスの動作条件下でしか見られないサイエンスを切り拓く強力な手法になりうる ことを強調しておきたい。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

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

5-4. 太陽エネルギー変換材料表面における時空間キャリアダイナミクス

(1) 背景

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

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

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光では、超低エミッタンスにより光源サイズが小さいため、ミラー光学系により 「nm」オーダーの集光ビームを得ることが可能になる。放射光のスポットサイズが空間分 解能を決めているため、「nm」オーダーの空間分解能で軟 X 線光電子分光を行うことが可能 になる。更に、ミラー光学系の採用により低光フラックスの問題も解消され、「ps」オーダ ーの時間分解測定を行うことが可能になる。超高分解能軟 X 線ビームラインおよび超高分 解能光電子分析器の採用により「meV」オーダーのエネルギー分解能での光電子分光測定が 可能になる。 時空間キャリアダイナミクス実験では、数十〜数百 nm のドメイン構造から構成されるバ ルクヘテロ接合型の有機薄膜太陽電池にレーザー照射を行い光励起する。光励起により生 成する励起子のドナー・アクセプター界面への拡散、界面での励起子から光励起キャリア (電子と正孔)への分離、光励起キャリアの電極への輸送といった光励起キャリアダイナ ミクスの各素過程を「nm」オーダーの空間分解能かつ「ps」オーダーの時間分解能で追跡 する。具体的には、「meV」オーダーの高エネルギー分解能の軟 X 線光電子分光を用いて、 局所表面ポテンシャルの変化を内殻準位のエネルギーシフトとして観測する。

有機薄膜太陽電池においてドナー・アクセプター界面はその変換効率を決定付ける特に 重要な反応場であり、励起子の解離(キャリア分離)などの局所界面ダイナミクスをピン ポイント観測する必要がある。ドナー・アクセプター界面のピンポイント観測には、「nm」 オーダーを上回る「pm」オーダー空間分解能が必要になると考えられる。そこで原子レベ ルの空間分解能をもつ走査型トンネル顕微鏡(STM)の技術を活用し、「pm」オーダー空間 分解能をもつ時間分解測定を実現する。KEK-PF では、これまでに放射光と STM を融合させ た放射光 STM が開発され、STM の空間分解能に元素選択性を追加することに成功している。 筑波大・重川らは、フェムト秒レーザーと STM を融合させたフェムト秒時間分解 STM を開 発し、STM の空間分解能にフェムト秒の時間分解能を追加することに成功している。KEK 放 射光では、レーザーと放射光と STM の3つを融合させた時間分解放射光 STM(tr-SRSTM)を開 発し、光励起キャリアを原子分解能(「pm」オーダー)で元素選択的に追跡することを可能 にする。なお、これまでに報告されている放射光 STM の空間分解能は 10-20 nm であるが、 KEK 放射光により得られるナノ集光ビームを利用すれば試料から放出される光電子密度が 大幅に増大し元素吸収端前後の STM 像のコントラストが改善し、空間分解能の大幅な向上 が期待できる。

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

太陽エネルギー変換材料表面における時空間キャリアダイナミクス研究により光励起キ

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



図 太陽エネルギー変換材料表面における時空間キャリアダイナミクス測定の概略

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

蓄積リング

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

- ・超高分解能軟 X 線ビームライン (100-1500 eV, E/ΔE=50,000@hv=500 eV)
- ・ナノビーム集光ミラー (10 nm)
- ・パルス切り出し軟 X 線チョッパー(周波数可変または高繰り返し用と低繰り返し用チョ

ッパーの切替可能, 1 kHz-1 MHz)

<u>実験設備</u>

- ・同期レーザーシステム(波長、周波数可変;UV[~]NIR, 1 kHz-1 MHz)
- ・超高分解能軟X線光電子分光システム
- ・STMシステム

5-5. 局在電子状態の原子分解能イメージングと特異励起状態の選択的創成

(1) 背景

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

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

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

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光で実現できる高輝度光源を利用することで、光電子ホログラフィーによる局所原子 構造解析と電子状態解析を時空間分解的な測定へと広げ、多彩な物性発現機構の解明と特異励 起状態の選択的創成の研究を展開する。新光源には数 10 eV から数 keV 領域の軟X線マイクロ・ ナノ集光ビームを想定し、内殻と価電子帯の光電子ホログラムを測定する。円・線偏光高速スイッ チング(0.1 Hz~1 kHz)による円・線二色性測定を通じ、局所電子状態の原子軌道解析を行 う。偏光後置鏡ピエゾ制御によるナノ集光ビーム 2 次元走査機構を導入し走査光電子ホロ グラフィー顕微鏡を実現する。原子分解能イメージング法の新展開として3つ掲げる。

- I. 局所原子構造ダイナミクス解析:高輝度化によるナノ集光ビームの恩恵を活かし、走査型ホログラフィー顕微鏡を用いた活性・欠陥サイトのピンポイント原子構造イメージング法の確立する。新規機能性材料開発の場において役立つ標準ツールとして発展させる。光電子ホログラフィーの時分割測定と高速イメージングアルゴリズムを確立し原子配列・分子軌道のダイナミクス追跡の道を拓く。現在フラックスが測定時間(1-10² s)を律している。高フラックス光源では1 MHzのdelay line検出器を導入し、結晶・融解・構造相転移の測定をサブミリ秒で追跡する。
- II. 局所電子状態解析: Matsui は Auger 電子回折に XMCD を組み合わせ、原子層分解の磁気 構造解析法を確立した。光電子ホログラフィーは構造情報にとどまらず、原子サイト別の電子 分光研究や励起準位原子軌道の量子状態解析が可能になる他の顕微法にはない特色がある。 分子軌道トモグラフィーでは分子軌道の量子性としての位相情報に加え、電子分光法を組み 合わせその背後に潜む弱い電子系相互作用や強い電子格子相互作用の解明を狙う。
- III.局所分析から選択的励起へ:逆転の発想で光電子ホログラフィー・分光で特定した特異サイト・電子状態は同時に局所的特異励起状態の創成に繋がる。ホログラムの円二色性を用いると非磁性体の銅から軌道・スピン磁気量子数別のAuger電子を取り出せる。例えばナノ構造体を光励起によりスピン偏極させることも可能で、特異な磁気構造や光触媒活性を制御・創成することが可能になる。ホログラム測定をポンプとする時分割測定の新しい励起状態科学が拓く。

実験装置には、高エネルギー分解能表示型電子分析器と温度制御試料マニピュレータを 備える。標準的試料準備槽を設置することに加え、試料ホルダの共通化を行い、超高真空 試料搬送システムを用い施設内外からの試料を受け入れるポートを準備する。バルクの情 報が得られる蛍光X線ホログラフィーなど相乗効果が期待できる他の手法と組み合わせた 研究を進める。例えば太陽電池・光触媒など、バルクと表面が協奏する機能解明に貢献す る。

ナノ集光化による空間電荷は光電子分光のエネルギー分解能向上の阻害要因となるが、光 電子ホログラフィーでは価数の異なるサイトからの光電子角度分布は周囲の原子配列が違えば光 電子角度分布から分離できる利点がある。顕微マッピングで分布を特定後、長いバンチ長のモー ドや低フラックスで空間電荷を低減し高エネルギー分解能測定を行う回避案が有効である。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- ・光電子回折用実験ビームステーションと施設外からの超高真空試料搬送システム
- ・偏光高速スイッチング(0.1 Hz~1 kHz)円偏光・直線偏光
- ・数 10 eV ~ 数 keV の光エネルギー領域、数 µm から数 10 nm の集光ビーム

- ・後置鏡ピエゾ制御によるナノ集光ビーム2次元走査機構
- ・ビームラインサイエンティストと制御系サポートスタッフ



図1. 様々な結晶からの光電子ホログラム。光照射表面領域の原子配列が記録される。顕微・ 時分割・分光法と合わせ、機能性材料の局所原子構造・電子状態・ダイナミクスを追跡する。

5-6. 単原子シートの開拓とデバイス展開

(1) 背景

携帯電話やパソコンなど情報化社会を支えてきたシリコンなどの半導体デバイスの微細 化による高性能化はまもなく理論的な限界を迎え、新規材料による置き換えが必要となっ ている。単原子層または単原子シート材料はデバイス素子微細化の究極的な形であり、昨 今その合成とデバイス化が世界中で急速に進められている。単原子シートの代表的なもの として、グラフェン(C,半金属)、h-BN(絶縁体)、MoS₂(半導体)があり、これらは既に2次元 シートトランジスター(FET)の絶縁層やゲート電極として使用されている。また黒リン単原 子シート(P,半導体)、ボロン単原子シート(B,金属)などの新材料の合成も相次いでいる。 今後もギャップ値の異なる半導体や電気特性の異なる金属などの機能性単原子シート材料 の開発はますます進むと期待される。一方、シリセン(Si)やゲルマネン(Ge)などではスピ ントロニクスの展開が期待され、さらに WSe₂ などの金属カルコゲナイドの単原子層ではバ レートロニクスなどの新しい概念で研究が進められている。

このように単原子シートは究極的な微細素子であるだけでなく、その多種多様な物質群 の中から電荷・格子・スピン・軌道の協奏的効果により様々な機能性も有するものをオン デマンドで選択できる。そのため今後我々の社会を支えるデバイス材料になることは間違 いない。半導体ロードマップを作製しているSIAによると2021年にはゲート長が5nmに達し、 シリコンの微細化による性能向上は確実に終焉を迎えムーアの法則は破綻する。すなわち 放射光を含む物質科学研究者にとって、単原子シートの研究は必須かつ急務である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

2-1 固体表面単原子層の探索と単原子シートの評価

これまで単原子シートの探索は結晶表面上での異原子吸着実験で主に行われてきた。昨 今発見されてきた様々な表面超構造について、それぞれの単原子シート内の電荷(スピン) などを利用した将来的な機能性が検討されている(図1)。これらの原子構造や電子状態



図1 新規単原子シートの開拓とデバイスへの応用展開の流れ

を正しく決定することは重要であり、KEK 放射光では特に内殻光電子分光や(スピン)角度分 解光電子分光による化学組成や (スピン偏極)電子構造の決定が強く望まれる。

表面超構造の研究は放射光施設でこれまでも実施されてきたが、単原子シートの観点からでは新しい視点が必要となる。従来はmm~cm サイズの試料表面に均一な表面超構造を作成しなくてはならなかったが、デバイス素子としての単原子シートでは sub-µm サイズもあれば十分であり、また試料によっては大きな面積で実質的に作製できないものもある。 そのため、これまで放射光実験で敬遠されてきたマルチドメインや微小ドメインの試料に対しても新たな単原子シート探索の対象としてその単一ドメインの電子状態解析が必要となり、KEK の新たな光源で達成されるナノビームによる分光実験が重要な役割を果たす。一方、PF 放射光ではこれまで表面研究に対して長い歴史があり、表面準備及び評価層の技術ノウハウが蓄積されている。そのため、最近ますます国際競争が激しさを増す単原子シートの研究において KEK 放射光は常にフロンティアを走ることができる。

固体表面上の単原子層は基板の影響を受けため、その原子構造の評価・決定も必須である。KEK 内の低速陽電子実験施設で実現した陽電子回折法は世界で最も高精度で表面原子構造を決定することができ、将来的に陽電子ビームを絞る技術が発展すれば、サブミクロンサイズの試料評価も可能になると期待される。このように、KEK 内でのマルチプローブ利用も KEK 放射光の大きな魅力である。

2-2 単原子シートのマルチ構造と動作環境下測定

単原子シートを実際にデバイスへ応用するには、それらをヘテロ接合させた FET 構造な どを用意する必要がある。単原子層は他の層と接合すると物性を変える可能性があり、そ の評価を行わなければならない(図 2)。単原子シートの大きさは sub-µm からµm であり、 ナノ集光が不可欠である。また埋もれたヘテロ接合での測定では軟 X 線光電子分光や吸収 分光による元素選択性と長いプローブ長を活かした測定が必要であるが、十分な信号強度 を得るためには高輝度な光源も必要である。そのため KEK 放射光で達成されるナノスポッ トかつ高輝度なビームだから本研究は実現できる。さらに KEK 放射光で初めて実現する(軟 X 線領域の) 10nm スケールのナノビームであれば、単原子シート自身の微細化という、新 たな技術展開も十分期待できる。

単原子シートがデバイスの動作環境下での実際の機能を調べることも今後の産業利用に は重要である(図1)。最近の高輝度放射光実験ではこのようなオペランド軟X線実験が実現 しており、ゲート電圧下での電子状態の変化や光応答直後の非平衡状態の観測にも成功し ている。KEK 放射光により、これらの測定がさらに高分解能に実施されることが期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

3-1 光源

· 偏光制御型光源(直線偏光、円偏光)

・10 eV~1000 eV 領域の広いエネルギー範囲で数 10 nm のナノ集光ビームを同一焦点位置 で実現できるビームライン

3-2 測定装置

- ・(スピン)角度分解光電子分光や軟 X線吸収分光のための電子状態測定装置
- ・放射光実験と同一試料における FET や光照射などの電位及び電気抵抗測定が可能なオペ ランド測定システム
- 表面準備槽(電子回折、顕微鏡、試料交換)

5-7. スピン・バレートロニクスデバイスの実現に向けた 新奇スピン偏極電子バンド構造解析

(1) 背景

電子の電荷の自由度を用いるエレクトロニクスは現在使用されているデバイスの根幹を なす技術であり、特にシリコンなどを用いる半導体エレクトロニクスは現代社会において 必要不可欠なものである。これらのデバイスの高機能化・高速化・大容量化はデバイスの 微細化により進んできたが、近年その限界が見えて来たことにより電子の他の自由度を利 用することが試みられている。電子スピンの自由度を利用するスピントロニクスや、結晶 の運動量空間中での電子バンド構造に着目したバレートロニクスはそのような新しい技術 である。

スピントロニクスは、情報記録デバイスの発展に不可欠である磁気スピントロニクスと、 論理演算デバイスの発展に寄与する半導体スピントロニクスに分けることができ、前者は 磁気抵抗効果を用いたものがすでに実用化されている。一方、非磁性体中のスピン流を用 いて低エネルギー消費化をも期待できる後者は、スピン電界効果トランジスタなどのデバ イスが提案されているものの未だ実用化には至っていない。電流、つまり固体中の電子の 運動がフェルミ準位近傍の電子バンド構造で決定されるのと同様、スピン流はスピン偏極 電子バンド構造で決定される。非磁性体の電子バンドにおいて通常縮退しているスピンは、 空間反転対称性の破れた系では縮退が解け、

スピン偏極電子バンドが現れる。これは、非 対称ポテンシャル中の自由電子バンドのスピ ン分裂を扱ったラシュバ効果や、強いスピン 軌道相互作用によりバンド反転が生じている トポロジカル絶縁体のエッジ状態として知ら れている。これらスピン偏極電子バンド中の スピンの向きは、理想的には図 1(a)、(b)に示 すように (xy 面が表面であるとしたとき) 表 面に平行で波数に対して垂直となる。しかし 実際の系においては、原子構造の対称性や電 子軌道に依存してそのスピンの向きや偏極度 が大きく変わることが知られている。そのた め、半導体スピントロニクスデバイスの実現 に不可欠な高効率スピン流の生成には、k_x、 *k*_v、*E*の三次元空間でのスピンの振る舞い、 つまり三次元的なスピン偏極度 (P_x, P_y, P_z) に関する知見は必須である。



図 1 (a)ラシュバ効果と(b)トポロジカ ル絶縁体におけるスピン偏極電子バン ド。(c)スピン偏極したバレーバンド。

バレートロニクスデバイスは、グラフェンなどのように伝導帯の極小と価電子帯の極大 が同じ波数(ただし *k*≠0)に位置する物質を用いることによって作製可能となる。バレー (valley)、つまり伝導帯の極小もしくは価電子帯の極大、もしくはその両方が図 1(c)に示 すようにスピン偏極している場合、スピンとバレーの 2 つの自由度を用いるスピン・バレ ートロニクスデバイスの展望が拓けると期待できる。例えばスピン流を考えた場合、電子 スピンは同じ向きのスピンを有するバレーの方向しか散乱が許されないために後方散乱は 抑制され、その結果スピン流効率が上がると期待できる。また、円偏光した光を照射して 1 つのバレーのみを励起することでスピン自由度を操作してバレー分極を制御したり、電場 をかけることでバレーホール効果の発現も可能となる。

スピン・バレートロニクスデバイスに用いる物質には多くの候補がある。しかし、放射 光施設で現在稼働しているスピン分解光電子分光システムでは、光スポットに比べ作製で きる試料は小さいために、限られた試料でしかスピン偏極電子バンド構造が検証できてい ない。また、たとえビーム径を試料サイズに合わせて 100 nm 程度に集光したとしても、集 光により輝度が 2 桁程度低くなるため、既存の放射光施設で測定を行おうとすると測定時 間が大幅に長くなったり、S/N 比が大幅に悪くなるなどの弊害が出てくる。これが、この分 野の材料研究が直面している課題である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

数10 eVの真空紫外光から1 keV 強の軟 X 線までの高輝度で偏光可変な光を利用すると、 試料を構成する特定の元素の特定の軌道のスピン偏極電子バンドへの寄与に関する知見を、 スピン・角度分解光電子分光法から得ることが原理的には可能となる。また、軟 X 線光を 用いて特定の元素の光電子回折パターンを測定することによって、スピン偏極電子バンド に寄与する原子周りの三次元的な原子構造を知ることが可能となる。さらに、スピンの三 次元情報(Px、Py、Pz)が得られる光電子アナライザーを用いれば、これまで異なる手法 で調べられていた原子構造の対称性・電子軌道とスピンの相関に関する知見を同一試料よ

り得ることが初めて可能となる。(微 小試料の三次元原子構造は、KEK 放射 光の高輝度リングを用いれば表面 X 線 回折によっても求めることが可能であ る。)この結果は対称性とスピン偏極 電子状態の相関という学術分野を確立 するのみでなく、スピン・バレートロ ニクスの新しい可能性を探るスピン 流創製・制御の学術基盤を切り拓くも のとなる。

このようなエレクトロニクスを超



図2 集光ビームを用いた微小試料のスピン・角度分解光電子分光の模式図。

えた学理を確立するためには、KEK 放射光の VUV アンジュレータビームラインで、数 10 eV の真空紫外光から 1 keV 強の軟 X 線までの高輝度で集光され,なおかつ偏光可変な光の 利用が不可欠である。VUV 領域のエネルギー範囲で 50 nm 程度の集光ビームを同一焦点位 置で実現出来れば、(大きな試料の作製が困難である) 微小試料やμmオーダーのドメイン を有する試料を測定することが可能となり、現状では測定ができないスピン・バレートロ ニクスデバイスの材料候補のスピン偏極電子バンドを決定することが可能となる (図 2)。 さらに、大きなスピン軌道相互作用を有し、超伝導を発現する微小二次元薄膜試料で同様 の測定を行えば、新奇二次元トポロジカル超伝導体の創製を探ることも可能となる。KEK 放射光は、数μmの簡易集光ビームで~10¹² photons/sec、50 nmの集光ビームでも~10¹¹ photons/sec と十分な光フラックスが得られ、微小試料のスピン偏極電子バンドの精密測定 には理想的である。

実験設備に関しては、近年の高感度スピン検出器の開発によりスピン・角度分解光電子 分光は短時間測定が可能となったのみでなく、それまで 100 meV 程度であったエネルギー 分解能が He I a 共鳴線を用いて 10 meV 程度、真空紫外光レーザーで 2 meV 以下に至るま でとなった。しかし、これらの低エネルギー光を使った測定では,試料の回転なしでブリ ルアンゾーン全域のスピン情報をカバーすることができない。試料を回転させると光の入 射角が変わり、偏光依存性による電子の軌道成分に関する知見を定量的に議論することが 困難となる。この問題は VUV アンジュレータビームにより克服することができる。例えば、 光電子の捕集角が 30°である場合、*hv*=100 eV では *k*x,y < 1.3 Å⁻¹の範囲のフェルミ面上 のスピン情報を得ることができ、ほとんどの物質の第一ブリルアンゾーンをカバーするこ とが可能となる。ここから得られる結果は、スピントロニクスデバイスおよびスピン・バ レートロニクスデバイスの実現に向けた材料設計の大きな指針を与えるものである。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- 数 10 eV の真空紫外領域から 1 keV 強の軟 X 線領域まで高輝度で偏光可変(垂直・ 面内直線偏光、左右円偏光)
- VUV 領域で 50 nm の集光ビームを同一焦点位置で実現できるビームライン
- 光電子取り込み角が 30°の円錐で、スピンの偏極度が三次元で検出可能な高感度 スピン検出器を備えたスピン・角度分解光電子分光装置を装備
- 試料の面内位置方向がナノメートルオーダーの精度で走査でき、試料とアナライ ザー間の距離はマイクロメートルオーダーで制御できるマニピュレーターを装備
- 基板への蒸着を行え、試料の評価ができる電子線回折装置を備えた試料準備用真
 空槽と直結

5-8.3 次元空間を伝わるスピンのダイナミクスの観察と制御

(1) 背景

近年盛んに開発されているスピ ントロニクス技術の重要な応用の 一つとして、スピンを利用して情報 を高速に読み書きするデバイスが ある。こうしたデバイスにおいてス ピンを制御するには、現在のところ 主に磁場が用いられているが、より 高集積化、高速化を進めつつ、消費 電力を抑えるために、光、電流、電 界といったより扱いやすい外場に よってスピンを制御する技術の開 発が鋭意進められている。外場によ って励起されたスピンは、時間的、





空間的にダイナミックに変化していく。したがって、デバイスにおいてスピンを高速で制御 するためには、空間を伝わるスピンのダイナミクスを観察し、その本質を理解することが必 須である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

スピンのダイナミクスは、個々のスピンだけに依存するわけではなく、隣り合った、ある いは少し離れたスピンの間や、スピンと電子軌道との間の相互作用が空間的、時間的に絡み 合うことで決まっている。こうした相互作用は、一つの磁性体の中であっても、磁性元素の 種類やサイトによって異なるし、(多くのデバイスがそうであるように)原子層レベルの薄 膜・多層膜の場合には、界面と内部でも異なってくる。現在でも、光電子顕微鏡や走査型軟 X線顕微鏡によって、2次元面内での空間的なスピン分布が観測されているし、PFで開発 された深さ分解 XMCD 法によって深さ方向のスピンの分布も観測されているし、PFで開発 された深さ分解 XMCD 法によって深さ方向のスピンの分布も観測されているが、3次元的 な空間分布は調べられていない。KEK 放射光においては、照射 X線をナノビーム化して深 さ分解 XMCD 法と組み合わせることによって、3次元的な位置分解測定が可能になると期 待される。しかも、ナノビームにおいても現状(ビームサイズは数 100 ミクロン)よりも高 いフラックスが得られると期待されるので、3次元空間分布に、高繰り返しパルス軟 X線 を用いた時間分解測定を組み合わせることが可能である。このような 3 次元空間でのスピ ンのダイナミクスの観察によって、スピンが関わる物質中の複雑な相互作用の起源を明ら かにし、スピン波がどのように伝わっていくのかを理解することができる。このことは例え ば、ナノスケールの磁性薄膜の中をスピンが伝播していく際に何が障害になっていて、どう したらより正確、高速にスピンを制御できるのかを見極めることにつながり、スピントロニ クスデバイスにおける高速化、高集積化に向けた材料設計に大きく寄与するものである。

なお最近、薄膜の磁性を観察する新しい手法として、直線偏光を用いた軟 X 線領域の共 鳴 Kerr 効果が開発されている。Kerr 効果は、反射にともなう偏光面の回転や楕円率の変 化から磁性に関する情報を得る手法なので、原理的には深さ分解分析へと発展させられる 可能性も秘めており、上述の XMCD と相補的に利用することを検討したい。



図2 三次元位置および時間分解 XMCD 法によるスピン波の伝播の観察。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

本研究を実現するには、電子もしくは蛍光 X 線の出射角を分解して測定することで、様々 な検出深度を持ったスペクトルを一度に得られる深さ分解 XMCD 法を、ナノビームおよび ポンププローブによる時間分解測定と組み合わせたビームラインと実験装置が必要である。 技術的な仕様は以下の通りである。

- 1. 250-2000 eV 程度のエネルギーにおいて、水平・垂直直線偏光および左右円偏光が利用 できること。
- 2. スピンの2次元空間分布を直接観測するために、10nm 程度に集光されていること。また、試料の精密な移動が可能なステージを備えていること。
- 3. 薄膜・多層膜からなる素子において、スピン波の深さ方向への伝わり方も観察するため、 nm以下の深さ分解能を有すること。このためには角度分解(一括取り込み)型の電子お よび軟X線検出器が必要である。
- 4. 平均光子フラックスとして 10¹¹ photons/s 程度が得られること。
- 5. GHz 領域で動作する素子におけるスピンのダイナミクスをターゲットとするため、放射 光は 50 ps 以下程度の短パルスであること。なお、現象の繰り返し周期を放射光パルス の周期(通常は 500 MHz)の整数倍にすることで、放射光の全てのバンチを用いたポン

ププローブ測定が行える。

- 500 MHz よりも繰り返しの遅い現象を観察するために、特定のパルスからのシグナルを 選別できる検出器(1ns程度の分解能が必要となる)を有すること。もしくはセブラル バンチ運転のような、繰り返し周期を落とした運転モードが利用できること。
- 7. スピンの励起源(レーザー、電流、電界など)が放射光パルスに同期できること。

第5章 表面·界面科学 *担当一覧 監修:小澤 健一(東京工業大学) 執筆分担: まえがき 小澤 健一 (東京工業大学) 第1節 若林 裕助 (大阪大学)、白澤 徹郎 (産業技術総合研究所) 第2節 魚崎 浩平(物質·材料研究機構)、長坂 将成(分子科学研究所) 第3節 近藤 寛(慶應義塾大学) 第4節 山本 達 (東京大学) 第5節 松井 文彦 (奈良先端科学技術大学院大学) 第6節 松田 巖 (東京大学) 坂本 一之(千葉大学) 第7節 雨宮 健太(KEK 物構研) 第8節

校閲協力:

足立 純一 (KEK 物構研)、阿部 仁 (KEK 物構研)、雨宮 健太 (KEK 物構研)、

小澤 健一(東京工業大学)、組頭 広志(KEK 物構研)、近藤 敏啓(お茶の水女子大学)、

近藤 寛 (慶應義塾大学)、齋藤 智彦 (東京理科大学)、酒巻 真粧子 (KEK 物構研)、

手塚 泰久(弘前大学)、中尾 裕則(KEK物構研)、間瀬 一彦(KEK物構研)、

若林 裕助 (大阪大学)

第6章 原子・分子科学

6-1. サイズ選別した孤立クラスターに対する時分割 X 線吸収分光測定

(1) 背景

クラスターとは数個〜数十個の原子からなる系で、原子・分子と微粒子の中間的なサイズ 領域に位置付けられる。クラスターは構成原子数(サイズ)により物性が著しく変化するこ とから興味を持たれるとともに、磁性や熱的特性など様々な物性の発現を理解するための 物質の新たなプロトタイプとしても研究対象となっている。こうしたクラスターは化学反 応性も特異なサイズ依存性を示すことが分かってきており、クラスターを利用して高性能 の触媒を開発すべく、金属クラスターや金属酸化物クラスターの研究が進められている。

自動車排ガス浄化の助触媒として使われている酸化セリウム、光合成の酸素発生中心で ある酸化マンガンクラスターなどの金属酸化物は、触媒サイクルの中で金属原子が荷電状 態を変化させることが知られている。金属の荷電状態を測定する手法として X 線吸収分光 法は非常に有力で、バルク試料に対しては実触媒系を含めて広く研究がおこなわれてきた。

触媒の機能発現の機構を理解し、改良に向けた指針を得るためには、活性サイト近傍の電 子状態を調べることが不可欠である。近年、触媒は高性能・高機能化を目指して担持微粒子 のサイズの微小化が提案されており、微粒子径は 1nm~サブ nm すなわちクラスターのサ イズ領域に近づいてきている。真空中に孤立したクラスターはこの触媒微粒子の中の活性 サイトを切り出したモデル系として有効な研究対象であり、孤立クラスターに対する X 線 吸収分光測定は活性サイト近傍の荷電状態など有益な知見を与える。

サイズ選別した孤立クラスターに対する X 線吸収分光は、試料の希薄さから測定が困難 であった。しかし近年イオントラップ技術の発達などにより測定が可能になり、磁性や触媒 に対する興味から実験が行われるようになった。このように最近発展してきているクラス ターの X 線吸収分光測定であるが、現時点では安定状態にある静的なクラスターに対して のみ測定が可能で、時間と共に変化する動的状態での測定は実現していない。一方で触媒な ど化学反応過程について理解するためには、反応の進行に伴う変化(ダイナミクス)を調べ る必要がある。

反応のダイナミクスを調べるためにはポンプ - プローブ法による時分割測定が有効であ る。ポンプ - プローブ測定は2光子過程であるため、ポンプ光となるレーザー光、プローブ 光に用いるX線ともに試料位置での光子密度が大きい必要がある。特に吸収断面積の小さ いX線領域では10¹⁸ photons/cm² s程度の光子密度が必要であり、従来の放射光では測定 が不可能である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光は低エミッタンスであるため X 線を集光することが可能であり、同じく集光 した励起用レーザーと併用することで、従来の放射光ではできなかったポンプ - プローブ 測定が可能になる。反応分子を吸着させたクラスターに励起用レーザー(ポンプ光)を照射 して反応をトリガーし、X線照射(プローブ光)までの遅延時間を変えながらX線吸収分 光測定を行う。試料となるクラスターはサイズ選別してイオントラップに蓄積しておく。こ の測定により、反応中にクラスター中の金属原子の荷電状態や反応分子の吸着状態が変化 していく様子を追跡できる。

光源の性能と測定の関係は以下のようになる。本測定ではプローブ光となる X 線パルス の強度が重要であるため、大強度シングルバンチモードもしくはそれに近いモードでの運 転が必要である。このときの繰り返し周波数はおよそ 1MHz と考えられる。シングルバン チモードでも通常のマルチバンチモードと同程度のフラックスが得られると仮定した場合、 10µm×10µm に集光すれば 10¹⁸ photons/cm^{2.} s の光子密度が得られ、測定が可能になると 期待される。

X 線吸収分光により金属原子の荷電状態をプローブする場合、プローブ光のエネルギーが 0.1eV 程度の分解能を持つことが望ましいが、これは KEK 放射光では十分に達成できる。時間分解能は KEK 放射光のパルス幅から約 10ps であり、クラスターの構造変化を伴うような反応過程を観測することができる。

さらにポンプ - プローブ法による時分割 X 線吸収分光測定は様々な系への応用が可能な 汎用的な測定法であり、荷電状態変化が重要となるような触媒系に限らず多くの系に対し て成果が期待できる。また測定法としても X 線吸収分光を基盤とした発展が期待できる。 例えば、円偏光した X 線と磁場中に設置したイオントラップを用いることで、時分割した X 線磁気円二色性(XMCD)測定などが想定される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・軟X線ビームライン

(大強度シングルバンチモードでの運転、アンジュレータ光源、焦点サイズ 10µm×10µm、 焦点位置の高い安定性(時間に対して、エネルギー掃引に対して))

- ・クラスターX線吸収測定装置
- (クラスタービーム源、クラスターサイズ選別装置、イオントラップ)

・励起用レーザー

(UV~VIS、パルス幅~5ps、繰り返し周波数~1MHz)

6-2. 強いレーザー場中の原子・分子・クラスターの 電子的構造とダイナミクスの解明

(1) 背景

大強度レーザー (パワー密度 ≥ TW/cm⁻²) により、原子・分子・クラスター内の構成粒子 (電子・原子核)間に働くクーロン力に匹敵するような電場を外部から与えることができ る。その場の中では、ハミルトニアン中に光電場の寄与が含まれる**新奇な状態**が形成され、 物質と光との相互作用について摂動論的な取り扱いが不可能となる。このように光の衣を まとった状態はドレスト状態と呼ばれている。このような状態は、少数多体量子系の理解 という観点から注目されるだけでなく、外部から分子の形状や電子状態を制御できる可能 性があり応用面からも期待されている。

また、強レーザー場により気相分子の空間的配向の整列、あるいは、振動波束・回転波 束を制御した化学種を準備することが可能である。そのような化学種に対する電子的分光 実験では、振動・回転状態を選別した分光とは異なる観点でのダイナミクス研究が展開で きる。

強いレーザー場中にある原子・分子・クラスターの研究では、その状態・挙動を調べる ために用いられる (プローブ)光としてレーザー光が活発に用いられている。レーザー光で は、深い価電子や内殻電子を励起・電離する波長を得ることは現在でも一般的でなく、そ れに加えて波長掃引性を得ることは困難である。そこで、波長掃引性が非常に高い放射光 をプローブ光として用いる実験が望まれている。現存の PF リングにおいて、強レーザー 場中にある原子・分子を放射光により調べる実験が試みられたが、放射光の輝度の不足と レーザー光源の繰り返し周期の低さのため実現できなかった。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光の低エミッタンス性を利用して、強いレーザー場中にある原子・分子・クラ スターを対象とした VUV・SX 分光実験を初めて実現できると期待される。

ここで提案している実験では、強レーザー場を作るレーザー光とプローブ光として用い る放射光の 2 種の光源を用いる。それら 2 種の光を空間的に重ね合わせ、時間的に同期 させて実験を行うことが必須である。そのため、小さな集光スポットに得られる 1 パルス あたりの高い放射光強度が必要である。具体的には、低エミッタンス性を活用して放射光 強度を失うことなく 10µm 径以下のスポットサイズを作り、放射光 1 パルスあたり 104 photons 以上を得ることにより、強いレーザー場中にある化学種の分光・ダイナミクス研 究が可能になる。それにより、ドレスト状態における電子的構造の変化について、最外殻 電子だけでなく内側の電子についても調べることが可能になる。また、分子・クラスター が内殻励起・電離後に多価イオンを形成して、複数の解離イオンを放出する現象を利用し、 分子の構造変化に関する情報を得られると期待される。 ドレスト状態にある分子・クラスターは、別の電子状態が結合した状態として理解でき る可能性がある。そこで、レーザー光によりある結合方向への解離性の電子状態を結合さ せることにより、特定の結合に対して"結合軟化"を引き起こすことができるかもしれな い。そのような候補となる多原子分子のドレスト状態について、高輝度放射光を活用して 系統的に調べることにより、分子・クラスターの光解離制御の1 つ機構を示すことができ ると期待している。これにより、化学における究極の目標である化学反応の完全制御へ向 けて、その道のりの1 つである半反応としての光解離制御を実証することができる。さら に、将来的に極短パルス生成が KEK 放射光において可能になれば、振動・回転が制御さ れた分子・クラスターについて、時間分解ダイナミクス実験が可能になる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- ・大電荷バンチ運転モード
- ・軟X線用パルスセレクター
- KB ミラー集光系
- ・高繰返し(1 kHz 以上)かつ大出力ナノ秒・ピコ秒パルスレーザー(mJ クラス)
- ・荷電粒子運動量画像計測システム
- ・極短パルス生成運転モード (Low α モード、あるいは、レーザースライシング)

6-3. 内殻二重空孔状態の精密分光による新しい化学分析法の創出

(1) 背景

分子の X 線光電子スペクトルには、分子を構成する個々の原子の内殻電子のイオン化に 対応する光電子ピークが見られる。それらのピークエネルギーは、分子内のそれぞれの原 子周辺の化学環境を反映したピークシフト(化学シフト)を示す。この化学シフトを物質 表面の化学状態のプローブとして利用した ESCA (Electron Spectroscopy for Chemical Analysis)は、基礎物質科学から材料科学までの幅広い分野における標準的な化学分析手法 の一つとなっている。しかしながら、化学シフトは対象とする物質の化学状態の違いに常 に鋭敏であるわけではなく、例えば炭化水素分子の炭素 K 殻電子の化学シフトは炭素原子 周りの結合次数の変化に対して鈍感であることが知られている。そのようなケースに対し ては、通常の ESCA では化学結合に対する十分な情報が得られない。

最近、超高効率の多電子同時計測手法を利用することにより、分子の X 線イオン化にお いて K 殻軌道から2つの電子が同時にイオン化される内殻二重イオン化過程が見いだされ た。ここでは、分子内の特定の原子サイトからの K 殻電子2個のイオン化のみならず、異 なる2つの原子サイトそれぞれからの K 殻電子のイオン化も観測された。後者の過程によ り生成する内殻二重空孔状態のエネルギーの化学シフトは、2つの空孔の間の価電子軌道 の様子を強く反映する。そのため、多電子同時計測手法による内殻二重空孔状態の分光は、 内殻空孔で指標された2つのサイト近傍の化学結合についての直接的な情報を与える新し い ESCA としての有用性が提唱されている。しかしながら、この内殻二重イオン化は、普 通の K 殻からの1電子イオン化と比べて、断面積は5桁程も小さい。そのため、現状では 内殻二重空孔状態の分光は極めて不十分なエネルギー分解能と精度を甘受するしかなく、 内殻二重イオン化の基礎物理の理解についてさえ端緒に留まっている。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光の利用により, エネルギー分解能と同時計測レートを格段に向上させた内殻 二重イオン化についての多電子同時計測が可能となる。多電子同時計測には、超高効率な 電子同時計測を可能とする磁気ボトル型電子エネルギー分析器を用いる。磁気ボトル型電 子エネルギー分析器では電子の運動エネルギーを飛行時間分析するが、内殻二重空孔状態 を有効なエネルギー分解能で観測するためには、10 マイクロ秒程度の時間間隔をもった放 射光パルスが必要となる。そのため、蓄積リングのシングルバンチ運転あるいはハイブリ ッド運転を利用し、その孤立バンチからの放射光パルスをパルスセレクターにより切り出 して使用する。このパルスセレクターは現在の PF リングにおいて開発を進めているが、そ のスループットと得られるパルス純度は現状の放射光の輝度によって制約を受けている。 輝度の高い新光源のアンジュレータビームラインに現有のパルスセレクターを設置するだ けでも、十分なバンチ純度の下で少なくとも数倍のスループットの向上が予想される。さ らに KB ミラー集光系を組み合わせたパルスセレクターの開発を計画しており、これにより2桁以上のスループットの向上を目指す。

上記の実験セットアップを用いた多電子同時計測により、内殻二重イオン化ダイナミク スの理解と生成する内殻二重空孔状態の分光情報を高度に獲得することが可能となる。例 えば、光エネルギーに対する内殻二重イオン化断面積やスペクトル構造の変化を観測し、 1つの光子の吸収により2つの電子が放出されるという特異な内殻二重イオン化現象が引 き起こされる仕組みを明らかにできる。また、高いエネルギー分解能のスペクトルの計測 により、内殻二重空孔状態の安定性を決定づけるポテンシャルエネルギー曲面やそこでの 分子振動の様子が理解できる。これらの実験データの獲得によって、内殻二重イオン化を 描写するための理論的枠組みの発展も自ずと促進されるであろう。それらの内殻二重イオ ン化の基礎物理の理解の飛躍的発展に基づき、多電子同時計測手法による内殻二重空孔状 態の分光をより広範な物質系への汎用化学分析手法として確立していくことが可能となる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- 可変偏光軟 X 線アンジュレータビームライン
- シングルバンチ運転やハイブリッド運転のような放射光の時間構造を利用可能 な特殊なバンチフィリングの運転モード。ハイブリッド運転では軟X線用パルス セレクターとの併用利用
 - ※ ハイブリッド運転の場合は、シングルバンチ部分を大電荷バンチとする
 - ※ パスルセレクター利用の場合,縮小率切り替え可能な KB ミラー集光系が必要
- 持ち込み装置(飛行時間型電子エネルギー分析器,ビーム軸と垂直方向に長さ約
 3m)を設置可能なフリーポートを有する実験ステーション

6-4. Cold Electron Collision 微分断面積測定実験

(1) 背景

近年、放射光を用いて原子を光電離させて生成した光電子を電子源として超低エネル ギー電子ビームを生成する手法が開発され、従来の熱フィラメントを用いた手法の下限 を遥かに下回る、超低エネルギー電子衝突実験が行われるようになってきた。このよう な超低エネルギーでの電子衝突では、電子-原子・分子間の長距離相互作用の漸近形が 重要になってくるため、重粒子衝突における Cold Collision(冷い衝突)との対比から、

"Cold Electron Collision (冷たい電子の衝突)"と呼ばれている。低エネルギーの電子 の衝突・散乱過程では、電子の de Broglie 波長が長くなることに起因して、量子力学的 効果による特有の現象が現れることが知られている。特に電子のエネルギーが室温を下 回る、十数 meV 程度の超低エネルギーともなると、その de Broglie 波長は 100 Å 以上 となり、数 Å 程度の大きさである原子・分子と比較して極めて長いものとなる。また、 この様な超低エネルギー電子衝突では衝突時間が分子の振動周期に匹敵する程と極めて 長くなり、分子振動との強い相互作用を誘起されることも期待される。このように、超 低エネルギー電子衝突の研究は特異的な物理現象の発現が期待され大変興味深い。

放射光による光電子源を用いた電子ビーム生成法は、2000年頃に北欧の小型放射光リ ングにおいて挿入光源を有する専用ビームラインが設けられたことにより、10 meV を下 回る極めて超低エネルギーと 1 meV 以下という極めて高いエネルギー分解能を達成した。 さらに、2010年には放射光の特徴を生かした「しきい光電子源」が開発され、挿入光源 に比べて放射光強度の小さな偏向電磁石ビームラインでも同等の性能を発揮できる様に なってきている。これまでに、超低エネルギー電子ビームと透過減衰法を組み合わせて 電子衝突全断面積測定が達成され、種々の分子について超低エネルギー領域での電子衝

突全断面積の特異的な振る舞いが見出されて いる。これらの断面積の振舞は、例えばvirtual state と呼ばれる、波動関数が物理的に妥当な 境界条件を満たさない(現実には存在しない) 偽の状態が、現実の電子散乱に影響を及ぼす結 果である可能性が指摘されている。また、分子 の振動の自由度と散乱電子が結合することに より短寿命の負イオンを生成する振動 Feshbach 共鳴なども提唱され、これら発現の メカニズムの解明が求められる。



図1 放射光を用いた光電子源の概略図

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

光電子源を用いて電子ビームを生成する手法では、放射光の強度だけでなく放射光の

エネルギー分解能とスポットサイズが、生成する超低エネルギー電子ビームの品位を支 配する。KEK 放射光で達成される極小エミッタンスの高輝度放射光を用いた光電子源で あれば、これまでの103倍以上の大強度かつ極めてエミッタンスが小さい超低エネルギー 電子ビームを生成可能である。このことは、Cold Electron Collision 実験を全く新しいフ ェーズに変える可能性を秘めている。すなわち、Cold Electron Collision により散乱され た電子を直接観測することで衝突の詳細な情報を得ることができる、「電子衝突微分断面 積」の測定である。これまでの Cold Electron Collision 実験は、比較的強度の小さい電 子ビームでも実験が可能な透過減衰法による電子衝突全断面積測定のみ達成されていた。 しかし、これまでの103倍程度の強度の超低エネルギー電子ビームが得られることになれ ば、Cold Electron Collision における電子衝突微分断面積の測定が可能となる。KEK 放 射光を用いて Cold Electron Collision 実験における微分断面積測定が達成されれば、衝 突過程ごとのを散乱電子の角度分布から、散乱電子波の情報を得ることができ、散乱状 態の波動関数をはじめとする重要な情報を、はじめて得ることが可能となる。さらに、 光電子生成のための放射光に円偏光を用いれば、スピン軌道相互作用の大きな原子の光 電離によりスピン偏極電子を生成することが出来る。これと微分断面積測定とを組み合 わせることで、Cold Electron Collision における電子スピンに関する知見を得ることも可 能となる。なお、この実験技術は放射光による光電子源大強度高分解能偏極電子線ビー ムラインとして多くの分野への応用も期待できる。

KEK 放射光の極小エミッタンス・高輝度放射光で実現する Cold Electron Collision 微 分断面積測定は、その特異な現象の探索とメカニズムの解明を通して、そして原子分子 科学の発展に大きく寄与するだけでなく、量子力学に基づいた有限系における少数多体 系の散乱問題に新しい展開が期待できる。また、ここで得られる超低エネルギー領域の 衝突断面積は、電子衝突により引き起こされる種々の過程、プラズマ科学、大気科学、 核融合科学、放射線科学などの広範な分野の基礎データとしても非常に重要である。

- (3) 必要とされるビームライン・実験設備
 - ・10 eV~100 eV の VUV~軟 X 線領域において直線および回転偏光が供給可能な可 変偏光アンジュレータ・ビームライン。
 - ・10 µm 以下のスポットサイズが 20 cm 程度に亘って確保できる長焦点出射光学系。
 - ・しきい光電子源を用いた超低エネルギー電子ビームを生成装置。
 - ・気体サンプルを取り扱えるシステム(希釈用窒素の供給設備や排気ダクト)。

第6章 原子・分子科学

*担当一覧

監修:小田切 丈(上智大学)

執筆分担:

第1節 早川 鉄一郎 (コンポン研究所)、寺嵜 亨 (九州大学)

第2節 足立 純一 (KEK 物構研)

第3節 彦坂 泰正 (富山大学)、金安 達夫 (九州シンクロトロン)、

足立 純一(KEK 物構研)、小田切 丈(上智大学)

第4節 北島 昌史(東京工業大学)

校閲協力:

足立純一(KEK 物構研)、阿部 仁(KEK 物構研)、雨宮 健太(KEK 物構研)、 小田切 丈(上智大学)、長嶋 泰之(東京理科大学)、兵頭 俊夫(KEK 物構研)

第7章 極限物性科学

同じ物質でも、置かれた環境に応じて異なる状態をとる。例えば、常圧においてH2Oは温度の上昇とともに固体(氷)から液体(水)、そして気体(水蒸気)へと状態を変化させる。 これらの三態は、同じ物質が示す異なった相である。同じ固体でも原子の並び(構造)が異なれば別の相であり、H2Oの固体の場合、広い圧力温度領域の探索の結果、現在までに、10 種類以上の結晶相と2種類の非晶質相が発見されている。同じ物質の同じ構造でも性質(物 性)が異なる場合には、別の相と考えることもある。また、複数の液体相を持つ物質も存在 する。

熱力学的に安定な相とは、通常、与えられた圧力温度条件下で、ギブスの自由エネルギー G=U+PV-TSを最小にする相をいう。高圧下では体積を小さく、高温下ではエントロピーを大きくすることで自由エネルギーを最小化する。例えば、P=100 GPaで Δ V=16 Å³atom⁻¹であるならば、P Δ V=10 eVatom⁻¹となる。この数値からも、物質の構造や物性を 支配する電子が圧力から極めて大きな影響を受けることは、容易に想像できるであろう。こ うして発現する物質の特異な振る舞いの解明を目的とした高圧力科学は、高圧容器内の微 小試料の測定が必要なことから、放射光X線の利用が可能になった1980年代以降、現在に至 るまで、光源の高輝度化とともに飛躍的な発展を続けている。

圧力と体積、温度とエントロピーの関係と同様に、磁場と磁気分極、電場と電気分極など も共役変数の関係にある。今後の放射光実験では、圧力や温度だけでなく、磁場や電場など への応答も重要な研究対象となるものと考えられる。また、これまでは、主に均質な物質の 平衡状態を対象として回折測定に軸足を置いた研究が行われてきたが、KEK放射光では、 そうした実験が高度化されるだけでなく、不均質な物質や非平衡状態が重要な研究対象と なり、分光を含む各種複合測定が可能になるものと期待される。

注:地球や惑星の内部や天体衝突に起因する高圧高温の状態を対象とする研究も極限物性 科学に含める。 7-1. 多重極限 (高圧力・低温/高温・強磁場) 環境下でのサブ nm 及び数十 ns 分 解能を有する核共鳴散乱法を用いた電子・フォノン物性研究

(1) 背景

巨大磁気抵抗効果や高温超伝導などの新奇な物性を示す電子相関の強い遷移金属化合物 は、最も注目されている物性科学分野であるため、多くの実験及び理論的研究がおこなわ れてきている。しかし、銅酸化物高温超伝導体の例からも分かるように、その新奇な物性 の発現機構については十分な理解が得られていない。強相関電子系化合物の共通の特徴は、 その相図が示すように複数の異なる特性を持つ状態(相)が競合していることにある。最 近の実験結果や理論的考察は、電子相関の強い遷移金属化合物の定常状態が、ナノスケー ルで電子的、構造的な意味で空間的不均一な特性を持っていることを示唆している。この 不均一性は、電荷、スピン、軌道および格子が関係した複数の相互作用・自由度の絡み合 いと強く関係している。したがって、これらの新奇な物性の発現機構を解明する上では、 この空間的に不均一な定常状態を定量的かつ多角的に理解することが重要となる。

電子相関の強い遷移金属化合物を理解する上では、多くの競合状態の存在する中でのナ ノスケールの電子的、構造的な空間的不均一性の創発やそれらの縺れを明らかにする必要 がある。その場合、還元された方程式を離れて基底と成る状態どうしがどのように相互作 用するかが重要となる。例えば、銅酸化物や鉄系化合物の高温超伝導系で観測されている 自発的相分離現象と超伝導発現機構との関係を議論する上では、その系を構成する複数の 相の物性を還元的手法で理解することを基盤として、それぞれの相が如何に相互作用する かを実験的に求めることが重要となる。そのためには、系を構成する相と相境界とを分離 して、元素選択的な手法を用いてそれぞれの状態を調べる必要がある。相境界、特にその 縁では十分な並進対称性が存在しないため局所プローブを用いた実験が必須となる。

現在、分光および回折測定に用いられている数十 keV 放射光のビームサイズは、光学系 により数十µm 径程度まで集光されている。しかし、電子相関の強い遷移金属化合物系にお けるナノスケールでの空間的不均一な状態を研究するためには、このビームサイズの空間 分解のでは不十分であり、より高い空間分解能を有する新光源が必須である。さらに、こ れらの系は外部摂動変数に大きな応答を示すため、環境変数を自在に極限まで制御できる 実験環境下での測定も必要である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

高温超伝導体中の重要な化合物群の一つが鉄系高温超伝導体である。この系で観測され ている自発的相分離状態での相の領域は数 µm 程度である。すなわち、10nm 程度のビー ムサイズを有する KEK 放射光の新 X 線光源は、電子相関の強い遷移金属化合物の空間的不 均一な定常状態を観測するための分光学的手法の光源として最適である。多くの電子系を 直接観測する分光法は、入射 X 線のエネルギーを走査し終状態を観測することで始状態の
知見を得ている。一方、メスバウアー共鳴吸収を基盤とする ⁵⁷Fe 核共鳴前方散乱法は、入 射 X 線のエネルギーを走査すること(入射光学系を動かすこと)無く時間領域での測定を 行う。また、超微細相互作用から電子状態の知見を得るため、電子系定常状態を直接反映 する物理量が求められる。共鳴吸収の特徴と放射光の持つ高指向性と偏光特性を組み合わ せることで、核位置の局所場である超微細相互作用の量子化軸を決定することで精密物質 科学測定手法としての利用も可能となる。さらに、自発的相分離の創発において誘起され る構造(組成)的空間不均一性には、原子拡散(格子振動)を直接観測することが必要と なる。ns 時間分解能を有する核共鳴散乱法は、拡散(格子振動)による原子の運動をも直 接追跡できる。すなわち、KEK 放射光の 10nm 程度の空間分解能を有する新 X 線光源と 核共鳴散乱法を組み合わせることで、試料内の特定領域(相及び相境界)を選択的に測定 することが可能となる(実験概念を図1に示す)。その結果、系を構成する複数の相の創発と その物性、それぞれの相が如何に相互作用するのかに関する知見を得ることができる。



図1:実験概念図

超高エネルギー分解能ナノビーム X 線光源を用いて自発的相分離を起こした試料の測定例。 それぞれの相の核共鳴前方散乱スペクトルが測定可能となる。さらにビームをスキャンするこ とにより試料内の相分布の様子や相境界情報も得ることが可能となる。 右下のスペクトル:現状の空間分解での測定結果 14.41keV のX線を用いる⁵⁷Fe核共鳴散乱法は、試料周辺環境の制約が大きい多重極限 環境下での元素選択的局所プローブ実験手法としても最適である。すなわち、環境変数の 変化がそれぞれの相間の相互作用に与える影響を実験的に求めることも可能となる。その 結果、電子相関の強い遷移金属化合物の空間的不均一な定常状態を初めて定量的に理解し、 新奇な物性現象の発現機構に関する知見が得られる。

一方、材料科学に目を向けてみると、フェライトや R-Fe-B 系磁石材料においても鉄が 主要元素である。これらの永久磁石としての高保磁力性能は主相単相では達成されず、制 御された多相状態(材料)で初めて達成される。KEK 放射光の10nm 程度の空間分解能を 有する新X線光源と⁵⁷Fe 核共鳴散乱法の組み合わせは、オペランド(多相材料、高温・磁 場)環境下磁性材料内の領域を特定して観測することができる。これまで主相に埋もれて いた相境界や副相における鉄原子の電子状態や鉄原子が寄与する格子振動の情報を直接得 ることが可能となる。その結果、永久磁石など材料科学においても高保持力性能発現のた めの指針となる成果などを上げることが期待できる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- ・多重極限環境用実験ビームステーション 超伝導マグネット(10T以上)及び試料冷却(1.5K以下)装置 レーザー加熱装置 レーザー顕微分光装置(ルビー蛍光による圧力校正)、高圧ガス充填装置
- ・超高エネルギー分解能ビームライン
 - ⁵⁷Fe(*E*₀=14.41keV) メスバウー遷移エネルギーで 1meV 程度のエネルギー分解 APD などの高効率(積層型)高時間分解を有する検出器

57Fe(m=141.1ns) 原子核励起状態寿命 nの3倍程度のバンチ間隔の蓄積リング運転

7-2. 衝撃圧縮下における不均一状態の観察

(1) 背景

放射光利用の高圧実験は、大型プレス装置(LVP)やダイヤモンドアンビルセル(DAC) を利用した静的圧縮を中心に発展してきた。一方、放射光利用に限定しなければ、静的圧縮 と同様に動的圧縮も長い歴史を持つ。しかしながら、静的圧縮と動的圧縮では、同一試料に 対して、大きく異なった現象が観察される場合も多く、両者の比較を重要視しない傾向が見 られる。例えば、静的圧縮で観察される相転移系列が動的圧縮(の回収実験)で観察されな い、あるいは逆に、静的圧縮で観察されない電気伝導度の上昇が動的圧縮では観察されるな どの報告がある。そうした静的圧縮と動的圧縮の違いを理解し、両者を融合することで真の 高圧力科学として昇華させるためには、歪速度による現象の整理が重要と考えられる(静的 圧縮:10⁻⁶~10⁻¹ sec⁻¹、動的圧縮:10⁶~10⁹ sec⁻¹)。

PFでは、AR-NW14Aにおいてレーザー誘起衝撃圧縮とシングルショットX線回折の組み合わせによる動的圧縮実験が世界に先駆けて行われ、現在も実験技術の高度化が進められている。また、世界的にも、XFELの稼働後、動的圧縮実験は増加傾向にある。しかしながら、1980年代の放射光利用の黎明期からの長い歴史を持つ静的圧縮実験のレベルには程遠いというのが現状である。動的圧縮現象の本質を理解するためには、速い歪速度で発生する欠陥・転位の生成メカニズムや、結晶粒界面のような不均一領域における現象を直接観測することが不可欠であるが、そうした不均一状態を対象とした研究は、分子動力学計算や回収実験による評価等に留まっている。

放射光と動的圧縮の組み合わせによる実験では、X線1パルスに含まれるフォトン数、 および、それが照射される面積が重要である。AR-NW14Aでの実験では、フォトン数は多 いものの、照射領域がサブmm(の二乗の面積)に広がっていることが、技術的に大きな制 約になっている。また、レーザーと放射光のタイミングをレーザーのパルス幅(持続時間) に対して十分な精度で同期させて試料に照射するための高度な調整作業が必要であるが、 後発の実験手法であるため、世界中のどの施設も静的圧縮実験のような専用ビームライン を持たず、ビームタイムの不足が深刻である。KEK 放射光の特長であるナノビーム、豊富 なビームライン数と長時間運転は、動的圧縮実験に、質と量の両面において、飛躍的な転換 をもたらすものと期待される。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光では、現在の動的圧縮実験において欠落している不均一領域の構造情報の取 得が可能になると期待される。孤立バンチのカレントが数 mA あれば、1 粒子(単結晶)を 対象としたシングルショット時間分解 X 線回折測定は十分可能である(図 1)。非結晶性の 試料あるいは圧縮中に結晶性を失う試料に対しては、繰り返し周波数の高いレーザー(~0.1 Hz)により、動的圧縮のイベント数を増加させることで対応する。ナノビームは、フット



図 1 パルス X 線ナノビームを用いた衝撃圧縮された多結晶体の位置選択型時間 分解 X 線回折

プリントの観点から反射型測定にも有利であるため、エネルギーの選択によりプローブ深 さを可変とした測定も可能になる(図 1)。更に、X 線サイズの微小化に伴い、高強度パル スレーザーの照射面積を絞ることで、レーザー集光密度は飛躍的に上昇し、テーブルトップ サイズの高強度パルスレーザー(~15 J/pulse)であっても TPa 領域の発生が可能になる。

高圧力科学の更なる発展のため、静的圧縮と動的圧縮の違いを理解し、両者を融合するた めの出発点は、動的圧縮に特徴的な(すなわち、閾値以上の高歪速度での圧縮でのみ起こる) 弾塑性転移の過程を詳細に観察することであろう。ユゴニオ弾性限界を超えて塑性域に入 ると、それまでの一軸的な圧縮から等方的な圧縮への変化し、物質は流体力学で記述できる ような状態をとると考えられている。また、塑性域では、欠陥・転位の形成や発達が起こり、 温度が上昇することで相転移や反応が駆動されると考えられている。しかしながら、流体力 学で記述されるような状態を本当に物質がとっているのか、弾塑性転移過程では何か起こ っているのか、直接的に観察しようという試みは極めて少ない。KEK 放射光では、直接的 な観察が可能になると期待される。

動的圧縮は、高圧力科学のみならず、地球惑星科学や材料科学においても重要である(図 2)。地球惑星科学の重要な研究対象には、大小様々な天体の衝突や、衝突に起因するとさ れる月や大気の形成、恐竜の絶命、隕石中やクレーター周辺における高圧鉱物など、動的圧 縮に関連する現象が少なくない。また、静的圧縮では困難な巨大惑星内部条件(TPa 領域の 圧力)の実験の実現も期待される。材料科学では、各種のレーザープロセシングが研究対象 となり、産業界でも、難切削物のアブレーション加工、金属のピーニング表面処理などに役



図2 衝撃圧縮現象のタイムスケール

立てられている。衝撃破壊の理解は構造材料の開発においても重要である。放射光利用の動 的圧縮実験からは、そうした研究において欠落している物質の微視的状態の時間変化の情 報を得ることができる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

孤立バンチ運転、時分割 X 線回折システム、衝撃波発生装置(高出力パルスレーザー)、 衝撃波面プロファイル計測装置

7-3. テラパスカル下での構造解析を目指したナノビーム利用と超高密度水素お よび水素化合物の超伝導状態の解明

(1) 背景

到達圧力領域の拡大に伴う発生領域の極小化という回避できない原理的問題を有する超 高圧科学(静的圧縮)にとって、放射光科学は低エミッタンス化によって未踏領域へのア プローチを可能にしてくれるエスコートランナーである。近年の高圧力発生技術の向上や 普及によりダイヤモンドアンビルセル(DAC)による技術的進歩は100万気圧(100 GPa) を超える領域へのアクセスを容易にし、様々な物質系において実験と理論計算の両面から 新奇機能性材料の開発や物性探索に向けた研究が世界中で行われている。150 GPaの高圧 下で発見された硫化水素の-70℃を超える超伝導はそういった実験と理論の協働で実現した 例であると言える。そして、室温超伝導体としての可能性が期待される水素化物は軽元素 から構成されることが予測されており、テラパスカル級の超高圧力の発生が必要となれば、 高輝度の放射光 X 線ナノビームの使用が今後必要不可欠となる。

そもそも、単体水素は超高圧下で金属化し、さらに同時に室温超伝導体となることが理

論的に予測され、その実現は超高圧科学の最 も重要な対象のひとつとして長年研究されて きたが、未だ達成されていない。それは 400 GPa以上という超高圧の発生とその超高圧力 の条件下での極めて難しい測定が必要となる ためである。しかし、水素単体でなくとも水 素を多く含む水素化物であれば、より低い圧 力で金属化が起こり、かつ高い超伝導転移温 度(Tc)が発現することが期待された。そし て多くの水素化物において高圧力下の研究が なされ、ついに 2014 年末、150 GPa の高圧 下で硫化水素が-70℃(203 K)というこれま でで最高温度となる T。を示すことが報告され、 大きな衝撃を与えた。この高い超伝導の機構 を解明し、更に高い T。をもつ超伝導体を創成、

または探索するためには、結晶構造の情報が大 変重要となる。硫化水素(H₂S)は軽元素で構 成されるうえ、超高圧力状態では試料サイズが 直径 30 μm 以下となるため、高輝度・高エネル ギーかつ、ミクロンオーダーの径のX線が必要 であった。そのため、大型放射光施設 SPring-8



図1. 硫化水素・重水素の超伝導転移温 度 T_cの圧力依存性とその結晶構造. 150 GPa 付近の T_cの圧力依存性の折れ曲が りは高温超伝導相 H₃S の構造相転移を 示すと考えられる.

の高圧専用ビームライン BL10XU において、低温・高圧力下の X 線回折実験と電気抵抗測 定の複合実験が行われた。その結果、低温で加圧された H₂S は分子解離を起こして高圧下 で H₃S と単体の硫黄に分子解離し $(3H_2S \rightarrow 2H_3S + S)$ 、この H₃S が高温超伝導を示して いることが明らかにされた。(図1)

一方、2段式ダイヤモンドアンビルセル(double stage diamond anvil cell, dsDAC)の登場 により静的高圧発生技術はテラパスカルへの門戸を開きつつある。しかし、現在 600 GPa 以上の圧力発生を報告している例では、半球状の多結晶ダイヤモンドを 2 段目のアンビル として上下に組み合わせており、その圧力発生領域のサイズはすでにサブミクロンとなっ ているにもかかわらず、使用されている X 線ビームの集光サイズは数ミクロンサイズとな っている (ESRF ID09 で 5x5 µm², APS GSECARS (Sector 13)で~3x4 µm²)。このような 実験では、2 段目アンビル先端の数ミクロンの領域で数 100 GPa から数 10 GPa までの大き な圧力勾配が生じているはずであるが、プローブ自体が同等のサイズであるために圧力勾 配の評価ができていない。日本においても SPring-8 BL10XU において、集束イオンビーム 加工機で精密に作製されたマイクロアンビル(先端径 3 µm)と 2~3 µm に集光した X 線マ イクロビームを組み合わせた実験が行われている(図 2)。ビームの半値幅は数ミクロンで も、実際には 1%程度の強度の X 線がある程度の広がりを持つ。上述のように dsDAC では

大きな圧力勾配がついて おり、かつ試料体積も先 端部ではナノオーダーな のに対し、周辺部はミク ロンオーダーになる。結 果として、マイクロビー ムを使用した場合でも、 数 100 GPa から数 10 GPa までの異なる圧力状態に ある試料からの回折線が 同時に見えてしまい、結 果の解釈が難しくなると いう特有の問題を持って いる。つまり、テラパス カル級のサイエンスにお いて、サブミクロンサイ ズのビームの活用がすで に切望されている。



図2.(上段)1段目および2段目アンビルの模式図.(下段) 1段目アンビル(左)と2段目マイクロアンビルの電子顕微 鏡写真.

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光は究極の低エミッタンス光源としてその役割を担うことが約束されている。 ナノビームが実現されることで圧力勾配の評価が可能となり、大きな圧力勾配を持つ試料 の中心部分のみの情報を抜き出せるようになる。これにより初めて、テラパスカル領域で の信頼性のあるデータが得られることになり、理論でしか予想されていなかった新規構造 物質の実験的な発見など、超高圧力下の軽元素で構成される物質群の構造解明が大きく進 展すると期待される。また圧力勾配の評価に加えて、精密な X 線吸収イメージングによる 試料分布の評価ができれば dsDAC 自体の評価、すなわち 2 段目アンビルの形状や試料構成 の最適化が可能になる。複数試料で実験をした場合にそれらの回折線が同じ圧力状態から のシグナルであることが技術的に保証されれば、テラパスカル領域での状態方程式の議論 が可能となる。これにより地球惑星科学分野においては、地球の数倍程度の質量をもつス ーパーアースのような系外惑星の内部構造・ダイナミクス・進化の議論が大きく進展する だろう。

背景でも述べたように、硫化水素の高圧下研究により明らかにされた特殊な加圧経路(低 温での加圧)による分子解離を伴うような超伝導が発見され、今後も構造と伝導の複合同 時測定により物性を多面的に評価することが求められる。そのためには、低エミッタンス の放射光ビームの生成だけでなく、広い温度圧力領域での伝導・光学測定をカバーするた めに、ビームライン内に各種の物性実験設備を配備し、これらの測定の同時性によるデー タの信頼性向上が欠かせない。マテリアルズインフォマティクスの立場から、硫化水素の 高温超伝導の解明にとどまらず、室温超伝導への開発指針を示す物質の発掘をテラパスカ ル領域でおこない、高圧力下に広がる物質開発の推進に新たな知見を与えることは極限物 性に携わるものの責務である。

現在 dsDAC は一部の重い金属でのみで行われており汎用の技術にはなり得ていないが、 この技術開発が進めば惑星科学・物性科学の両分野で大変に重要な現象である水素の金属 化に対しても適用可能となると期待される。科学者の大きな目標のひとつである「室温超 伝導体の実現」は人類に大きな飛躍をもたらす発明であり、近年国際的に劇的な競争とな っている単体水素の金属化実現に向け、KEK 放射光は大きく貢献するはずである。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- ・数 10 keV 領域でのナノ集光 X 線ビーム
- ・低温下 DAC 駆動システム
- ・サブミクロンオーダーのステージ制御システム
- ・高感度・高速 X線回折検出システム
- ・圧力決定・試料のスペクトル測定のためのラマン分光光学系

・レーザー加熱システム・冷凍機を含む広温度領域での XRD 測定系と電気抵抗測定の同時測定システム

7-4. 高圧下での多次元分解非弾性分光法による軽元素物質科学の新展開

(1) 背景

放射光源の高度化とダイヤモンドアンビルセルによる高圧力発生技術の進展により、極限状態での構造物性研究が展開されてきた。軽元素からなる物質(Low-Z 物質)については、100GPa以上で多くの新奇な相転移が発見・予言されている。例えば、水素の金属化、リチウムのリエントラント金属相転移、酸素の金属化、ナトリウムの室温融解、氷の水素結合対称化、硫化水素の超高温超伝導などが挙げられる。近年の技術革新により X 線非弾性分光法も極限物性科学における有効なツールとなった。この手法の利用頻度は今後増大することが予測される。そのひとつである X 線ラマン散乱(XRS)は内殻電子による散乱で、軽元素について X 線吸収分光と類似の情報を硬 X 線により測定できるため、Low-Z 物質の電子状態解明に威力を発揮してきた。XRS は内殻の一電子による散乱であるため、散乱断面積は弾性散乱に比べ1-3 桁も小さく、第三世代放射光源をもってしても 100GPa 以下の測定に限られている。場合によっては、この圧力条件での数十時間の露光をもってしても統計精度の良いデータが得られない。反応性に富み、高い流動性を持つ液体試料を取り扱う場合では、測定時間の問題は更に深刻である。現状における X 線非弾性分光測定は、光束により大きく制約されている。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光からの光束を第三世代放射光と比較すると、10keV 程度の硬 X 線領域であ れば、第三世代光源を上回るよう計画されている。X 線エネルギーが 10-15keV 程度の領域 では、適切にデザインされた挿入光源により第三世代光源と同程度、あるいは数分の一程度 の光束が得られるようだ。少なくとも 10keV 付近で光束・輝度ともに増加が期待されれば、 これまでの測定上の問題が飛躍的に改善される。これまでの XRS 測定では、一般的に 10keV の X 線をベリリウムガスケット越しに照射・検出するが、第三世代放射光源で現実的な測 定時間でシグナルを得るためには直径 0.1mm 以上の試料が必要であり、これが圧力上限を 決めていた。KEK 放射光での高光束化・高輝度化により、さらに微小な試料を取り扱える ようになるため、圧力上限の拡張は確実である。100GPa 以上での測定も実現可能だろう。

KEK 放射光源の大きな特長である高輝度性を活かした新展開も考えられる。これまでは 大きな試料に対して X 線を照射し、平均構造を仮定してスペクトル解析を行っていた。KEK 放射光から得られる微小ビームは試料の(組織・化学・熱力学的条件といった)空間的不均 質構造を顕とするため、試料室内の軽元素マッピングへの展開が期待できる。つまりエネル ギー+実空間の 4 次元をパラメータとした取り扱いが、より重要になる。DAC 中の試料が 円盤状をしていることから、2 次元分布を測定するためにはアンビル越しに X 線を照射す ることが望ましい。この場合、通常用いられる 3-4mm 厚のダイヤモンドでは 10keV の X 線の吸収が無視できなくなるが、アンビルに穴をあける等ビームパスを工夫することで対 応できるだろう。ただし、入射フォトン数やエネルギー分解能が同じであれば、より高いエ ネルギーのX線を使用する方が良い。必要なエネルギー分解能は、0.1-1.0 eV程度である。

X線光束が大きくなれば、XRS スペクトルの広域微細構造が測定できるので、そこから EXAFS と同じ定量的構造情報を得られる。高圧下での常温液体ナトリウムや水素結合対称 氷などの結合距離についての研究が期待できる。高温条件下での流体の局所構造変化も興 味深い研究対象である。この測定に必要なエネルギー分解能は数 eV 程度で十分であるが、 微細構造測定のために高い計数率が必要にある。

プラズモンの分散関係も同じ光学系で測定可能である。リチウムではプラズモン媒介に よる超伝導転移温度の上昇が理論的に提案されているが、高圧金属のプラズモン測定が可 能になれば重要な実験データが取得できる。100GPa以上で生じる金属水素・リチウムのリ エントラント金属相・金属酸素についてのプラズモン測定も興味深い。分散曲線を求めるな らば、特に単結晶を試料とする場合に、運動量空間を含めた7次元的な取扱いとなる。



(図) 多次元分解非弾性散乱分光法の模式図。試料中の異なる空間(x,y,z)からの逆空間 (x,ω,2θ)におけるエネルギースペクトル(ΔE)を測定する。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

ビームライン

IXS 実験ステーション(~2 m 分光計ないしはサブ eV 分解検出器を備える) 挿入光 源: 10-14 keV 程度で第三世代放射光を超える高光束・高輝度光源。

単結晶試料の軸立てのためには短波長光 (>20 keV) が必要となるため、波長可変入 射光が望ましい。その際のフォトン数は少なくても構わない。

実験設備

X線集光サイズ可変光学系(0.1~100 マイクロメートル)、ガス駆動 DAC 加圧装置、 2次元 X線検出器(分光および回折測定用)、精密 6軸試料位置制御ステージ、レー ザー加熱システム、冷凍機 測定準備及び試料評価ラボ

X 線回折装置(DAC 試料室中の数ミクロンあるいはそれ以下の結晶の結晶方位決定 が可能であること)、顕微ラマン分光システム、マニピュレータ、高圧ガス充填装置、 デュアルビーム収束イオンビーム加工観察装置(SEM-FIB)、分析電子顕微鏡(TEM-EELS、SEM-EBSD)、レーザー加工機

(1) 背景

地球深部は直接探査が困難で、 観測手段が地震波など間接的なも のに限られている。そのため地球 内部物質科学において、地球深部 の高圧高温極限環境を実験室に再 現し、地球構成物質であるケイ酸 塩(マントル)や金属鉄合金(コア) の様々な物性を直接調べることが 第一級の研究手法となっている。

現状、地球内部の全圧力温度環



図. ダイヤモンドアンビルセル高圧発生装置。ラミノグラフィーを 利用することで、硬い重金属ガスケットや抵抗加熱系をサンプル周 囲に配置可能になり、地球コアの圧力温度まで 3D イメージングが 可能になる。

境(マントル、135 GPa, 4000 K まで、コア、360 GPa, 5500 K まで)を再現可能な装置はダ イヤモンドアンビルセル(DAC)のみであり、X 線回折法をはじめとした様々な放射光実験と 組み合わせることで魅力的なサイエンスが数多く展開されてきた。特に放射光を利用した X 線イメージングに関して、ラミノグラフィーを利用することで超高圧その場での 3D イメー ジングが"原理上"、地球内部の全圧力温度環境で可能になった。この手法は、X 線の吸収・ 発光・回折・散乱など様々な測定と組み合わせることで、組織・化学組成・電子状態のイ メージングによる新しいサイエンスへの展開が期待できる。例えばマントル物質が融ける と、DAC 内の圧力温度勾配に沿って液体と共存する固体が分離する。化学組成を目的とし たイメージングを行うことによって、マントル物質の融解相関係がその場でわかり、初期 地球において高温のマグマオーシャンがどのように冷却固化、化学分化をしていったのか が明らかとなる。従来の X 線回折法では DAC 内の圧力温度勾配の積分された(2D)情報のみ が得られるため、このようなサイエンスには限界があった。高圧高温実験において 3D で情 報を取得することが地球内部物質科学の大幅な発展につながる。

一方で、光源の輝度の問題から、現状展開できるサイエンスには制限がある。

1. 現状の放射光施設で到達可能な空間分解能は 100-200nm 程度であり、研究対象はサ ンプルが十分に厚い(>>1µm)、地球マントル圧力に限られる。第三世代放射光源の輝度では 実現可能な拡大結像系の倍率に限度があり、地球中心核のような超高圧で極薄(厚み<1µm) のサンプルに対するイメージングには空間分解能が足りていない。

2. 現状では、鉄の K吸収端(7.1 keV)を挟む 2 つのエネルギー(7, 8keV)を使用すること で、鉄の組成分布や、鉱物種分布を 3D その場観察することが可能である。一方、一回の測 定時間(40min)、X線エネルギーを変えるための時間、そのためのセットアップにかかる時 間・手間を考慮すると、より多数のエネルギーを用いたイメージングは現実的でない。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

高輝度の KEK 放射光を利用することによって、上の2つの課題が克服可能であるだけで なく、高いコヒーレンス、高エネルギー分解能により質的に一歩も二歩も進んだサイエン スが展開できるようになる。

1. 超高圧その場観察への拡張:今まで地球マントル圧力に限られていた研究を、高輝度 の KEK 放射光を利用するによって一気に地球全域にまで拡大することが可能である。実効 的な空間解像度は回転ステージの軸ブレや再現性によって悪化することを考えると、10nm 程度(100 倍の拡大結像系)が必要となるが、X線吸収イメージングでこのような高い空間解 像度を達成するには高輝度の放射光が必要不可欠となる。例えばコアの融解相関係を調べ ることで、地球内核の形成・進化のサイエンスを進展できる。イメージングの高解像度化 により、粒子サイズが小さい固相実験も視野に入る。以下に挙げるイメージング手法と組 み合わせることによって、固体マントル、内核の化学構造に対する理解が格段に進むこと が期待出来る。

2-1. XAFS イメージング: KEK 放射光による輝度向上、それによって期待できる測定時 間の短縮によって、多数のエネルギーを用いた 3D イメージングが現実的となる。従来の特 定元素吸収端を挟む 2 つのエネルギーだけでなく、より複数の吸収端近傍エネルギーを用 いることによって、XAFS(XANES)的に価数や配位環境、結合様式に対しても 3D マッピン グを行えることが期待できる。これによって地球マントル内部の酸化還元状態に対する理 解が格段に進む。地質学的研究と組み合わせることで、46 億年を通じた地球内部の酸化還 元環境の変遷を追うことができるようになる。

2-2. X線コヒーレント回折イメージング: KEK 放射光の高いコヒーレンスを活かした X線コヒーレント回折イメージングでは、透過型電子顕微鏡レベル(ナノスケール)の解像度で 化学反応/相転移の生成物や組織の微細構造観察が可能になる。その際、異常散乱などを用 いて元素の情報も同時に得られ、マントル鉱物中の鉄の不均化反応(金属鉄析出)や希土類元 素の鉱物内局所濃集など、地球化学的に重要な元素の地球深部での挙動について知見を得 られる。転位の高圧その場観察による物質の流動メカニズムの理解、それによる地震発生 のメカニズム解明など、質的に新しく、社会的貢献の極めて大きいサイエンスの展開も期 待できる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- ・6-10 keV で同一集光位置を持つ吸収、位相イメージング用ビームライン
- ・X線回折(35 keV)のための測定システム
- ・高温実験のためのレーザー加熱光学系、抵抗加熱制御系の設置・遠隔操作システム
- ・ラミノグラフィー画像再構築のための解析用コンピューティング環境
- ・フレキシブルな使用が可能な広い実験ハッチ
- ・高温実験のための強力な極低振動の室温管理(空調)設備

7-6. 高温高圧下におけるメルトの相転移と粘性の変化

(1) 背景

地球や惑星のダイナミクスは、重力場中の物質移動に支配される。ある物質に注目した場 合、周囲の物質との密度差が移動の推進力となり、粘性は抵抗力となる。したがって、固体 に比べて著しく粘性の低い(=流動性の高い)液体に関する知見が、火山活動やマントル対 流、ダイナモ作用による磁場の生成・維持、更には、地球・惑星の進化などの理解において 重要である。地球・惑星の内部に相当する広い温度圧力領域で、液体がどのように構造を変 え、それにより密度や粘性を変えるか、これを解明する必要がある。

1980年代の放射光利用の黎明期から現在に至るまで、結晶を対象とした高圧実験は広く 実施されてきた。一方、2000年代以降、液体やガラスなど、並進対称性を持たない物質(非 晶質)を対象とした実験も増加傾向にあり、SPring-8では、単元素として初めて、リンに 液体-液体の一次相転移があることが発見されて注目を集めた。PFでも、ケイ酸塩メルト (マグマ)の構造や粘性についての先駆的な測定や SiO₂ ガラスの 100 GPa 領域までの構 造測定が実施されている(図 1)。しかしながら、液体の実験では、反応性の高い試料を高



図1 SiO₂ ガラスの密度の圧力変化とSi 原子周囲の酸素の配位数の圧力変化。非晶質も 結晶と同様に、温度圧力条件によって大きく構造と物性を変える。構造と密度については、 ガラスはメルトの良いアナログ物質であるが、粘性については、メルトを対象とした直接 的な測定が必須であり、KEK 放射光における新しい測定法の開発が待望される。

温高圧下に長時間にわたって保持することが困難であることから、圧力の上限が低く、また、 利用可能な測定手法も限定される。非晶質の理解、特に、液体に関する理解は、結晶に比べ て大きく遅れている。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

PF BL-18C(高圧 UG 運営ステーション)では、ガラスの相転移に関する知見を得るこ となどを目的に、数年前から、ダイヤモンドアンビルセル利用の高圧下その場小角 X 線散 乱測定が実施されている。最近、研究成果が挙がり始めており、SiO₂ ガラスの相転移の過 程で、平均数 Å の不均質(ドメイン)構造を捉えることに成功している。高コヒーレンス を特長とする KEK 放射光の光源性能であれば、コヒーレント X線回折イメージング(CDI) により、平均化される前の数 Å の不均質を捉えることも不可能ではない。化学組成によっ ては、より大きなスケールの不均質を持つ可能性もあるので、CDI が有効になる可能性も 高まる。そうした測定に成功すれば、ガラスの相転移、ひいてはメルトの相転移に関する理 解が、大きく前進するものと期待される。

ガラスの構造の平均化される前の不均質を捉えることが可能になれば、メルトの粘性測 定も視野に入る。適切な元素(マーカー)をドープすることで不均質を人工的に作ることも 可能であろう。そのようにして準備した試料に対して、温度圧力条件を変化させながら、X 線光子相関分光(XPCS)法で不均質を反映するスペックル散乱の強度の揺らぎを測定すれ ば、粘性の圧力温度依存性の情報が得られるものと期待される。高圧下その場粘性測定は、 従来、大型プレス装置利用の落球法で実施されており、圧力の上限は10-20 GPaにとどま っている。KEK 放射光の高コヒーレンスにより、ダイヤモンドアンビルセル利用の XPCS 法での測定が可能になれば、圧力の上限が100 GPa 領域まで拡大されるとともに、従来の 結果のクロスチェックにもなる。前述の通り、地球や惑星のダイナミクスの理解には、メル トの粘性の情報が不可欠であり、地球惑星科学への極めて大きな貢献になる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

X 線領域での CDI や XPCS の測定が可能なビームライン、フレキシブルな使用が可能な 広い実験ハッチ、ダイヤモンドアンビルセル周辺機器一式

7-7. 高精細 XAFS イメージングによる フルイドーケイ酸塩間の元素分配の高圧下その場観察

(1) 背景

天然の岩石中に含まれる元素の量は、地球誕生後のマグマオーシャンと核の分化(マグ マ⇔鉄)、地殻の形成(鉱物⇔マグマ)といった分配の歴史を積分した値である。地球化学 分野では、天然試料の元素分析と物質間の分配係数の情報を組み合わせて、岩石およびマ グマの成因や地球の進化に関する多くの研究が行われてきた。特に、プレート沈み込み帯 では、海洋プレートから供給されたフルイド(水)によってマグマが生成され、やがて地

表に噴出して火山を形成すると考 えられている(図1)。地下深部に おけるフルイドと鉱物、マグマの 間の元素分配は、沈み込み帯にお ける元素循環に極めて大きな役割 を果たしている。これまで、一般 に、高圧下における分配係数の測 定は急冷回収実験によるものに限 られていた。しかし、フルイドー ケイ酸塩(マグマ・鉱物)系の測



図1 プレート沈み込み帯の模式図。

定は、回収時にフルイドが揮発してしまうため、高圧下その場測定が必須である。

大型プレス(LVP、Large Volume Press)は、高圧装置としては大容量である、mm³オ ーダーの試料空間を持ち、時間的・空間的に安定な高温高圧状態を維持することができる。 その特長を活かして、これまでにも、放射光を用いたフルイドーマグマの共存状態の高圧 下その場観察の例が報告されている。しかし、大型プレスは、試料の周りに圧力媒体や超 硬アンビルがあるため、検出器や光学系を試料直近に置くことが難しい。したがって、ビ ーム発散がイメージングの解像度に大きく影響する。現状の放射光の発散・輝度では、試 料中の元素の分配挙動を検知するのに、解像度・感度ともに十分でない。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光のアンジュレータを光源とするビームラインにおいては、20keV 程度のエ ネルギー領域まで、極めて低エミッタンス(高輝度)の X 線を利用することができる。 元々のビームサイズが小さく、スリットでビームを成形する必要がないため、試料に当た るフラックスは現状に比べて格段に増えるものと期待される。このビームと大型プレスを 組み合わせて、高精細かつ高感度の XAFS イメージングを行うことができれば、世界でも 例のないフルイドーケイ酸塩間の元素分配および元素の化学状態(価数・配位構造)の高 圧下その場観察が可能となる。分配係数は元素の化学状態に大きく影響されるため、両者 を同時に捉えることは、分配挙動の圧力変化を本質的に理解するために極めて重要である。 これらが実現すれば、沈み込み帯地下深部におけるフルイドーケイ酸塩系の理解が飛躍的 に深まり、火山の形成ひいては日本列島(島弧)誕生のメカニズム解明に向けて大きく前 進するだろう。

島弧の火山活動研究において重要な元素である Rb, Sr, Y(吸収端 15-17keV)は主なタ ーゲットとなるが、これらの天然における含有量は数+ppm-数百 ppmと少ない。微量 元素を検出するために、ビームラインは、マイクロビームを用いた走査型蛍光 XAFS イメ ージングも可能であることが望ましい(図 2)。また、XAFS イメージングだけでなく、こ れまで大型プレスで利用実績の高かった回折や通常の吸収イメージングについても、複合 的に実施可能であることが重要である。特に、回折測定は、試料の構造や状態の確認のた めに必須である。さらに、マイクロビームを単色 X線回折に利用すれば、固相の粒径分布 の変化を元素分配と併せて測定することができると期待される。このほか、水平方向に広

い開口を持つ対向型 高 圧 装 置 (Paris-Edinburgh セルな ど)を XAFS イメー ジングと組み合わせ ることで、CT スキャ ンによる高圧下その 場 3D 元素マッピン グといった発展的 研究も期待できる。



図2KEK 放射光における大型プレスビームラインのイメージ。

アンジュレータ光の場合には、20keV を超えるエネルギー領域に吸収端を持つ元素(希 土類元素など)を対象とした測定は難しい。20keV 領域まででも十分な成果が期待できる が、仮に、マルチポールウィグラーや超伝導ウィグラーのビームラインを光源に用いるこ とができれば、さらに対象元素を拡大できるものと考えられる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- ・10keV領域に高い輝度を持つ単色X線
- ・100µm-1mm オーダーのサイズのビームによる全視野型2次元空間分解 XAFS イメー ジングシステムとマイクロビームによる走査型2次元空間分解蛍光 XAFS イメージング システムを切り替え可能なビームライン
- ・X 線回折および通常の吸収イメージングが XAFS イメージングと同時あるいは短時間 で切り替えて利用できる測定システム
- ・大型プレスを設置可能な広い実験ハッチ
- ・試料準備のための作業室

7-8. 高圧変形その場観察による固体物質の応力場・配向性測定とレオロジーの 理解

(1) 背景

高圧力下における多成分・多相系物質の動的挙動は、その物質を構成する結晶そのものの 性質(対称性、原子位置、組成)だけでなく、各結晶の形状や大きさ・各結晶相の空間分布・ 方位分布などの複合的な要素に支配される複雑な現象である。例えば、地球深部物質の流動 や変形に関する現象(レオロジー)は地球のダイナミクスを理解するうえで極めて重要であ るが、机上の計算だけでこのような複雑現象を再現することは現状では不可能であり、実際 の応力環境再現と放射光その場観察を組み合わせた実験的研究がほぼ唯一の選択肢となっ ている。

大容量マルチアンビル装置(Large Volume Press,以下 LVP)は、比較的大きな積を長時間 かつ安定的に高温高圧状態に維持できる装置であり、多成分・多相系物質に対する拡散・相 転移・流動・破壊といった動的過程の再現実験に大きな威力を発揮する。2010年前後から PF-AR や SPring-8 では LVP に一軸圧縮機構を組み込んだ D-DIA 装置(図 1)が稼働してお り、高圧下における変形挙動のその場 X 線観察が行われてきた。現状の D-DIA 実験では、 単色 X 線による回折パターン(デバイリング)を取得し、格子歪や格子選択配向を抽出す

る解析が主に行われている(図 2)。ただし、 輝度が不足しており長時間の露出が必要で あること、入射 X 線が太く空間分解能が低 いこと、入射 X 線の単色性・平行性が低く デバイリングが重なってしまい(特に多相系 の場合)解析が困難であること、などの理由 から試料全体の平均的な性質の情報しか得 られていない。そのため、高輝度・高フラッ クスの X 線源が待望されている。

また、ダイヤモンドアンビルセル (Diamond Anvil Cell,以下 DAC)は、試料 室は極めて小さいものの 100 万気圧を超 える超高圧力を容易に発生できる装置と して広く普及している。DAC は一軸圧縮 によって圧力を発生するため、本質的に非 等方的な格子歪や選択配向を伴う実験で ある。これまでの研究では、DAC の試料室 内をいかに静水圧性に近づけるかについ て策が凝らされてきたが、理想的な圧媒体



図 1. D-DIA 型高圧変形装置の模式図。装置中央部に配置した試料を六方向から圧縮し高圧力をかけた状態(赤矢印)で、上下からの更なる圧縮(青矢印)を加えることで試料を流動変形させる。装置の隙間から放射光 X線を照射し(黄色矢印)、回折測定、透過像撮影により試料の応力・歪などが計測できる。

は見つかっていない。逆の観点から言えば、DAC 内の応力環境・試料状態(配向性や粒子サ イズ・分布など)を明らかにすることは、LVP ではカバーできない超高圧下のレオロジー研 究につながる可能性がある。ただし、現状では輝度やビーム径の問題から、DAC をレオロ ジー研究に応用した例はほとんどない。



図 2. D-DIA によるせん断変形中の多結晶カンラ ン石試料の方位密度分布(Ohuchi et al. 2015, PEPI, 243, 1-21 を改変)。カラースケールは均質 な方位分布に比する倍率を表す。γ(せん断歪み)の 増加とともに格子選択配向が卓越していく様子が 分かる。このように、これまでに変形中の試料全 体の格子選択配向の測定が可能となっているが、 多結晶を構成する個別の粒子の方位は測定するこ とはできていない。KEK 放射光による粒子ごとの 測定の実現が待望される。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

これまでの D-DIA を用いた高圧変形その場観察では、試料全体の平均的な情報しか得る ことができなかったが、KEK 放射光の高輝度マイクロビームによって上記の問題は解消し、 情報量は飛躍的に増加する。サブミクロンサイズのビームによるスキャンと適切なモデル 計算と組み合わせることによって微小領域(究極的には構成粒子単位)の結晶方位・格子歪 み解析が可能になれば、変形中の応力分布、粒子回転、粒成長、粒界でのすべりなどの今ま で知ることのできなかったミクロな情報をその場で得ることが期待される。これらの情報 は変流動形のメカニズムの正確な理解のために不可欠なものであり、今まで回収試料のみ から間接的に議論されていた高圧下での変形メカニズムの理解は飛躍的に進展する。この ような展開を行うにあたり、新光源の性能を最大限に活かすための D-DIA 変形実験システ ムの大幅な改良を予定する。現状では、比較的高エネルギーの X 線を利用して分厚いアン ビルを透過させているが、低エネルギーで高輝度化する新光源に合わせてアンビルをコン パクト化し、吸収効果の軽減を試みる。また、X 線パスの He ガス置換、X 線入射/出射/圧 縮軸方向の幾何学的再配置や、開口角の最適化、複合測定への適合化などが必要と考えられ る。

ダイヤモンドアンビルセルを用いた応力場・選択配向解析も、KEK 放射光のメリットを 大きく享受する。サブマイクロメートルサイズのX線を結晶一粒に照射して単結晶回折の 情報を引き出すことが可能になれば、DAC の大きな開口角を活かしてセルを搖動させるこ とで、応力環境下での格子歪をダイレクトにとらえることが出来る。また、高輝度化と高速 二次元検出器によってサブ秒単位の時分割測定が出来るようになれば、従来では不可能で あった高温高圧下の高速なダイナミクス(例えば核形成頻度・結晶成長速度の温度圧力依存性 や、歪条件下での相転移カイネティクス)を追跡することが可能となるだろう。新光源の得意 領域(<10keV)に合わせてダイヤモンドの小型化やくり抜き加工、あるいはガスケット材の軽 元素(Be など)化などが技術的な課題となる。

新しい高圧変形システムは R&D 的な要素は多いものの、高輝度・マイクロビーム X 線の 恩恵を大きく享受する挑戦的な実験である。この研究によって得られる成果は、地球内部物 質のレオロジーの理解から地震発生機構の解明、あるいは新規複合材料の開発といった 様々な応用につながることが予想される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- ・高エネルギー(>40keV)単色光源(ウイグラー)
- ・10keV程度の単色光源(アンジュレーター)
- ・D-DIA型一軸圧縮変形装置
- ・DAC 用ステージと X 線集光光学系
- ·高速二次元検出器

第7章 極限物性科学

*担当一覧 監修: 遊佐 斉(物質・材料研究機構) 執筆分担: 第1節 小林 寿夫、池田 修悟(兵庫県立大学) 第2節 一柳 光平、野澤 俊介、船守 展正(KEK 物構研) 第3節 榮永 茉利 (大阪大学)、境 毅 (愛媛大学) 第4節 福井 宏之(兵庫県立大学)、中島 陽一(理化学研究所) 野村 龍一 (愛媛大学)、福井 宏之 (兵庫県立大学) 第5節 第6節 船守 展正(KEK 物構研) 若林 大佑 (KEK 物構研) 鈴木 昭夫 (東北大学) 第7節 瀬戸 雄介(神戸大学)、西原 遊(愛媛大学) 第8節

校閲協力:

奥部 真樹 (東北大学)、小林 寿夫 (兵庫県立大学)、高橋 嘉夫 (東京大学)、

船守 展正(KEK物構研)、山口 博隆(產業技術総合研究所)、

遊佐 斉(物質・材料研究機構)、若林 裕助(大阪大学)

第8節 地球惑星·環境科学

我々人類の暮らす地球は、様々な物理現象、化学現象、生命活動が互いに関連しあう複雑 なシステムを形成している。この複雑なシステムの過去を学び、現在を知り、そして、未来 を予測することは、知的好奇心を満たし、日常生活上の要求に答え、さらに、永く人類が生 存するための手掛かりを与える。

地球惑星科学は、主として、46 億年におよぶ太陽系の歴史を紐解き、天体としての地球 や惑星の進化を解明することを目的とした夢と浪漫にあふれる研究分野である。地球や惑 星において生起する様々な自然現象、例えば、太陽活動に起因する磁気嵐、大気や海洋の流 動と波動、地震や火山などの固体地球の活動の解明も重要な課題であり、研究成果は、天気 予報や自然災害に関わる各種情報・警報などとして社会に還元されている。一方、環境科学 は、地球と人類の関係性に重点を置き、環境汚染や地球温暖化など、人類が現実に直面する 地球規模の問題の解決を目指す研究分野である。数十万年前に誕生した我々人類は火(=エ ネルギー)を操り、特に18世紀の産業革命以降、地球惑星科学が対象とする自然現象に影 響を与えるまでに活動を拡大している。したがって、地球惑星科学と環境科学に明確な境界 はなく、そのどちらにおいても、地球や惑星をシステムとして理解することが本質的である。

地球惑星・環境科学の研究には、様々なアプローチがあるが、システムの各要素における 素過程あるいは要素間の相互作用について、それらの要素を構成する物質のミクロな分析 からマクロな情報を引き出すことは極めて重要である。しかしながら、地球惑星・環境科学 の分野における放射光利用は、これまで、分野の規模に比べて限定的であった。KEK 放射 光では、ハードとソフトの両面での最先端化が計画されていることから、当該分野の利用は 急速に増加するものと見込まれる。

KEK 放射光は、地球や惑星、生命を構成する主要元素の吸収端のある軟 X 線~10keV 領域 に強みを持ち、高空間分解能や高エネルギー分解能の測定、極微量元素の検出を可能にする。 本稿では、それらの KEK 放射光の特長を活かしたサイエンスケースの具体例を紹介する。

8-1. X線顕微測定による太陽系の物質進化過程の解明

(1) 背景

「太陽系(惑星系)の成り立ち」の解明は惑星科学における第一級のテーマである。近年の惑 星科学の発展は、物質科学的研究に負うところが大きく、特に今世紀になってから各種の地球外 天体からのサンプルリターンが成功し、彗星・小惑星の塵が直接得られたことや、南極隕石や砂 漠隕石、宇宙塵の中にこれまでは未知であったタイプの試料が数多く見つかるようになり、惑星 物質の進化過程の道筋が徐々に明らかになってきた。サンプルリターン探査では、NASAの「ス ターダスト」探査によって 2006 年に 81P/Wild 2 彗星塵が、JAXAの「はやぶさ探査」によって 2010 年に小惑星イトカワ塵が得られた。これらの試料に対して、最先端の物質科学的手法を用い た研究を展開することで、未知の惑星科学的知見が多数得られてきた。その中でも放射光を用い た分析は、非破壊分析でありながら多様な情報が得られることから、物質科学的な惑星科学を開 拓する上での「主役」となっている。

このような放射光惑星科学は、手法的な違いもあるが、ここでは硬X線を用いた無機分析を主 とした惑星物質科学と、軟X線を用いた有機分析を主とした惑星物質科学の大きく2つに分けて、 それぞれの現状と今後の課題について個々に述べる。

(1-1) 硬X線を用いた惑星無機物質科学

鉱物学的・無機化学的な分析をする分野では、サンプルリターン試料や、隕石や宇宙塵などの 地球外物質に対して、主に硬X線を用いたX線回折や分光分析などが威力を発揮してきた。KEK-PF でも 1~数 100 µm のビームサイズを用いた分析により、これまでに多くの成果が挙げられて 来ている。数100 μmのビームサイズは、これらの試料のバルク試料分析的な役割を果たしている 一方で、1 µm のビームサイズでは微小領域のX線回折分析が実施されてきた。実際、サンプルリ ターン試料も宇宙塵・隕石も、多くの場合、不均質なサブミクロンサイズの鉱物・非晶質物質の 集合体となっている場合が多く、局所的な情報を正しく得るためにはサブミクロンのビームを必 要としている。特に、今後 5~10 年で、JAXA の炭素質 C 型小惑星サンプルリターン探査「はや ぶさ2」とNASAの炭素質B型小惑星サンプルリターン探査「OSIRIS-REx」により、有機物や水 を豊富に含んでいるとされる始原的な小惑星からのサンプルリターンが実現しようとしている。 これらの試料は、我々がこれまでに知っている地球外物質以上に、構成物質が物質的・空間的に 不均質であり、無機物と有機物の複雑な混合物となっている可能性が高い。また、さらにその先 の探査では、火星の衛星からのサンプルリターンも計画されており、その物質はD型小惑星的な 物質に小量の火星物質が混合している可能性が指摘されている。これらの帰還試料は、この先10 ~20 年の惑星物質の科学の展開を考える上では、最重要な分析対象である。現状の KEK-PF の 分析設備では、サブミクロン領域の分析を実施することができず、nm オーダーでの物質科学的キ ャラクタリゼーション(X線回折・分光)が可能になることが強く望まれる。

(1-2) 軟X線を用いた惑星有機物質科学

従来の太陽系形成論において、宇宙の元素存在度が高い H、C、O、N、S、P からなる有機化合物は主要な太陽系始原物質でありながら、あまり考慮されていなかった。この理由はおそらく、 天文観測のみでは揮発性低分子しか観測できず、複雑な組成を持つ高分子を同定するのが技術的 に難しいためと考えられる。しかし最近では、化学分析技術の発展により地球外物質中の有機物 と鉱物の組成と分布をサブミクロンスケールで「可視化」できるようになり、初期太陽系におけ る「有機物・鉱物・氷(水)の相互作用」が惑星形成を担った重要性が実証されつつあると共に、 太陽系の起源と進化を詳細に描写できるようになってきた。上述の「はやぶさ 2」や「OSIRIS-REx」 に加え、ISS上宇宙塵捕獲実験「たんぽぽ」においても、このアプローチは帰還試料分析の中核を 担い、従来の隕石学では見出せなかった太陽系始原物質進化を世界で初めて解明する重要な機会 になると期待される。

例えば、炭素質コンドライト隕石や、Wild2彗星塵に含まれる有機ナノグロビュールは、TEM、 nanoSIMS、走査型透過X線顕微鏡(STXM)による測定を複合することによって、星間分子雲ま たは原始惑星系円盤外縁などの極低温環境における光化学反応で生成した初生有機物の痕跡であ るとの考え方が有力である(e.g., Nakamura-Messenger et al. 2006)。一方で、有機ナノグロビュール には形状・組成共に多様性があり、その起源や形成過程について十分に理解されていないところ もある。幾つかの有機ナノグロビュールには厚さ数 nm の薄い皮膜層を幾つか含むもの(e.g., Nakamura et al. 2002; Yabuta et al. 2013 LPSC abstract)や、鉱物微粒子を内包するものが TEM で観 察されている。TEM で観察できるこのようなナノ領域の化学状態分析は、現状の顕微分光の空間 分解能(最高で数 10 nm)では及ばない。

また、彗星を起源とする惑星間塵や南極微隕石中には、アモルファスケイ酸塩の一種である GEMS (Glass with Embedded Metal and Sulfides)が含まれる。GEMS の起源については分子雲か円 盤かで決着がついていないが、少なくとも母天体で水質変成を著しく経験した隕石(小惑星)に は GEMS は見られない(アモルファスケイ酸塩は水質作用で含水ケイ酸塩に変化するため)。つ まり、GEMS を含む地球外物質には小天体上の水質変成が起こる<u>前の</u>物質が保存されていること が確実であり、原始惑星系円盤から小天体形成に至る物質進化を明らかにできる。多くの惑星間 塵や南極微隕石で GEMS と有機物の共存状態が観察されているため、GEMS の起源を決定できれ ば有機物の起源にも制約を与えられることが期待され、ナノスケールの組織観察とその化学状態 を詳細に解明する必要がある。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

(1) で述べたように、「スターダスト」以来の帰還試料分析による惑星科学は、「はやぶさ」探 査でさらに進展し、今や「日本のお家芸」になりつつある。特に、放射光分析はその試料の分析 法として主役の位置にあると言える。この分野が、一般の関心を引き付け、多くの若者に夢を与 え、明日の科学を先導する役目を担うのだとすれば、KEK 放射光で展開する科学の中でもこの分 野が果たす役割は大きいだろう。新光源で nm オーダーでの顕微分光やコヒーレントX線回折イ メージングなどが可能になると、上記で示した新しい帰還試料の分析を中心として、これまでに ない空間分解能で地球外物質を構成する成分のキャラクタリゼーションを非破壊で行うことが可 能となり、これまで以上に惑星物質の形成過程について詳細な情報が得られることになる。

このうち、(1-1)で述べた硬X線による無機分析では、nm オーダーの空間分解能でのX線回折、 蛍光 X 線分析、XAFS 分析を KEK 放射光で実現することで、地球外物質が持つ基本的な物質科 学的情報(化学組成、結晶構造など)を明らかにし、これらの物質の形成過程に、これまで以上 に迫ることが可能である。このことは、「原始太陽系星雲の誕生から微惑星の形成」、「原始惑星の 誕生から地球を含む惑星の誕生とその後の進化」について、これまでの帰還試料や隕石・宇宙塵 試料の分析では明らかにできなかった情報を与えると期待される。一部の分析は、SEM および TEM で相補的に実施できるが、放射光を用いて非破壊で実施することが帰還試料では特に重要で ある。また、電子顕微鏡試料作成の際の試料ロスやコンタミネーションを避けることができる。 特にエネルギー可変の結像型 X 線 CT による 3D 顕微化学種イメージング(透過配置)や、大強 度 X 線を利用した走査型 3D 顕微イメージング(蛍光配置)を利用することで、非破壊条件でイ メージングと XAFS 分析が利用できれば、さらにサンプルリターン試料への優位性が高まる。ま た、XAFS 分析は無機物(鉱物)の酸化還元状態を推測する上で重要であり、Fe、Cr、V などの 遷移元素の状態分析を行うことで、これらの試料の形成環境についての重要な情報が得られる。 特に火星衛星試料に火星本体の物質が混ざっている場合は、その試料の酸化還元状態を知ること は、火星マントルや地殻の酸化還元状態にリンクする可能性があり、各種の火星隕石の分析結果 と合わせて火星の内部進化史についての情報を提供し得る。

一方、(1-2)で述べた有機物を主とした研究では、主に軟 X 線領域の STXM を高度化して利用す る。KEK 放射光で実現が期待される高い空間分解能は、(1-2)で述べた有機ナノグロビュールなど のナノ構造体の界面や包有物の化学組成の解明に必須である。また広い波長領域の放射光を利用 した STXM による無機物・有機物の同時化学マッピングは、有機物と鉱物の共存状態の解明、有 機金属錯体のキャラクタリゼーション (e.g., 有機硫黄化合物、シアノ錯体、シュウ酸塩)、惑星型 希ガスの炭素キャリア (Phase-Q) の同定、プレソーラー粒子の細分類 (含有微量元素種別、結晶 状態別) などを可能にするだろう。今後は、クライオ技術の開発も、X 線ダメージを受けやすい 有機物や流体包有物の分析に必須である。さらに 20-30 年後を見据えた場合、揮発性物質(氷、 ガス) に富む彗星などの地球外物質のサンプルリターンに向け、試料調製~導入~顕微鏡部まで のクライオチャンバーを開発することが求められる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- ・X線回折実験 BL:エネルギー範囲: 5~30 keV 程度、最小ビーム径 5 nm
- ・XRF-XAFS 用 BL: 広いエネルギー範囲(軽元素から重元素まで)、最小ビーム径 5 nm
- ・局所 XANES 分析が可能な 3D 顕微化学種イメージング用 BL: 蛍光配置分析も可能に
- ・STXM 実験 BL:空間分解能 5 nm、波長範囲 200~2000eV、エネルギー分解能 0.01 eV
- ・その他の必要な実験設備: ウルトラミクロトーム、SEM-EDX、FIB-SEM(スローリーク、ドラ イ真空系)、STXM-TEM 対応試料ホルダ、光学顕微鏡、クリーンブース、真空デシケータ

8-2.4 次元 X線イメージングによる火山噴火素過程の解明

(1) 背景

火山噴火の爆発性は、マグマに含まれる揮発性成分量に支配される.ただし、地殻内部から地表へとマグマが上昇、噴出する過程において揮発性成分は外部へと「脱ガス」するため、初期の揮発性成分量だけでなく、マグマ上昇中の脱ガスの効率が噴火の爆発性を制御すると考えられている(図1).脱ガスのメカニズムを解明し、その効率を定量化することは、火山学の主要課題である「噴火の爆発性や様式の多様性の原因解明」へつながるため、これらの問題については古くから研究が進められてきた(例えば Eichelberger et al., 1986 Nature; Gonnermann and Manga, 2003 Nature).現在支持されている脱ガスメカニズムは以下のようなものである(図1).一つ目は、マグマ中に形成された気泡同士が連結することで気泡ネットワークが形成され、そのネットワーク内を浸透流としてガスが移動する

という考えである. もう一つは 流動するマグマ中で脆性破壊が 起こり,破壊領域をガスが浸透 流として移動し脱ガスするとい う考えである. どちらのモデル も火山噴出物の組織観察や化学 組成分析の結果から提案されて いるが,実際のマグマ中でどの ようなタイプの脱ガスが起こる のか,またそれは噴火様式を左 右するほど効率的であるのか,



十分に検証されているとは言えない.

このような背景のもと、実験室内でマグマの発泡や流動を再現する研究が進められている. 一つ目の考えである気泡ネットワークを利用した浸透流脱ガスについては、発泡と流動を再現した後にマグマを急冷回収し分析する研究が進められた(例えば Westrich and Eichelberger, 1994 Bull Volcano; Okumura et al., 2006 GRL). その後、SPring-8のX線イメージングラインに高温変形試験機を設置し、マグマの発泡と流動を高温高圧下で3次元観察する研究が始まった(Okumura et al., 2013 EPSL). これらの研究では1回の3次元観察(X線CT)に約90秒を要し、最近ではマグマの発泡過程を数秒程度の時間スケールで観察した研究も報告されている(例えば Pistone et al., 2015 Geology).

二つ目の考えであるマグマの脆性破壊については、二つの観点から研究を進める必要が ある.一つ目は、破壊によって形成される通路を利用した脱ガス効率の定量化である.これ までの研究では、破壊と圧密を組み合わせた実験を行った後、急冷回収した試料のガス浸透 率が測定されている.しかし、マグマの破壊とその後の圧密は比較的高速な現象であり、今 後,破壊と圧密を高温高圧下で直接観察することが期待されている.さらに,粘弾性体であるマグマが破壊するメカニズムの理解が必要である.高温のマグマが破壊することは,変形 試験とアコースティック・エミッション (AE) 測定を組み合わせた実験など (例えば Tuffen et al., 2008 Nature) によって確認されている.一方で,破壊には珪酸塩メルトの微視的構 造変化が関係していると予想されるが,この領域の研究はほとんど進められていない.

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

以上のように、マグマの発泡、気泡の連結、破壊といった動的な現象を直接観察すること が、火山学的に重要な問題を解決するために必要とされている. このような観察を行うため の強力な方法の一つが,X線CTを用いた3次元微細構造観察に時間軸を加えた4次元X 線イメージングである.現在のところ,マグマに対する 4 次元 X 線イメージングの速度に ついては,SLS の TOMCAT が秀でている一方で(例えば数秒程度の時間スケールで 3 次 元観察可能),変形試験機などと組み合わせた実験では SPring-8 の実験システムが勝って いる状況である.これらに対して,KEK 放射光ではウィグラーを光源とするビームライン を利用することで 20 keV 程度において高い光束を得ることが可能であり,4 次元 X 線イメ ージングの高速化が期待される. さらにアンジュレーターを光源とするビームラインを利 用すれば、低エミッタンスなX線を得ることができ、高空間分解能4次元X線イメージン グを行える可能性がでてくる.このような高速・高空間分解能の 4 次元 X 線イメージング をうまく組み合わせることで、気泡ネットワークの形成、破壊による脱ガス通路の形成とい う,脱ガスが開始する様子をその場で観察することができる.そして,高空間分解能3次元 観察と流体シミュレーションを組み合わせれば,発泡から脱ガスを経て緻密化していく過 程における,ガス浸透率の変化を直接定量化することも可能となる. さらに 4 次元 X 線イ メージングに X 線回折実験を組み合わせることで, 珪酸塩メルトの微視的構造の観点から マグマ破壊のメカニズムを解明できる可能性がある.このように高速化された高空間分解 能 4 次元 X 線イメージングは,直接見ることができない噴火時のマグマの挙動の理解,そ して火山噴火の爆発性や様式の原因解明へ大きく貢献するだろう.

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- ・20 keV 付近に高い光束を持つ X 線イメージングライン
- ・小型の電気炉等を設置できるスペース
- ・回転ステージ、撮影タイミング等の同期システム
- ・必要に応じて回折用のイメージングプレート

8-3. 鉱物表面/流体界面の構造・物性から読み解く地球表層のダイナミクス

(1) 背景

鉱物科学・地球惑星物質学は、地球を含む惑星の過去・現在を解明することで、人類の知 的財産を積み上げる基礎科学であるとともに、未来を予測し、地球表層環境分野においては 環境・資源・災害という人類が抱える問題を解決するために必須の科学でもある。

地震・火山活動は、プレート境界に国土を持つ日本では避けることのできない自然現象で ある。地震・火山活動において"水"の存在は物理的・化学的に岩石の融点・破壊強度・摩 擦強度を低下させる。こういった背景の下、地球惑星物質学における重要な課題として、地 殻中の水の分布を捉える、岩石-水相互作用を定量的に理解する、ことが挙げられる。水の 分布は観測・実験・シミュレーションの複合的なアプローチが必要であり、実験からは岩石 中の水の連結度などの存在形態を知ることが重要である。岩石-水相互作用の理解のため には、結晶表面の構造・構成元素を知ることで鉱物表面の親水性・疎水性を解明する必要が ある。

これら自然現象の理解に加えて、鉱物表面への有害元素、石油構成分子、生体分子の吸着・ 脱離は、地殻浅部から大気圏で重要となり、環境浄化、CO2 貯留、石油の回収率増進、バイ オミネラリゼーション等の応用へ直接つながる。また鉱物そのものを機能性材料として活 用する試みが、粘土鉱物学を中心に実施されている。

上記の研究課題を考えると、我々の生活と最も関連の深い地球表層では、「鉱物表面と流体の界面」が基礎から応用全てに関連した研究対象であることがわかる。鉱物の中でも分子の吸着・脱離において最も影響の高い鉱物の一つは、雲母・粘土鉱物や炭酸塩鉱物である。 これらの鉱物は断層の強度低下や地滑りの原因ともなることから、環境・資源・災害の全てにかかわる重要な鉱物である。雲母・粘土鉱物は1層が1nmの厚みをもつ層状構造を呈し、炭酸塩鉱物はへき開面が発達しているものが多いため比表面積が高く、また地球表層環境において普遍的に存在する。流体としては地球表層の主成分である水-CO₂-有機分子が第 一の研究対象となる。主としてこれらの鉱物表面/流体界面の構造・元素分布・流体の連結度等を定量的に探索できる技術が求められている。

現状の問題点

[鉱物表面/流体界面の電子密度分布の測定] 固液界面の電子密度分布は、X 線 CTR (crystal truncation rod)法で 0.1 nm 以下の分解能で求めることができる。しかしながら、 詳細な構造を得るための広範囲の CTR 散乱プロファイルを得るためには、1 プロファイル の測定に数時間以上の時間がかかるため、X 線のダメージによる影響や結晶成長の動的変 化を捉えるのが難しい等の問題点がある。結晶表面の成長過程、親水性、疎水性の理解に向 けては元素分析が必要であるが、地球惑星科学へのX線定在波法等の応用は限られている。 [岩石中の流体分布] これまで岩石-流体の複合系では、µm スケールの理解に留まってい る。これは X 線 CT 法の空間分解能の限界とともに、nm スケールの流体の連結が重要視さ れていなかったことが背景にある。しかしながら岩石の電気伝導度測定による最新の研究 によれば、岩石中の水は nm スケールの隙間で連結している可能性が指摘され、nm スケー ルの空間分解能を持つ計測技術が必要となってきた。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

[鉱物表面/流体界面の電子密度分布・元素分析]

結晶成長は結晶表面/流体界面で起こり、特にバイオミネラリゼーションでは結晶表面 に取り込まれる元素を制御することによって、生物が結晶成長を巧みに制御している可能 性がある。そのメカニズムを解明するためには、結晶表面において元素分布を 0.1 nm 以下 の分解能で知ることが必要となる。KEK 放射光では、X 線 CTR 散乱法と定在波法を使っ て、鉱物表面における元素分布の高速測定が期待される。いずれの測定法も KEK 放射光の 高コヒーレンス性を生かせる方法であり、KEK 放射光での測定が有効と期待している。 CTR 散乱の強度は、コヒーレンス長の 2 乗に比例する(Robinson, 1986)。また X 線の試 料による吸収はエネルギーの3乗に反比例して小さくなるため、できるだけ 10 keV オーダ ーの X 線で測定することで X 線による試料のダメージを小さくする必要がある。KEK 放 射光では、10 keV でも SPring-8 と同等のフォトンフラックスを持ち、その上で高いコヒ ーレンスを持つことから、CTR 散乱法を用いた固液界面の電子密度分布計測に極めて有効 であると期待される。また KEK 放射光の高コヒーレンスを利用して、X 線定在波法を積極 的に活用し、鉱物表面における元素分布の測定が今後進展すると期待される。本測定からは、 石油の回収率増進に向けた鉱物表面での石油分子の吸着構造の解明・バイオミネラリゼー ションのメカニズム解明に向けて、吸着構造を直接測定できる唯一の手法を提供すること になる(図1)。



図1 固液界面の構造解析が拓く地球表層環境科学

[岩石中の流体分布・機能性粘土材料の形態観察]

これまで上部地殻の高電気伝導度領域を解釈するためには、海水程度の塩濃度を持つ塩 水が存在しかつ高い連結度を持つ必要であったが、その高い連結性の実態が分かっていな い。岩石の電気伝導度測定による最新の研究によれば、岩石中の水は nm スケールの隙間で 連結している可能性が指摘されている。岩石中で水がどのように連結するかをナノメート ルスケールで観察できれば、地殻の地震発生領域における高電気伝導度異常の定量的な解 釈につながり、流体と地震発生の関連についても理解が進むと期待される。岩石中における 10 nm オーダーの流体分布の観察には、X線の高コヒーレンスを利用した X線タイコグラ フィー技術が有用である。もし KEK 放射光でこれらの測定が可能となれば、地球惑星物質 学において重要な課題である「岩石—水相互作用」の定量的な理解が進むだけに限らず、石 油の回収率増進・CO2の地下貯留・機能性粘土材料の形態制御といった応用面でのユーザー 拡大が見込まれる(図2)。また雲母・粘土鉱物から機能性材料を作製し、その形状観察を する際にも、1 nm の層状構造を持つこれらの鉱物の微細観察にも X線タイコグラフィー技 術が有効である。



図2 岩石中における 10 nm オーダーの流体分布の観察

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・X線CT、タイコグラフィー用実験ビームライン

・X線 CTR 散乱、定在波用実験ビームライン

8-4. 地球内部・表層環境進化史の精密理解のための多元素状態分析

(1) 背景

現在の地球環境は、地球史46億年を通して変動してきた地球内部のダイナミクスや隕石 などの地球外物質の衝突、地球表層での生命活動とその進化など、地球内外の様々な因子の 相互作用の産物である。地球に存在する岩石や堆積物、生体システム等に刻まれた過去の痕 跡を定量的に復元することは、地球・生命の進化の実態と、それらを突き動かしてきた宇宙・ 地球の構造や原理を明らかにすることにつながる。近年の地球惑星科学における大きな流 れの一つに質量分析技術の飛躍的な発展が挙げられ、地球や宇宙から採取された様々な天 然試料に含まれる微量元素の濃度や同位体比が次々と明らかにされつつある。今後もこれ まで測られてこなかった様々な元素に焦点が当てられることで、過去の環境変動および生 命の進化史がより精密に描写されていくであろう。一方で、広大かつ長大な時空間スケール の中で得られる天然試料のもつ不均一な情報を扱う上で、放射光分析の重要性も増しつつ ある。特に、XAFS によって得られる元素の化学状態は、直接的あるいは間接的に試料が存 在した場の酸化還元状態や pH などの化学環境の情報を与えるだけでなく、質量分析によっ て得られる元素濃度や同位体比の変動原理を物理化学に基づいて系統的・発展的に理解す る上で決定的に重要である。しかしながら、質量分析と比較した場合、放射光分析は感度が 低く、天然試料に対して実際に測定可能な元素には限りがあるという原理的な問題がある ため、必ずしも地球惑星科学研究からの要望に応えられていない。KEK 放射光に関する"大 強度"、"微小領域"などのキーワードは、この点において大きな進展をもたらすと期待して いる。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

2-1. 蛍光分光 XAFS 法による過去の鉱床試料に刻ま れた海洋環境の変動史の解明

酸素に満ち溢れた現在の酸化的海洋では、マンガン 酸化物鉱床が深海底に大規模に沈殿しているのに対 し、現在に至るまでの酸素濃度の上昇に伴って、過去 の海洋では鉄酸化物鉱床や硫化物鉱床などが産出頻 度を大きく変えつつも時代を通して生成されてきた。 これらの鉱床試料は、変動する海洋環境の中で産出さ れ続けてきた元素の濃集物であり、ここに含まれる 様々な元素の濃度や同位体比は、当時の海水の化学情 報を保持している。もしここで、鉱床試料中に含まれ る複数の微量元素について濃集メカニズムが明らか にできれば、試料中の濃度や同位体比の変動要因が



図 1 地質試料に含まれる元素濃 度と同位体比の意味を化学反応に 基づいて精密に理解する

明らかになり、当時の海水の化学情報を複合的に明らかにすることができる。しかしながら、 鉱床試料中の微量元素分析とはすなわち、鉄やマンガンなどの主成分元素および、1000 ppm ~数%にまで多量に濃集している妨害元素を伴う1 ppm 程度あるいはそれ以下の微量元素 を対象にすることに他ならず、分析化学的に大きな困難を伴うことを意味する。ここで KEK 放射光によって得られる微小かつ大強度のX線により可能になるナノビーム蛍光分光 XAFS 法が威力を発揮すると期待される。バルクの平均濃度としては一見測定不可能な低 濃度を示す試料も、その不均一性に着目すれば、検出可能な濃集部位を見出せる可能性があ る。そこで、目的元素の濃集部位を空間的に選別した上で、検出器の前に配置した分光結晶 によって高いエネルギー分解能で目的元素のみを選択的に検出する。この高感度 XAFS 法 を実現できれば、これまで手の出せなかった微量元素の状態分析が可能になり、地球環境・ 生命システムの進化史と密接にかかわる過去の海洋像の描写に明確な化学的根拠を与える ことができる。

2-2. 軟X線ナノビームを用いた地球内部の酸化還元状態の変遷史の解明

地球内部のマントルの酸化還元状態は、プレートテクトニクスに伴う火山活動などを通 して、表層大気や海洋の酸化還元状態および物質循環に大きな影響を与える。マントルの酸 化還元状態の見積もりには、マントルの部分溶融に伴う結晶分化において早期に晶出する かんらん石やクロムスピネルに取り込まれた微量なマグマ(メルト包有物)を対象とし、そ の中に多量に含まれる鉄の2価/3価比に基づいて酸化還元状態を見積もるのが主流である。 しかし、鉄が価数を変えるためには非常に大きな酸素分圧の変化が必要となるため、実際に 高精度で鉄の価数を測定しても、マグマ中の酸素分圧の正確な見積もりは困難な場合が多 い。一方、微量に含まれる硫黄やバナジウムなどは狭い範囲の酸素雰囲気で急激に価数比が 変化すると考えられるため、それらを測定することでマントルの酸化還元状態を正確に見 積もれる可能性が高い。これらの元素を対象に、特に大気中での減衰の激しい軟 X 線領域 において、微小領域の XAFS 測定を行えるビームラインは世界的にも決して多くなく、も し、鉱物中にわずかに含まれる微小なメルト包有物中の硫黄などの軽元素について高感度 分析ができれば、現在まで論争が絶えないマントルの酸化還元状態に関する直接的な証拠 を得られる可能性がある。さらには様々な年代や地域の火山岩に適用することで、地球史を 通じたマントルの進化の研究に発展していくことも期待できる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・大強度微小X線を利用した蛍光分光XAFSシステム、

- 4 keV 以下の大強度軟 X 線ナノビームを利用した蛍光 X 線マッピング、XAFS システム

8-5. 資源探査・開発に向けた極微量元素の化学状態観察と循環過程の解明

(1) 背景

「持続可能な発展」という言葉は、1980年に国際自然保護連合と国連環境計画により提案された言葉で、現在では今後人類が発展していく上での重要な規範や拠りどころになっている。この言葉が持つ意味は様々であるが、地球と人類の関係でいえば、「地球システムを破壊しない程度の地球に対する人間の負荷の維持」の他に、「人類活動に必要な地球資源の持続可能な利用」という意味がある。地球が持つ有限な資源には、大きく分けて化石燃料資源と金属資源がある。このうち後者では、レアメタルという稀少だが先端産業に不可欠な元素が重要な役割を果たし、その結果生み出される効率的な最先端工業製品自体が持続可能な社会の実現に不可欠になっている。一方で、レアメタルは地球上に少量かつ偏在しているため、その確保やコストの低い開発手法やリサイクル手法の開発は、今後の重要な研究課題である。これらにおいては、元素の濃集機構の解明や微生物を用いたリサイクル法の開発などが具体的な研究課題として挙げられ、KEK 放射光を用いた原子・分子レベルからの解析が重要な役割を果たす。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

2-1. 蛍光分光 XAFS を用いた極微量元素の化学種解明に基づくレアメタル濃集過程の解明

地球環境科学における XAFS 分析の特徴は、多元素混合系である地球惑星科学物質に対して、他元素の干渉が少ない条件で目的元素の化学種解析が可能な点である。こうした測定は、多くの場合エネルギー分散型の検出器を用いた蛍光 XAFS 分析により実施されるが、

地球環境試料中の微量元素の検出下限は、共存 元素由来のX線によるバックグランド信号によ り支配されている。このバックグランドを低下 させるには、分光結晶により目的とする元素の 蛍光 X 線を選択的に検出器に導く蛍光分光 XAFSの適用が有効である(図1)。しかし、こ の手法の適用には、試料に対して回折条件を満 たす狭い領域に多数の光子を照射する必要があ り、大強度で微小なX線が利用できるKEK 放 射光の利用が有効である。

具体的な応用例として、内閣府が主導する戦 略的イノベーション創造プログラム「次世代海 洋資源調査技術」で対象となっている海洋資源 への適用が考えられる。海洋立国を目指す日本



としては、広大な海底に存在する海底資源の有効利用は、喫緊の課題である。レアメタルの 中でも稀少資源である白金元素は、濃集した鉱石でさえその濃度は1 ppm 前後である。こ のうち様々な産業で利用されている白金の枯渇が懸念されており、その代替資源として海 底のマンガンクラストが注目されている。マンガンクラストには、地殻存在度に比べて 100 倍以上の濃度で白金が濃集しているが、その濃集メカニズムには酸化説と還元説の両方が あり、未だにその実態は不明である(図1)。このメカニズムを解明する上で、微量白金の 蛍光分光 XAFS 測定(価数決定など)が必須である。こうした濃集メカニズムの解明は、 地球表層での白金の濃集メカニズムを明らかにし、そのことを基盤にして白金が濃集して いる場所の探索が効率的に行えるようになると期待される。

一方、これらマンガンクラストは、nm オーダーの微小な鉄酸化物やマンガン酸化物の粒子の凝集物である。そのため、上記のような化学プロセスを、個々の物質ごとに詳しくみるためには、必然的に nm ビームが必要になる。その場合にも、微量元素を調べる上で妨害になる主成分元素の信号は除去する必要があるので、蛍光分光システムの利用が有効であり、nm オーダーの X線を用いた蛍光分光 XRF マッピング・XAFS 法の利用が期待される。

このような nm ビームを用いた蛍光分光 XAFS は、ビーム径が小さく大強度な KEK 放 射光の特徴を活かした超高感度な XAFS 法である。この手法の実現により、(i) XAFS の検 出下限が1桁以上低下すれば、地球環境科学試料への応用範囲は著しく増加するし、(ii)さ らに nm オーダーの高感度なマッピング技術が可能になれば、様々な分野で大きなブレー クスルーをもたらすであろう。

2-2. 微生物を用いた資源抽出法や資源リサイクル法の開発

人為的に微生物を用いることで、化学反応の反応速度を高める手法が、多くの分野で応用 されている。例えば、環境に優しい高効率なバイオリーチングは、微生物を利用して難溶性 の鉱物から金属を溶出回収する技術であり、低コスト・省エネルギー型の金属回収技術とし て大きな注目を浴びている(Lee et al., 2010 など)。バクテリアによる硫化鉱物リーチング の場合、溶解速度は無菌状態の約 50 万倍にも達することが報告されており、微生物は難溶 性鉱物を効率よく利用する多様な戦略を持っている。しかし、直接分析の困難さなどから、 微生物による鉱物溶解メカニズムには未解明な点が多い。つまり、溶解反応は微小領域であ る微生物 – 鉱物付着面で起きており、従来のバルク分析だけでは鉱物溶解メカニズムを詳 細に解明できない。本研究では、nm オーダーの空間分解能を持つ Nano-STXM を利用し、 微生物 – 鉱物付着面(必要な空間分解能: 100 nm 以下)で有機物種と金属化学種を直接決 定することで、微生物による鉱物溶解戦略を分子レベルで調べる(Mitsunobu et al., 2016)。 微生物による鉱物溶解機構を解明できれば、代謝経路の最適化や機能強化微生物の開発へ 繋がり、バイオリーチング性能の飛躍的な向上が期待される。

一方、微生物そのものへの金属の取り込みも、分離回収技術としては重要である。金属イ オンの細胞内部への取り込みを司る輸送体タンパク質は、細胞壁・細胞膜中に存在し、特定 の元素に対する選択性を持っている。そのため、微生物などの細胞膜中に存在する金属イオ ンの化学状態を調べると共に、そこに存在す る有機物の官能基組成を調べることは、微生 物による金属イオンの取り込み過程を理解す る第一歩となる。細胞壁は10~250 nmの厚 みを持ち、そこに含まれる金属イオンとタン パク質の相互作用を調べるためには、nm オ ーダーの空間分解能を持つSTXMや、さらに 空間分解能の高い ptychography の利用が必 須である。その結果、特定の金属イオンが微 生物に濃集されるメカニズムを明らかにでき る。さらに細胞壁・細胞膜の3次元での XANES分析から、化学種の3Dマッピング が行えれば、細胞壁・細胞膜が金属イオンを 空間的にどのようにして取り込むかを明らか



にでき、興味深い。こうした基礎的知見に基づき、どのような元素の回収にどのような微生物(あるいはタンパク質)を用いればよいかを調べることは、微生物を用いた資源リサイクル法を開発する上での基礎的知見となるだろう。

応用分野として、海底資源の1つである海底硫化鉄試料からレアメタル(銅などを高濃度 に含む)を低コストで抽出する製錬技術の開発や、ネオジム磁石などの強力な磁石からのレ アアースのリサイクル技術の開発などが期待できる。これらの開発やリサイクルでは、製錬 コストの低減が採算性向上の鍵とされており、微生物を利用した低コスト型レアメタル製 錬技術の開発が期待される。

その他、この分野での放射光利用技術としては、Nano-STXM を用いた堆積物中の炭素の 化学種解析による石油・石炭の生成過程の解明などが考えられ、KEK 放射光は様々な資源 の探索とリサイクル技術の高度化に貢献する。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- 大強度微小 X 線を利用した蛍光分光 XAFS ビームライン
- nm オーダーで微量分析の蛍光マッピングが可能な nm 蛍光分光 XRF-XAFS
- nm の空間分解能を持つ STXM や、さらに高空間分解能を持つ ptychography
- STXM を用いた 3D chemical mapping

8-6. 気候変動の機構解明と将来予測への貢献

(1) 背景

人類の活動は地球の気候に影響を与える程度にまで増加し、それが自らの生活にまで 影響を与えるに至っている。こうした気候変動や環境汚染などの問題の多くは、地球が築い てきた物質循環システムに、人類が無視できないレベルの物質を消費・放出することによっ て引き起こされている。その根本には原子・分子レベルの相互作用が内在し、その相互作用 の解明が問題の本質的な理解や正しい将来予測につながる。地球環境物質は多元素混合系 であるため、一般的な分析法で的確な情報を得ることは困難であったが、放射光分析は元素 選択性や超高感度といった特長から、地球環境物質を原子・分子レベルから扱うことを可能 にした。こうした革新的技術を大気圏一水圏一土壌・岩石圏のあらゆる地球環境物質に適用 し、地球環境における全元素の原子・分子レベルの振る舞いを明らかにすることは、人類が 抱える気候変動や環境汚染など、グルーバルな問題の根本的な解決に貢献する。したがって、 地球環境科学の諸問題への応用は、KEK 放射光が果たすべき必須の役割である。ここでは、 エアロゾルと気候変動の問題について述べる。

大気中には主に人為的な燃焼由来の多様な有機物からなるエアロゾル(炭素質エアロゾ ル)があり、それらは黒色炭素からカルボン酸までの様々な酸化状態を示し、大気中で徐々 に酸化を受けることで, 最終的には二酸化炭素となる。 このうち黒色炭素は赤外光を吸収し て温暖化をもたらすのに対し、カルボン酸などは水に親和性があるため雲凝結核となって 雲の生成を促進することで地球を寒冷化する(間接的冷却効果)。また、無機物からなるエ アロゾルの主成分である硫酸塩や海塩粒子も吸湿性があり、間接的冷却効果で地球を冷や すと考えられている。しかしながら、現在の放射光分析では、空間分解能が不足しており、 エアロゾルの表面の状態を正確に評価することができない。このため, エアロゾルの大気中 での質的変化には未解明な点が多く残されている。例えば、(i) 黒色炭素表面の大気中での 酸化(カルボン酸生成)は、雨による黒色炭素の除去効果を増加させると共に間接的冷却効 果を増加させ, 寒冷化により強く寄与する, (ii) 海塩粒子や硫酸エアロゾル表面に生成する と考えられている疎水性有機物被膜は、これらの粒子が元々持つ冷却効果を減少させ温暖 化へ寄与する,などの様々な過程が予想されている(図1)。これらの素過程の解明のため には、大気中の炭素質エアロゾルのスペシエーション(化学種同定)による地球温暖化・寒 冷化(=気候変動)の精密評価が不可欠であり、そのことは「気候変動に関する政府間パネ ル (IPCC)」の第5次報告書 (2013) でも強調されている。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光の特長である軟X線領域の高輝度光は,エアロゾルをはじめとする軽元素が 重要な役割を果たす地球環境物質に対して,高空間分解能での化学種解析を可能にする。エ アロゾル表面でおきる化学反応の評価には個別粒子の分析が不可欠である。特に,炭素質エ
アロゾルは粒径が 100 nm 以 下のものが多く、その分析に は炭素の化学種同定が可能な 高分解能軟X線顕微鏡 (nano-STXM)を開発することが必 須である。この手法を用いれ ば,黒色炭素,カルボン酸,脂 肪族炭素,炭酸塩などを区別 し, 10 nm 以下のオーダーで 炭素の化学種分布を知ること ができる。また,黒色炭素の表 面酸化や,海塩粒子などの表 面の有機物被膜の分析が可能 になる。これら素過程の解明 は、現状では誤差の大きい気 候変動へのエアロゾルの影響 を定量的に評価することを可 能にする。

更に, KEK 放射光の特長で ある高コヒーレンスを活かし たコヒーレントX線回折イメ ージング (CDI)を応用すれ ば,更に高い空間分解能での 化学種解析も可能になり,分 子クラスターから黒色炭素エ



図1 nano-STXM や CDI によるエアロゾル中のナ ノスケールの有機物分析と気候変動の将来予測。

アロゾルが生成する過程(図1)の解明への道も切り拓かれる。また,エアロゾルの個別粒子の分析結果を統計的に意味のあるものとするには,1試料当たり100個以上の多数の試料を分析する必要があり,ここでも KEK 放射光が持つハイスループットという長所が重要となる。

以上のように、本研究分野への応用は、KEK 放射光の特長(炭素 K 端などの軟X線領域 と nm 空間分解能に特長を有する)を最大限に活かしたものであり、今後の発展が大いに見 込まれる。

(3) 必要なビームライン・実験設備

軟X線領域において高空間分解能のX線吸収スペクトルが取得可能な nano-STXM や CDI の装置。

8-7. 高空間分解 X 線顕微鏡による環境微生物学の新展開

(1) 背景

地球上には多くの微生物が生息しており、自然界において炭素、窒素、鉄などの元素(物 質)循環の一翼を担っている。枯死した植物、動物の遺骸や排泄物は、微生物によって分解 され、新たに利用可能な二酸化炭素、水をはじめ様々な化合物が生み出され再循環される。 また、全球レベルの炭素循環において重要とされる海洋地殻の風化反応においても、微生物 による生物的風化作用「Bio-catalysis」が大きな役割を果たしている。

微生物がエネルギー獲得に利用する主な反応は、電子授受をともなう酸化還元反応であ る。動物は例外なく有機物(電子供与体)を酸素(電子受容体)で酸化してエネルギーを得 ているが、微生物のエネルギー獲得様式は圧倒的に多様であり、多くの物質を利用すること ができる。環境中に存在する微生物が、どのような物質を電子供与体、電子受容体として利 用することができるのか(エネルギー獲得機構、機能)、どの微生物種によってその反応が おこなわれるのか(種の特定)、そしてどの程度の速度で反応が進行するか(反応速度)と いう複合的課題の解決が、環境微生物学の至上命題の一つである。また環境微生物が物質循 環に果たす役割の大きさゆえに、地球科学分野においてもこれらの課題は重要テーマとし て認識されている。しかしながら、環境微生物のエネルギー獲得機構や機能には不明な点が 多い。もちろんこれまでの研究によって、主要な微生物種、エネルギー獲得機構に関する知 見は蓄積されつつあるが、依然として未解明な点が多い。

未解明な点が多い最大の理由は、環境微生物の大半(99%以上とも言われる)が、難培養 性であるという一点に尽きる。環境から単離培養した微生物によりその機能や生理活性を 調べる従来の解析法は、強力かつ直接的な手法ではあるが、培養成功率の低さが大きな障壁 となり環境微生物全体を把握できない。この問題を考慮すると、環境微生物学の飛躍的な前 進のためには、"培養に依存しない(cultivation-independent な)"新しい分析法の開発が必要 不可欠といわれている。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光の特徴である軟 X 線領域の高輝度光は、軽元素(炭素、窒素、酸素)から成 る有機物およびその集合体である生体試料に対して、化学種解析に基づいてエネルギー獲 得機構、生理活性を解明することができる。また、金属元素のような重元素であってもL吸 収端や M 吸収端を利用することで、軟 X 線分光により化学種決定が期待できる。また微生 物を対象とする場合、高い空間分解能が求められる。微生物(バクテリア、アーキア)の細 胞サイズは数µm 程度であるため、多種多様な微生物を環境試料から選別して機能解析をお こなうには、シングルセル(1 細胞)分析が可能な 10 nm 程度の空間分解能が必要である。 また、微生物細胞は立体構造であるため、3D で NEXAFS マッピングを得ることで、エネル ギー獲得機構を局在機構も含め詳細に調べられる可能性が高まる。新 KEK 放射光源は高輝 度であり高速測定が可能となるため、トモグラフィーなど測定次元を増やした顕微分析が 期待できる。一方、高輝度な X 線を利用する場合、(特に生体試料の場合)X 線による損傷 が問題となることが多く、クライオスタット等でその影響を最小限にする機構も必要とな るだろう。これらの条件を考慮すると、新たな KEK 放射光では、ナノレベルの空間分解を 有し、化学種の 2D および 3D マッピングが可能な X 線顕微鏡(nano-STXM)の開発を強く 期待する。

この手法を用いることで、種々の微生物や物質が入り混じった環境試料であっても単一 細胞ごとに微生物のエネルギー獲得機構、機能を知ることができる。X 線顕微鏡だけでな く、遺伝子選択的に微生物を染め分けられる蛍光染色法 (FISH 法など)を組み合わせれば、 反応を進める微生物種の特定まで可能である。STXM は cultivation-independent かつ高い元 素選択性を有する手法であるため、様々な微生物や金属代謝系へ応用できる。したがって、 難培養性か培養性かにかかわらず、あらゆる環境微生物の機能やエネルギー獲得機構の解 明に適用できる。例えば、微生物による海洋地殻の風化作用に関する研究について、これま で不可能であった細胞内、細胞膜近傍、鉱物(岩石)表面、の三相で生体分子(有機物)、 無機物の化学種決定が可能となり、エネルギー獲得機構をその場分析から調べられる(図 1)

また、極限環境における微生物機能にも応用が期待できる。例えば、海底下の微生物圏は 活性(菌数)が低いことなどから、その解析が地球上で困難な生態系といわれる。シングル

セル分析が可能な nano-STXM を適用し、海底下堆積物におけ るメタン、亜酸化窒素ガスなど 温室効果ガス生成微生物のエ ネルギー獲得機構や種の特定 を明らかにすることができれ ば、地球規模の炭素循環に果た す環境微生物の役割の解明、さ らに生命進化や極限環境への 適応能力の解明といった環境 微生物学、地球科学に重要な研 究展開が期待できる。





図 1. ナノレベル空間分解 X 線顕微鏡による環境微生物学の新展開

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

軟 X 線領域において高空間分解能の NEXAFS および 3D マッピングが取得可能な X 線顕 微鏡装置。

8-8. 植物を利用した環境浄化や資源回収

(1) 背景

ある種の植物は、一般の植物では枯死してしまうようなカドミウムやヒ素、鉛など有害元 素濃度が高い環境でも生育でき、かつ体内に数千 ppm という高濃度の重金属を蓄積する。 これら重金属蓄積植物は、ファイトレメディエーション(植物による環境浄化技術)への応 用が期待されている。植物を用いる環境保全・浄化技術は、省エネルギーで高い経済性をも ち、環境適合性にすぐれた特性を有するが、一方では、汚染浄化の速度・効率が低いという 問題がある。植物の持つ浄化機能を最大限発現させ、より効率の良い浄化を実現するために は、植物が有害元素を吸収・移行・蓄積するメカニズムの

理解が重要である。

植物のような複雑な組織をもつ生物試料を非破壊で分 析するプローブとして,放射光 X 線マイクロビームは大 きな優位性をもつ。放射光マイクロビーム蛍光 X 線イメ ージング (µ-XRF イメージング)を適用すると,有害元 素が特定の組織や細胞において高濃度(濃度は数千 ppm レベル)に蓄積される様子を可視化することができる(図 1)。また X 線吸収微細構造(XAFS)解析を適用すると,植 物に吸収された有害元素の化学形態の変化を追跡するこ とが可能になる。 図 1 モエジマシダの葉にお
 けるヒ素の分布
 葉の辺縁部の胞子嚢周辺に
 ヒ素は蓄積されていた。

現在,東欧では,重金属汚染土壌が深刻な問題になって おり,欧州の第三世代放射光施設 ESRF を中心とする研

究グループでも,放射光 X 線マイクロビームを重金属蓄積植物へ応用する動きが,年々活 発化しており,世界的に重要な問題となっている。

植物の根から取り込まれた有害元素は,茎から葉へと移行する。植物体内に取り込まれた Cd や Pb など有害な重金属が無毒化される際には,一般的には植物体内で生産されるポリ ペプチドであるファイトケラチン ((γ-Glu-Cys)n-Gly, n = 2~11)のような化合物のシス テイン基と結合しているといわれている。また有害な重金属は植物特有の細胞内小器官の 液胞内に隔離されていると考えられている。液胞にこれらの重金属を蓄積するためには,細 胞膜や液胞膜を通過しなければならず,膜タンパク質の働きが重要である。細胞内には小さ な細胞内小器官が集まっており,有害な重金属を蓄積する細胞はまさにバイオナノテクノ ロジーの集約と位置づけられる。

このような細胞内のオルガネラを非破壊で分析するためには、ナノメートルオーダーで の顕微分光のシステムが不可欠となる。また極微少量の物質を対象とするため、高輝度な光 源が望まれる。KEK 放射光の光源性能と最新のビームライン建設技術により実現される、 ナノメートルオーダーの高い空間分解能をもつ顕微分光システムに対する期待は大きい。 走査型顕微システムの場合, データの取り込みが計測の律 速になるケースがあることから, データ処理速度の向上も 必要である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

植物などの生体は、細胞から組織・器官レベルまで高次 に発達した構造をもつ不均一な試料である。ナノメートル オーダーという高い空間分解能をもつ顕微分光システム は、今までバルクでしか評価できなかった、生体における 特異的・局所的な化学反応を詳細に解明する革新的な分析 ツールとなるであろう。植物細胞は含水率が90%程度であ り、分布や化学状態の知見を得るには、生きた状態を保持 して計測することが重要である。

KEK 放射光では、標準的な X 線光学系にて数十 $\mu m \phi$ 程度の高輝度のセミミクロビームの利用が可能である。さ らに高コヒーレンスを活かした ptychotomography の手 法を導入することより、ビームサイズよりも小さな空間分 解能数 nm での測定が可能となり、元素の種類・量とその 化学状態、さらには結晶性・配向性等の"階層構造(三次 元 ヘテロ構造)"を三次元で観察する新たな手法 (Ptychotomography XAFS-CT)が可能になる。こうした



図 2 タバコ培養細胞 BY-2 細胞内のオルガネラである 液胞に, 無毒化した化学形 態の Cd を蓄積する。



図3単細胞藻類のSEM像 塩化金酸溶液を添加する と,細胞内に金ナノ粒子が 生成される。

手法により,複雑な化学工場である細胞(図2,3)をはじめ,それらが形成する組織内で進行する様々な反応を,XAFS,X線回折など,1つの試料に対して複合的な明らかにできる ことが期待できる。特に,細胞を加工や染色せずに生きた状態(に近い状態)で三次元観察 することにより,細胞を反応の場とする様々な化学反応,すなわち生体鉱物形成や光合成反 応,バイオ燃料生成等のリアルタイムの観察が実現すると,大きなインパクトが期待できる。 このような多次元のデータを組み合わせて自在に解析することが期待されるが,そのた めの解析システムの専門家の配置や整備が不可欠であることはいうまでもない。

一方,生物学の分野では,重金属蓄積植物と一般の植物との違いを,遺伝子から解明しようとする分子生物学的アプローチが行なわれている。ある種の植物だけが有害な重金属に耐性・高蓄積性をもつということは,その種がもつ遺伝子に鍵があるはずである。このような分子生物学的アプローチと,実際に複雑な反応場をもつ生体での機能発現と結びつける新しいサイエンスが求められている。

KEK 放射光で実現する顕微分光システムや軟 X 線を用いた主要元素の XAFS 分析シ ステム,さらに元素+化学状態+結晶性の情報を,nm~μmのマルチスケールで,同視 野, in situ (in vivo),経時変化の観察が可能な技術を,重金属の輸送・蓄積に関連する遺伝 子を過剰発現した植物や野生型あるいは遺伝子欠損した植物へ適用すると,特定の部位で 発現する遺伝子やタンパク質の機能と,放射光先端計測で得られた元素分布や化学形態の 情報関連させることができ,新しいサイエンスの展開が期待される。

植物のもつ機能は環境浄化だけでなく、資源回収(ファイトマイニング)にも有用である ことが示されている。KEK 放射光がもたらす新しいサイエンスは、持続可能な社会実現へ の解を提供することも期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

A. ビームライン

ナノメートルオーダーの複合顕微分光システム(XRF, XAFS, XRD)

B. データ処理系

データの高速転送、多次元データ解析システム、画像化ソフト

C. 試料調製ラボ

クライオミクロトーム,デジタルマイクロスコープ,SEM, 蛍光顕微鏡

8-9. 放射光 XRF-XAFS を用いた生体組織中微量金属元素の分布と 化学状態評価および微量金属の生体影響の解明

(1) 背景

人体は H, C, N, O, P, Ca など主要 10 元素で全体の 99.4%を占めるが、生命活動の維持には Fe や Zn をはじめとする多くの微量金属元素が関与している。ヒトや動物への必須性が判明してい るのは Fe, Zn, Mn, Cu, Se, I, Mo, Cr, Co, Sr, Pb, Sn, Ni, As, V などで、これ以外の金属元素について も役割が未知なだけで必須な可能性がある。例えば Zn は Fe に次いで多く含有され、多種の酵 素活性に関与するため、欠乏により種々の機能不全が発生する。逆に金属元素の過剰や通常とは 異なる経路での体内への取り込みが生体に害をもたらすこともあり、金属アレルギーや重金属 による急性・慢性毒性が知られている。また Pt 製剤(抗がん剤)や Li 製剤(躁病治療薬)のよ うに金属化合物は薬剤としても用いられる。これら微量金属元素は生体の機能や病態に深く関 与しており、その体内での挙動を調べることは金属元素の為害性評価や病態解明、予防のための マーカー解明に大きな意味を持つ。しかしながら生体内の微量金属元素の分布は不均一であり、 場所による状態も変化している。また多くの生体試料は稀少なものが多く、非破壊分析が望まれ る。特にヒトを対象とする場合、採取試料の多くは病理診断用にパラフィン薄切標本として供さ れており、この標本を用いることで、試料を追加採取して患者への無用な侵襲が避けられること、 病理組織像と同じ視野で元素(状態)分布情報が得られ両者の相関が知り得ること、など多くの 利点がある。但し、厚さ数~数十μmの薄切標本中の微量元素分布を計測するには、極めて高い 検出感度が必要となる。放射光蛍光 X 線分析と XAFS 分析の併用は、上記の高感度,非破壊, 微小領域分析,状態分析を可能にする唯一とも言える手法であり、生物試料の評価に不可欠と考 えられる。下記にその有効性の一例を紹介する。

(1-1) 口腔粘膜中に局在する歯科用金属からの微量溶出元素の検出

軟組織中の微量金属元素分析例として口腔粘膜疾患を示す。金属修復物からの溶出金属イオンの影響が示唆されながら、溶出金属の直接的影響が明らかでなかった口腔扁平苔癬様疾患の粘膜をこの手法により分析し、複数症例の病変粘膜内部で歯科用合金元素の局在が検出(図1の例ではFeとNi、濃度は最大で数百 ppm レベルと推定される)され、同疾患への歯科用合金の直接的関与が初めて明らかにされた。加えて XAFS 分析により、組織中の局在金属元素の化学状態が明らかになり、口腔内金属の溶出過程の解明に寄与することが示された。本手法は疾患の原因金属修復物の特定や歯科用金属材料の口腔内での安全性評価に応用が可能である。



図1 口腔扁平苔癬様疾患粘膜の臨床像(左)と SR-XRF による組織内微量元素分布像¹⁾

(2-1) 薬剤関連顎骨壊死と骨中微量金属元素の関係評価

ビスフォスフォネート(BP)は骨粗鬆症や高 Ca 血症の治療薬として用いられているが、その投 与患者の顎骨に壊死が起こる症状(薬剤関連顎骨壊死(MRONJ))では発症機序が未だ不明であり、 BP 投与患者の外科処置に障害となっている。筆者らは MRONJの壊死骨において、正常骨に比 べ極めて高濃度の Cu や Zn, Ni などの金属元素が局所的に(最大で 1000 ppm を超える濃度で) 蓄積していることを初めて明らかにした(図 2)。また局在する Cu の XAFS 解析により、壊死骨 中 Cu が BP と複合体を形成して蓄積している可能性を示唆した。



図2 BRONJ 腐骨標本の病理像と元素分布像(左:弱拡大,右:中拡大)²⁾

(3-1) 歯科用チタンインプラント周囲組織の Ti の XAFS による状態分析

歯科用(および整形外科用)インプラント材料には骨結合性のあるチタンが用いられているが、 周囲組織中にチタンの局在が見られることがあるため、チタンの溶出の有無について詳細に調 査する必要がある。そこで歯科用インプラントに接触した口腔粘膜中の Ti の状態を XAFS によ り調査した結果が図 3 である。多くの場合には組織中の Ti は金属状態でありインプラント埋入 手術時に発生した摩耗粉と推定されたが、一部試料では TiO₂ (anatase または rutile)であることが 明確であった。埋入されたインプラントは金属チタン製であり、陽極酸化などの表面処理層を持 たないことから、チタンが生体内で微量溶出(濃度は組織平均で数~数+ ppm レベル)し、周 囲組織中に酸化物として局在したものと考えられた。



図3 チタンインプラント周囲組織中のTiのXANESスペクトル³⁾

但し、組織中の金属 Ti や酸化チタンは安定な状態で局在しており、他への拡散がないことから、 インプラントの成否には無関係である。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

申請者らが開発した本手法は貴重な組織標本を非損傷で、元素分布と化学状態情報を同時に 取得し、組織学的情報と対比して検討でき、各種疾患におけるこれまでの病理学的検討を更に元 素情報の点から拡張し、疾患の発症機序解明、予防や診断の元素マーカー確立、医療用材料の安 全性評価に繋げられる点で有益な手法と考えられる。現状では SR-XRF による組織全体の元素 分布測定および Cr 以上の金属元素の XAFS 測定を BL-4A で、Ti, Ca などの XAFS 測定は BL-9A, 12C で、ミクロンレベルの高分解能元素分布測定は放射線医学総合研究所のマイクロ PIXE を併 用して行っているが、高効率で位置精度の高い測定のためには、これらが1サイトで行えること が望ましい。

KEK 放射光では、標準的な X 線光学系にて数十µm #程度の高輝度のセミミクロビームの利用 が可能である。さらに高コヒーレンスを活かした ptychotomography の手法を導入することより ビームサイズよりも小さな空間分解能数 nm での測定が可能となり、元素の種類・量とその化学 状態さらには結晶性・配向性等の"階層構造(三次元ヘテロ構造)"を三次元で観察する新たな手法 (Ptychotomography XAFS-CT)が可能になる。生物試料中の微量元素は不均一で、塊状の標本では 現行法では試料を数十µmt の複数の切片に薄切して、全試料を二次元元素マッピングする必要が あるが、三次元計測が可能になれば、大型の標本内の局在微量元素の分布や、その部位による化 学種の存在形態を、組織〜細胞の様々なレベルで高効率で観察可能となり、その結果、生体内の 微量金属元素の動態解析や種々の金属原因による疾患の発症機序解明、金属を含む薬剤の作用 機序解明や金属・セラミックスなどの医療材料の安全性評価と設計指針構築などの分野で大き なインパクトが期待できる。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

本手法に必要な放射光源として、以下が挙げられる。

- ・4 keV (Ca, Ti) から最大 25 keV 程度までのエネルギーの X 線が発生でき、低エネルギー側では 高次光除去が可能であること。(歯科用合金は Ag, Pd, In, Sn などを多く含んでおり、これらの 元素を K 線で分析できるためには 20~25 keV の励起エネルギーが不可欠 (L 線では組織中や 大気層の吸収が妨害する)。また Ti も歯科・医科で広く使われており、これらの XAFS 測定 では高次光除去が必須である。現状では BL-4A で元素分布を特定した後に BL-9A か 12C で XAFS 測定する必要があり、位置再現が困難である)
- ・フラックスについては全エネルギー域にわたって、10¹⁰ photons/sec 程度あることが望ましい。
 (現行の BL-4A が 10⁹ photons/sec 程度で、極微量元素の場合には測定時間がやや長くなる (5~6 時間/試料程度) ことから、これを 1/10 程度に短縮して測定効率を高められることが望まれる)
- ・複数試料を自動でマッピングすることが可能であること。
- ・生物試料の分析は不定期に発生するため、年間複数回の分析機会が与えられるだけのビームタ イムの余裕があること。

文献:

- 1) Sugiyama T., Uo M., Wada T.et al., Sci Rep, 5:10672, 1-12, 2015.
- 2) Sugiyama T., Uo M., Mizoguchi T., Wada T. et al., Bone Rep, 3, 40-47, 2015.
- 3) Uo M., Asakura K. et al., Dent Mater J, 26, 268-273, 2007.

8-10. 福島環境回復を目指した放射光研究

(1) 背景

2011年3月の福島における原発事故は重大な社会問題であるばかりでなく、原子力にお ける様々な課題を顕在化し、放射線と社会のあるべき姿についても議論を喚起した。事故後 5年が経過した今も問題解決の道筋は不透明の部分が多い。福島の環境回復には、多くの分 野の科学的知見を集結する必要があり、その中には放射光科学が貢献できる余地が多く残 されている。

解決すべき最重要課題の一つに、環境中に放出された放射性同位体による環境汚染問題 がある。帰還困難区域では現在でも数 µSv/h を超える場所が多く存在しているが、そのほ とんどが土壌中の放射性 Cs によるものであり、環境回復には除染、および大量の汚染土壌 の減容化が必要不可欠である。粘土質土壌に強く固定された Cs の除染法として、土壌をア ルカリ塩などで処理することにより Cs を排出させ、生成した鉱物を工業的に再利用する

「Cs フリー鉱化法」が提唱されているが、実用化には、よ り低温低圧条件での反応など、低コストの条件での処理法 を確立する必要がある。粘土鉱物は Si, Al, Mg, Fe, K, Na, O といった主要元素以外にも Ca, Li,Cs, Cl, F など様々な 元素を含み、さらに添加するアルカリ塩由来の元素なども 鉱物生成に影響することから、多元系の複雑な化学反応が 放射光による観測の対象になる。



図1.Csフリー鉱化法の概念図

さらに今後大きな課題となってくるのは、福島第一原発の廃炉及び廃棄物処理の問題で ある。福島第一原発(1F)サイトにおいて出現する様々な物質の化学状態を明らかにする ことで、廃炉工程の遂行、効率化、安全確保に貢献できる。2020年代には燃料デブリの取 り出しが開始することが予想されるため、PFの次の世代の放射光による分析が是非とも必 要である。同時に、原子炉構造部材など(鉄骨、コンクリート、作業現場放置物、スラッジ など)や原子炉圧力容器鋼材などの分析も求められる。原子炉構造物の材料や燃料は長期間 にわたり中性子やガンマ線に曝され、その組織や物性が変化するが、これらの照射損傷はそ の生成過程から必然的に不均一構造を持つため、平均的な構造解析ではメカニズムの理解 が不可能である。様々な性状の放射性物質の保管・処理を安全に実施するためにはその状態 を明らかにすることが必要不可欠である。また、これらの知見は、今後再稼動する原子炉の 安全性確保のためにも重要である。

種々の問題の背景となっているのは放射線リスクであり、様々な問題解決の社会的コス トを考える上でも放射線が生体に及ぼす影響を明らかにすることが必要である。バイスタ ンダー効果やゲノム不安定性など、空間的にも時間的にもエネルギー付与事象から離れた ところで起こる現象が生物に影響を与えることは現在ではよく知られているが、まだリス ク評価には適用されていないのが現状であり、メカニズムの解明が待たれている。

(2) KEK放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光は、主要元素の吸収端のある軟 X 線~10keV 領域に強みを持ち、高空間分解 能や高エネルギー分解能の測定、極微量元素の検出を可能にする。福島第一原発事故で環境 に放出された Cs は、物質量としては非常に微量であり(例えば Cs-137 の場合、廃棄物を 焼却・埋立処分することのできる基準値 8000 Bq/kg は数 ng/kg = 10⁻³ ppb のオーダーに相 当する)。このような極微量原子は特異的な挙動を示すと考えられているが、現在の放射光 では観測不可能である。(1)であげた Cs フリー鉱化法においては、Cs が粘土鉱物から排出 される際の生成物は複数成分が混在したものとなることから、構造変化は空間的に不均一 な反応過程によって起こっていることが示唆されている。nm レベルの集光ビームによる Nano-XAFS を用いた局所構造解析は不均一な化学反応をその場観察するのに有効である。 Cs 濃度に依存した生成物の組成・構造の違いを調べることで微視的な Cs 除去メカニズム を明らかし、より効率的な土壌除染法の開発に繋がることが期待できる。

これらの分析技術は、原子炉構造材料の物性研究においても有効である。放射線照射に よって生じるミクロ組織レベルの照射脆化の分析には、これまで透過型電子顕微鏡、3次元 アトムプローブ、陽電子消滅測定などが適用されてきた。しかし、これらの方法は、試料形 状の制約や、特定の元素の情報しか得られないという欠点があった。これらの欠点を補う分 析法として、軽元素からアクチノイド、ランタノイドに至るほぼすべての元素周辺の局所原 子配列や化学結合状態、電子状態を非破壊で評価することができる XAFS、XPS 法が注目 されている。さらに、KEK 放射光によって nm レベルの分析が可能になれば、これまでの 分析法を凌駕する手法となりうる。

放射線生物作用のメカニズム解明には、個々の細胞、または細胞の一部を狙って照射で き、その後の生物作用を追跡観測できるマイクロビーム細胞照射装置を用いる。エネルギー 付与の領域を限定するには、二次電子の飛程が短い 5 keV 前後の比較的低エネルギーのX 線が望ましく、KEK 放射光のカバーするエネルギー領域に適合している。また、輝度が現 在の PF から3~4桁上がることにより、α線や重粒子線などの高 LET 放射線のエネルギ ー付与のバターンを模擬することが可能になる。また、個々の細胞に起こる微小な放射線効 果を検出するには、高感度な分析法である RI トレーサーの使用が望ましい。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- ・RI・核燃料の持ち込み、測定可能なビームライン
- ・ 蛍光 XAFS による微量元素分析
- ・クイックスキャン XAFS (透過法、蛍光法): Fe、U、Zr などの元素の化学状態観察
- Nano- STXM
- イメージング XAFS、3D-XAFS: 位置分解能を利用した観察
- ・マイクロビーム細胞照射装置
 - ・細胞培養実験が可能な実験室(ビームラインに併設)

8-11. 次期光源における食品科学

~ナノビームを用いた極低濃度元素の化学状態、局所構造分析~

(1) 背景

日本を含む先進国では高齢化社会を迎え、健康寿命を延ばすことが大きな課題の1つで ある。一方、発展途上国では急激な人口増加と工業化が進み、食糧問題や栄養失調、環境汚 染も懸念される。汚染防止に加え、汚染された農産物や畜産物、海産物の摂取を防止する対 策も必要である。従って、健康な生活のための積極的な栄養の摂取、有害物の摂取防止のた めの食品の安全・安心の確保、という大きな2つの課題に解決策を提示する必要がある。

例えば高齢化社会では骨粗鬆症対策が喫緊の課題であり、成長期の充分な骨量の獲得が 重要である。骨の形成には Ca が必須であり、可食部 100 g 当たり 100 mg 以上の Ca を含 む食品として牛乳、ホウレン草など[1]が挙げられる。Ca の人体吸収率は、牛乳 27.6%、ホ ウレン草 5.1%と報告[2,3]がある。高含有量でも吸収率が低い食品もあり、吸収率の考慮が 欠かせない。吸収率は Ca の化学状態・化合物に依存すると考えられる。Ca 含有量が同じ であっても、難容性 Ca 化合物なのか、消化器程度の酸性下で溶解する Ca 化合物なのか、 によって吸収率は大きく異なる。骨粗鬆症対策として Ca 摂取を考える際、Ca 吸収率の高 い食品・低い食品に特徴的な Ca の化学状態・化合物を解明することが必要である。食品中 の Ca の化学状態・化合物の分析には、直接非破壊分析可能な XAFS や XRF が適している。

ホウレン草の Ca の低い吸収率は難溶性のシュウ酸 Ca のためと予想されたが、直接的 な証拠は長い間示されて来なかった。最近、ホウレン草の Ca の化学状態を XAFS により 直接非破壊分析を行い、ホウレン草の Ca がシュウ酸 Ca であることが初めて直接定量的に 示された[4]。人体による吸収のし易さという観点から種々の食品中の Ca の化学状態・化合 物を XAFS や XRF を用いて分析することは、高齢化社会の骨粗鬆症対策に直結する。ま た、これにより、より効率的に Ca が摂取可能な機能性補助食品が開発されれば、先進国だ けでなく、発展途上国における栄養不足の子供達の発育に貢献できる。

また、海産物等の種々の有害金属の問題が広く知られている。部位ごとの金属の分布相関 等の報告があるものの、非常に低濃度なものもあり、その化学状態までは分析できていない のが現状である。同じ元素であっても、化学状態によってその毒性は大きく異なることから、 化学状態分析は食の安心、安全には必須である。

このように、健康に生きるための積極的な栄養の摂取、有害物を摂取しないための食品の 安全・安心の確保、という大きな2つの課題に解決策を提示する研究を KEK 放射光では推 進すべきである。この研究は、先進国のみならず、発展途上国にも大きな恩恵をもたらすも のであり、日本が世界の科学的あるいは政策的リーダーとして果たすべき役割の1つであ る。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

食品科学に XAFS による元素選択的な非破壊化学状態分析を応用し、「放射光食品科学」 という新たな学術領域を開拓する。

上記のように、現時点で、ホウレン草中の Ca が難容性のシュウ酸 Ca であり、そのため に人体吸収率が低いことが示せた。これは、ホウレン草中の Ca がシュウ酸 Ca というほぼ 単一の化合物で存在していたために可能であった分析である。しかしながら、農産物、より 広く植物中の金属元素が必ずしも単一の化学状態、化合物で存在しているとは限らない。ま た、同じ化合物であっても、その形態が同一とは限らない。いくつかの植物中のシュウ酸 Ca の SEM 像を見ても、その形態は様々である。モエジマシダの As の研究[5,6]でも、根から 葉に行くに従って化学状態が変化していることが報告されている。従って、XAFS/XRF に よるミリメートルレベルの全体としての分析を前提として、各部分への分布状況、各部分に おける化学状態、化合物の分析が必要である。各部分の分析にはマイクロメーターサイズの ビームでの分析が適している。さらに、上記の例に沿って言えば、シュウ酸 Ca がどこでど のように生成されるのかを調べるには、細胞内を充分な空間分解能で調べる必要があり、ナ ノメートルサイズのビーム(ナノビーム)が必須である。すなわち、階層構造を持つ植物に ついて、含有する元素の化学状態、化合物の動向を理解するには、nm-μm-mm という 幅広い領域にわたるビームの活用が必須である。各々の階層を、それぞれに適したサイズの ビームで観察し、それらを繋げて総合的に研究を進める。これにより、例えば、水和イオン の状態で取り込まれた元素が、マクロな結晶になるまでの植物内でのダイナミックな変化 を観察し、理解することが可能となる。特に、ナノビームを用いた単一細胞分析は、本稿の 「放射光食品科学」に留まらず、環境生物学など様々な分野で必要とされ、大きな波及効果 が見込める。このような共通の分析手法という観点から、分野横断的な連携体制を構築する ことで、更なる新分野開拓にも繋がると期待される。 また、実際の摂取を考慮し、調理過 程における in situ 実験も必須である。このようにして植物中での元素の挙動を理解するこ とが、その元素の摂取、人体への吸収のし易さを考察する上での出発点となる情報となる。

次に、海産物の有害金属の問題として、マグロの水銀の問題を例に考える。マグロでは、 水銀濃度がその身の脂質量と負の相関があるという報告がある[7]。すなわち、水銀含有量 が赤身ほど多く、大トロほど少ない、ということである。このような相関を調べることはで きても、非常に低濃度であることから、その化学状態と微視的な分布の様子までは分析でき ていない。KEK 放射光では、光源性能の向上や更なる検出器開発、検出技術開発によって、 現状では分析できないような極微量元素の化学状態分析、ナノメートルレベルでの化学種 の分布観察が可能になると期待する。現状で分析できる範囲では、"低濃度"となっている が、さらに細かく見て行けば、実は不均一に濃淡がある可能性がある。その濃縮領域を検出 できれば、水銀の化学状態、化合物、分布の様子まで分析できると期待される。上記のマグ ロの水銀の報告から考えると、水銀が脂質でない何かに選択的に濃縮している可能性が考 えられるが、その存在形態はよく分かっていない。ナノビームを用いてマッピングすること により、選択的に親和性のある物質が解明できると期待される。同時に、その化学状態、化 合物も分析可能と思われ、安全性の議論が可能になると期待される。0.1 ppm を切るような レベルでこのような研究が可能になれば、食品科学の飛躍的発展が期待でき、食の安心・安 全の大幅な向上が見込める。

このように、現状では分析できていない食品中の人体にとって有益な元素、あるいは有害 な元素について、ナノビームを用いることで、その化学状態や化合物の分析が可能となる。 また、nm – µm – mm という幅広いスケールのビームを用いて、植物中の元素の挙動を理 解することが可能となる。その結果、有益な元素の例として Ca で言えば、高齢化社会にお ける骨粗鬆症対策に貢献できると期待される。また、食品中の有害と思われる元素について は、その有害性を考察することで、食の安全・安心の確保に貢献できると期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- nm – μm – mm 領域にわたるビームが利用可能な XAFS/XRF 実験環境

- XAFS/XRF と相補的な複合実験環境。IR, UV-vis, SEM などを相補的に用いて複合的な 測定が可能な環境。
- 充実した調理環境。食品科学を推進するために必要な調理器具および加熱装置等。一般的 な食品科学との比較、連携が欠かせないため、食品科学分野で広く用いられる測定装置 等。
- 調理環境を再現した in situ, operando XAFS/XRF 等の測定環境。温度、雰囲気の制御。

引用文献

- [1] C. M. Weaver, et al., Am. J. Clin. Nutr. 59, 1238S (1994).
- [2] R. P. Heaney, et al., Am. J. Clin. Nutr. 47, 707 (1988).
- [3] R. P. Heaney, et al., Am. J. Clin. Nutr. 50, 830 (1989).
- [4] H. Abe, Chem. Lett. 43, 1841 (2014).
- [5] A. Hokura, et al., J. Anal. At. Spectrom. 21, 321 (2006)
- [6] N. Kitajima, et al., Chem. Lett. 37, 32 (2008).
- [7] S. Balshaw, et al., Food Chem. 111, 616 (2008).

第8章 地球惑星·環境科学

*担当一覧

監修:高橋 嘉夫(東京大学)

執筆分担:

第1節 三河内 岳 (東京大学)、薮田 ひかる (大阪大学)

第2節 奥村 聡 (東北大学)、中村 美千彦 (東北大学)

- 第3節 佐久間 博(物質・材料研究機構)
- 第4節 柏原 輝彦(海洋研究開発機構)
- 第5節 高橋 嘉夫(東京大学)
- 第6節 高橋 嘉夫(東京大学)
- 第7節 光延 聖 (愛媛大学)
- 第8節 保倉 明子(東京電機大学)
- 第9節 宇尾 基弘 (東京医科歯科大学)
- 第10節 下山 巖 (日本原子力研究開発機構)、宇佐美 徳子 (KEK 物構研)

第11節 阿部 仁(KEK 物構研)

校閱協力:

阿部 仁(KEK 物構研)、宇佐美 徳子(KEK 物構研)、奥部 真樹(東北大学)、

- 木村 正雄(KEK物構研)、高橋 嘉夫(東京大学)、武市 泰男(KEK物構研)、
- 田渕 雅夫(名古屋大学)、船守 展正(KEK 物構研)、宮脇 律郎(国立科学博物館)、

薮田 ひかる (大阪大学)

第9章 X線光学

9-1. 先端的X線波面計測

(1) 背景

よりエミッタンスの小さいX線源の開発は、そのまま空間的コヒーレンスの高いX線の 利用を可能とし、これは、ナノ集光ビームの生成、あるいは、スペックルや位相コントラ ストの生成と利用などに基づくより高度な計測技術の礎となる。しかしながら、ビームラ インを伝播するコヒーレンスの評価技術の充実も必須であり、これを担うX線光学技術の 進化は必要不可欠と言える。X線波面の計測・制御において高い技術を有している施設で なければ、最先端の低エミッタンスリングを有していても、それを使いこなす十分なポテ ンシャルを備えているとは言い難い。

光源から試料(および検出器)までコヒーレントX線を導く際に係わるX線光学素子と して、X線ミラー、X線多層膜、X線回折格子、単結晶、X線窓などがあるが、その形状 精度に依存してX線波面が乱れ(すなわちコヒーレンスが劣化し)、要求精度は厳しくなる 一方である。多くの場合で外部の専門家や企業に要求精度を投げて製作を依頼し、それを 導入する場合が多い。しかし、世界屈指のシンクロトロン放射光施設であれば、それを取 り囲んで光学素子の開発を担当する技術コンポジットが存在し、シンクロトロン放射光施 設内にその評価が随時行える専用ビームラインがあってしかるべきである。

ここでは、ビームラインを伝播するX線の複素振幅を計測するための技術として透過格 子を用いる技術について述べる。特に、ナノ集光評価(あるいは集光素子評価)やナノス コピック位相イメージングのために必要な格子スペックとその実施形態について提案する。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

X線の最先端集光技術は、そのスポットサイズが 10nm を下回るようになり、今後は 1nm 級の集光を目指す時代となる。これにより、走査型X線顕微鏡による分子配列を実空間で 可視化することもスコープとして謳えるようになり、物質科学や生命科学に有用なプロー ブになることに疑いはない。ただし、その集光スポットの評価には、古くから行われてき たナイフエッジスキャンによる直接計測が難しい時代になっている。これに代わり、X線 透過格子と Talbot 効果を用いた集光点下流位置における波面計測結果から集光サイズを計 測する技術が多くのシンクロトロン放射光施設で適用されるようになっている。

ただし、比較的簡便な方法による波面計測であるといえども、究極的な集光サイズの絶 対計測には、リソグラフィ技術に基づく人工的なX線透過格子のパターン精度が十分とは 言えなくなってくると見込まれる。試算すると、周期が1~2µmの位相格子を用いる前提で、 0.01%の誤差で格子周期の均一性が保証されていることと、図1aの光学系に基づき、拡大 投影されたTalbot条件下の自己像が十分に解像できることが必要である。このためのX線 格子の開発と光学構成を軟X線から硬X線の領域に渡って確立し、高精度波面計測システ ムの提供が施設の共通ツールとして整備される。 同様の光学系をX線顕微鏡光学系に融合させた顕微位相イメージングが図1bの構成で 可能である。ナノスケールの構造観察においては、どのようなものでもX線吸収による強 度減衰は僅かとなり、位相物体として考える必要がある。すなわち、位相コントラスト顕 微鏡の活用は必至となる。広く使われている Zernike 位相コントラストX線顕微鏡は定量 性に乏しいという欠点を有しているが、図1bの構成による顕微位相イメージングではこの 欠点を克服しており、自然に三次元観察(ナノトモグラフィ)への適用と、定量的画像解 析の信頼性も確保できる。空間分解能は原理的にベースとなるX線顕微鏡のそれに依存し、 新光源で開発される full-fieldX線顕微鏡にアタッチメントとして追加し、位相イメージン グモードを付加する使い方ができる。実験は、画像検出器で単純に結像画像を記録するの ではなく、たとえば縞走査法に基づく複数画像をコンピュータ処理して画像再構成する実 施形態となる。その際の画像再構成アルゴリズムの開発が現在進められているが、ハード・ ソフトの開発が、KEK 放射光の開発と同期し、世界的にみても新奇性のある高感度三次元 X線顕微鏡が実現する。



図1 位相格子を用いた波面計測の構成。(a)集光サイズ計測(すなわち、集光素子評価) への応用。(b)X線顕微位相イメージングへの適用。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・光学評価ビームライン

ここで記述した内容は、波面評価が必要な各ビームラインに実装可能であるべきであり、 ナノ位相イメージングについても、full-field 顕微鏡ステーションに融合可能なものである。

ただし、X線透過格子に限らず、共通性のある光学素子の評価、新規アイディアに基づ く光学系のテスト、あるいは、開発性のあるX線画像検出器のテストなども目的に含め、 施設のインフラのひとつとして光学評価ビームラインがあった方がよい。外国の複数の施 設にはこのような仕組みがある。しかしながら、これは施設自ら、あるいは、施設を取り 囲む技術コンポジットとの共同で、光学素子や画像検出器などを開発する体制がある場合 に特に意味がある。日本では、一部を除いて購入に頼る傾向が強く、外国施設に比べて優位に立てない側面となっている。KEK 放射光計画では、放射光施設だけではなくそれを取り囲むテクノロジーの集積を考えて策定するのが望ましい。

9-2. 先端的X線結晶光学素子

(1) 背景

X線光学は主に結晶光学・幾何光学・波動光学という三つの理論体系を基礎としており、 それに基づいて様々な先端的X線光学素子・光学系の開発が行われている(Fig. 1)。第二 世代の放射光施設である Photon Factory (PF)は、過去約三十年のあいだ、この分野で世 界をリードする優れた成果を挙げてきた。例えば、PFで開発されたX線透過型移相子は直 線偏光を円偏光に変換するために世界各地の放射光施設で利用されている。また、数々の 位相イメージングの中でも最高の感度を誇る、X線干渉計による CT 撮像法は PF で初めて 開発に成功したものであり、その後も他の追随を許さない優れた成果を輩出している。こ の他にも、エネルギー分散型スペクトロメーターや核共鳴散乱実験用超高分解能分光器等、 PF 発の光学素子・光学系は数多い。これらの先端的X線光学素子・光学系により、PF は これまで放射光科学の新たなフロンティアを切り拓いてきた。次期光源においても、引き 続きこの分野を牽引する役割を PF は期待されている。

通常、X線光学の研究を行うには、高輝度光源 が必要になる。例えば、光源の輝度が一桁向上す ると、得られるフラックスを保ったまま、分光素 子・光学系のエネルギー分解能を一桁改善するこ とが可能になる。これは、ビームの集光・拡大・ 平行化・偏光制御・パルス制御・波面制御等を行 う場合についてもほぼ同様である。したがって、 現在計画されている KEK 放射光により、X線光 学研究の更なる高度化が可能になるものと期待 される。

KEK 放射光で拓かれるX線光学研究は多岐に わたるが(Fig. 1)、ここではその中の一例とし て、X線多波回折を利用した新しい結晶光学素子 の可能性について述べる。



Fig.1X 線光学研究

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光の大きな特徴の一つは、同規模の放射光施設と比べて、電子ビームのエミッ タンスが小さくなることである。これは、光源からの光の平行性が、垂直・水平両方向と も従来の光源より向上することを意味する。この特徴を活かすことにより、例えば、X線 多波回折を利用した新しい結晶光学素子の研究・開発が可能になる。

X線多波回折とは、結晶で二つ以上の回折波が同時に生じる現象のことである。一般的 に、X線多波回折研究には、高い平行性を持つX線ビームが必要になる。従来の PF をはじ めとする放射光施設では、ビームの水平方向の発散が大きかったため、X線多波回折研究 はほとんど行われてこなかった。また、多波回折を利用したX線光学素子開発についても、 そのほとんどは原理検証実験の域を超えるものではなく、実用化にはほど遠い。しかし、 KEK 放射光ではビームの平行性が垂直・水平両方向とも格段に向上するため、本格的なX 線多波回折研究が初めて可能になる。さらに、X線多波回折を利用した新しい光学素子の 実用化も夢ではなくなる。

X線多波回折を利用した結晶光学素子の代表例の一つとしては、X線検光子が挙げられる(Fig. 2)。従来の検光子は結晶における 45°のブラッグ反射を利用しているため、利用

可能な波長が限られていた。それに対して、 多波回折を利用するX線検光子にはこのよ うな制約はなく、任意の波長で偏光を完全 に決定することができる。これをX線磁気 回折・散乱に応用すれば、例えば従来より も多くの元素に関して吸収端近傍でスピン 角運動量と軌道角運動量とを分離すること が可能になる。これにより、放射光を用い た磁性材料の研究の更なる発展が期待され る。



Fig.2 X線多波回折を利用した光学素子の 例:X線検光子

X線多波回折を利用した結晶光学素子の二番目の例として、X線干渉計が挙げられる。 すでに原理検証実験が幾つか行われているが、汎用化には至っていない。KEK 放射光では ビームの平行性が向上し、X線干渉計のスループットや視野が大きくなるため、新しいX 線位相イメージングへの展開も可能になるものと期待される。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- i. 数 keV~数+ keV の硬X線領域で高輝度の単色・平行ビームが得られるビームライン。
 光源としては 10²⁰ (phs/sec/mrad²/mm²/0.1%b.w.) 程度の輝度を持つアンジュレーターが望ましい。
- ii. 水平多軸精密X線回折計。各回転軸には、全周回転が可能な粗動回転機構と、±3°程 度の領域を1/100秒程度の精度で回転できる微小回転機構が必要。
- iii. X線フォトンカウンティング二次元検出器(例えば Pilatus)等のX線計測システム一
 式
- iv. 試料の準備や各種物性測定等を行うための付帯設備

9-4. マルチコントラスト・マルチスケールの関心領域X線イメージング

(1) 背景

レントゲンによるX線の発見以来、X線は物質内部を非破壊で観察するために広く利用 されてきた。放射光施設においても、光源・光学素子・検出器の飛躍的進歩に伴って、X 線イメージング研究はますます盛んになりつつある。第二世代の放射光施設である Photon Factory (PF) においても、各種のX線イメージングの研究が精力的に行われてきた。例え ば、X線干渉計を利用した位相型X線 CT は PF で初めて開発され、その後も他の追随を許 さない優れた成果を輩出している。この他にも、X線トモシンセシス、X線暗視野法、X 線偏光顕微鏡等、PF はこの分野で独自の貢献を果たしてきた。

放射光X線イメージングには様々な手法が存在するが、大別すると小視野・高空間分解 能のX線顕微鏡と大視野・低空間分解能の非X線顕微鏡の二つに分けられる。一般的に、 X線顕微鏡の空間分解能は数 nm~数百 nm 程度であり、他方、非X線顕微鏡の空間分解能 は数百 nm~数 mm 程度である。KEK 放射光では同規模の放射光施設と比べて輝度が高く なるため、X線顕微鏡研究に大いに適している。しかし、生体や工業材料等の大きな試料 を非破壊観察したいという学問的・社会的ニーズは今後も強まることが予想されるため、 KEK 放射光でもこれらのニーズに柔軟に対応するべく非X線顕微鏡のイメージング研究を 積極的に推進する必要がある。

放射光を用いた従来の大視野・低分解能X線イメージングには、観察倍率を自由に調整 するのが困難という問題があった。そこで、この問題を解決するために、最近、PFでX線 ズーミング光学系(Fig. 1)の開発が行われている。この光学系は二個の非対称結晶を KB 配置で組み合わせたものであり、各結晶の方位角により倍率を自由に制御できる。現在、 PFで実現可能な空間分解能の範囲は数µm~サブ mm 程度(倍率は数十倍~数分の一)だ が、KEK 放射光では 100 nm~サブ mm 程度(倍率は数百倍~数十分の一)にまで広がる ことが見込まれる。この性能向上により、階層構造を持つ試料をマルチスケールで in situ 観察する新たな可能性が拓かれる。



Fig.1 X線ズーミング光学系の一例

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

X線ズーミング光学系の第一の特徴は、低倍率で試料内の関心領域を特定し、その後、 関心領域を高倍率で観察するという一連の過程を *in situ* でシームレスに素早く行えるこ とである。第二に、吸収・屈折・位相・超小角散乱像等、マルチコントラストでの試料像 の取得も可能である。第三に、Pilatus のような直接変換型X線検出器と組み合わせて利用 することができるため、これにより光学システムの更なる高感度化・高速化・広ダイナミ ックレンジ化を図ることができる。

X線ズーミング光学系の性能は光源の輝度が高くなるほど向上する。例えば、KEK 放射 光では空間分解能が現状よりも一桁以上向上することが見込まれる他、in-situ 測定の高速 化等も期待される。高輝度放射光とズーミング光学系により、新たなX線イメージングの 可能性が拓かれる(Fig. 2)。



Fig. 2 高輝度放射光とズーミング光学系が拓く新たなX線イメージングの可能性

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

- 数 keV~数+ keV の硬X線領域で高輝度の単色・平行ビームが得られるビームライン。
 光源としては 10²⁰ (phs/sec/mrad²/mm²/0.1%b.w.) 程度の輝度を持つアンジュレーターが望ましい。
- ii. 多軸の精密X線回折計。
- iii. X線フォトンカウンティング二次元検出器 (例えば Pilatus) 等のX線計測システム一 式
- iv. 試料の準備や各種物性測定等を行うための付帯設備
- v. 画像処理用高性能ワークステーション、データストレージ、超高速・ブロードバンドネ ットワーク 一式

9-5. X線反射率法を用いた先端的光学素子・測定法の開発

(1) 背景

X線反射率法は、薄膜・多層膜の解析の有力な手法の1つである。特に深さ方向のわず かな構造の違いにも敏感であり、透過電子顕微鏡による断面写真と本質的に等価な情報を 非破壊的かつ定量的に得ることができる。今日の薄膜化されているデバイスの多くは保護 層で被覆され、あるいは深さ方向に積層構造を持つ多層膜を作りこむことにより機能を実 現していることから、応用面からの期待感も強い。比較的大面積(mm²~cm²)の平均情報を取 得する技術としてはよく確立されており、放射光ビームラインや実験室系のX線装置を用 いてルーチン的な測定が行われている。それにとどまらず、面内に不均一な薄膜・多層膜 や、ナノ・ミクロ構造がパターニングされた試料を対象とするために、微小ビームによる 解析や、画像としてイメージングする技術、さらには迅速な測定により、薄膜・多層膜の 埋もれた構造の変化過程を追跡する手法が重要と考えられる。そのような本格的な展開の ためには、高輝度な新光源の実現と利用が必須であり、さらに先端的な光学素子・測定法 の開発への取り組みが欠かせない。

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

1980年代前期に始まる偏向電磁石光源を主体とする第2世代放射光源、1990年代中期に 始まるアンジュレータ光源を多く備えた第3世代放射光源、その後の小規模でありなら低 エミッタンスを実現している新第3世代放射光源の一貫する流れは低エミッタンス・高輝 度の一言に代表させることができる。その利をいかに賢く取り入れ、これまで困難であっ た測定を可能にするかという点は常に重要であり、それは今後の新光源においてますます 強く認識される必要がある。他方、最近では、光源の飛躍的な発展に加え、集光光学系の 技術の進歩もあいまって、試料に照射する総光子数が当初の想定を超えるほどにもなった。 このため、X線による計測の利点の1つであった非破壊性が目に見えて損なわれるケース も出てきている。これからの新光源の利用に際しては、これまでよりも多くの総光子数が 利用可能である利点を生かしながら、実際に試料が単位時間当たり単位面積あたりに受け る光子数が限度を超えることなく、従来は容易には得られなかった情報(例えば、検出器 の素子サイズに制約されない高解像度の画像、位相シフトに着眼した時間または空間的な コントラスト等)を含む高品位なデータを確実に得るためには、光学素子や検出器の開発 と工夫が重要である。

X線反射率の微小領域分析・イメージングについては、大きく2つの方法が考えられる。 第1は、注目するナノ・ミクロ構造の大きさに対応したビームサイズのナノビームを用い る方法、第2は、それよりも大きなビームサイズを使用しながら、空間分解能のある検出 器と必要に応じて光学素子を採用することによって、その視野全体をある空間分解能で画 像化する方法である。X線反射率は、単色X線を用いてθ/20角度走査を行う方法と、試 料を固定しながら低エネルギーからかなりの高エネルギーまでの非常に広い範囲の白色X 線の反射スペクトルを取得する方法のいずれかで測定できる。そのどちらにも、それぞれ 利点があり、微小領域分析・イメージングの方法との組み合わせで、理論的には4通りの 組み合わせが考えられる。それらの技術により、現状 mm²~cm² の視野全体を統計的に評価 していたものを、µm²以下の視野を任意に選んで、不均一さと一言で呼ぶ個々の特徴や差異 を定量的に評価できるようになることを期待している。

材料科学的な環境パラメータの制御に対応する薄膜・多層膜の構造変化、もしくはいっ さいの制御がない状態でのあるがままの時時刻刻の変化の解明をめざす研究は、新光源の 登場により一層加速されると期待される。X線反射率を短時間でリアルタイム計測する技 術、ポンプ・プローブ法で計測する技術、さらにはX線光子相関分光法を併用する技術な ど、これまで先駆的な研究例の報告にとどまっていたものが、今後、本格的に発展し、新 たな分野を開拓することが望まれる。もちろん、取り扱う現象や試料をより深く理解する ためには、X線反射率の周辺だけでなく、さらに多様なX線技術を併用することは重要で ある。現状、まったく時間変化を無視し静的なものと扱うか、高々秒~分レベルのスケー ルで薄膜・多層膜の構造が全体としてどう推移するかという点でしか取り扱えなかったも のが、μ秒オーダーもしくはそれ以下といった短い時間スケールへの拡張、更にけた違い の短い時間分解能で変化の初期過程の検討、時間情報と場所・空間情報の両方が入った動 画的なX線反射率のイメージングなどが実現することを期待している。

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

・X線反射イメージングダイナミクスビームライン
 床、壁などの除振、安定性
 バンチスライス、タイミング信号
 ミラー集光

9-6. 半導体素子等のナノスケールひずみ・欠陥解析

(1) 背景

半導体集積回路の基本素子である金属一絶縁膜一半導体電界効果トランジスタ (MOSFET)の技術開発は、「スケーリング(比例縮小)則」を基本原理として素子の微細 化を進め、超大規模集積回路(ULSI)の高性能化と高集積化を同時に達成してきた.しか し、微細化が進み素子サイズがナノメートル領域に入ると、ゲート絶縁膜のリーク電流の 増加による消費電力の増大などの様々な問題が生じ、単純な微細化ではデバイスサイズの 縮小に見合った性能向上が困難になってきた.そのため近年では、メタルゲート電極/高誘 電率ゲート絶縁膜や歪チャネルの導入などによりトランジスタの高性能化が進められてい る(図 1).今後さらにトランジスタの性能向上を続けていくため、新材料・新構造の導入 などの延命技術も種々提案されているが、この10年以内には、様々な揺らぎ/ばらつきの 顕在化による精度・性能限界、

集積度の増加による発熱量・消 費電力量の限界などによって, 微細加工の限界以前に CMOS の集積化と高性能化が困難にな ることが確実である.したがっ て,これまでの CMOS 技術の 延命では達成困難な超高集積度, 高性能・高機能性を追求し,実 現するためには,デバイス中の 各パーツの結晶構造や応力分布 を解析し,最適な構造にするこ とが必要不可欠である.



図1 トランジスタ微細化の動向(提供; EIDEC). NanotechJapan Bulletin Vol. 4, No. 6, 2011 より引用.

現状,10 nm 程度の空間分解

能のある測定法は,電子顕微鏡,走査型プローブ顕微鏡,3次元アトムプローブ等があるが, 非破壊で,かつ,デバイス中に埋もれ各パーツのひずみや欠陥構造を測定する手段はない. 一方,第三世代放射光を使用したナノビーム回折法が海外を含め複数の放射光施設で利用 可能な状況になっているが,空間分解能は100 nm 程度に留まっており,現状の最先端デバ イスの測定には空間分解能が足りていない状況である.

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

KEK 放射光を利用することにより,現在の放射光では不可能な以下の測定が実現すると 考えられる.

1. 単色ナノビーム回折によるナノスケールひずみ測定

KEK放射光の超直線ID UL20N250の光源を利用する場合,10keVの放射光に対し27 × 26 nm²の集光で10¹²のフラックスが得られると試算されている.更に,光学系を工夫すれば10×10nm²で10¹⁰程度のフラックスが得られれば,その集光ビームを入射光とし回折実験を行えば,空間分解能10 nmのひずみマッピングが可能となると期待できる.この場合の課題は,どのようにデバイス中の各パーツの場所を特定するかにある.したがって,走査型蛍光X線顕微鏡と組み合わせた装置構成が必須と思われる.高速に蛍光X線マッピングをし,測定箇所を同定し局所回折測定によりひずみを測定することが必要となる.

更に,10 nm 集光では,集光X線はフル・コヒーレントであると思われる.したがって, ブラッグ・コヒーレント回折やブラッグ・タイコグラフィを適用すれば数 nm 程度の空間 分解能でひずみを決定できる可能性がある.

2. 白色 or ピンク・ナノビームによるナノ・ラウエマッピング

KEK 放射光でテーパー化機構を持ったアンジュレータかアンジュレータ・ギャップの高 速スキャンが実現すればナノ・ラウエマッピングが実現可能と思われる.これは、走査電 子顕微鏡 (SEM) による結晶解析の手法として発展している後方散乱電子回折 (Electron BackScatter Diffraction:EBSD) 対応する手法で、結晶方位や結晶系を数 10 nm 程度の空 間分解能で測定する技術である.EBSD は電子線を使うので試料表面の情報しか得られな いが、10 keV 程度までの白色放射光が使用可能であれば、半導体デバイス中の埋もれた各 パーツからの信号を得ることが出来るためインパクトは大きいと思われる.また、ラウエ 斑点のエネルギーを検出器等で同定できれば、多結晶体でのひずみマッピングが実現し、 1.で示した単色ナノビーム回折と相補的な測定が可能となると期待できる.

(3) 必要とされるビームライン・実験設備

A. ビームライン

- ・テーパー化機能付きアンジュレーター
- ・白色取り出し可能なモノクロメーター
- ・単色 10 nm 集光時のフラックス: >10¹⁰ photons/sec
- ・恒温実験ハッチ:<±0.1℃/day

B. 実験設備

- ・ナノ・ポジショニング機構付き精密回折計
- ・集光素子および調整機構(KB ミラー,FZP)
- ・硬X線用高速2次元検出器およびデーター処理システム(大面積用と高空間分解能用)
- · 多素子蛍光X線検出器
- ・試料観察用長焦点高倍率ズーム機能付き光学顕微鏡

第9節 X線光学

*担当一覧
監修:山口 博隆(産業技術総合研究所)
執筆分担:(ただし、公開を希望されない方を除く)
第1節 百生 敦(東北大学)
第2節 平野 馨一(KEK 物構研)
第3節 (執筆中)
第4節 平野 馨一(KEK 物構研)
第5節 桜井 健次(物質・材料研究機構)
第7節 (執筆中)

校閲協力:

奥田 真樹 (東北大学)、河田 洋 (KEK 物構研)、佐賀山 基 (KEK 物構研)、 高野 秀和 (東北大学)、武市 泰男 (KEK 物構研)、平野 馨一 (KEK 物構研)、 山口 博隆 (産業技術総合研究所)、米山 明男 (日立製作所)

6. 光源加速器

KEK-LS CDR Accelerator

<履歴>

2016.6.8 CDR 暫定版の光源加速器に関する部分を公開。 2016.9.2 中村先生、原田改訂。

<各章編集·執筆担当者>

1章 本田融

- 2章1~10 原田健太郎
- 2章11 中村典雄
- 3章 山本尚人
- 4章 谷本育律
- 5章 帯名崇
- 6章 高井良太
- 7章 阿達正浩
- 8章 宮内洋司
- 9章 中村典雄

目次

1	KEK 放射光計画の光源加速器の概要	6
2	蓄積リングのラティスとオプティクス、ビームダイナミクス	9
2.1	リングのラティスと基本パラメータ	9
2.2	リングのオプティクス	
2.3	ダイナミックアパーチャ	14
2.4	 RF 雷圧と運動量アパーチャ 	11
2.5	バンチ内散乱の効果	
2.6	電磁石の強さと設計	
2	2.6.1 進行方向に勾配のある偏向電磁石	
2	2.6.2 機能結合型偏向電磁石	24
2	2.6.3 4 極電磁石	27
2	2.6.4 6極電磁石	29
2.7	/ チューンシフトと色収差	31
2.8	BPM とステアリングの配置	
2.9	誤差の影響	
2.10	0 入射スキーム	45
2.11	1 抵抗性インピーダンスの影響	46
2	2.11.1 ウェーク場とインピーダンス	46
2	2.11.2 抵抗性インピーダンスによる発熱	46
2	2.11.3 抵抗性インピーダンスによるバンチ結合型ビーム不安定性	48
2	2.11.4 真空封止アンジュレータ銅シートの厚みについて	51
2	2.11.5 NEG コーティングの影響	52
3	高周波加速システム	55
91	tur m	55
อ.1 ១ ค		
0.4 2.2	 同 向 似 ン ヘノ ム に 必 安 な (
3.0 3.4	○ KT 向仮数C市伝导・起伝导工術の選択	
9.4 9.5	· 同问仮シハノムジル必取可	
3.6	, 加速王術	05 67
3.7	「 同人 C 「 C C S J ~) 相口 王 「 文 C C	
3.8	大電力高周波源	74
3.9	高調波空洞	
3.10		
	0 まとめ	80
4	0 まとめ 真空システム	80 83
4	0 まとめ 真空システム	80 83
4 4.1	0 まとめ 真空システム 概要	80 83
4 4.1 4.2	 0 まとめ 真空システム 概要 ビームダクトの設計指針 121 超高直空状態の保持 	80 83 83 84 84
4 4.1 4.2 4	 0 まとめ… 真空システム… 概要… ビームダクトの設計指針 4.2.1 超高真空状態の保持 4.2.2 放射光パワーの吸収 	80 83 83 84 84 84
4 4.1 4.2 4 4 4	 0 まとめ 真空システム 概要 ビームダクトの設計指針 4.2.1 超高真空状態の保持 4.2.2 放射光パワーの吸収 12.3 ビームの誘起する電磁場の伝送 	80 83 84 84 84 85 85
4 4.1 4.2 4 4 4 4 4 4 4	 0 まとめ… 真空システム… 概要… ビームダクトの設計指針… 4.2.1 超高真空状態の保持 4.2.2 放射光パワーの吸収 4.2.3 ビームの誘起する電磁場の伝送 4.2.4 電磁石磁場の伝達 	80 83 83 84 84 85 87 87
4 4.1 4.2 4. 4. 4. 4. 4. 4. 4. 4. 4. 4. 4. 4. 4.	 0 まとめ< 真空システム 概要 ビームダクトの設計指針 4.2.1 超高真空状態の保持 4.2.2 放射光パワーの吸収 4.2.3 ビームの誘起する電磁場の伝送 4.2.4 電磁石磁場の伝達 4.2.5 超高真空を長期間保持する機械的強度 	80 83 83 84 84 85 87 87 87 87
4 4.1 4.2 4. 4. 4. 4. 4. 4. 4. 4. 4. 4. 4. 4. 4.	 0 まとめ< 真空システム 概要 ビームダクトの設計指針 4.2.1 超高真空状態の保持 4.2.2 放射光パワーの吸収 4.2.3 ビームの誘起する電磁場の伝送 4.2.4 電磁石磁場の伝達 4.2.5 超高真空を長期間保持する機械的強度 4.2.6 放射線の遮蔽 	80 83 83 84 84 85 87 87 87 87 88

4.2.7 ビームの高い位置精度と安定度の実現	89
4.2.8 現場ベーキングへの対応	89
4.2.9 ビームダクト設計のまとめ	90
3 ビーム寿命と要求圧力	93
4.3.1 圧力とビーム寿命の関係	93
4.3.2 圧力分布と涸れの予測	95
.4 低インピーダンスコンポーネント	.100
4.4.1 HOM 励起によるパワーロス	.100
4.4.2 低インピーダンス化対策	.100
5 イオントラッピングとダストトラッピング	.103
4.5.1 イオントラッピング	.103
4.5.2 ダストトラッピング	.104
4.5.2.1 ビーム寿命急落現象	104
4.5.2.2 ダストの発生源	105
4.5.2.3 力学的に安定なトラップ条件	105
4.5.2.4 熱的に安定なトラップ条件	105
判御システム	108
前面シスノム	100
1 概要	.108
2 ハードウェア構成	.110
3 Timing	.112
4 High Level Application / GUI	.113
.5 Archiver と運転ログ	.114
6 安全系	.115
7 情報共有・プロジェクト管理	.116
診断システム	118
1 11111	110
1 はしのに	110
2 し ⁻ <u>ス</u> 位直モニク ⁻ (DFM)	100
 DFM 信 万処理凹 昭 	195
4 戦迫ノイニアハック	196
0 回加バンテンオ 「バリン	190
 の 成別 ルモークー 7 その他のエーター 	129
	.101
挿入光源	133
1 はじめに	.133
2 X線アンジュレータ(UL20N30、UL20N250)	.141
.3 軟 X 線可変偏光型アンジュレータ(UL48N104)	.143
.4 VUV アンジュレータ(UL160N31)	.145
5 偏向部およびウィグラー	.147
6 本計画の光源性能	.149
7.6.1 PF および PF-AR、SPring-8 との比較	.149
7.6.2 最新の 3GeV リング NSLS-II および MAX-IV との比較	.151
7 光源性能のさらなる可能性	.153
7.7.1 高輝度短周期アンジュレータの可能性(UL12N416)	.153
7.7.2 CPMU および SCU の可能性	.154
7.7.3 直線部の長さに関して	.156

8	放射光ビームライン基幹チャンネル(フロントエンド)	158
8.1	概要	158
8.2	熱負荷対策	159
8.3	放射線防護	161
8.4	真空防護	
8.	4.1蓄積リング真空を保護する役割	162
8.	.4.2 ベリリウム窓	162
8.5	設置精度	163
8.6	まとめ	
9	建物·設備	165
9.1	建物の配置・構成	
9.2	電気·機械設備	170
9.3	建物床の振動測定	171

1 KEK 放射光計画の光源加速器の概要

KEK 放射光計画の要となる光源リングはエネルギー3 GeV の電子蓄積リングである.現在世界で稼働してい るどの電子蓄積リングをも凌駕する低エミッタンスであることを最大の特徴とする.低エミッタンス化は最新の工夫 を凝らした Multi-Bend Achromat (MBA) ラティスによって実現されており,蓄積リングの周長は約570 m と中規 模第三世代リングと同等の大きさを維持しつつ自然エミッタンスは0.13 nm rad と,従来の第3世代リングを一桁 凌ぐ性能である.蓄積電流値は500 mA を可能とするが,バンチ内散乱の効果で実効的なエミッタンスは0.31 nm rad まで増大すると見積もられる.この世界最高の低エミッタンスを活用して,真空紫外から10 keV 程度の硬 X線までの波長領域で世界最高輝度のアンジュレータ光源を実現することができる.

比較のために世界で稼働中の第三世代放射光源,主な新光源計画の周長とエミッタンスを図1.1 にプロットした. 縦軸はエミッタンス,横軸は E²/C³ (E:エネルギー, C:周長)である. ラティスの形式が同類の場合,エミッタンスは E²/C³ にほぼ比例する傾向を示す. 1990 年代半ばから 2000 世界年代にかけて世界各地に数多く建設された第三世代リングは,その多くが Double Bend Achromat (DBA)ラティス(小型リングに一部 Triple-Bend Achromat もあり)によって数 nm rad の低エミッタンスを実現したリングであり,この図では右上方の集団としてプロットされる. 2014 年から 2015 年にかけて最新の第三世代リングとして完成した台湾の TPS,米国 BNL のNSLS-II も DBA ラティスを採用しており,NSLS-II は周長約 800 m まで大型化し、ダンピングウィグラーによる強力な放射減衰効果を併用することで sub nm 領域の低エミッタンスを実現している.

スウェーデンのMAX-IV は2015年に建設を完了し立上げを行っている3GeVリングであるが、世界で初めて MBA ラティスによって sub nm の低エミッタンスを実現した. ブラジルで建設中の SIRIUS、東北放射光計画 SLiT-Jもそれぞれ MBA ラティスを採用している.

KEK 放射光計画では, ESRF のアップグレード計画で立案された Hybrid Multi Bend Acromat (HMBA) ラティスを基本とし、1 セルあたり7 つの偏向電磁石で構成されていたラティスを、セルの中心の偏向電磁石を二つに 分割して計 8 つとし、短い直線部を挿入する改造を加えたものである.新たに挿入した 1 m 級の直線部には十分な輝度と光束を発生する短周期アンジュレータを設置してビームラインを展開することが計画されている.

HMBA ラティスでは、もはや純粋な一様磁場の偏向電磁石ではなく、2 種類の Longitudinal Gradient Bend と 2 種類の機能結合型ベンド(四極電磁石と偏向電磁石の複合磁場)を配し、またエネルギー分散関数のバンプ、六極電磁石の配置の工夫によって極低エミッタンスと十分なダイナミックアパーチャを両立させている.

この HMBA ラティスを駆使して周長 570 mという, 英国 Diamond や台湾 TPS などといった従来の第三世代リ ングと同等の大きさで, 世界最高の低エミッタンスの実現を可能としている. つくば市の KEK キャンパスを想定し たとき, 周長 570 mの蓄積リングを光源とする放射光実験施設であれば既存の建物や加速器に干渉することな く, キャンパス内に新規建設することも可能となる規模である.

20 セルの HMBA ラティスの各セルに1か所ずつある 5m 級の長直線部と1 m 級の短直線部を用いて挿入光 源ビームラインを,また最大の偏向磁場を持つ機能結合型ベンドを利用して臨界波長 4 keV の偏向電磁石ビー ムラインが計画されている.電子ビームの入射に利用するセルと高周波加速空洞を設置する長直線部を除い て,挿入光源ビームラインが 38 本~39 本,偏向電磁石ビームラインが 20 本の合計 58 本~59 本の放射光ビーム ラインが建設可能である.

挿入光源の章に記してある通り, 真空紫外から 10 keV 程度の波長範囲で世界最高輝度のアンジュレータ光 を発生できる. また特別に短周期の X 線アンジュレータを想定すると 5 keV 付近で最高輝度 10²² photons/s/mrad²/mm²/0.1%b.w. を達成することも可能となる.

エミッタンス 0.13 nm rad (or 0.31 nm rad)は、いわゆる回折限界波長 ($\lambda = 4\pi\epsilon$)は 0.78 keV (or 0.32 keV)となる. 実際にこの回折限界波長付近では非常にコヒーレント比の高い放射光が得られる. たとえば 1 keV の光のコヒーレント比は、長直線部の 5 m 級アンジュレータ光源を想定しとき約 25% (or 12%)に達する. コヒーレント比
は PF リングを 2~3 桁以上上回るだけでなく,現在の SPring-8 の標準型アンジュレータビームラインをも全波長 領域で一桁上回る.

HMBA ラティスを応用した KEK 放射光の光源リングのもう一つの特徴として低消費電力であることがあげられ る. 偏向電磁石による放射損失は約 0.3 MeV (150 kW at 500 mA)であり, 2.5-GeV PF リングの約 0.4 MeV (180 kW at 450 mA) よりも小さい. 低エミッタンス化によって高輝度光を発生するアンジュレータ光源の放射損失は PF リングのアンジュレータよりも増大し,もちろんアンジュレータの数も大幅に増加するのでリング全体にフルに アンジュレータが設置された場合の最大の放射損失は約 0.7 MeV (350 kW at 500 mA) 程度と想定される. 蓄 積エネルギー,周長共に大きくなっているが,放射損失の増加はこの程度に抑えられ,高周波加速システムの 消費電力は PF リングの 2 倍未満で済む計算となる. 次に消費電力の大きい電磁石システムについても,低エミ ッタンス化に伴い磁極の間隔やボア径を小さくできる効果で電磁石の電流値が抑えられ, PF リングと同等の消 費電力で運転可能と見積もられる. 入射器や建物の空調,冷却水,機械設備の消費電力を合計すると約 6 MW となり,入射器と PF リングを運転しているときとほぼ同等の消費電力である. 現在放射光施設では PF リング と 6.5 GeV の PF-AR の 2 つの蓄積リングを運用しており,総合の消費電力は約 11 MW を越えている. PF リング と PF-AR の代替として KEK 放射光を運転する場合,現在に比べて大幅な消費電力の低減が見込まれ,年間運 転時間の大幅増加も可能となると予測される.

現在世界では様々な低エミッタンス放射光源計画が発表されており、中には 0.1 nm radをさらに下回る計画も 散見される.ただしこの中にはダイナミックアパーチャが充分ではなく一部の蓄積ビームをけり出して、ブースタ ーで用意した入射ビーム列と入れ換えるスワップ入射を必要とする計画もある. KEK 放射光は、HMBA ラティス によって従来通りの積み上げ入射が可能なダイナミックアパーチャを確保しており、現行の入射器 LINAC から 供給される電子ビームのエミッタンスを 100%受け入れられる可能性もある.ただし新規に放射光施設を建設す る場合、LINAC の改造や長距離のビーム輸送路の新設が必要になる.低エネルギーの小型 LINAC とブースタ ーリングを組み合わせた専用入射器の建設も予算的には十分視野に入るので検討を進める.建設予算、建設 スケジュール、運転経費、運転時間の確保など様々な要因を総合的に判断して、入射システムの選択を行いた い.



図 1.1 光源のエミッタンスと周長の関係

2 蓄積リングのラティスとオプティクス、ビームダイナミクス

2.1 リングのラティスと基本パラメータ

表 2.1 にリングの基本パラメータを示す。

表 2.1 リングの基本パラメータ

エネルギー	E [GeV]	3GeV			
ラティスの型		HMBA (Hybrid Multi-Bend Achromat)			
長周期数	Ns	20			
周長	C [m]		570.721		
1.2m 短直線部数			20		
5.6m 長直線部数			20		
セル数			20		
RF周波数	$f_{RF}[MHz]$		500.0735096		
ハーモニック数	h		952		
RF電圧	V _{RF} [MV]	2			
Bucket height	%	3.98			
Energy loss	MeV/rev	0. 2984335			
モーメンタムコンパクション	α	2. 1893×10^{-4}			
ベータトロンチューン	v_x, v_y	48.58, 17.62			
damping turns x,y,z	[turns]	15364, 20105, 11887			
damping time x,y,z	[ms]	29.25, 38.28, 22.63			
beam current	[mA]	0	200	500	
hor. emittance	[pmrad]	132.51	230.5	314.74	
ver. emittance	[pmrad]		8.1	8.2	
y/x	[%]		3.5	2.6	
Touschek lifetime	[b]	_	2 9	1.8	
(2.8% mom.acc $200\sigma_x$)	[11]		2. 9	1.0	
Energy spread	x10 ⁻⁴	6.42	7.24	8.22	
Bunch length	mm	2.73	3.08	4.18	
				v03 68	

リングはノーマルセル 16 セルからなる円形で、各セルには 8 台の偏向電磁石が配置されている。ノーマルセルには 4 極電磁石のコア間距離で 5.6 m の長直線部と 1.2 m の短直線部が 1 本ずつ存在し、それぞれに挿入光源を設置してビームラインが設置される。ただし、長直線部の内の2本は入射および RF 空洞設置の為に利用され、挿入光源を設置しない。(RF 空洞を 2 カ所に分けて設置し、それぞれに 2~3 m 程度の短い挿入光源を設置することもできる。)リングのラティスを図 2.1 に示す。



図 1.1 リングのラティス



図 2.2 ノーマルセル(半セル)の電磁石配置

ノーマルセルは直線部中央を対称点として、折り返し対称になっている。図 2.2 にノーマルセル半分の電磁石 配置を示す。青が偏向電磁石、赤が4極電磁石、黄色が6極電磁石である。1 セルに偏向電磁石が8台存在 し、そのうち、BPI6とBPI7は発散力を含む機能結合型、BID1~5とBPI1~5は実際は1台の偏向電磁石で、 ビーム進行方向に沿って曲率半径を変化させることで分散関数のエミッタンスへの寄与を抑える"bending magnet with longitudinal gradient (LG ベンド)"になっている。曲率半径を5段階で変化させる為、便宜上、BID1 ~5、BPI1~5と称することにする。)



図 2.3 入射セルの電磁石構成

図 2.3 に入射用のセルのラティスを示す。入射用の直線部の両側、SD-SD 間が入射用に最適化される。直線 部両脇の LD ベンド BID を短く(BID11~5I)し、6 極側に4 極を1 台追加する。図の緑 K1~K4 が入射キッカー 電磁石である。SD から短直線部側は通常のノーマルセルと同一、セル全体のチューンの進みも一定にすること で、理想的な場合の非線形オプティクスとしては 20 回対称を維持している。 2.2 リングのオプティクス

図 2.4 にリング 1 周のオプティクスを示す。水平ベータ関数の大きな部分が入射セルである。また、図 2.5 に 弧部 1 セルのオプティクスを、図 2.6 に入射セルのオプティクスを示す。



図 2.4 リング1周のオプティクス

長直線部、短直線部とも、分散は厳密にはゼロではない。実効エミッタンスの定義として、直線部中央での分散と運動量広がりの効果を含めたビームサイズと角度広がりをβとγで規格化したもの

 $\varepsilon_{eff} = \sqrt{\left(\beta\varepsilon + (\eta\sigma_E)^2\right)\left(\gamma\varepsilon + (\eta'\sigma_E)^2\right)/\beta\gamma}$

とするなら、IBS の影響を考えない場合、 $\varepsilon = 132.5 \, pm \cdot rad$ 、 $\sigma_E = 6.422 \times 10^{-4}$ であるので、5.6m 長直線部 中央($\beta = 4.79m$ 、 $\eta = 2.5 \, cm$ 、 $\alpha = 0$ 、 $\eta' = 0$)では実効エミッタンスは約 $\varepsilon_{eff} = 157 \, pm \cdot rad$ となる。一 方、1.2m 短直線部中央($\beta = 0.664m$ 、 $\eta = 2.0 \, cm$ 、 $\alpha = 0$ 、 $\eta' = 0$)では約 $\varepsilon_{eff} = 225 \, pm \cdot rad$ となる。通 常の DBA、TBA 同様、分散を残すとより低エミッタンスになる一方、実効エミッタンスは大きくなる。ラティスとして 両者のバランスがとれるように、5.6m 直線部については最適化を行っている。



2.3 ダイナミックアパーチャ

ダイナミックアパーチャを広げるため、図2.7のように、ノーマルセル内の6極電磁石間のチューンの進みはお よそ半整数になるように調整されている。チューンの進みを半整数とすれば、非線形力を6極ペア同士で打ち消 すことができる。さらに、オプティクスとして「分散関数バンプ」、すなわち、色収差補正の為の6極電磁石の設置 場所の分散関数を大きくし、6極の強さを抑える工夫がなされている。一般に、偏向電磁石内で分散関数を大き くするとエミッタンスが増大するが、それを防ぐ為、偏向電磁石のコア長を長く、分散関数が大きくなるに従って 徐々に磁場を弱くするという、LGベンドが導入されている。

セル中央の機能結合型偏向電磁石部分だけでセルを作ると、周長は短くなる一方で6極電磁石が非常に強くなる。MAX IV を含め、一般の MBA ラティスは実際に6極が非常に強い。一方、分散関数バンプ部分だけを取り出してDBA 的にセルを作ると、曲げ角が小さい為に巨大なリングとなってしまう。例えば NSLS II は周長 780 m、DBA32 セルだがエミッタンスは1 nm·rad を越えてしまっている。両者の良いところを組み合わせることで、中規模でダイナミックアパーチャの大きな極低エミッタンスリングを作ることができるのが HMBA (Hybrid Multi Bend Achromat) ラティスの特徴である。



図 2.7 ノーマルセルの6極電磁石間のチューンの進み



図 2.8 誤差のない場合のダイナミックアパーチャ

図 2.8 に誤差を考えない場合のダイナミックアパーチャを示す。+X はリング外側方向、-X は内側方向、+Y は リングの上方向、-Y が下方向のアパーチャで、振幅方向の単位はエミッタンスの効果のみを考えた水平ビーム サイズである。詳しくは後で述べるが、現在の PF 並の電磁石の誤差を考慮すると、これは約 160σまで減少す る。入射点のβx=30m なので、160σの実寸のアパーチャは約 10mm となる。誤差入りのダイナミックアパーチャ、 入射スキームの項目で詳細を述べるが、従来のキッカーとセプタムを使った入射に困難はない。

図 2.9 に、誤差のない場合の、XY 平面内のダイナミックアパーチャを示す。運動量方向については、+2.5%、0%、-2.5%の3通りについて計算を行っている。



図 2.9 誤差のない場合の XY 平面内のダイナミックアパーチャ

2.4 RF 電圧と運動量アパーチャ

図 2.10 に Bucket height、バンチ長と RF 電圧の関係を示す。(バンチ内散乱の効果は考慮されていない。) RF 電圧 2.0 MV の場合、IBS の効果なしでバンチ長 2.73 mm、バケットハイト 3.98%となる。



図 2.10 RF 電圧とバンチ長、bucket height

2.5 バンチ内散乱の効果

エミッタンスが非常に小さいため、タウシェック効果に伴うエミッタンス増大、寿命減少が顕著である。図 2.11 に カップリング 2.6%とした時の水平アパーチャとタウシェック寿命の計算を示す。



図 2.11 水平方向のアパーチャ、運動量アパーチャとタウシェック寿命

グラフの点線は電流 200 mA の場合、実線が 500 mA の場合である。運動量方向のアパーチャは RF 電圧 2.0 MV の場合のエネルギー広がりを使って計算しており、実際のバケットハイトは約 4%、ダイナミックアパーチャから決まる運動量アパーチャは約 3%である。また、垂直方向のアパーチャはビームサイズに比べて十分広いとしているが、現実もそうなっている。凡例の Inf、300、200、100 は仮定する水平方向のダイナミックアパーチャの大きさを表し、単位はバンチ内散乱を考慮しない、ゼロ電流での水平エミッタンス約 133 pm・rad で規格化されている。(Inf は水平方向のアパーチャを計算に入れない(無限に広い)とした場合である。) また、実際の水平エミッタンスは 200 mA の場合で約 231 pm・rad(カップリング 3.5%)、500 mA の場合で 315 pm・rad(カップリング 2.6%)である。133 pm・rad の 100 ので、バケットハイト 3%のタウシェック寿命は 200 mA の場合で 2.9 時間、500 mA の場合で 1.8 時間となる。オプティクスのさらなる最適化で振幅、運動両方向のアパーチャが改善できれば、タウシェック寿命も改善させることができる。(その様なラティスオプションも検討中である。)

ビームロスの大きさについては、バンチ伸長などを行わずに 1.8 時間のままの場合、例えば現在の PF のハイ ブリッド運転時のビーム寿命が 5~6 時間であるので、その 1/3 となる。現在の PF の捕獲率(約 30%)、周長の違 いによる必要電荷量(約 3 倍)を考慮すると、非常に粗い見積もりでは、ハイブリッドモードでトップアップ運転中 の PF の約 3 倍程度になる可能性があると思われる。 図 2.12 に水平垂直方向のエミッタンス増大の効果を、図 2.13 に運動量広がりとバンチ長増大の効果を示す。 凡例の数字はカップリングで、500 mA の時に垂直 8 pm·rad が目標なので、0.026(2.6%)が設計値である。RF 電圧は 2 MV としている。垂直方向は IBS の効果はほとんどないので、水平方向とカップリング値の効果のみで 決まる。誤差の効果で垂直数 pm·rad のエミッタンスが発生するが、他に歪 4 極電磁石よってカップリングを制御 する。



図 2.12 IBS によるエミッタンス増大の効果



図 2.13 IBS による運動量広がり及びバンチ長増大の効果

2.6 電磁石の強さと設計

2.6.1 進行方向に勾配のある偏向電磁石

1 セルに 8 台の偏向電磁石が存在し、うち直線部の両脇 4 台はビーム進行方向に曲げ角が変わっていく、 longitudinal gradient bend であり、残りの 3 台は垂直方向の集束力をもつ機能結合型の偏向電磁石である。ノー マルセル 1 セル分の偏向電磁石のパラメータを表 2.2 に示す。表の上側では BID、BPI の進行方向の変化(5 段階)を書き、「和」で全体の長さと曲げ角をまとめた値を示している。BID_I は入射セル用の短い偏向電磁石で ある。

		L[m]	angle [rad]	angle [deg]	B [T]	ρ [m]	K[m ⁻¹]
BID	BID5	0.413	0.01990	1.140	0.482	20.757	
	BID4	0.413	0.01094	0.627	0.265	37.766	
	BID3	0.413	0.00827	0.008	0.200	49.927	
	BID2	0.413	0.00654	0.007	0.158	63.158	
	BID1	0.413	0.00533	0.305	0.129	77.537	
	和	2.065	0.05097	2.920	0.247	40.514	
BPI	BPI1	0.413	0.00524	0.300	0.127	78.864	
	BPI2	0.413	0.00632	0.362	0.153	65.393	
	BPI3	0.413	0.00758	0.434	0.184	54.478	
	BPI4	0.413	0.00958	0.549	0.232	43.117	
	BPI5	0.413	0.01350	0.774	0.327	30.585	
	和	2.065	0.04222	2.419	0.204	48.916	
BID_I	BID1I	0.250	0.00533	0.305	0.213	46.935	
	BID2I	0.250	0.00817	0.468	0.327	30.585	
	BID3I	0.250	0.01034	0.592	0.414	24.178	
	BID4I	0.250	0.01094	0.627	0.437	22.860	
	BID5I	0.250	0.01990	1.140	0.796	12.565	
	和	1.250	0.05467	3.133	0.437	22.863	
BI	PI6	0.806	0.05453	3.125	0.677	14.780	-2.020
BI	PI7	0.352	0.00936	0.536	0.266	37.607	-0.013

表 2.2 偏向電磁石 1 セル分のパラメータ

図 2.14 に進行方向に曲げ角が変わる偏向電磁石の磁場及び曲率半径の変化を示す。曲率半径がビーム進行方向に対して線形に変化していることが分かる。解析的に書き表すと、 $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} [H/m]$ を真空(〜大気中)の透磁率、N[turns]を上下磁極を合わせたコイル巻数、I[A]を電流値、h[m]を磁極の全幅として、磁場は $B_0[T]$ は $B_0 = \frac{\mu_0 NI}{h}$ と書け、ビームのエネルギーを E[GeV]とすると、曲率半径 $\rho[m]$ は $\rho = \frac{E}{0.3\mu_0 NI}$ hと書ける。すなわち、曲率半径をビーム進行方向に線形に変化させるためには、磁極ギャップを線形に変化させればよい。ESRF では永久磁石を使った5段階変化の磁極が採用されるが、もし、電磁石を使う場合、テーパー磁極でも対応できそうである。



図 2.14 Longitudinal Gradient Bend のパラメータ

進行方向に勾配のある電磁石の設計は3次元で行う必要がある。OPERA 3D によるモデルを図2.15 に、磁場計算の結果を図2.16 に示す。サジッタ等を考えた磁極幅の最適化等はまだこれからだが、電磁石の大きさや製作、飽和等については問題なさそうである。また、ビーム進行方向の磁場成分は非常に小さく、問題はない。



図 2.15 進行方向に勾配のある電磁石のモデル例



図 2.16 BID のための磁場計算例

2台の機能結合型の偏向電磁石 BPI6、BPI7だが、BPI7は磁極を傾けたタイプの偏向電磁石で問題はない。 BPI6 については発散力が強いので、オフセットありの 4 極電磁石として考えてみることにする。パラメータをまと めると、以下のようになる(表 2.3)。

	L[m]	B[T]	K [m ⁻¹]	B'[T/m]
BPI6	0.806	0.677	-2.020	-25.064
BPI7	0.352	0.266	-0.013	-0.364

表 2.3 機能結合型偏向電磁石の発散力

4極磁場は中心軸からの距離に従って線形に変化する磁場である。従って、ビームが4極電磁石の中心軸からずれた場所を通過すると、ずれた距離に比例する偏向磁場を感じることになる。BPI6の場合、25.06 T/mの磁場があるので、1 cm 中心軸から離れると、0.2506 T の偏向磁場成分があることになる。BPI6を機能結合型偏向電磁石ではなく、オフセットありの4極電磁石として考えた場合、必要なオフセット量は2.7 cm となる。例えば PF の場合、以前のボア直径9 cm の4極電磁石の最大磁場勾配は約20 T/m であった。従って、20 T/m の4極電磁石で3.2 cm のオフセットはそれほど非現実的な値ではないことが分かる。また、水平発散極性の4極電磁石なので、オフセットした方向は通常の C 型の偏向電磁石と同じで、ヨークがある側にビームが曲がり、放射光が磁極の広い側に向かって出る、という極性になる。長さ80.6 cm なので、ビーム軌道の曲率を考えずに、まさに通常の4 極電磁石的に製作するか、それとも軌道の曲がり(サジッタ)を考慮に入れて、磁極をビーム進行方向に沿って曲線形状にするかは、製造し易さと精度、磁場測定のしやすさなどを総合的に考えて判断する必要がある。ESRF II では軌道の曲率を入れた曲線的な設計、同様にオフセットした4極を機能結合型偏向電磁石的に使っているJ-PARCでは直線的な設計になっている。いずれにせよ、磁場の値も磁場勾配の値も、限界に挑戦という感じの困難な値ではなく、PF や J-PARC の経験を生かして無理なく製作できる範囲になっていると言える。

cERL の 4 極電磁石は、補正コイルで水平、垂直ステアリング機能が追加されている。同じ原理で、垂直磁場 と 4 極磁場を独立に変化させることも可能であるが、4 極電磁石で 2 極磁場を発生させると、6 極成分も発生す る。そこで、BPI6 と BPI7 の間には補正用の薄い 6 極電磁石が設置されている。

低エミッタンスを実現するためには、偏向電磁石の磁場は弱くしなければいけない。その為、このリングの偏向電磁石の最大磁場はBPI6の0.677 Tである。偏向電磁石からの光の臨界エネルギーは $\hbar\omega_c = \hbar \frac{3\gamma^3 c}{2\rho}$ と書ける。ここで、 \hbar はプランク定数を 2π で割った値、 γ はビームのローレンツ因子、cは光速である。PFの場合、偏向電磁石 0.962 Tで曲率半径が 8.66 m、臨界エネルギーは 4.00 keV となる。一方、BPI6の場合、3 GeV で 0.67 Tなので曲率半径は 14.78 m、ローレンツ因子の増大の効果($3^3/2.5^3 = 1.728$)で臨界エネルギーは PF と同じ 4.05keV となる。

BPI6 に対する 2 次元計算のモデルを図 2.17 に、ダクト位置を示す断面図を図 2.18 に、励磁曲線を図 2.19 に示す。BPI7 についても同様に、2 次元計算のモデルを図 2.20 に、ダクト位置を示す断面図を図 2.21 に、励磁曲線を図 2.22 に示す。



図 2.17 BPI6 のモデル計算



図 2.19 BPI6の励磁曲線



図 2.20 BPI7 のモデル計算



図 2.21 BPI7の断面図



図 2.22 BPI7の励磁曲線

2.6.3 4極電磁石

4 極電磁石のパラメータを表 2.4 に示す。QS は入射セルの長直線部側の電磁石である。4 極電磁石の磁場 勾配 B'[T/m]は、R[m]を磁極のボア半径として、 $B' = \frac{2\mu_0 NI}{R^2}$ と書ける。また、4極電磁石の $K_1[m^{-1}]$ は電磁 石の長さを L[m]、magnetic rigidity を $B_0\rho[T \cdot m] = \frac{E[GeV]}{0.3}$ として、 $K_1 = \frac{B'L}{B_0\rho}$ と書ける。従って、ボア半径を

小さくしていくと、その2乗に従って磁場を強くすることができる(飽和の問題があるので、限界はある)。

まず、参考として、PFリングノーマルセルに設置されている QDタイプの4極電磁石のパラメータを示す。電磁石の長さは30 cm、コイル巻き数は各磁極あたり23 ターン、ボア半径は35 mm である。電源最大電流値は800 A であり、その時の磁場勾配は計算では37.8 T/m となるが、現実には電流値500 A 付近から飽和が見られ、電流800 A の時の実際の磁場勾配は30 T/m である。ほとんどの電磁石は30 T/m を越え、最大は約50 T/m なので、PFと同じ設計では対応できない。そこで、ボア半径35 mmを小さくすることを考える。2 乗で効くので、50 T/m にする場合、飽和を考えなければ半径30 mm にすれば37 T/m は50 T/m になる。一般的な電磁軟鉄を想定して2 次元計算を行うと、ボア半径約15 mm とすれば飽和の影響がそれほどない領域で十分な強さが得られる。 (飽和領域では必要な電源電流が大きくなり、漏れ磁場も増えるので、可能な限り飽和は避けたい。)

	L[m]	K[m ⁻¹]	$B'/B\rho[m^{-2}]$	B'[T/m]
QFA1	0.25	0.925	3.699	36.989
QDA2	0.2	-0.725	-3.626	-36.256
QDA3	0.2	-0.500	-2.498	-24.979
QFA4	0.2	0.517	2.583	25.834
QDA5	0.2	-0.405	-2.026	-20.261
QFA6	0.335	1.757	5.243	52.434
QFA8	0.5	1.884	3.767	37.670
QS5	0.2	0.528	2.640	26.403
QS4	0.2	-0.824	-4.121	-41.210
QS3	0.2	0.555	2.773	27.731
QS2	0.2	-0.173	-0.867	-8.672
QS1	0.1	-0.113	-1.131	-11.310
QS0	2.01	0.458	0.228	2.278

表 2.4 4極電磁石のパラメータ

4 極電磁石の設計例として、2 次元断面図を図 2.23 に、励磁曲線を図 2.24 に示す。コリンズ型を採用し、左 右のヨークは鉄ではなく、非磁性体(SUS)とする。また、PF 同様、非磁性体部分についてはビームラインチャン ネルのダクトをよけられるようにそれぞれ設計配置を行う。磁極間の最も狭い間隔は 9 mm であるが、ビームライ ンがそこを通ることはない。



図 2.23 4 極電磁石の断面モデル



図 2.24 4 極電磁石の励磁曲線例

2.6.4 6極電磁石

6 極電磁石の強さを表 2.5 に示す。6 極電磁石の磁場強さ $B''[T/m^2]$ は $B'' = \frac{6\mu_0 NI}{R^3}$ と書ける。また、K 値 $[m^{-2}]$ は $K_2 = \frac{B''L}{B_0\rho}$ と書ける。まずは参考の為、PF リングノーマルセルの SD タイプ 6 極電磁石のパラメータを 示す。電磁石の長さは 20 cm、コイル巻き数は 17 ターン、ボア半径は 45 mm である。電源最大電流値は 450 A であり、その時の 6 極磁場は計算では 633 T/m²となる。ただし現実には電流値 300 A 付近から飽和が見られ、 最大 6 極磁場の強さは 600 T/m² である。4 極電磁石の強さの観点から、ボア径は半径 1.5 cm にする必要がある が、電磁石のボア半径を 2 cm としても、総電流 3500 AT で線形領域で 3500 T/m²まで磁場を出すことができる。 コアを薄くしすぎると裾磁場の影響が大きくなりすぎるが、コア長はもっと短くすることも可能である。真空やチャ ンネルとの取り合いを除けば、電磁石性能としての設計製造はそれほど難しくない。

表 2.5 6 極電磁石のパフメ	ノータ
------------------	-----

	L[m]	$K[m^{-2}]$	$B''/B\rho[m^{-3}]$	$B''[T/m^2]$
SD	0.18	-24.765	-137.583	-1375.832
SF	0.18	30.269	168.160	1681.600

6極電磁石の設計例として、2次元断面図を図 2.25 に、励磁曲線を図 2.26 に示す。



図 2.25 6極電磁石の断面形状例



図 2.26 6極電磁石の励磁曲線例

2.7 チューンシフトと色収差

図 2.27 に運動量依存、振幅依存チューンシフトを示す。誤差を入れると水平振幅約 150σ、運動量方向 3%に 限界があるが、整数共鳴線がアパーチャを決めていることが分かる。6 極電磁石の最適化、運転チューンの微調 整でアパーチャを広げられる可能性が大いに残されている。図 2.28 に色収差補正前後の水平方向、垂直方向 の運動量依存チューンシフトを示す。



図 2.27 チューンシフト



図 2.28 色収差補正前後の運動量依存チューンシフト

2.8 BPM とステアリングの配置

ステアリングの配置を図 2.29 に示す。HD が水平ステアリング、VD が垂直ステアリング、PM は BPM である。 ノーマルセルでは、水平ステアリングは偏向電磁石のバックレグで、垂直ステアリングは4 極電磁石及び6 極電 磁石の補正コイルを考えている。入射セルについては、通常のノーマルセルに加え、直線部中央の4極QS0の 補正コイルをステアリングとする。ノーマルセル1セルにつき、水平ステアリング8カ所、垂直ステアリング6カ所、 BPM10 カ所であり、入射セルは水平9カ所、垂直7カ所、BPM11カ所である。リング1 周では水平ステアリング 161 カ所、垂直ステアリング 121 カ所、BPM 201 カ所となる。



図 2.29 BPM、ステアリング配置

2.9 誤差の影響

据え付け誤差、磁場強さの誤差、電磁石の傾き誤差の影響について述べる。

図 2.30 に電磁石の据え付け誤差の影響を示す。ここでは据え付け誤差のみを考え、最大誤差は 1 σ とする。 例えば、50 µm の据え付け誤差という場合、幅 50 µm のガウス分布の乱数誤差を入れるが、50 µm を超えた場 合は 50 µm 以下になる様に乱数を振り直している。据え付け誤差 0~60 µm まで 5 µm 毎に 1000 通りを計算し、 平均値をプロットしている。一般的な据え付け誤差を 50 µm とすると、単独でそれしかない場合、COD はリング 一周の最大値で 4 mm、rms で 1 mm 程度発生することが分かる。また、COD や分散の歪みが巨大(計算上、 COD が 20 cm、分散歪みが 2 m 以上を解なしと判断した)になり、解が求まらなかった場合の割合も示す。 50 µm の場合でも 1000 回中 523 回が解なしであった。

図 2.31 に 4 極、6 極電磁石の強さの誤差の影響を示す。ここでは、強さの誤差のみを考え、据え付け誤差と 傾きの誤差は入れていない。誤差 0.01%毎に 1000 通りの平均値である。強さの誤差単独の場合、0.1%あったと してもそれほど問題にはならない。磁場測定や電磁石製造上の限界は、恐らく 0.05% (最大 3 乗、 σ で 4 乗台前 半)程度であろうと思われる。強さの誤差のみの場合、解なしにはならない。

図 2.32 に偏向電磁石、4 極、6 極電磁石の回転誤差の影響を示す。水平方向の分散、エミッタンスが誤差に よるカップリングによって垂直方向に回る量の大きさである。垂直方向の目標エミッタンスを 8 pm·rad とすれば、 回転誤差単独であれば 0.4 mrad まで許されることになる。現実には回転誤差は 0.1 mrad 程度までは容易に抑 え込むことができ、その場合、回転誤差単独ならばビーム品質を大きく悪化させることはないことが分かる。回転 誤差だけの場合も、解なしにはならない。

目標とする誤差の許容量を設定するのは難しいが、上記の誤差、ガウス分布の誤差で、標準偏差1oが、据え 付け誤差50µm、強さの誤差0.05%、回転誤差0.1 mradであるものを考え、最大誤差は1oとする。図2.33に、 この大きさの誤差を入れた場合の影響を50通り計算した結果を示す。図2.34に、各場合に対して COD 補正を 行った結果を示す。COD 補正は固有値法で行い、固有値はステアリング数の半数(水平80、垂直60)とする。ま た、補正後のステアリングの蹴り角は半分入れるものとし、補正を20回繰り返す。BPM 及びステアリングの強さ に誤差はないものとしている。

図 2.35 に前述の誤差(据え付け誤差 50 µm、強さの誤差 0.05%、回転誤差 0.1 mrad、最大値は標準偏差と 同じ)を入れた場合の、COD 補正に対する水平方向の固有値の数の影響を示す。垂直方向の固有値はステア リングの半数の 60 であり、補正はステアリング半分戻しで 20 回行った結果である。水平方向の固有値 5~160 まで、5 毎に50 通りの平均値である。BPMとステアリングの誤差は考えないので、固有値を増やすほどずれの残 留値は減っているが、固有値がおよそステアリング数の半分(80)程度になると、それ以上増やしてもあまり改善 しないことが分かる。図 2.36 に同様に垂直方向の計算結果を示す。垂直方向も同様にステアリング数の半分 (60)程度になると、それ以上固有値を増やしてもあまり改善しないことが分かる。図 2.37 に、固有値をステアリン グ数の半数(水平 80、垂直 60)とし、ステアリング半分戻しとした時の COD 補正回数とずれの残留値の関係を示 す。

図 2.38、図 2.39 に前述の誤差(据え付け誤差 50 µm、強さの誤差 0.05%、回転誤差 0.1 mrad、許容最大値は 標準偏差と同じ)を入れた場合のダイナミックアパーチャを示す。グラフには、100 通りの平均値の他に、アパー チャの領域の広さで並べ替えた場合の水平垂直の和が最も広い場合と、その運動量で最も狭かった場合とを 示す。



図 2.30 据付誤差の影響



図 2.31 強さの誤差の影響





図 2.33 標準的な誤差の影響(補正前)



図 2.34 標準的な誤差の影響(補正後)



図 2.35 水平固有値とCOD 補正



図 2.36 垂直固有値とCOD 補正



図 2.37 補正回数と補正値




図 2.39 ダイナミックアパーチャ(負(内・下)側)

2.10 入射スキーム

既存の PF 入射器である LINAC を引き続き利用した場合で、さらに、入射器のビーム性能をアップグレードしなかった場合の入射スキームを図 2.40 に示す。ダイナミックアパーチャ、キッカーの強さ等、特に問題はない。 電子銃の性能向上によって入射ビームサイズが小さくなればより入射は容易となる。

また、既存の新第3世代放射光源のように、独立した小さなLINACからリングトンネル内にコンパクトに設置したブースターへ入射し、加速した後にメインリングに入射するという選択肢も考える価値がある。



図 2.40 入射スキーム

2.11 抵抗性インピーダンスの影響

本リングに設置する小ギャップ真空封止型アンジュレータの数や長さが PF リングに比べて増加し、ベータトロン関数もやや大きくなる。そのために、横方向の抵抗性インピーダンス(Resistive-wall impedance)によるビーム不安定性が生じやすくなる。また、バンチ長が短くなるために、同じアンジュレータギャップであっても縦方向の抵抗性インピーダンスによる発熱量が増加する。ここでは、アンジュレータの抵抗性インピーダンスによるビーム不安定性や発熱への影響について述べる。

2.11.1 ウェーク場とインピーダンス

リング内を周回する電子やバンチはリング内壁の凹凸や壁の材質の抵抗によって電磁場を発生し、同一バン チ内の後続の電子あるいは後続のバンチに影響を与える。単位電荷当りのこの電磁場をウェーク場(wake field)と呼ぶ。ウェーク場には縦方向(longitudinal)ウェーク場 $W_{\ell}(z)$ と横方向(transverse)ウェーク場 $W_{\ell}(z)$ があり、それぞれに対して縦方向と横方向のインピーダンスをそれぞれ次のように定義する[2.1]。

$$Z_{\ell}(\omega) = \frac{1}{c} \int_{-\infty}^{\infty} W_{\ell}(z) e^{-i\omega z/c} dz$$
(2-1)

$$Z_t(\omega) = \frac{i}{c} \int_{-\infty}^{\infty} W_t(z) e^{-i\alpha z/c} dz$$
(2-2)

インピーダンスはウェーク場のフーリエ変換のようなものである。一般にウェーク場あるいはインピーダンスは、 ビームと加速器の壁までの距離が近くなると大きくなる。抵抗性インピーダンスでは、さらに壁材の抵抗率(ある いは電気伝導率)に依存する。

2.11.2 抵抗性インピーダンスによる発熱

小ギャップ真空封止アンジュレータの磁石列カバー用銅シートの縦方向抵抗性インピーダンスによって生じる 発熱の影響を評価する。単位バンチ電荷当りのウェーク場によるエネルギー損失 *k*_{loss} はロスファクタと呼ばれ、 単位長さ当りではバンチ内での電子分布*p*(z)と縦方向のウェーク場あるいはインピーダンスを用いて次のように 書ける。

$$k_{loss} = \frac{1}{L} \int_{-\infty}^{\infty} dz' \rho(z') \int_{z'}^{\infty} dz \rho(z) W_{\ell}(z'-z)$$

$$= \frac{1}{2\pi L} \int_{-\infty}^{\infty} \left| \widetilde{\rho}(\omega) \right|^{2} \operatorname{Re} \{ Z_{\ell}(\omega) \} d\omega$$
(2-3)

ここで、Lは銅シートの長さで、

$$\widetilde{\rho}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \rho(z) e^{-i\omega z/c} dz$$
(2-4)

である。Re{ }は、{ }内の量の実数部を意味する。銅シートの銅の厚みが十分厚く、形状を円形で近似する。そのとき、長さLの縦方向の抵抗性インピーダンスはここで問題としている周波数領域で

$$Z_{\ell}(\omega) = \frac{\omega Z_0 L}{4\pi bc} \sqrt{\frac{2}{\sigma_c \mu_0 |\omega|}} \{ \operatorname{sgn}(\omega) - i \}$$
(2-5)

と近似できる。ここで、b, σ_c , μ_0 , Z_0 は真空封止アンジュレータのギャップ g_u の半値($g_u/2$)、銅の電気伝導率、真空の透磁率とインピーダンスである。また、sgn()は()内の値の符号が負ならば-1、正ならば+1 をとる。縦方向の抵抗性インピーダンスはアンジュレータのギャップ g_u と電気伝導率の平方根に反比例する。また、バンチの分布形状をバンチ長 σ_i とするガウス分布とすると、

$$\rho(z) = \frac{c}{\sqrt{2\pi\sigma_t}} e^{-\frac{c^2 z^2}{2\sigma_t^2}}$$
(2-6)

$$\widetilde{\rho}(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{\sigma_r^2 \omega^2}{2}}$$
(2-7)

となる。このとき、ロスファクタは、

$$k_{loss} = \frac{Z_0}{8\pi^2 bc} \Gamma\left(\frac{3}{4}\right) \sqrt{\frac{2}{\sigma_c \mu_0}} \sigma_t^{-1.5} = \frac{6.38 \times 10^{12}}{g_u [mm] (\sigma_t [ps])^{1.5}} (g_u = 2b)$$
(2-8)

と表せる。ロスファクタを使ってビームによる発熱量 PRW は次のようになる。

$$P_{RW} = k_{loss} Q_b^2 f_b L = \frac{k_{loss} I_{total}^2 L}{f_b}$$
(2-9)

ここで、*f_b*, *Q_b*はバンチ繰り返し周波数、バンチ電荷である。バンチのフィルパターンは等間隔で全 RF バケットを同じ電荷(電流)で満たされているとする。このときのバンチの繰り返し周波数(RF 周波数)と全電流 *I_{total}=500mA*を考えると、単位長さ当りのビームによる発熱量は、バンチ長 *σ_r=11ps* を仮定してギャップ 4 mm と 6 mm に対して計算すると、

$$P_{RW} / L = 14.6 [W/m] (g_u = 6 \text{mm} k_{loss} = 2.91 \times 10^{10} \text{ V/C/m})$$

= 21.9 [W/m] (g_u = 4 \text{mm} k_{loss} = 4.37 \times 10^{10} \text{ V/C/m})
(2-10)

となる。比較のために PF リングでの小ギャップアンジュレータでの単位長さ当りの発熱量をバンチ長 σ=32ps を 仮定して最小ギャップ 4 mm に対して計算すると、

$$P_{RW} / L = 3.5 [W/m] (g_u = 4mm, k_{loss} = 8.68 \times 10^9 \,\text{V/C/m})$$
(2-11)

となって、新リングでの発熱はこれに比べるとかなり大きくなる。PF リングでは通常のマルチバンチ運転の他にハイブリッドモードでの運転(1つのバンチに 50 mA、残り 400 mA をリング半分のバンチに等しく入れる)も行っていて、その場合の発熱量は 10 W 程度と評価されるので、新リングでのマルチバンチの発熱でも現状の真空封止アンジュレータシステムでほぼ対応できるものと考える。しかし、新リングでハイブリッドモードのような運転を考える場合はさらに発熱量が大きくなるので、冷却系の改善など何らかの検討をする必要が出てくるかもしれない。

2.11.3 抵抗性インピーダンスによるバンチ結合型ビーム不安定性

小ギャップ真空封止アンジュレータの磁石カバー用銅シートの抵抗性インピーダンスによって生じる横方向の バンチ結合型ビーム不安定性についてここでは考える。長さLの横方向の抵抗性インピーダンスは式2-5と同様 に銅が十分厚く形状を円形で近似すると、ここで問題としている周波数領域では

$$Z_{t}(\omega) = \frac{Z_{0}L}{2\pi b^{3}} \sqrt{\frac{2}{\sigma_{c}\mu_{0}|\omega|}} \{ \operatorname{sgn}(\omega) - i \}$$
(2-12)

と近似できる。アンジュレータのギャップ g_u と銅シート間のギャップは同じとする(実際はシートの厚み分を引く必要があるが、ここでは無視した)。簡単のために、バンチのフィルパターンは等間隔で全 RF バケットを同じ電荷 (電流)で満たされているとする。ある電流閾値を越えるとバンチ同士は抵抗性インピーダンスによるウェーク場 によって結合して振動する。バンチ間の振動モード(μ =0,1,..., k_b -1)はバネでつながれた質点の連成振動のように、バンチの数 k_b だけ存在する。一方で、もう1つはバンチ内での振動の種類を表すモード数 a (a=0,1,2,...) がある。a=0 はバンチの重心のベータトロン振動である。a=1 はバンチの頭と尾が横方向に互い違いに振動する。a=2 以降はさらに高次のシンクロトロン振動が加わってさらに複雑な振動になる。通常は、最低次 a=0 を考え れば良いが、クロマティシティが大きいと高次モードの成長率も増大するので注意が必要である。本光源リング の目標となる全蓄積電流 I_{total} =500mA における全振動モードの中で最大の成長率を求めてビーム不安定性を評価する。下記に振動モード(μ ,a)での成長率 $g_{\mu,a}^{t}$ の式を示す[2.2]

$$g_{\mu,a}^{t} = -\frac{eI_{total}f_{0}\beta_{t}}{2E} \cdot \frac{(c\sigma_{t}/R)^{2a}}{2^{a}a!} \cdot \operatorname{Re}[Z_{t}]_{eff}^{\mu,a}$$
(2-13)

$$\left[Z_{t}\right]_{eff}^{\mu,a} = \sum_{p=-\infty}^{+\infty} \left(\frac{\omega_{p}^{t} - a\omega_{s} - \omega_{\xi}}{\omega_{0}}\right)^{2a} \exp\left\{-\left(\frac{\omega_{p}^{t} - a\omega_{s} - \omega_{\xi}}{\omega_{0}}\right)^{2} \left(c\sigma_{t}/R\right)^{2}\right\} \cdot Z_{t}\left(\omega_{p}^{t}\right)$$
(2-14)

 $\boldsymbol{\omega}_{p}^{t} = \left(pk_{b} + \mu + \nu_{t} + a\nu_{s}\right)\boldsymbol{\omega}_{0}, \quad \boldsymbol{\omega}_{\xi} = \boldsymbol{\omega}_{0}\boldsymbol{\xi}/\boldsymbol{\alpha}, \quad \boldsymbol{\omega}_{s} = \nu_{s}\boldsymbol{\omega}_{0}, \quad \boldsymbol{\omega}_{0} = 2\pi f_{0}$ (2-15)

ここで、E, R, f₀, k_b, I_{total}, v_i, v_s, β_i, α, ξ, σ_i, b, σ_c, μ₀, Z₀ は、ビームエネルギー、リングの平均半径、周回周波数、 バンチ数、全蓄積電流、ベータトロンチューン、シンクロトロンチューン、アンジュレータでのベータトロン関数、モ ーメンタムコンパクション因子、クロマティシティ、バンチ長、真空封止アンジュレータのギャップ半値(b=g_u/2)、ア ンジュレータ磁石用銅シートの電気伝導率、真空の透磁率とインピーダンスである。この成長率が正値で大きい とその振動モードのビーム不安定性が起こりやすく、負の場合は減衰して起こらない。また、この成長率が正で も、リングの放射減衰率より小さければビーム不安定性は生じない。今回の計算では全蓄積電流を I_{total}=500mA とし、バンチ数としてはハーモニック数を考える(k_b=952)。バンチ電流は I_b=500mA/952=0.525mA となる。

図 2.41 に *L*=5mの長直線部アンジュレータ、*L*=1mの短直線部アンジュレータに対する抵抗性インピーダンス によるビーム不安定性の垂直方向の振動モード中最大の成長率をベータトロンチューンの関数として示す。ア ンジュレータギャップ *gu*=4mm と 6mm の 2 つの場合について計算した。ただし、最低次(*a*=0)のモードのみであ る(それより高次のモードの成長率はリングの放射減衰率 26 s⁻¹ に比べて無視できるほど小さい)。比較のため に、図 2.42 に PF リング短直線部の小ギャップアンジュレータ(SGU)と PF リング長直線部アンジュレータ U16 の 抵抗性インピーダンスによるビーム不安定性の垂直方向の最大成長率の計算結果も示す。



図 2.41 ビーム不安定性の垂直方向の最大成長率。L=5m の長直線部アンジュレータ(上)及び L=1m の短直 線部アンジュレータ(下)の抵抗性インピーダンスによるビーム不安定性の垂直方向の最大成長率を示す。



図 2.42 PFリング短直線部の場合。PFリングの場合の、小ギャップアンジュレータ(SGU)とのPFリング長直線部 アンジュレータU16の抵抗性インピーダンスによるビーム不安定性の垂直方向の最大成長率を示す。ベータトロ ンチューンは 5.28 である。

図からわかるように、最大成長率はベータトロンチューンの小数部の値とともに大きくなり、ギャップが4 mmと6 mm では 4 mm の方がギャップ値の 3 乗の比 (=3.375) だけ大きくなる。これは、式 2-12 のインピーダンスの表記 からもわかる。また、*L*=5mの長直線部アンジュレータの方が*L*=1mの短直線部アンジュレータに比べて長さが長 くベータトロン関数もやや大きいために、1 桁以上大きくなっていることがわかる。現状のベータトロンチューン *v*=17.62 の場合、*gu*=4mm で成長率はそれぞれ 784s⁻¹、67s⁻¹になり、単独でもリングの放射減衰率 28 s⁻¹より大き い。これに対して、PF リングのアンジュレータの抵抗性インピーダンスによる成長率は、PF リングの放射減衰率

128 s⁻¹以下で、ビーム不安定性は生じない。本リングは20セルのラティスで、設置可能な各アンジュレータは最大で20台ずつになるので、全合計で約17000 s⁻¹の成長率になる。リングの放射減衰率では安定化されないので、ビーム不安定性による振動に対して何らかの減衰機構が別途必要になる。ビーム不安定性対策として、クロマティシティの調整とフィードバックキッカーの導入がある。

図 2.43 に垂直方向のベータトロンチューン 17.62 の場合の *L*=5m の長直線部アンジュレータ、*L*=1m の短直 線部アンジュレータに対する抵抗性インピーダンスによるビーム不安定性の垂直方向の最大の成長率を *a*=0 と *a*=1 のモードについてクロマティシティの関数として示す。ここでも、アンジュレータギャップ *g*_u=4mm と6mm の場 合について計算した。



図 2.43 不安定成長率の色収差依存性。*L*=5mの長直線部アンジュレータ(左)及び *L*=1mの短直線部アンジュレータ(右)の抵抗性インピーダンスによるビーム不安定性の垂直方向の最大成長率のクロマティシティ依存性。実線は最低次(*a*=0)のモード、破線は*a*=1のモードの成長率。

図に示すように、垂直方向のクロマティシティをゼロから正に上げることで最低次のモード(a=0)のビーム不安 定性の成長率をある程度下げることができる。ただし、その一方で高次のモード(a=1)が逆に成長してくることが わかる。また、クロマティシティをあげることでダイナミックアパーチャを下げたり、他の不安定性を引き起こしたり する。従って、完全にこの不安定性を抑えるためにはフィードバックキッカーをリングに設置して振動を減衰する ことが必須となる。このフィードバックキッカーの減衰率としては、ビーム不安定性の成長率を考えると10⁴ s⁻¹を上 回るものが必要になる。PFリングでは現在イオン捕獲によるビーム不安定性の安定化のために 10⁴ s⁻¹程度の減 衰率を有するフィードバックキッカー[2.3]を使用しており、改良することで本リングにも十分対応できるシステムが 構築できるものと考えている。世界的にも最近の高輝度光源リングでは、同じような最小ギャップと長さを持つア ンジュレータの設置が考えられていて、ビーム不安定性の成長率に対して同様な対策が施されている。

2.11.4 真空封止アンジュレータ銅シートの厚みについて

小ギャップ真空封止アンジュレータではその磁石列の構造や材質によるウェーク場の発生を防ぐために電気 伝導率の良い銅シートでカバーする。銅シートの内側(磁石側)には磁石にくっつけるためにニッケルの層があ る。銅シートの銅の厚みが十分ではないと、ビームによってニッケルやさらにその内側にあるアンジュレータ磁石 の抵抗性インピーダンスによるウェーク場の発生が起こることになり、ビーム不安定性や発熱が大きくなる可能性 がある。真空封止ではないアンジュレータでも SUS などの真空チェンバー内壁に銅メッキする場合にそのメッキ 厚が薄いと同様の結果になる[2.4]。そこで、銅シート(あるいは銅メッキ)に必要となる厚みについてここで見積も る。直接に2層の金属による縦方向及び横方向の抵抗性インピーダンスを求めて評価する方法[2.5]もあるが、こ こでは簡単に表皮深さ(skin depth)から必要な厚みを見積もることにする。

式 2-3 のロスファクタは、バンチ形状をガウス分布とすると式 2-6 から

$$k_{loss} = \frac{1}{\pi} \int_0^\infty \operatorname{Re}\{Z_\ell(\omega)\} \exp\{-(\sigma_\ell \omega)^2\} d\omega = \frac{1}{\pi} \int_0^\infty \operatorname{Re}\{Z_\ell^{eff}(\omega)\} d\omega$$
(2-16)

と書ける。ここで、式 2-16 の積分内のバンチ形状の効果を含む実効的なインピーダンスは、角周波数がバンチ 長程度にまで上がるとバンチ長の影響で急激減少し始めることになる。リングのバンチ長は 10-50 ps 程度なの で、それに対応する周波数 5-16 GHz がカットオフ周波数になる。従って、それよりも十分に低い周波数に対応 する表皮深さを銅の厚みとすれば式 2-5 をそのまま使うことができる。表皮深さは、

$$\delta(\omega) = \sqrt{\frac{2}{\sigma_c \mu_0 |\omega|}} \tag{2-17}$$

と表される。銅の場合、2μmの表皮深さに対応する周波数が約1GHzなので、10μm以下の厚みでも十分であることがわかる。

次に横方向のインピーダンスによるビーム不安定性について考える。式 2-12 からわかるように、インピーダンスは縦方向とは異なり、今度は低周波数で増大する。式 2-14 の級数項の中で正の最大値を与えるような ω_p^t がビーム不安定性の最大成長率に最も寄与するが、それは ω_p^t が1からベータトロンチューンの小数部 Δv_t を引いた値に周回角周波数 ω_0 を掛けた値 $(1-\Delta v_t)\omega_0$ になる場合に相当する。ベータトロンチューンの小数部 Δv_t を引いた がに、ベータトロンチューンの小数部 Δv_t は 0.1-0.9 になるので、リングの周回周波数 f_0 (約 526kHz)に対して それらに対応する周波数は 53-474 kHz になる。ただし、 $(1-\Delta v_t)f_0$ なので、0.1 が 474 kHz、0.9 が 53 kHz にそれ ジェンジュレータの最小ギャップと比べて無視できるほど小さくはない。最小ギャップを設定する場合に銅シートの厚みも含めて検討すべきであろう。

2.11.5 NEG コーティングの影響

次世代放射光リングではビームパイプのアパーチャが狭くなるために、パイプ内側にNEGコーティングを施し て超高真空を早期に実現することが考えられている。ここでは、NEGコーティングを真空封止アンジュレータの 銅シート(あるいはアンジュレータ用銅メッキ真空チェンバー)に施した場合の発熱やビーム不安定性への影響 を評価した。

発熱に関しては直接に2層の金属による縦方向抵抗性インピーダンスの解析解[2.5]を使って正確に計算した。ここで、銅の厚みは十分厚く、表皮深さ以上あるものとした。図 2.44 に NEG コーティング (厚み d=0, 1, 10 µm の場合)したギャップ 4mm の銅シート (直径 4mm の丸パイプで近似)の単位長さ当りのインピーダンスを計算した結果を示す。破線は式 2-5 で与えられる銅及び NEG パイプの縦方向インピーダンスの近似式(conventional expression)である。ここで、使用される NEG の電気伝導度を 10⁶[Ω^{-1} m⁻¹]と仮定した。このように計算したインピーダンスから、バンチ長 σ =10ps を仮定することで式 2-16 からロスファクタ値を求めて、式 2-9 から発熱量を計算した。図 2.45 に NEG コーティング厚の関数として計算した単位長さ当りの発熱量(パワー)を示す。図からわかるように、NEG コーティング厚 0-10µm に依存して、発熱量は 25-200W と変化する。厚みが 1µm を越えると急に発熱量が大きくなることがわかる。NEG コーティング厚 1µm 以下であれば、コーティングなしと大きな差はなく、NEG の利用が可能であると言える。これは、バンチ長 σ =10ps では式 2-16 からバンチ構造の高周波フィルターによって 1µm 以下の NEG によって生じるインピーダンス成分がほぼ除かれるためである。一方で、NEG の厚みが 10µm 以上では NEG 厚は十分に表皮深さ以上になり、バンチ構造の高周波フィルターの遮断周波数との関係から発熱量は飽和する。以上の結論は、発熱量の絶対値を除けば真空封止アンジュレータとはアパーチャの異なる通常の真空ダクトについても同様に言えることである。

横方向インピーダンスによる多バンチビーム不安定性については、前節 2.11.4と同じように簡単に表皮深さから評価できる。表皮深さが NEG コーティング厚となるような周波数を考えると、NEG コーティング厚 1-10μm では 2.53-253GHz となるので、これは、抵抗性インピーダンスの横方向ビーム不安定性の最大成長率を主に支配する低い周波数帯(リングの周回周波数 0.525MHz 以下)に比べて十分に高い。即ち、NEG コーティング厚 1-10μm では横方向のインピーダンスは無視できて、純粋な銅シートのインピーダンスと同じとみなして成長率を計算して良い。従って、この範囲のコーティング厚であれば、2.11.3 での最大成長率の評価結果を変えるものではないと結論できる。



図 2.44 3つの実線は長さ1m、直径4mmのNEGコーティング(厚さ0,1,10µm)銅パイプの縦方向抵抗性インピーダンス。破線は式 2-5 の近似式から求めた同じ直径を持つ銅及びNEGパイプのインピーダンスである。



図 2.45 直径 4mmの NEG コーティング銅パイプの縦方向抵抗性インピーダンスによる単位長さ当りの発熱量の NEG コーティング厚依存性。

参考文献

- [2.1] A. W. Chao, "Physics of Collective Beam Instabilities in High Energy Accelerators", Wiley, New York 1993.
- [2.2] M. S. Zisman, S. Chattopadhyay and J. J. Bisognano, LBL-21270/UC28, 1986.
- [2.3] R. Takai et al., Proc. of DIPAC2009, Basel, Switzerland, pp.59-61 (2009).
- [2.4] N. Nakamura et al., Proc. of EPAC1998, Stockholm, Sweden, pp.984-986 (1998).
- [2.5] N. Nakamura, Proc. of ERL2009, Ithaca, New York, pp.85-89 (2009).

3 高周波加速システム

3.1 概要

高周波加速システム(RF システム)では、加速空洞内に高周波の加速電圧(RF 電圧)を発生してビームの縦 方向運動の収束を行うと共に、ビームが放射するエネルギーを高周波電力により供給する。システムの基本構 成を図 3.1 に示す。マスターオシレータで発生する基準となる RF 信号をローレベル RF 系(低電力高周波制御 系)に入力し、大電力に増幅する前段階の RF 信号を作る。ローレベル系では、加速電圧を一定に保つフィード バック制御や RF 機器の制御、異常時の保護などが行われる。次に小電力の RF 信号を高周波増幅器で 100 kW レベルまで増幅し、導波管系を通して加速空洞に導き、空洞内に加速電圧を発生させる。高周波増幅器と しては半導体アンプまたはクライストロンを用いる予定である。高周波増幅器と加速空洞の間にはサーキュレー タとダミーロードを配置し、空洞からの反射電力を分離・吸収し、高周波増幅器を保護する。次節で RF システム に必要な機能について述べる。



図 3.1 高周波システムの基本構成。

3.2 高周波システムに必要な機能

KEK 放射光リングの RF システムには、次のような機能や性能が必要である:

1). 放射光を放出して失うエネルギーを電子に供給する。

- 2). 必要な加速電圧を発生する。
- 3). 空洞の高次モード共鳴等によるビーム不安定性を起こさない。
- 4). 加速電圧が十分に安定である。
- 5). 放電や故障による運転中断が少ない。
- 6). AC 電力から RF 電力への変換効率が高い。
- 7).加速空洞が占有する直線部の長さが出来るだけ短い。
- 8). 高調波空洞によりバンチ長を伸ばすことができる(オプション)。

これらについて、1)~8)にて詳しく説明する。

1) 蓄積リングを周回する電子は、偏向電磁石内や挿入光源内で放射光を放出しエネルギーを失う。このエ ネルギー損失を補うことが高周波加速システムの最も大切な役割である。

2) 電子のシンクロトロン振動(縦方向の振動)が安定である為には、放射損失に相当する電圧 U₀/e より加速 電圧を高くする必要がある。十分なビーム寿命を確保するために必要な RF バケットハイトから加速電圧が決定 される。KEK 放射光リングでは現時点で、加速電圧 2 MV でバケットハイト 4.0%を確保する設計(偏向電磁石に よる放射ロスのみを考慮した場合)である。今後の検討により必要な RF 電圧は多少変更される可能性がある。

3) 加速空洞内には多数の共振モードが存在し、そのうちの基本モード(加速モード)を励振してビームの加速を行う。しかし、空洞内には他の高次モード(higher order mode; HOM)も存在する。高次モードの共振周波数が、ビームの縦方向または横方向の振動数と一定の関係になった場合に、高次モードにより多数のバンチが結合した振動が励振される「バンチ結合型不安定性(coupled-bunch instability)」が発生する。不安定性が生ずるとビーム損失やエミッタンス増大が生じるため、これを起こさずに大電流ビームを蓄積できる加速空洞の設計が重要である。また、リング全周での広帯域(ブロードバンド)なビーム結合インピーダンスが高いと、各種の単バンチビーム不安定性が発生し易い。空洞セクションの真空チェンバーについても、ブロードバンド・インピーダンスが小さくなるように設計する必要がある。

4) 加速電圧の振幅や位相が変動すると、ビームのシンクロトロン振動や縦方向 4 極振動が励振されることが あるため、振幅・位相を安定化する必要がある。特にシンクロトロン振動数(約2.4 kHz)およびその2,3,4倍付近 の周波数成分の変動を小さくすることが重要である。

5) 多くの放射光利用者が同時に実験を行う光源加速器では、運転の安定性が重要である。近年の光源加速器は蓄積電流を一定に保つトップアップ運転を行うことが前提となっており、加速用高周波の運転中断(トリップ)による利用実験の中断は、極力避けなければならない。このため加速空洞や高周波源には高い信頼性が求められる。PF リングの実績では、RF システムに起因する運転中断は一年に数回以内に抑えられており、同等以上の信頼性を確保することが目標となる。また、高周波源等の機器が重故障を起こして蓄積リングが長期間運転中断する事態も避けなければならない。その対策として、RF システムを複数の系統で構成し、そのうちの1系統が重故障してもリングを最低限必要な性能で運転できる方策を検討する。

6) RF システムでは、50 Hz で供給される商用電力を高周波電力に変換し利用する。運転時の消費電力を抑えるためには、高周波源での電力変換効率が高いことが望ましい。

7) リングの直線部の中で加速空洞の占有する長さが短いほど、挿入光源を設置できるスペースが増えるため好都合である。一方で、高次モードやブロードバンド・インピーダンスへの対策をしつつ必要な加速電圧を発生する為には、ある程度の占有長さが必要である。空洞に必要な性能を確保しつつ、設置スペースを短くする工夫が求められる。

8) KEK 放射光リングでは自然バンチ長が約3 mm と短いため、a) Touschek 寿命が短い、b) バンチ内散乱 によりビームエミッタンスが増大する、c) 真空封止アンジュレータの内面での発熱密度が大きい、などの課題が ある。加速周波数の数倍(一般的には2,3,4倍)の共振周波数をもつ高調波空洞を利用し、バンチ長を伸ばす ことで上記の問題を緩和することが出来る。そのための高調波 RF システムの設計も課題である。

ここで加速電圧と RF 電力について補足する。一つの電子がリングを一周する間に放射するエネルギーを U₀ [eV]、平均ビーム電流を I₀ [A]とすれば、ビームに供給すべき高周波電力 P_b[W]は、

$$P_b = (U_0 / e)I_0, (3-1)$$

$$U_0 = U_{\text{bend}} + U_{\text{ID}}, \tag{3-2}$$

で与えられる。Ubend, UID はそれぞれ、偏向電磁石内と挿入光源内で放射されるエネルギーである。UID は挿入 光源の磁場や台数によって変化するため、ゼロから想定される最大値までの UID に対して RF システムが対応す る必要がある。空洞内に加速電圧 V_c[V]を発生させると、空洞壁では電気抵抗により

$$P_c = \frac{V_c^2}{R_{sh}},\tag{3-3}$$

の損失電力が発生する。ここで、 $R_{sh}[\Omega]$ は空洞のシャントインピーダンスである。定常状態では、空洞への入力 電力 $P_{in}[W]$ 、壁損失電力 $P_c[W]$ 、ビームに供給される電力 $P_b[W]$ 、空洞からの反射電力 $P_r[W]$ の間に、

$$P_{in} = P_c + P_b + P_r,$$

(3-4)

の関係が成り立つ(エネルギー保存則)。ここで反射電力は、高周波の入力線路から見て空洞系(空洞とビーム)がインピーダンス整合していない場合に発生し、その反射率(*P_r*/*P_{in}*)はビーム電流、空洞共振周波数、入力カップラー結合度に依存する[3.1]。高周波源の最大出力については、上記の *P_{in}*に加えて、伝送線路での損失、フィードバックに必要なマージンを上乗せして仕様を決定する。

3.3 RF 周波数と常伝導・超伝導空洞の選択

RF 周波数の選択に関して考慮すべき点としては、a) その周波数において大電力高周波源が入手できること、b) 加速空洞が適当な大きさに収まること、c) 高次モードの減衰または周波数調整が行い易いこと、d) バン チ長とバンチ当たりの電荷量が加速器にとって都合が良い事、e) 過去に開発された技術や試験設備ができる だけ活用できること、などが挙げられる。世界の放射光リングで用いられているRF 周波数は、表 3.1 に示す通り、 500 MHz 付近、350 MHz 付近、100 MHz 付近に大別される。世界的な拠点である DESY, CERN 等の研究所で 開発された高周波技術が、光源加速器に応用されたなどの経緯から、500 MHz 帯と 350 MHz 帯が最も多く用 いられている。これらに大きな違いはない。一方の 100 MHz 帯では、加速空洞に関して以下の短所がある:I) 空洞外径を小さく収めるために加速ギャップが狭くなり、共振周波数がギャップ寸法にに敏感である、II) 多数 の高次モードが存在するため高次モード対策が難しい。100 MHz 帯の長所としては、バンチ長を長くできる事が あるが、バンチ当たりの電荷も大きくなるため、どの程度のメリットになるかは見極めが必要である。

本蓄積リングでは、PFリング(500.1 MHz)やそれに近い周波数を採用した KEKB(508.6 MHz), Super-KEKB などの、KEK 内で蓄積された高周波技術を最大限活用することができる 500.1 MHz を採用する予定である。この周波数では、加速空洞を開発する際に PF リングの大電力テストベンチを使用でき、開発の期間やコストを節約できる。

リング	RF 周波数 (MHz)
UVSOR	90.115
MAX-IV	99.931
ESRF	352.2
APS	351.93
SOLEIL	352.202
PF	500.1
ALS	499.654
BESSY-II	500
DIAMOND	500
SLS	500
SSRF	499.654
TPS	499.66
NSLS-II	500
Sirius	500
PF-AR	508.57
SPring-8	508.58

表 3.1 主な放射光リングで用いられている RF 周波数。

次に、加速空洞として常伝導空洞、超伝導空洞のどちらを採用すべきかについて検討する。超伝導空洞は 常伝導空洞に比べてより高い加速勾配を実現でき、少ない台数で必要な加速電圧を発生できる。これは空洞セ クション全体での高次モードやブロードバンドなインピーダンスを下げる点でも有利である。また超伝導空洞は R/Q が低く Q 値が高いため、大電流運転時のデチューニング量が小さいことや、バンチギャップにより誘起され る加速電圧の変動が少ないなど、高ビーム負荷時の諸問題に強いメリットもある。これらの長所のため放射光リ ングでは、コーネル放射光源(CESR),カナダ光源(CLS), DIAMOND、上海光源(SSRF)、SOLEIL, NSLS-II等 で用いられている[3.2]。

しかし超伝導空洞にはヘリウム冷凍機設備が必要となり、その運転のためには冷凍機運転員と高圧ガス保安 係員が必要となる。したがって、初期投資および運用コストが大きい。中規模の蓄積リングにおいて必要とされる 超伝導空洞は1 台程度であるが、1 台だけの超伝導空洞が重故障するとリングが長期停止するため、スペアの 空洞が必要である。また、超伝導空洞は極低温と高電界が共存する複雑なシステムのため、放電あるいは原因 不明による運転中断(トリップ)が頻発するものが多い[3.2]。例えば文献[3.2]に記載された 2011 年頃のデータで は、DIAMOND の超伝導 RF システムの MTBF (Mean Time Between Failures)が 140 時間、SSRF が 79 時間で ある。超伝導空洞では、トリップの頻度を減らすために、運転前にエイジングを必要とするケースが多い。

本光源はビームエネルギー3 GeV の中規模な蓄積リングであり、必要な加速電圧は数台の常伝導空洞で発 生できる。この場合数台の加速空洞でビーム負荷を分担し、何れか一台に不具合が起きた時にも残りの空洞で ビーム運転を継続することが可能で、故障に強いシステムになる。また極低温を使わないため、運転や維持が 容易である。後で述べる通り、バンチ結合型不安定性についても常伝導空洞で対応できる見込みが得られてい る。以上の考察から、本光源には常伝導空洞を採用する予定である。

3.4 高周波システムの概念設計

本光源の仕様をもとに検討した高周波システムのパラメータを表 3.2 に示す。後述するように、ここでは加速空 洞として PF 型空洞を 4 台用いることを仮定した。挿入光源としては、各種のアンジュレータを合計 38 台用いて 最大で U_{ID} = 432 keV の放射損失があると仮定した。ただし挿入光源の台数や内訳は今後の検討で多少変更 される可能性がある。表 3.2 より、ビーム電流 500 mA で挿入光源を 38 台使用した場合(ビーム負荷最大の場 合)には、RF 電力は合計約 508 kW 必要である。表 3.2 の右半分には、挿入光源を使わない場合の RF パラメ ータを示す。この場合 RF 電力は合計約 314 kW である。RF 源の最大定格電力を決定する際には、フィードバッ クに必要なマージン(クライストロンの場合で 20-30%)と導波管系での損失(5-10%程度)を上記の RF 電力に加 える必要がある。

4 台の加速空洞を用いた場合に、空洞一台当たりの入力電力(赤色)、反射電力(青色)をビーム電流に対し て示したグラフを図 3.2 に示す。挿入光源の台数は最大(38 台)を仮定した。ビーム電流 500 mA において、空 洞一台当たりの入力電力は約127 kW であり、円筒窓型入力カップラーの実績の範囲内である。入力カップラー の結合度(β_c)は最大ビーム負荷の場合に最適となる3.5 に選び、ビーム電流 500 mA で反射電力がゼロとなる。 ビーム電流がゼロの場合、反射電力は約 16 kW であり、これも十分許容できる。図 3.3 は、挿入光源を使用しな い場合の空洞一台当たりの入力・反射電力を示したものである。カップラーの結合度は同じ 3.5 を仮定した。こ の場合もビーム電流 0~500 mA の範囲で問題なく運転できるパラメータである。

ビーム負荷がある場合、空洞内の RF 電圧(\tilde{V}_c)は、RF 源により誘起される電圧(\tilde{V}_g)とビームが誘起する電圧 (\tilde{V}_b)のベクトル合成、 \tilde{V}_c = \tilde{V}_g + \tilde{V}_b となる(重ね合わせの原理)。最大ビーム負荷の場合について、空洞内に発生 する RF 電圧のベクトル図を図 3.4 に示す。計算法と記号は文献[3.1]に準ずる。図中で ϕ_s , ψ はビームの同期位 相と空洞の最適同調角(表 3.2 参照)を示す。このベクトル図で、 \tilde{V}_g は上半面内(- \tilde{t}_b を示す直線より上の領域)に あるため、静的なロビンソン不安定性を起こさない。最大ビーム負荷の場合、加速電圧を 1.5 MV(バケットハイト 約 2.3%)より下げると静的ロビンソン不安定性を起こす可能性がある。

4 台の加速空洞系(それぞれ独立な RF 源で駆動される)のうちー系統を止め、残りの3 系統でも運転できる。 RF 源の最大電力が上記で仮定したのと同じ 130 kW/cavity の場合、合計加速電圧 1.5 MV、最大ビーム電流 390 mA までの運転が可能である。従って RF 源に重故障等が発生した場合でも、加速電圧とビーム電流を通常 運転時より少し下げれば、残りの3 系統でリングを運転継続することができる。なお、この場合でも静的ロビンソン 不安定性は問題ない。

次の節では、個別の RF 機器についてさらに検討する。

			パラメータ (ID38 台)	一台当たり(空洞4台	ID 無しの パラメータ	一台当たり(空洞4台
	$f_{\rm rf}$	(MHz)	500.074		500.074	建料)
周回周波数	$f_{\rm rev}$	(MHz)	0.525		0.525	
RF 電圧	V _c	(MV)	2.0	0.500	2.0	0.500
電子の放射損失	U_{o}	(MeV/turn)	0.730	0.183	0.298	0.074
偏向電磁石	U_{bend}		0.298		0.298	
挿入光源	U_{ID}		0.432		0.000	
ビーム電流	I _o	(mA)	500		500	
RF 電力	$P_{\rm rf}$	(kW)	508	127	314	78
ビーム負荷電力	P_{b}	(kW)	365.2	91.3	149.2	37.0
壁消費電力	P _c	(kW)	142.9	35.7	142.9	35.7
反射電力	P _r	(kW)	0.0	0.0	21.6	5.5
最適結合度	β_{opt}		3.56	3.56	2.04	2.04
入力カプラの結合度	β _c		3.5	3.5	3.5	3.5
空洞の無負荷Q値	Q_{o}			40000		40000
シャントインピーダンス	R _{sh}	(MΩ)		7.0	7	7.0
シンクロトロン振動数	$f_{\rm s}$	(kHz)	2.38		2.46	
同期位相	Øs	(deg.)	68.6	68.6	81.5	81.4
最適同調角	Ψ	(deg.)		55.4		57.0
空洞デチューニング量	δf	(kHz)		-40.7		-43.3

表 3.2 高周波システムのパラメータ



図 3.2 空洞1台当たりの入力電力と反射電力の蓄積電流依存性。入力電力を赤色で、反射電力を青色で示す。放射損失 730 keV/turn(挿入光源 38 台)の場合。



図 3.3 空洞1台当たりの入力電力と反射電力の蓄積電流依存性。入力電力を赤色で、反射電力を青色で示す。放射損失 298 keV/turn(挿入光源なし)の場合。



図 3.4 空洞内 RF 電圧のベクトル図。放射損失 730 keV/turn、ビーム電流 500 mA の場合。

3.5 加速空洞

3.2 で述べたように加速空洞には、加速電圧の発生と電子ビームへの RF 電力の供給を長期間安定に行い、 かつ高次モードによるビーム不安定性を起こさないことが求められる。これらの要求を満たす空洞としては様々 な候補が考えられるが、高次モード対策の違いにより、それらは次のような方式に分類される:1) 高次モードの Q 値は高いままで、その共振周波数を調整することによりバンチ結合型不安定性を避ける方法[3.3]、2) 空洞に 高次モードカップラーという一種のアンテナを付けることにより幾つかの高次モードを減衰させる方法[3.4, 3.5]、 3) 空洞に高次モード引き出し用の導波管を付けることにより高次モードの Q 値を強力に減衰させる方法 [3.6-10]。これらのうち 3)の方式は減衰空洞(damped cavity)と呼ばれ、高次モード対策としては最も強力であ る。その反面、高次モード引き出し用導波管の内部に浸みだした加速用高周波によりマルチパクタ放電を起こ すなどの現象があり得るため、放射光リングで要求される超低トリップレート(トリップが年数回以下)が達成でき るかは、慎重な調査が必要である。また減衰空洞には高次モード引き出し用導波管等が付属するため、一般に 空洞セクションに長いスペースが必要である。最近提案されている TM020 モードを加速に利用する減衰空洞 [3.10]は、コンパクトかつ比較的シンプルな方法で高次モードを減衰できるため非常に魅力的な提案であるが、 まだ開発途上であることに注意が必要である。

PFリングで現在使用している加速空洞[3.11, 3.12]は、上記の 1)と3)とを折衷した方式である。ビームパイプの 内径を直径 140 mm まで太くすることにより、周波数の高い高次モードをビームパイプ側に引き出し、吸収体で 減衰させる。一方、周波数の低い幾つかの高次モードは空洞内に残されるが、それらの共振周波数を2 個の固 定チューナーを用いて精密に調整しておき、バンチ結合型不安定性を起こさないようにする。空洞本体に複雑 な構造を持たないため局所的に電場や発熱が集中することがなく、長期間にわたりトリップなしで安定に加速電 圧を発生できる。高次モードの周波数調整に微妙な技術が要求される短所があるが、長期安定性には大きな魅 力がある。国内ではニュースバル[3.13]、佐賀ライトソース[3.14]、愛知シンクロトロン[3.15]の 3 つの施設で PF と ほぼ同型の空洞(PF 型空洞)が安定に運用されており、国外ではオーストラリア放射光源において PF 型空洞に (高次モードカップラーを追加するなどの)改良を施した空洞[3.16]が使用されている。

本蓄積リング用の加速空洞については、様々な方式について比較・検討を行っている段階であり、まだ一つの方式に決定していない。これらの候補の中で、安定性に実績がある PF 型空洞を使用できるかについてまず検討を行った。

初めに PF 型空洞の設置スペースを検討する。本光源ではラティスの各セルに約6mの長直線部と約1mの 短直線部が存在する。このうち、6m直線部を2箇所利用し、各々に2台ずつの PF 型空洞を設置することを検 討する。図 3.5 に配置例を示す。空洞は各直線部で約3.2mずつの長さを占有し、残りのスペースには挿入光 源を設置できる。各空洞セクションには2台の加速空洞と高次モード減衰用ダクト(SiC ダクト)を配置し、両端を テーパー管で直径24mmのビームパイプと滑らかに接続する。空洞のビームポート(内径140 mm)の遮断周波 数は、空洞のモノポールモードと結合するTM01モードで1.63 GHz、空洞のダイポールモードと結合するTE11 モードで1.25 GHzである。これらの周波数より高い共振周波数を持つ高次モードはビームパイプに引き出され、 マイクロ波吸収体(SiC ダクト)で吸収される。現在の PF リングでは、各空洞の両端にテーパー管を設置し、高次 モードを空洞間で独立にしている。しかし図3.5の配置では空洞間のテーパー管を省いたため、遮断周波数以 上の高次モードは互いに結合する。その場合に、全ての高次モードを十分に減衰できるか今後確認が必要で ある。空洞セクションの広帯域インピーダンス、排気系の排気容量や空洞に対するコンダクタンスなども今後の 検討課題である。





3.6 高次モードによるバンチ結合型不安定性

蓄積リングを周回する多数のバンチは、縦方向にはシンクロトロン振動、横方向にはベータトロン振動をする 可能性がある。これらの振動数と、空洞の高次モードの共振周波数および結合インピーダンスが一定の条件を 満たすと、高次モードにより多数のバンチの連成振動が引き起こされるバンチ結合型不安定性(coupled-bunch instability; CBI)が発生することがある。バンチ結合型不安定性の原因には、空洞の高次モードの他、ビームダ クトの段差で発生する共振モードやビームダクトの抵抗性インピーダンス(resistive wall impedance)などがあり、 リング全体での対策が重要である。

蓄積リングには、ハーモニック数(h)だけの RF バケットが存在する。このうちの等間隔な M 個のバケットに電 子バンチが入る場合を考える。(イオン捕獲対策として 10%程度の空バケットを導入した場合でも、全バケットに バンチが入った場合と大きな差はない)。電子のバンチを点電荷で近似すれば、縦方向のバンチ結合型不安定 性の成長率(growth rate)は次式で与えられる[3.17-19]:

$$\tau_{g}^{-1} = \frac{e\alpha I_{0}}{4\pi E v_{s}} \left\{ \sum_{n=0}^{\infty} \omega_{\mu,n}^{+} \operatorname{Re}[Z(\omega_{\mu,n}^{+})] - \sum_{n=1}^{\infty} \omega_{\mu,n}^{-} \operatorname{Re}[Z(\omega_{\mu,n}^{-})] \right\},$$
(3-5)
$$\omega_{\mu,n}^{\pm} = \left\{ nM \pm (\mu + v_{s}) \right\} \omega_{0}$$
(3-6)

ここで n はゼロまたは正の整数、μはバンチ結合振動のモード数(0,1,..., M-1の整数)、Loはビーム電流、αはモ ーメンタムコンパクションファクター、Eはビームエネルギー、v。はシンクロトロンチューン、anは電子ビームの周回 角周波数を示す。Z(ω)は縦方向結合インピーダンスであり、一つの高次モードからの寄与は次式で表される:

(3-6)

$$Z(\omega) = \frac{R}{1 + iQ_L \left(\frac{\omega_a}{\omega} - \frac{\omega}{\omega_a}\right)}.$$
(3-7)

ここでのはその高次モードの共振角周波数、OLは負荷 Q 値、R は縦方向結合インピーダンス(=Rsh/2)である。 複数の高次モードがある場合、結合インピーダンスはそれらの寄与の和となる。式 3-5 より、ビーム軸上に縦方 向電場がある高次モード(モノポールモード)の共振角周波数が、

(3-8) $\omega_a \approx \{nM + (\mu + v_s)\}\omega_b$

の関係を満たす場合に縦方向不安定性が起こり易く、式 3-5 で与えられる成長率がバンチの縦方向振動の減 衰率を超えるとバンチ結合振動が成長する。したがって不安定性対策としては、高次モードの共振周波数を式 3-8 の条件(一種の共鳴条件)から離すように調整するか、またはその負荷 Q 値を下げて式 3-7 における結合イ ンピーダンス $R(=(R_{sh}/Q)\cdot Q_{L}/2)$ を下げるか、どちらかの方法が有効である。

横方向(水平または垂直方向)のバンチ結合型不安定性の成長率は、次式で与えられる[3.17-19]:

$$\tau_{g}^{-1} = \frac{eI_{0}\omega_{0}\beta_{x,y}}{4\pi E} \left\{ \sum_{n=1}^{\infty} \operatorname{Re}[Z_{T}(\omega_{\mu,n}^{-})] - \sum_{n=0}^{\infty} \operatorname{Re}[Z_{T}(\omega_{\mu,n}^{+})] \right\}^{\prime}$$
(3-9)
$$\omega_{\mu,n}^{\pm} = \left\{ nM \pm (\mu + \delta v_{x,y}) \right\} \omega_{0}^{\prime}$$
(3-10)

ここで $\beta_{x,y}$ は空洞の場所でのベータトロン関数(水平または垂直方向)、 $\delta_{V_{x,y}}$ はベータトロンチューンの小数部 (水平または垂直方向)、 $Z_{T}(\omega)$ は横方向結合インピーダンスであり、一つの高次モードの寄与は次式で表される:

$$Z_T(\omega) = \frac{R_T\left(\frac{\omega_a}{\omega}\right)}{1 + iQ_L\left(\frac{\omega_a}{\omega} - \frac{\omega}{\omega_a}\right)}$$
(3-11)

ここで R_T はその高次モードの横方向結合インピーダンスである。横方向バンチ結合型不安定性は、高次モードの共振周波数が、

 $\omega_a \approx \left\{ nM - (\mu + \delta v_{x,y}) \right\} \omega_0^{\prime}$ (3-12)

の関係の時に起こりやすく、その成長率がバンチの横方向振動の減衰率を超えると不安定性が起こる。対策としては、バンチを横方向にキックする高次モード(ダイポールモード)の共振周波数を式 3-12 の条件からずらすか、または高次モードの負荷 Q 値を下げて横方向インピーダンス R_Tを下げる方法が有効である。

上記の式をもとに、本蓄積リングに PF 型空洞4台を設置した場合の、高次モードに起因するバンチ結合型不 安定性の発生について検討する。前節で述べたように、PF 型空洞における高次モード対策は、1) ビームパイ プの遮断周波数より高い周波数の高次モードを SiC ダクトで減衰し、2) 空洞内にトラップされる高次モードの共 振周波数を固定チューナーで調整する(周波数シフト法)、の二つである。まず初めに、後者のトラップされるモ ードについて、論文発表されているデータをもとに不安定性の検討を行う。

表 3.3 に検討に用いた高次モードの特性とチューナー位置に対する周波数依存性を示す[3.12, 3.14]。このうち周波数,Q値,チューナー依存性は実際にPFにインストールされた加速空洞で測定されたものであり、R/Qおよび R_T/Q は数値解析計算により得られたものである。表 3.3 に示した高次モードのうち、上の3つは縦方向、次の3つは水平方向、残りの3つは垂直方向の不安定性を起こし得る。ここで4台の空洞性能は同じだと仮定した。

高次モード	共振周波数 [MHz]	QL	$\begin{array}{l} R/Q \left[\Omega \right] \ddagger \hbar \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \$	チューナー1 依存性 [kHz/mm]	チューナー2 依存性 [kHz/mm]
TM011	794.0	35900	52 Ω	39.6	39.6
TM012	1312.0	8500	9.2 Ω	35.6	0
TM021	1373.0	26800	9 Ω	23.8	39.6
TE111H	703.0	40000	6.5 Ω/m	31.7	138
TM110H	793.0	43600	255 Ω/m	0	-79
TM111H	989.0	22000	415 Ω/m	59.4	148
TE111V	706.0	10300	6.5 Ω/m	0	-106.9
TM110V	789.0	9000	255 Ω/m	0	71
TM111V	991.0	23200	415 Ω/m	7.9	-95

表 3.3 PF 型空洞内にトラップされる高次モード。モード名の最後の H または V は水平および垂直方向にビー ムを偏向するモードを示す。チューナー1,2 はそれぞれ水平方向、垂直方向の固定チューナーを示す。

表 3.3 に示した各高次モードの共振周波数は、そのままでは式 3-8, 3-12 の条件に近く、ビーム不安定性を引き起こすものがある。実際に空洞をインストールする際には、水平方向と垂直方向に取り付ける固定チューナーの突き出し量を調整し、全ての高次モード周波数が式 3-8, 3-12 の条件から外れることを目標に、共振周波数の 調整を行う。ただし高次モードが多数あるのに対し、調整の自由度は2つしかない。この周波数調整を計算上で 模擬した。具体的には、表 3.3 に示した各高次モード周波数のチューナー依存性を用いて、TM012 を除く全て の高次モードがバンチ結合型不安定性を起こす周波数から出来るだけ離れるような、最適な固定チューナー1, 2 の位置(突き出し長さ)を決定した(TM012 については次パラグラフに詳細を参照)。それらの高次モード周波 数を用いて、縦・水平・垂直の各方向のバンチ結合型不安定性の成長率を求めた。計算結果を図 3.6、図 3.7、 図 3.8 に赤色の線で示す。図の横軸はバンチ結合振動のモード数 μ であり、縦軸は振動の成長率である。ビー ム電流は 500 mA を仮定した。図の中で青色の横線は放射減衰による減衰率を示す。図 3.7、図 3.8 より、 TM111H,V 及び TM110V については成長率が放射減衰率とほぼ同等であることがわかる。従ってこれらの高次 モードについては注意が必要であるが、計算モデルは電子ビームを点電荷として仮定していること、実際の電 子ビームには拡がりが存在することなどを考慮すると実運転ではなんとか抑えられる状況であると考えられる。一 方縦方向振動については図 3.6 より、ビーム電流 500 mA では一つの高次モード(TM012 モード)が引き起こす 不安定性の成長率が放射減衰率の約 1.5 倍程度となり、縦方向不安定性が発生することが予想される。

図 3.9 に、TM012モードによる結合インピーダンスの実部(赤色)と、縦方向不安定性を引き起こす周波数(縦の線)の関係を示す。縦方向不安定性を引き起こす周波数は周回周波数(約 525 kHz)の間隔で存在するので、TM012モードの共振周波数をその真ん中に来るように(理想的に)調整されたと仮定する。その場合でも、このモードのQ値が8500と中途半端に低いため、不安定性を起こす周波数において結合インピーダンスが高い事がわかる。参考までに PF リングの場合には、周回周波数が高いために、不安定性を起こす周波数において結合インピーダンスが高いため、たちにしてレーダンスは約1/8.5 になっていることがわかる。この高次モードへの対策としては、高次モードカップラーを取り付けてQ値を十分下げるか、または何らかの方法でQ値を上げて、インピーダンスの裾が不安定性を起こす周波数にかからないようにすることが考えられる。また、上記のモードに有効なHOM チューナーを取り付け、空洞毎に高次モード周波数をずらす方法も有効である。



図 3.6 縦方向のバンチ結合振動の成長率の計算結果。横軸:バンチ結合振動のモード数、縦軸:成長率。空 洞内にトラップされるモード(赤色)とトラップされないモード(青色)の寄与を分けて示す。固定チューナー1,2 の 位置により、空洞内にトラップされるモードの周波数を最適値に調整したと仮定。ビーム電流 500 mA。



図 3.7 水平方向振動のバンチ結合振動の成長率。横軸:バンチ結合振動のモード数、縦軸:成長率。空洞内 にトラップされるモード(赤色)とトラップされないモード(青色)の寄与を分けて示す。固定チューナー1,2 の位置 により、空洞内にトラップされるモードの周波数を最適値に調整したと仮定。ビーム電流 500 mA。



図 3.8 垂直方向のバンチ結合振動の成長率。横軸:バンチ結合振動のモード数、縦軸:成長率。空洞内にトラ ップされるモード(赤色)とトラップされないモード(青色)の寄与を分けて示す。固定チューナー1,2 の位置によ り、空洞内にトラップされるモードの周波数を最適値に調整したと仮定。ビーム電流 500 mA。



図 3.9 TM012 モードのインピーダンスと周波数。TM012 モードの結合インピーダンスの実部(赤線)と縦方向不 安定性を引き起こす周波数(縦の黒線)との関係。不安定性を引き起こす周波数は、本光源の場合と、PF リング の場合の両方を示す。

次に空洞ビームポートの遮断周波数以上の高次モードについて、それらによる不安定性の成長率を評価する。検討に用いた高次モードの特性は文献[3.11]を参照した。また、水平方向と垂直方向の高次モード特性は同様であると仮定した。縦方向及び水平・垂直方向について、トラップされない高次モードによる成長率の計算結果を図 3.6、図 3.7、図 3.8 に示す(青色の線)。不安定性の成長率は、これら(赤色と青色で示した寄与)の合計になる。

各計算結果より、バンチ結合型振動の成長率は空洞内にトラップされる高次モードの効果が支配的である が、幾つかのモードにおいては減衰率の30%程度に迫っている。ただし、KEK放射光リングのパラメータの場合 は幸運なことに、空洞にトラップされるモードとトラップされないモードで成長率の大きくなるCBIモード数(µ)が異 なっている。このため、先述した TM012 モードによる縦方向バンチ結合振動が最も考慮すべき課題といえる。

ただし上記の計算で用いたのは、空洞間にテーパー管を設置して、高次モードが空洞間で結合しないように した場合の高次モード特性である。図 3.5 に示した空洞配置では、2 台の空洞間で高次モードが結合するため、 その場合の高次モード特性(R/Q,Q 値)を計算し、それらを用いた不安定性の再評価が今後必要である。

以上をまとめると、PF 型空洞4台を本光源に設置し、固定チューナー2個の自由度で高次モード周波数を最 適に調整した場合、縦方向の一つの高次モードを除き、バンチ結合型不安定性を避けることが出来ると予想さ れる。残り一つの高次モード(TM012モード)については、高次モードカップラーや HOM チューナーなどによる 対策が必要である。また、空洞の製作誤差などにより、高次モード周波数の初期値が表 3.3 の値からずれた場 合には、固定チューナー2 個では高次モード周波数の調整が十分出来ないケースも考えられる。従って、周波 数調整の自由度を増やすことが望ましい。この為にも、固定チューナーと内径や位置が異なる HOM チューナ ーを追加する事が望ましい(新たなポートが必要なため、空洞を新規製造する場合のみ可能)。また、2 台の空 洞を太いビームパイプで連結した場合、カットオフ以上の高次モードの減衰についても確認が必要である。

空洞での対策とは別に、高速フィードバックシステムがあれば、バンチ結合型不安定性をフィードバックにより 抑制する事も可能である。ただしこれはあくまで補助的な手段として考えるべきである。

上記のように、幾つかの改良を加えれば、PF 型空洞はビーム不安定性の観点からも使用できる可能性がある。ただし HOM 周波数の調整等に労力を要する事と、不安定性のしきい値に余裕が無い事が短所である。今後は、他の方式の damped cavity(他の加速器で使われているものや新規設計するもの)も検討し、加速電場の長期安定性と高次モード性能の両方の観点から、最も良い空洞を選択したい。

3.7 ローレベル RF 系

ローレベル RF 系(低電力高周波制御系)の主な役割は、ビーム負荷や水温等の条件が変化した場合に空洞の共振周波数をチューナーにより調整し、また加速電圧(位相と振幅)を安定に保つ事である。このため、空洞や導波管系からモニター用の RF 信号を取り出し、フィードバック制御を行う。また、高周波機器の運転状態監視と異常発生時のインターロック処理もローレベル系の重要な役割の一つである。機器異常時には、高周波スイッチを高速遮断し、高周波システムを保護する。

ローレベル系で用いる RF フィードバックループでは、従来、アナログ回路による振幅・位相差の検出とフィードバック制御が行われてきた。しかしアナログ回路には回路素子のばらつきや回路基板まわりの浮遊インピーダンス等があるため、フィードバックゲインや時間遅れを理想的に制御することが困難であった。一方、近年急速に発達した高性能なデジタル回路を用いると、アナログ信号を 16 ビット以上の高精度かつ数十 MHz 以上のサンプリング周波数で取り込む事ができ、そのデータをデジタル処理デバイス(FPGA)で高速に演算して、フィードバック信号を求めることができる。このようなデジタル・ローレベルシステムでは、一旦デジタル化された信号は、設計通りに信号処理されるため、フィードバックの調整を最適化することが容易である。KEK においては、コンパクト ERL[3.20]、Super-KEKB[3.21]などでデジタル・ローレベル系が開発されており、加速電圧の安定度として振幅で 0.1%以下、位相で 0.1度以下が達成されている[3.20]。本光源においては、これらのデジタル・ローレベル系と同様なローレベル系を構築することを検討する。また、大電力高周波源等の様々な機器の制御は、Programmable Logic Controller (PLC)を用い、上位の EPICS システムから制御される。

3.8 大電力高周波源

大電力高周波源(RF 源)はローレベル RF 系から入力される高周波信号を増幅し、加速空洞を駆動するのに 必要な大電力の高周波を発生する。表 3.2 で検討したように、本光源では合計 508 kW の RF 電力が必要であ る。それぞれの加速空洞毎に高周波源を設置する場合、1 台あたりの RF 電力は 127 kW である。

大電力高周波源に求められる性能は、1) 必要な RF 電力を発生できること、2) 出力 RF の振幅と位相の安定 度が良いこと、3) 出力 RF の信号純度が良いこと、特に高調波やサイドバンドが少ないこと、4) 商用電力から高 周波電力への変換効率が高いこと、5) 故障頻度が少ないこと、また故障時に早期復旧が可能なこと、6) 振動 などの光源性能に与える影響が少ないこと、7) 維持管理が容易なこと、8) 機器の立ち上げ時間が短いこと、な どが挙げられる。

数百 MHz 帯で出力 100kW 以上の RF 源には、従来クライストロンが主に用いられてきた。周波数 500 MHz においては、出力電力 180 kW のクライストロン製品があり、問題なく RF 電力を供給できる。しかし、クライストロンは直流高圧電源により電力が供給されるため、高圧電源に関連した幾つかの問題がある。一つは、高電圧部品の劣化や耐圧不良等による重故障が低頻度ではあるが発生することである。重故障の発生箇所によっては、電源を長期停止せざるを得ない場合もある。また、直流高電圧には電圧変動やリップルが大きく、これが出力 RF の変動を引き起こすため、ローレベル系でのフィードバックが必須である。さらに、高圧電源では大量の高圧絶縁油を用いる事があり防火上好ましくない事、大きな振動や騒音を発生する事が多いなどの短所もある。

近年、高周波増幅用の半導体素子が飛躍的に進歩しており、従来クライストロンなどの電子管が用いられてき た用途で、半導体アンプが用いられる傾向にある[3.22, 3.23]。例えば放射光リング SOLEIL では、周波数 352 MHz、出力 190 kW/1 台の半導体アンプを RF 源として用いている[3.22]。半導体アンプでは、低電圧の電源に より電力が供給されるため電源電圧の安定化が容易で、出力 RF における電源由来の変動やリップルが少な い。また、小電力アンプの出力を多数合成して用いるため、1 台のアンプユニットが故障しても運転を継続でき る。省スペースでメンテナンスが容易という特徴もある。電子管技術が成熟しているのに対し、高周波半導体技 術はまだ発展の余地が大きい。

電力効率に関しては現時点で商用製品として入手できる 500MHz の半導体アンプの場合、直流高圧電源の 損失を含んだ値で 50%程度が期待される[3.24]。また、352MHz であるが SOELIL ではフィードバックをかけて 安定化する場合(フィードバック・マージンが必要)においても約 48~58%程度の効率が実現できている[3.24]。 一方、クライストロンでの(RF 電力)/(直流電力)の効率は、飽和状態で 60~70%、フィードバック・マージンを含 めて 50%程度である。これに直流高圧電源での損失を 5~10%と見込むと、電力効率は 45%程度となる。現時 点での電力効率を比較しても、半導体アンプはクライストロンと同等の電力効率を有していると考えられる。

また、半導体アンプは各アンプユニットがサーキュレータとダミーロードを内蔵しており、実運転でも大電力用 サーキュレータ及びダミーロードを用いずに済むというメリットがある。SOLEIL では 2007 年の運転開始以降、大 電力用サーキュレータ及びダミーロード無しで運用してきたという実績がある。表 3.4 に半導体アンプとクライスト ロンとの定性的な比較をまとめる。

本光源の RF 源としては、今後の技術進歩も見込み、半導体アンプを用いるのが第一の選択肢である。ただし、クライストロンと高圧電源の組み合わせを用いる事もあり得る。その場合には、高圧電源は以下の点に注意して設計すべきである:1)維持管理や防火上問題のある大量の高圧絶縁油を使わないこと、2)振動・騒音が少ないこと、3)シンクロトロン周波数約 2.4 kHz およびその 2,3,4 倍の周波数におけるリップルが少ないこと、4) + 分な絶縁距離、コロナ放電対策、信頼できる部品選定等を通じて全体の信頼性が高いこと。

比較項目	半導体アンプ	クライストロンと 高圧電源
500.1 MHz,約130 kWのRF電	s 1	
力を発生可能か?	可能	可能
出力 RF の振幅・位相の安定度	高い	電源高電圧の変動やリップルの 影響により低い
出力 RF の信号純度	特に問題なし	特に問題なし
電力変換効率: (RF 電力)/(商用電力)	ユニット単体:50-60% フィードバック運転時: 48%程 度	飽和時: 50-60% フィードバック運転時: 45%程度
故障頻度、故障復旧の早さ	多数の小型アンプを並列で使 用するため、部分的な故障の 場合には運転継続が可能	高電圧機器のため、低頻度で 重故障がある。重故障の場合、 早期復旧が困難な場合もあり
振動、騒音	比較的小さい	変圧整流器により大きな振動・ 騒音が発生する事がある
維持管理の容易さ	比較的容易	高圧電源において維持作業が 多い。 大量の高圧絶縁油を用いる場 合には防火上の問題もあり
装置の立ち上げ時間	10 分以内	クライストロン用ヒーターのウオ ームアップに約1時間必要

表 3.4 半導体アンプとクライストロンの定性的な比較

3.9 高調波空洞

本光源では高調波空洞を導入して加速周波数の高次周波数のRF電圧を重畳し、電子のバンチ長を数倍程度に伸ばすことを計画している。バンチ長を伸ばすことで、1) バンチ内散乱 (intrabeam scattering) によるエミッタンス増大を減らす、2) Touschek 寿命を伸ばす、3) 真空封止アンジュレータの内面に流れる壁電流による発熱を減らす、などの効果が期待される。また、ビームのシンクロトロン振動数の広がりが発生するため、縦方向コヒーレント振動の減衰効果もある程度期待できる。

高調波 RF の次数(加速 RF 周波数との比)は 2, 3, 4 倍などが可能であり、まずどの次数が適当かを検討する。加速電圧(基本波)の n 次の高調波電圧を与えた場合、シンクロトロン振動の位相 øを持つ電子が受ける RF 電圧は、

$$V(\phi) = V_c \left\{ \cos\left(\phi + \phi_s\right) + k \cos(n\phi + \phi_n) \right\},$$
(3-13)

で与えられる。ここで V。は基本波の RF 電圧、k は高調波電圧の基本波電圧に対する比、 ø, ø, はそれぞれ基本 波と高調波に対する電子の同期位相である。この時、 RF ポテンシャルは、

$$\Psi(\phi) = \frac{1}{V_c} \int_0^{\phi} \left[V(\phi) - \frac{U_0}{e} \right] d\phi'$$
(3-14)

で与えられる。ここで U₀は放射損失、eは素電荷である。ビームの運動量分布が rms 広がり σ_p/pを持つガウス分布である場合、電子の縦方向の分布は、

$$i(\phi) \propto \exp\left\{\frac{-eV_c\Psi(\phi)}{2\pi\hbar\eta\beta^2 E_0(\sigma_p/p)^2}\right\},\tag{3-15}$$

で与えられる[3.25]。ここで h, η , β , E_0 はそれぞれハーモニクス数, スリッページファクター($\approx \alpha$), 相対論的速度 (ν/c), 電子エネルギーを表す。

バンチ伸長の最適条件は、式 3-13 において ϕ に関する一階微分と二階微分を $\phi=0$ でゼロ($dV/d\phi|_o = d^2V/d\phi^2|_o$ =0)とすることで求められる[3.25]。前者は $\phi=0$ でバンチが伸長される条件、後者は $\phi=0$ に安定点が存在する条件 である。前者のみを満たし後者を満たさない場合、 $\phi=0$ 以外に位相安定点ができ、バンチ伸長位相とバンチ重 心位相が異なってしまう。

上記の条件をもとに、基本波の 2 次、3 次、4 次を用いた場合の最適条件及び期待されるバンチ伸長効果を 計算した結果を表 3.5 に示す。参考として、表の下部には高調波空洞にコンパクト ERL 用 1.3 GHz バンチャー 空洞 [3.26]と相似な形状を仮定した場合のパラメータも示す。空洞パラメータは $R_{sh}/Q=233$ Ω, $Q_0 = 22900 \times \sqrt{1.3 / f[GHz]}$ (無負荷 Q)である。空洞台数は、1 台当たりの加速電圧が無理のないように選ん だ。また、入力カップラーの結合度は蓄積電流値 500mA で外部 RF 源の供給を必要としない値(最適結合度) を仮定した。また電子の放射損失によるエネルギー損失は 730 keV/turn 、基本波の RF 電圧は 2 MV とした。

表 3.5 2~4 次の高調波空洞を用いた場合のパラメータ。バンチ伸長率は、自然バンチ長に対して高調波空洞 導入時のバンチの伸び率を示す。

次数		2	3	4	
高調波電圧比	k	0.454	0.307	0.232	
基本波同期位相	$\phi_{ m s}$	60.9 度	65.8 度	67.1 度	
高調波同期位相	$\phi_{\rm n}$	-105.6 度	-98.54 度	-96.0 度	
バンチ伸長率		7.9 倍	6.0 倍	5.2 倍	
基本波のみの場合に対するバケット面積比		72.8 %	84.1 %	91.0 %	
以下は高調波空洞のパラメータに依存					
高調波空洞数	$N_{ m hc}$	3 台	4 台	5 台	
入力カップラーの結合度	$eta_{ m hc}$	1.6913	1.3967	1.4377	
高調波空洞(全数)での壁損失	$P_{c,\mathrm{hc}}$	45.3 kW	19.0 kW	10.0 kW	
高調波空洞でのビーム負荷電力 ¹⁾ @500mA	$P_{\mathrm{b,hc}}$	-121.9 kW	-45.6 kW	-24.3 kW	
高調波空洞からの合計反射電力 @500 mA	$P_{\rm r,hc}$	76.62 kW	26.6 kW	14.3 kW	
入力高調波電力(合計)@0mA	$P_{\rm g,hc}$	48.5 kW	19.6 kW	10.3 kW	
入力高調波電力(合計)@ 500mA	$P_{\rm g,hc}$	0 W	0 W	0 W	
高調波空洞デチューニング量@500mA	$\delta f_{ m hc}$	0.185 MHz	0.562 MHz	1.250 MHz	

1) 負号はビームから高調波の電力が供給されることを示す。その電力は基本波 RF システムへの負荷となる。

表 3.5 より、高調波の次数が高いほど、1)バンチの伸び率が小さい、2) バケット面積の減少が少ない、3) 基本波 RFシステムへの負荷電力(ビームが高調波空洞内で発生する電力)が小さい、という事がわかる。2次の高調波空洞があまり使用されない理由は、バケット面積の減少と基本波 RF への負荷が大きいためと思われる。3 次と4 次の場合を比べると、バンチ伸長率については 3 次の方が若干優れている。次数が上がるほど加速空洞の寸法が小さくなり、周波数チューナーや入力カップラー等の設計が難しくなると予想される。3 次高調波(周波数 1.5 GHz)の場合、KEK コンパクト ERL で開発実績のある 1.3 GHz バンチャー空洞の周波数に近いため、バンチャー空洞向けに開発された周波数チューナーや入力カップラーの設計を若干変更するだけで開発可能である。また、RF 源や導波管系についても 1.3 GHz 向け製品の変更で対応可能である。これらのメリットにより、3 次高調波空洞を採用する予定である。

表 3.5 に示したパラメータでは、ビーム電流 500 mA における高調波空洞のデチューニング量が大きすぎ、高 調波空洞の加速モードのインピーダンスが引き起こすバンチ結合型不安定性が発生する恐れがある。デチュー ニング量を小さくできる高調波空洞を検討する必要がある。

3 次の高調波空洞を用いた場合の RF 電圧、電子ビーム分布、セパラトリックスの例を図 3.10 に示す。横軸は いずれも基本波の高周波位相である。図 3.10 上段の RF 電圧で、青色が基本波の電圧、緑色が高調波空洞に よる電圧、赤色が合成された電圧を示す。図では位相ゼロの位置(基本波の同期位相に対応する)で合成電圧 の勾配がゼロとなっており、バンチを伸ばす効果が生ずる。図 3.10 中段は、基本波のみの場合(青色)と高調波 空洞を用いる場合(赤色)の電子ビーム分布を示す。高調波空洞ありでは、電子ビームのピーク電流が約5分の 1 に下がり、rms バンチ長が 3.0 mm から 18.0 mm と約 6.0 倍に伸びることがわかる。図 3.10 下段は、基本波の みの場合(青色)と高調波空洞を用いる場合(赤色)のセパラトリックスを示す。高調波空洞を用いるとセパラトリク スの形が歪み、面積として基本波のみの場合の 84%まで収縮する。ただし今の場合には、最大の運動量アクセ プタンスには変化がない。

ここで、ビームが誘起する RF 電圧を使用するパッシブ方式の高調波空洞と、RF 源で駆動されるアクティブ方式とを比較する。多くの光源加速器では、パッシブ方式の高調波空洞を使用中[3.27, 3.28]または使用予定 [3.29]である。パッシブ方式の場合、高周波源が不要になるというコスト面の利点がある。しかしパッシブ方式では高調波位相角,高調波同調角,電圧 k に従属関係が生じるため、これらの量を独立に制御できなくなる。さらに、式 3.13の一階、二階微分で与えられる最適条件にも制限が加わる。

パッシブ方式ではビーム電流や放射損失 Uo が変化した場合にも、最適な運転条件には設定できない。高調 波空洞を最適条件から少し外れた条件で運転する場合、バンチ伸長率は極端に低下する恐れがある。一方、 RF 源でドライブされるアクティブ方式の場合、蓄積電流値がほとんど無い状態においても高調波空洞を最適に 近い状態に保つことが可能となる。また、空洞本体や入力カプラを最適に設計することで、定常運転時の入力 RF 電力をほぼゼロに抑えることも可能となる。調整の自由度と電圧安定度は、アクティブ方式の方が優れてい る。さらに、RF 源や導波管系についても、コンパクト ERL で開発された周波数 1.3 GHz(CW)向け製品の設計を 若干変更することで対応可能であり、開発に問題はない。これらの理由により、アクティブ方式を検討中である。


図 3.10 3 次の高調波空洞の効果。3 次の高調波空洞を用いた場合の(上から)RF 電圧、電子ビーム分布、セ パラトリックスの例。表 3.5 に示したパラメータを使用。横軸は基本波の位相。上段:基本波(青色)、高調波(緑 色)、基本波と高調波の合成(赤色)の RF 電圧。中段:基本波のみの場合(青色)と高調波を重畳した場合(赤 色)の電子の縦方向分布。下段:基本波のみ(青色)と高調波を重畳した場合(赤色)のセパラトリックス。

基本波空洞と同様に高調波空洞についても、バンチ結合型不安定性を引き起こさないような高次モード対策 が必要である。どのような高次モード対策を施した空洞が良いか、今後検討を進める予定である。また、イオン捕 獲を避けるためのバンチギャップ(5~10%程度の空バケット)を導入した場合に、バンチギャップが加速空洞お よび高調波空洞内に誘起する過渡的電圧の変化により、同期位相がバンチ毎に変動し、バンチ伸長率が低下 する現象が報告されている[3.27, 3.30]。この過渡的電圧の効果も今後検討する予定である。 3.10 まとめ

RF システム全般:

周波数約 500.1 MHz, 常伝導空洞を採用する予定である。

合計約2MVの加速電圧が必要である。

光源リングに要求される長期安定性、低トリップレートを重要な要素と考える。

加速空洞:

PF 型空洞を含む、常伝導の高次モード減衰空洞を幅広く検討中である。

PF 型空洞を4 台使用する場合、高次モードチューナーや高次モードカップラーを追加すればバンチ結合型 不安定性を避けられる可能性がある。ただし不安定性のしきい値に余裕がない。

他の方式の減衰空洞の設計検討を今後行う。

RF 源:

伝送ロスやフィードバック・マージンを除き、使える RF 電力として合計約 508 kW が必要である。

各空洞を独立の RF 源で駆動し、故障に対する運転継続能力を上げる。

半導体アンプとクライストロンの両方を検討中である。安定度に優れ、将来性のある半導体アンプが第一候補 である。

ローレベル RF 系:

高精度にフィードバックが可能なデジタル・ローレベル系を検討中である。

高調波空洞:

バンチ長を伸ばす目的で、高調波空洞を導入する。

2,3,4 倍の高調波を検討した結果、3 次高調波空洞を採用する予定である。

空洞を RF 源で駆動するアクティブ方式が優れている。

バンチギャップによる過渡的な RF 電圧変化の影響を今後評価する。

高調波空洞には、大電流時のデチューニング量を小さくする対策と高次モード対策が必要である。これらを 考慮した設計検討を今後行う。 参考文献

- [3.1] P. B. Wilson, "High Energy Electron Linacs; Application to Storage Ring RF Systems and Linear Colliders", AIP Conference Proceedings No. 87, pp. 450-563; SLAC-PUB-2884 (1991).
- [3.2] M.R.F. Jensen, "Operational Experience with SRF Cavities for Light Sources", in Proceedings of SRF2011, Chicago, 2011, pp. 27-31.
- [3.3] H. Kobayakawa, M. Izawa, S. Sakanaka, S. Tokumoto, Rev. Sci. Instrum. 60 (1989) 1732.
- [3.4] M. Izawa, H. Kobayakawa, S. Sakanaka, S. Tokumoto, Jpn. J. Appl. Phys. 26 (1987) 152.
- [3.5] Y. Morozumi, T. Higo, Y. Yamazaki, Part. Accel. 29 (1990) 85.
- [3.6] R. Rimmer et al., "Development of a High-Power RF Cavity for the PEP-II B Factory", in Proceedings of PAC95 (1995) pp. 1729-1731.
- [3.7] T. Kageyama et al., "Development of High-Power ARES Cavities", in Proceedings of PAC97, Vancouver, 1997, pp. 1729-1731.
- [3.8] S. Sakanaka, F. Hinode, K. Kubo, J. Urakawa, J. Synchrotron Rad. 5 (1998) 386.
- [3.9] F. Marhauser, E. Weihreter, "First Test of a HOM-Damped High Power 500MHz Cavity", in Proceedings of EPAC2004, Lucerne, 2004, pp. 979-981.
- [3.10] 惠郷博文, 渡辺順子, 木村諭, 佐藤潔和, "SPring-8-II 高次モード減衰型高周波加速空洞の開発", 第 11 回日本加速器学会年会プロシーディングス、青森、2014, pp. 237-241.
- [3.11] T. Koseki, M. Izawa, Y. Kamiya, Rev. Sci. Instrum. 66 (1995) 1926.
- [3.12] M. Izawa, T. Koseki, S. Sakanaka, T. Takahashi, K. Hass, S. Tokumoto, Y. Kamiya, J. Synchrotron Rad. 5 (1998) 369.
- [3.13] Y. Shoji et al., "Upgrading of a RF System of the NewSUBARU Storage Ring", in Proceedings of APAC2004, Gyeongju, 2004, pp. 368-370.
- [3.14] 鈴木英範, 他, "SAGA-LS 蓄積リング RF 空洞の高次モード対策", 第1回日本加速器学会年会・第29 回リニアック技術研究会プリシーディングス, 船橋、2004, pp. 338-340.
- [3.15] 高嶋圭史 他、"あいち SR 光源加速器のコミッショニングと現状",第10回日本加速器学会年会プロシ ーディングス、名古屋、2013, p. 385.
- [3.16] S. Takayama et al., "Completion of the Australian Synchrotron Storage Ring RF System Commissioning", in Proceedings of PAC07, New Mexico, 2007, pp. 1040-1042.
- [3.17] H. Kobayakawa, Y. Yamazaki, Y. Kamiya, M. Kihara, Jpn. J. Appl. Phys. 25 (1986) 864.
- [3.18] 赤井和憲, "RF システム"、高エネルギー加速器セミナーOHO'94 テキスト、pp. II-1 II-45.
- [3.19] Alexander W. Chao, "Physics of Collective Beam Instabilities in High Energy Accelerators", Chap. 4, Wiley, 1993.
- [3.20] F. Qiu, S. Michizono, T. Miura, T. Matsumoto, M. Omet, B.W. Sigit, Phys. Rev. ST Accel. Beams 18 (2015) 092801.
- [3.21] T. Kobayashi et al., "Status of LLRF Control System for SuperKEKB Commissioning", in Proceedings of IPAC2015, Richmond, 2015, pp. 924-926.
- [3.22] P. Marchand, T. Ruan, F. Ribeiro, R. Lopes, Phys. Rev. ST Accel. Beams 10 (2007) 112001.
- [3.23] T. Miura et al., "Performance of RF System for Compact-ERL Main Linac at KEK", in Proceedings of IPAC2014, Dresden, 2014, pp. 2450-2452.
- [3.24] D. Massamba, Private communication.
- [3.25] A. Hofmann and S. Meyers, "Beam Dynamics in a Double RF System", CERN-ISR-TH-RF-80-26.
- [3.26] T. Takahashi et al., "Development of a 1.3-GHz Buncher Cavity for the Compact ERL", in Proceedings of IPAC2014, Dresden, 2014, pp. 3866-3868.
- [3.27] J.M. Byrd, S. De Santis, M. Georgsson, G. Stover, J.D. Fox, D. Teytelman, Nucl. Instrum. & Methods A 455 (2000) 271.
- [3.28] M. Georgsson, W. Andres, D. Kramer, J.M. Byrd, Nucl. Instrum. & Methods A 469 (2001) 373.

- [3.29] M.P. Kelly et al., "Superconducting Harmonic Cavity for the Advanced Photon Source Upgrade", in Proceedings of IPAC2015, Richmond, 2015, pp. 3267-3269.
- [3.30] J.M. Byrd, S. De Santis, J. Jacob, V. Serriere, Phys. Rev. ST Accel. Beams 5 (2002) 092001.

4 真空システム

4.1 概要

KEK-LS の真空システムは、超低エミッタンスラティスからの要請により、従来の蓄積リングに比べ、より多くの 空間的な制約を受けることになる。とりわけ、電磁石の典型的なボア径が 30 mm 程度になることから、ビームダク トは内径 25 mm 程度の狭小なものとなり、また、電磁石の密集化によりポンプやフランジなど真空機器の配置が 制限される。そのような厳しい条件下においても、従来と同様な超高真空を実現するためには、詳細な設計と精 密な製作技術が不可欠となる。また、ダクト壁がビームに近づくことやバンチ長が短くなることから、真空コンポー ネントの低インピーダンス化が不可欠となり、さらには、高品質ビームの振動を抑制するために、ビームダクト、特 に BPM 部の高い設置精度と安定度が求められる。

これらの要求を満足させるためには、現在までに培われてきた真空技術を最大限に駆使して、真空システムの設計、製作、設置、運転を行う必要がある。

4.2 ビームダクトの設計指針

ビームダクトは加速器においてビームに最も近い機器であり、その材質や形状、表面特性がビームの質や安定度に大きく影響する。一般に電子蓄積リングで採用されるビームダクトの材料は、ステンレス、アルミ合金、無酸素銅の3種類であり、形状に関しては、シンプルなレーストラック型や丸形に加え、ビーム路に沿って副室を設けたアンテチェンバ型がある。それぞれに利点と欠点があるため、その加速器において重要視すべき役割や製造コストなどを総合的に判断して、最適な材料と形状、およびそれに適した加工技術、表面処理技術を選択することになる。ここでは、それらを選択する上での判断材料として、ビームダクトの主要な役割を8のの項目に分けて考察する。

4.2.1 超高真空状態の保持

真空システムの最も重要な役割は、充分に長いビーム寿命を実現するためにビーム路を超高真空に保つことである。KEK-LS における要求圧力については後節で議論するが、一般にビーム路を 10⁻⁸ Pa 台の超高真空に保つことが求められる。また、通常そのレベルの超高真空を実現することで、真空に起因するイオントラッピング やビームラインへの制動放射 γ 線も抑制できる。

ビーム路を超高真空に保つには、運転時の放出ガスを効果的に排気できるように、適切な位置に良いコンダ クタンスで真空ポンプを配置することが重要である。一方、材料自体の特性として、熱脱離によるガス放出速度 が低いことに加え、放射光やその散乱光に曝される部位には低い光刺激脱離(Photon Stimulated Desorption; PSD)係数 η と高い熱伝導率を有することが不可欠である。具体的には、適切な表面処理により実効表面積を低 減させた上で、良質な酸化膜を形成させることになる。現在の真空技術では、3 種類の金属とも、適切な加工手 法や表面処理、熱処理を施すことにより、蓄積リングで求められる超高真空性能を得ることができる。具体的な 数値目標は、熱脱離によるガス放出速度を10⁻¹¹ Pa m³ s⁻¹ m⁻²以下、PSD 係数を10⁻⁶ molecules/photon 台に下げ ることである。

気体分子の脱離機構は表面酸化膜の影響を大きく受ける。そして、材料によって表面酸化膜の性質が異なるため、材料ごとに最適な表面処理方法を選択しなければならない。PSD 係数は光焼出しによるビームダクト内面のコンディショニングの指標であり、一般に初期値は 10⁻² molecules/photon 程度である。そして、立上げ運転の期間をなるべく短縮化させるために、速やかに 10⁻⁶ molecules/photon 台に涸れるような表面処理を施す。

運転初期から低い PSD 係数を得る手段の一つとして、NEG コーティングと呼ばれる非蒸発型ゲッター (Non-Evaporable Getter; NEG)材をビームダクトの内面に1 µm 程度成膜させる方法が有効である。この NEG コーティングを活性化させることで、運転初期から通常のビームダクトより 2、3 桁低い PSD 特性が得られる[4.1, 4.2]。実機の採用例では、SOLEIL[4.3]、MAX IV[4.4, 4.5]、SIRIUS[4.6]の大部分のビームダクトに NEG コーティングが施されている。

次に、ビームダクト材料を選択する際の基礎事項について述べる。ビームダクト材として使用されるステンレス 鋼は、通常 SUS304 や SUS316 のオーステナイト系であり、一般に Mo を添加した SUS316 の方が耐食性に優 れる。表面処理として#400 バフ研磨+電解研磨を施し、ベーキングすることで、比較的容易に超高真空対応の 低ガス放出特性を得ることができる。電解研磨でも表面に良質な Cr203 不動態皮膜が形成されるが、硝酸水溶 液処理や酸素雰囲気下での高温処理、または常温でのオゾン雰囲気暴露が有効で、この不動態皮膜がバルク から表面に拡散してきた水素に対するバリアとしても機能する。良質な酸化皮膜に加え、バルク内の含有水素 自体を低減させる手法として、10⁻³ Pa 以下 950℃での真空高温熱処理(Vacuum Firing)が有効である[4.7]。 アルミ合金の場合は、Al-Mg 系 A5052 が耐食性や加工性に優れており、特殊な断面形状が必要な場合は押 出加工に適した Al-Mg-Si 系の A6063 がよく用いられる。これらの合金では、最表面から順に、Al(OH)3 層、 MgO 層、Al₂O3 層が形成されるが[4.8]、 厚くポーラスなため気体分子を多く含みやすい。これに対し、 TRISTAN で開発された Ar+O2 雰囲気での特殊押出(EX)加工[4.9]や切削時にエタノールを用いる Ethanol Lathing(EL)加工[4.10]により、Al₂O3 層を主体とする緻密で薄い(数 nm)酸化膜が形成され、ガス放出速度を 低減させることができる。最近では、精密化学研磨技術も確立されてきており、複雑な構造にも応用できる上に、 上記と同等なガス放出性能を得ることもできる。

最近の加速器での例としては、TPS では EL 加工に加え、表面層の炭素を低減させる目的でオゾン水洗浄を 施している[4.11]。また、NSLS-II では 70℃で 6 時間の O₂ + 400 ppm O₃ 雰囲気熱処理が、炭化水素系の汚染 除去に効果を上げている[4.12]。

LCLS[4.13]、FERMI@Elettra[4.14]、SXFEL[4.15]、Euro-XFEL などでは、30nm 以下の面粗度が得られる 砥粒流動加工 (Abrasive Flow Machining)をアンジュレータ用アルミ合金押出ダクトに採用している。

無酸素銅の場合は、4N 銅と呼ばれる純度 99.99%以上の C1011 や、純度 99.96%以上の C1020 が真空容器 材料として広く用いられている。一般に、酸素含有量が少ないほど水素焼鈍によって結晶粒が大きく(ポロシティ が低く)なり、金属内吸蔵ガスが減る。無酸素銅は金属組織の健全性から、American Society for Testing and Materials (ASTM) 規格で Class1 から Class5 に規定され、純度 99.9999%程度の 6N 銅は最高級の Class1 に分 類されるが、高価なため、高周波加速空洞のように極限性能が要求される場合に限り使用される。

無酸素銅の表面処理では、国内ではキリンス処理といわれる硝酸と硫酸の混合液による酸洗いが普及している。また、ガス放出速度低減の観点から、硫酸と過酸化水素水 (Sulfuric Acid Hydrogen Peroxide Mixture; SPM)による洗浄を施すことで、表面粗さの低減と炭素の少ない酸化膜が得られる。この表面は良好な PSD 特性も示すことから、加速器分野で広く採用されている。その他の表面処理として、電界研磨後に真空(10^{-6} Pa)中でプリベークし、O₂と Ar を導入することでも良好な酸化膜が形成される。

以上のようなことを検討しながら、ビームダクト材と表面処理手法を選定し、まだ一般的ではない特殊な表面 処理技術は、必要に応じて採用を検討することになる。

4.2.2 放射光パワーの吸収

偏向電磁石からの放射光の大部分はユーザー実験に使用されず、ビームダクト内で吸収することになる。このため、真空システムは非常に大きな放射光熱負荷に対応しなければならない。放射光が照射する部位には、 必ず銅やアルミ合金といった熱伝導に優れた金属を使用し、熱除去のための水冷パスを設ける必要がある。

ビームエネルギー*E* [GeV]、ビーム電流値が *I* [mA]のとき、1 台の偏向電磁石(曲率半径 ρ [m]、偏向角 θ [rad])からの放射光パワー*P* [W]と臨界エネルギー ε [keV]はそれぞれ、

$$P = 88.46 \frac{E^4 I}{\rho} \frac{\theta}{2\pi}$$

$$\varepsilon_c = 2.218 \frac{E^3}{\rho}$$

$$(4-1)$$

$$(4-2)$$

で与えられる。KEK-LS の場合は、偏向電磁石の種類によって放射光のパワーとスペクトルが異なる。また、一部の偏向電磁石は磁場がビーム進行方向に一様でなく、上記パラメータの計算時に注意を要する。図 4.1 は SynRad+で計算した4種類の偏向電磁石からのフラックスを光子エネルギーの関数でプロットしたものである。また、表 4.1 にそれぞれの放射光パワーと臨界エネルギーを纏めた。比較のため、PF-ringとPF-ARのデータも付記してある。



図 4.1 4 種類の偏向電磁石からの光子フラックス

	KEK-LS 3.0 GeV, 500 mA			PF-ring 2.5 GeV,	PF-AR 6.5 GeV,	
	B01, B08	B02, B07	B03, B06	B04, B05	450 mA	60 mA
Bend radius (m)	20.8–77.5	30.6–78.9	14.8	37.6	8.66	23.7
Bend angle (mrad)	51.0	42.2	54.5	9.4	224.4	112.2
SR critical energy (keV)	0.8–2.9	0.8–2.0	4.1	1.6	4.0	25.7
SR power (W/bend)	904.4	550.7	2103.9	141.9	6410.5	7136.2
Total power (kW/ring)	148.0			179.5	399.6	
Linear power density (W/m)		25	9.4		959.9	1059.3

表 4.1 4 種類の偏向電磁石からの放射光パワーと臨界エネルギー

放射光パワーに関して KEK-LS を PF-ring と比較すると、ビームエネルギーと電流値が大きい効果は 2.3 倍であるが、曲率半径が平均で約 2.8 倍長いので、リング全体では 0.82 倍になる。また、リング周長が約 3 倍長いため、単位長さ当たりのパワーは 0.27 倍になる。したがって、熱負荷の観点からすると、放射光アブソーバやビームダクトに対する要求は低くなる。

ただし、ダクト径が小さいため、アブソーバ設置位置が発光点に近くなることと、放射光輝度が高くなることから、照射部の局所的なパワー密度の上昇を考慮する必要がある。また、B03やB06からの2kWを超える放射光のアブソーバや、挿入光源ビームラインへの分岐部に設置するクロッチアブソーバでは、熱負荷に応じて充分な対策が必要となる。すなわち、これらのアブソーバの設計では、ANSYS などによる熱構造解析を行い、温度上昇や発生応力、変位をシミュレーションし、堅牢性や耐久性を確かめる必要がある。さらに、クロッチアブソーバの材料として、高温時でも比較的高い引張強度と降伏強度を持ち、ヒートサイクルでも結晶粒界が成長しにくいアルミナ分散強化銅(GlidCop)を用いることも検討する。

4.2.3 ビームの誘起する電磁場の伝送

ビームダクトはバンチの誘起する電磁場を伝導させる良好な導波管としての役割も果たさなければならない。 ダクト内面に段差やギャップのあるインピーダンスの高い構造では、バンチ通過に伴って高次高周波(HOM)が 励起され、バンチは一部パワーを失う。HOMがトラップされやすい構造であれば、異常発熱や放電を引き起こし たり、後続のバンチに影響を及ぼしたりすることがある。特に短バンチ高電荷ビームを蓄積する場合に問題とな りやすく、KEK-LSでも真空コンポーネントが低インピーダンス構造となるように設計しなければならない。具体的 な検討事項については 4.4 節で議論される。

材料に関しては、ステンレスの場合は熱伝導率が低く、HOM による発熱の除去が困難となる。また、狭小なビ ームダクトでは抵抗壁の影響が大きくなるため電気伝導率の高い材料が好ましく、ステンレスの場合は銅メッキ を施すなど表面改質の検討が必要となる。抵抗壁に起因するバンチ結合型ビーム不安定性に関しては、ビーム ダイナミクスの章で詳しく議論される。

4.2.4 電磁石磁場の伝達

電磁石からの磁場をそのままビームに伝えるために、ビームダクトは非磁性であることが求められる。アルミ合 金や無酸素銅は完全非磁性であるが、ステンレスの場合は非磁性のオーステナイト系であっても冷間加工によ りマルテンサイト変態を起こし、透磁率が増加する場合がある。その場合、SUS304よりも Ni 比率の高い SUS316 の方が変態を起こしにくい。また、溶接時にフェライト組織を含む溶接棒を使用したりすると磁化する場合があ る。加工により帯磁が避けられない場合は、固溶化処理(1100℃程度の高温熱処理)による消磁が有効である [4.16]。ステンレスで 450℃以上の高温熱処理を前提とする場合は、鋭敏化によるクロム炭化物析出を防止する ために低炭素材(L 鋼種)を用いるのが効果的である[4.17]。低炭素による強度低下を防ぐために、窒素添加し た SUS316LN を用いる加速器も多い。

速く変動する磁場をビームに伝える必要のあるキッカー電磁石や補正電磁石などでは、渦電流を抑止させる ためにセラミックダクトが最適であるが、インピーダンス増大や帯電防止について検討する必要がある。蹴り角や パルスの時間特性によっては薄肉のステンレス(または、より電気抵抗率の高いインコネル)を用いることも可能 である。

4.2.5 超高真空を長期間保持する機械的強度

KEK-LS の場合、電磁石のボア径が小さいためにビームダクトの厚みが 1~2mm 程度に制限されることになり、薄肉ダクトを真空に保持した状態でも変形が問題とならないような剛性が要求される。このため、設計時に

ANSYS などでシミュレーションを行い、変位が問題にならないことを確かめておく必要がある。この観点からはステンレスが最適である。

また、フランジ部には良好なシール性能を保持するために充分な硬度も要求される。この場合もステンレスが 最適である。アルミ合金ダクトに対しては、クラッド材などを用いてシール面をステンレスに変換するか、CrN や TiC などのイオンプレーティング被覆や電子ビーム改質によりアルミ合金エッジ部の硬度を上げることが有効で ある[4.18]。無酸素銅の場合は、通常、ステンレスや BeCu のフランジをロウ付けや電子ビーム溶接で接合する。

4.2.6 放射線の遮蔽

ビームダクトを透過したエネルギーの高い放射光(X線)は、周辺のケーブルや機器を損傷させる。また、電子 計測におけるノイズ源となる場合もある。このような問題を低減させるためには、ビームダクト材は質量吸収係数 が大きく、放射線遮蔽能力に優れている方が好ましい。

ビームダクトの設計では、材質や厚さがどのように放射光の遮蔽に効くかを検討しておくことが重要である。X 線のエネルギーやビームダクトの材質によって、それらがどのような相互作用を起こし、また、どの程度透過する かが異なる。詳細なシミュレーションは Geant4 や FLUKA などにより可能であるが、大雑把には、アルミの場合で 60 keV 辺りまで、ステンレスと銅の場合で 100 keV 辺りまでは光電効果が主体で、それより高くなるとコンプトン 散乱が主体になってくる[4.19]。

ここでは単純なモデルにより遮蔽能力を比較する。臨界エネルギーの最も高い B03 からの放射光がビームダクトに垂直に照射する場合を考え、入射放射光のフラックスが F₀ [photons/s]のとき、厚さ d [cm]のビームダクトを透過した後のフラックス F [photons/s]

$$F = F_0 \exp(-\mu_{\rm m} \rho d)$$

(4-3)

を比較する。ここで、 $\mu_{\rm m}$ [cm²/g]は質量吸収係数、 ρ [g/cm³] は密度である。

図 4.2 のように、3 種類の材料に関して、厚さ1.5 mmのダクトを透過するフラックスを比較すると、アルミに対するステンレス(ここでは鉄で代表)と銅の遮蔽能力の高さが、ある程度定量的に分かる。いずれの場合も、透過放射光のほとんどは数 10 keV 以上の硬 X 線である。



図 4.2 B03 ベンド光の透過フラックス比較

電子ビームのロスに起因する制動放射 y 線や中性子に対しては、ビームダクトの遮蔽能力は皆無である。ビ ームスクレーパ近傍などのビームロスの想定される箇所には追加遮蔽が必要となる。残留放射能低減の観点か らは、アルミやチタンといった放射能減衰の速い材料の選択も検討事項となる。

4.2.7 ビームの高い位置精度と安定度の実現

KEK-LS では超低エミッタンスビームを蓄積するため、ビームダクトには高い機械加工精度と設置精度、および運転時の位置安定性が要求されることになる。しかしながら、すべてのビームダクトやコンポーネントを可能な限り高い精度で加工し、設置するのは、非常にコストや労力のかかる作業となる。したがって、加速器の性能を満たす範囲で許容値を決めることになる。その際、ビーム軌道の安定化を担うBPMや、放射光路を決めるクロッチアブソーバなど、放射光位置の安定化に寄与するコンポーネントを重要視する。

ビームダクトの典型的な横方向設置精度は、±100 µm 程度が現実的であろう。したがって、加工精度もその 辺りが目標になる。KEK-LS では、電磁石磁極とビームダクトとのクリアランスが 0.5 mm 程度しか許容されず、長 尺ダクトに対する高い加工と設置精度が求められる。

位置の安定度に対する要求も、加速器の性能向上に伴って増してきている。KEK-LS では、vertical emittance が 8 pm·rad であり、低 β_y 部 (β_y ~1 m)での鉛直ビームサイズは約 2.8 μ m となる。このため、BPM に は 1 μ m 以下の測定精度と、100 nm 程度の安定度が求められる。BPM の固定用架台には、温度変動による変 位を防ぐ目的で、熱膨張係数の小さいインバーやカーボンファイバーが有効である。

4.2.8 現場ベーキングへの対応

運転初期のベース圧力の改善、大気圧に近い大きいリークやアブソーバからの水分子のリークが起こった後の速やかな真空立上げに備えるために、現場ベーキング対応である方が好ましい。しかしながら、電子蓄積リン グでは光焼出しによるビームダクトのコンディショニングが期待できることや、後者は極めて稀な事例であり水漏 れしにくいアブソーバの設計も可能であることから、ビームダクトを現場ベーキング対応にしないという判断も充 分にあり得る。

現場ベーキングへ対応にする場合、およびNEGコーティングを採用する場合は、ビームダクトと電磁石磁極との隙間にヒーターを貼付する必要がある。NEGコーティングの活性化では、ビームダクトを180~200℃で24時間、または250℃で4時間、高温状態に維持する。ヒーターは、cERLでも実績のある厚さ250 µm 程度のカプト

ンフィルムヒーターが候補となるが、SOLEIL でフィルムヒーターの放射線損傷が問題となった事例もあり[4.20]、特にアルミ合金ダクトの場合は注意を要する。

さらに、ベーキング時の熱膨張をすべて吸収できるベローズも必要となる。BPM やゲートバルブなどすべての 固定点の間にベローズを配置することは限られたスペースでは困難であるため、一部はビーム進行方向に自由 度のあるサポートを用いる。また、アーク部では外周方向に拡がることができるような固定方法も検討しなければ ならない。

ベーキング温度に関しては、アルミ合金の場合は、200℃以上で強度が著しく低下することに加え、蒸気圧の 高い Mg が A5052 で 2.2~2.8%、A6063 で 0.45~0.9%含まれるため、150℃に制限される(Mg の蒸気圧は 150℃で1×10⁻⁷Pa 程度)[4.17]。

無酸素銅の場合も軟化防止のため、ビームダクトのベーキング温度は 200℃以下に制限される。LHC や MAX IV、SIRIUS では軟化温度を向上させる目的で、NEGコーティングダクトに低Ag 無酸素銅を採用している [4.4, 4.6]。

4.2.9 ビームダクト設計のまとめ

ビームダクトに要求される性能の材料別比較として、以上の議論を表 4.2 に纏めた。各材料とも一長一短があ るが、概して無酸素銅は欠点が少なく、多くの項目で優れていることが分かる。

	ステンレス	アルミ合金	無酸素銅
低ガス放出速度	0	0	0
低PSD係数	0	\bigtriangleup	0
高熱伝導度	×	\bigtriangleup	0
熱伝導率 (W m ⁻¹ K ⁻¹)	16-21	140-240	390-400
高電気伝導度	×	\bigtriangleup	0
電気伝導率 (MS/m)	1.4	32	59
非磁性	\bigtriangleup	O	0
比透磁率	1.003-7	1.0000	1.0000
強度	0	\bigtriangleup	\bigtriangleup
引張強度 (MPa)	580-680	180-320	235-315
剛性	0	\bigtriangleup	0
ヤング率 (GPa)	193-197	69-72	117
フランジに必要な強度	0	\bigtriangleup	\bigtriangleup
ビッカース硬さ (HV)	350-380	60-120	75-120
0.2%耐力 (MPa)	175–255	200–240	200–275
放射線遮蔽	\bigtriangleup	×	0
質量吸収係数@10keV (cm ² /g)	171	26	216
任意断面形状加工	\bigtriangleup	0	0
低熱膨張	0	\bigtriangleup	0
線膨張率 (µm m ⁻¹ K ⁻¹)	16-17.3	23.0	17.0
ベーキング耐性	0	\bigtriangleup	\bigtriangleup
最高ベーク温度 (℃)	450	150	200
材料コスト	0	0	
加速器での採用例	SSRF, ASP, UVSOR-III, cERL, BESSY II, SLS, DIAMOND, ELLETRA, ESRF, ALBA, ANKA, CANDLE, CLS, LNLS	TRISTAN, PF-ring, SPring-8, TLS, TPS, PLS-II, SKEKB LER, SOLEIL, PETRA III, ALS, APS, NSLS-II	PF-AR, SKEKB HER, LHC, SPEAR-3, MAX IV, Sirius

表 4.2 ビームダクトに要求される性能の材料別比較

ビームダクトの断面形状に関しては、電磁石のボア径 30 mm に対して、ダクトとのクリアランスを1 mm、ダクト 厚を1.5 mm とすると、ビームダクトの内径はせいぜい 25 mm である。

量子寿命の観点からビーム蓄積に必要なアパーチャ(Beam Stay Clear; BSC)は

$$BSC_{x} = 10\sigma_{x} + COD_{x} = 10\sqrt{\varepsilon_{x}\beta_{x} + \eta^{2}\left(\frac{\sigma_{E}}{E}\right)^{2}} + COD_{x}$$
(4-4)

$$BSC_{y} = 10\sigma_{y} + COD_{y} = 10\sqrt{\varepsilon_{y}\beta_{y}} + COD_{y}$$
(4-5)

で与えられ[4.21]、KEK-LS の場合、ビームサイズと COD の最大値として、(σ_x , σ_y) = (0.122 mm, 0.013 mm)、 (COD_x, COD_y) = (0.25 mm, 0.25 mm) をとると、(BSC_x, BSC_y) = (1.47 mm, 0.38 mm)となる。したがって、内径 25 mm のビームダクトでも充分な BSC が確保されている。

放射光照射によるガス放出(PSD)の観点からは、断面形状としてアンテチェンバ型を採用すれば、放射光は ビーム路に沿って配置された副室(アンテチェンバ)側で吸収でき、ビーム路を超高真空に保つという点で有利 となる。この場合、押出加工のしやすさからアルミ合金か無酸素銅を採用するのが一般的である。ステンレスでも 不可能ではないが、低コストと高精度を兼ね備える加工技術の R&D が必要となる。

アンテチェンバ型を採用しない場合は、単純な円形状、あるいは楕円、レーストラック、八角形のような横長の 断面形状のいずれかとなり、製作の容易さと低コストの点で断然有利である。また、横長形状であれば、 KEK-LS の偏向電磁石のようにサジッタが比較的小さい場合、偏向電磁石ダクトとしてストレート管を設置するこ とも不可能ではない。ただし、アンテチェンバ型でない場合は、多数の放射光アブソーバをビーム路に挿入する か、放射光をビームダクト内壁で受けることになり、前者の場合はインピーダンスと入射ビーム振幅の問題、後者 の場合はビームダクト材の熱伝導の問題をそれぞれ考慮しなければならない。いずれにしても、放射光照射部 にステンレスは採用できず、アルミ合金や無酸素銅を採用する場合でもビームダクトの PSD 特性に対する要求 が高くなる。

また、4.3 節で詳しく議論するように、アパーチャの小さいダクトはコンダクタンスが小さいため、ビーム軌道上の実効排気速度を大きく取れず、充分な到達圧を得るための工夫が必要になる。その有力な手段の一つが、ビームダクト内面に NEG 材を成膜して、真空ポンプとして機能させるコーティング技術である。KEK は、NEG コーティング開発元の欧州原子核研究機構(CERN)と使用許諾契約を結んでおり、自前のコーティング装置を用いることが可能である。このため、比較的低コストで成膜することができる。

今後のビームダクトの設計方針としては、まず、目標ビーム性能を達成させることを念頭に置いて、ビームダクト材のどの性質を優先させるかを決める。その上で、1) MAX IV や SIRIUS のような NEG コーティングを主ポンプとする低 Ag 無酸素銅製の丸管、2) NSLS-II や TPS のようなアルミ合金製アンテチェンバ、3) ESRF-II のような設置条件に応じたアルミ合金とステンレスチェンバの混在させる柔軟な設計、4) SPring-8 II のようなステンレス 製アンテチェンバ、といった近年の低エミッタンスリングでの真空システム設計を参考にして、実際の運転情報なども収集しながら基本方針を確定させる。

そして、次節以降で議論するような SynRad+と MolFlow+による3次元圧力分布シミュレーションとビームダクトの涸れの推移(コンディショニングに必要な期間)の見積をさらに詳しく進めながら、GdfidL などによる加速器コンポーネントの縦方向インピーダンス計算、ANSYS などによるクロッチアブソーバの3次元熱構造解析を経て、 ビームダクトの試作を行う。そして、PFのBL-21を利用して、試作機器からのPSDを測定し、放射光照射下における真空性能評価を行う。

4.3 ビーム寿命と要求圧力

4.3.1 圧力とビーム寿命の関係

ここでは KEK-LS のビーム路の圧力とビーム寿命との関係を求め、充分に長いビーム寿命を得るために要求 される圧力について考察する。

光速度 c(正確には βc)で周回する1個の電子が一様な密度 nの気体分子によって散乱される頻度は、散乱断面積を σ_g とすると、 $\sigma_g cn$ である。この散乱の結果として電子がバンチから失われる場合、気体分子との散乱によるビーム寿命 τ_g はその逆数で与えられ、理想気体の状態方程式 p = nkTを用いれば、

$$\tau_{\rm g} = \frac{1}{\sigma_{\rm g} cn} = \frac{kT}{\sigma_{\rm g} cp} \tag{4-6}$$

のように、圧力に反比例することがわかる。

次に、この損失断面積*σ*g について少し詳しく考える[4.22]。リングを周回する電子は、残留気体分子内の原子 核や核外電子によって散乱されることで、角度変化や運動量変化を受ける。いずれの場合も安定周回条件(ア クセプタンス)から外れれば運動が不安定になり、やがてバンチから失われる。角度変化によるビームロスでは、 次式のように、β 関数で規格化した物理アパーチャの最狭部で臨界角が決まるとする。

$$\phi_{\rm c} = \frac{a}{\sqrt{\beta_{\rm c}} < \beta >} \tag{4-7}$$

ここでは、アンジュレータ部での*y*方向のアパーチャ(2*a_y*)が臨界角を与えるとして、2*a_y*=5 mmと2*a_y*=10 mm の 2 つの場合を想定する。すなわち、*y*方向の最狭部で β_c =9 m、リング平均で < β >=9 mとして、 ϕ_{c_y5} =2.78 ×10⁻⁴ rad、 ϕ_{c_y10} =5.56×10⁻⁴ rad の 2 つの場合を考える。

一方、運動量変化によるビームロスでは、RF バケット高さが臨界値を与えるとして、KEK-LS の場合、($\Delta p/p$)。 = 0.0398 とする。

電子ビームが残留気体分子によって散乱される過程として、原子核との弾性散乱(Rutherford 散乱)、原子核 との非弾性散乱(制動放射)、核外電子との散乱(Møller 散乱)の3つの過程を考える。Rutherford 散乱では ϕ_c 、制動放射では($\Delta p/p$)_c、Møller 散乱では ϕ_c と($\Delta p/p$)_cの影響の大きい方がビームロスを引き起こすとすれば、それ ぞれの過程による損失断面積は近似的に以下のように書ける。

$$\sigma_{\rm R} = 2\pi r_{\rm e}^{2} (Z/\gamma \phi_{\rm c})^{2}$$

$$\sigma_{\rm b} = \frac{4r_{\rm e}^{2} Z(Z+1)}{137} \left(-\frac{4}{3} \ln \left(\frac{\Delta p}{p} \right)_{\rm c} -\frac{5}{6} \right) \ln \left(183 Z^{-1/3} \right)$$
(4-9)

$$\sigma_{\rm M} = {\rm Max}\left(\frac{2\pi r_{\rm e}^2 Z}{\left(\Delta p \,/\, p\right)_{\rm c}}, \frac{2\pi r_{\rm e}^2 Z}{\left(\gamma \phi_{\rm c}\right)^2}\right) \tag{4-10}$$

ここで、r_eは古典電子半径、γは電子ビームのローレンツ因子である。Z は気体分子の原子番号であり、あるガス 種との散乱断面積を考えるときは、構成する原子ごとに散乱断面積の和を取る。表 4.3 に CO 分子との各過程で の損失断面積、および全過程での損失断面積σgを纏めた。

2ay	Rutherford 散乱 $\sigma_{ m R}$	制動放射 $\sigma_{ m b}$	Møller 散乱 σ_{M}	全過程 $\sigma_{ m g}$
5 mm	$1.88 \times 10^{-27} \text{ m}^2$	$4.18 \times 10^{-28} \text{ m}^2$	$5.25 \times 10^{-28} \text{ m}^2$	$2.82 \times 10^{-27} \text{ m}^2$
10 mm	$4.70 \times 10^{-28} \text{ m}^2$	$4.18 \times 10^{-28} \text{ m}^2$	$1.31 \times 10^{-28} \text{ m}^2$	$1.02 \times 10^{-27} \text{ m}^2$

表 4.3 CO 分子との散乱による損失断面積

一方、電子蓄積リングにおける主要なビームロスには、この圧力に関係する過程以外に、バンチ内の電子どう しでの散乱の結果、運動量アクセプタンスを超えてしまう過程がある。この過程によるビーム寿命 & は Touschek 寿命と呼ばれ、バンチ内の電子密度が高いほど短く、ビームエネルギーが高いほど長いという特徴を持つ。ビー ムダイナミクス(2.5 節)で議論したように、KEK-LS の場合、500mA 蓄積時の & は 1.8 時間(2.8%運動量アパー チャ、2000水平振幅アパーチャの場合)と見積もられる。

したがって、ビーム寿命 τ は、ガス散乱によるビーム寿命 τ_g と Touschek 寿命 τ_T の重ね合わせとなり、次式に従って圧力pとともに変化する。

$$\frac{1}{I\tau} = \frac{1}{I\tau_{g}} + \frac{1}{I\tau_{T}}$$

$$= \frac{\sigma_{g}c}{kT}\frac{p}{I} + \frac{1}{I\tau_{T}}$$
(4-11)

ここで、運転中のガス放出が PSD によるとすれば、pはビーム電流 I に比例することから、圧力として規格化圧力 p/Iを用いた。また、2種のビーム寿命ともに I に反比例することから、ビーム寿命として I てを用いた。

残留ガスを温度 T = 300 K の CO とした場合、上式をグラフに表すと図 4.3 のようになる。ビーム寿命において Touschek 効果が支配的となる領域 ($p/I = 1 \times 10^{-7}$ Pa/A 以下)を達成させることが、真空システム設計における一 つの目標となる。



図 4.3 圧力とビーム寿命の関係

4.3.2 圧力分布と涸れの予測

加速器建設後、数ヶ月のコミッショニング後に 1×10⁻⁷ Pa/A (500 mA 蓄積時で 5×10⁻⁸ Pa)の平均圧力を実現 することは、従来型の電子蓄積リングにおける目標値と同程度であり、設計、製造、立上げにおいて相当な工夫 や労力が必要となる。そして、KEK-LS のような制約の厳しい環境では、さらに特別な措置が求められ、詳細な 真空システムの設計が不可欠となる。ここでは、3 次元モンテカルロ法を用いた放射光照射と圧力分布のシミュ レーションを行う。その結果から、運転時間(正確には積分電流値)の増加に伴うビームダクトの涸れの予測を行 い、要求を満たす真空システムの設計方針を検討する。

ここでは基本シミュレーションとして、KEK-LS の電磁石配置を基に真空ポンプを配置し、ビームダクト形状を ¢25 mm の丸管とする条件で計算を行う。また、ビームダクト材として、無酸素銅、およびそのダクト内面に NEG コーティングを施した場合の2種類を想定する。シミュレーション領域は半セル分(約14.3m)とし、実際とは異な るが、それらを40回繰り返し繋げることで、リング1周分に拡張させる。放射光は4台の偏向電磁石を光源とし、 図4.1 に示したとおりのフラックスでビームダクト内壁を照射する。実際には、ビームライン分岐部にクロッチアブ ソーバを挿入するため、大半の放射光がそのクロッチアブソーバに局在化する。その結果、ガス放出も局在化 することになるが、それを効率良く排気させるためのポンプ配置の最適化は次のステップとする。

ここでのシミュレーションの流れは次のとおりである。まず、上記形状の3次元 CAD 図を SynRad+に読み込ま せ、放射光照射分布を計算する。半セル中の4台の偏向電磁石のうち、B01(2章の BID)と B02(2章の BPI)は 進行方向に沿って5段階で磁場を変化させる(プログラムは連続変化にも対応できる)。SynRad+では、500 mA 蓄積時に各メッシュに照射される放射光フラックス[photons/s]を計算する(図 4.4)。

その結果を MolFlow+に読み込ませて、ビーム路に沿った圧力分布を計算する(図 4.5)。その際、PSD 係数 [molecules/photon]を用いて、放射光フラックス[photons/s]をガス放出速度[molecules/s]に変換する必要があり、 そこで放射光が照射される表面の PSD 測定データが必要になる。ここでは、PF-ring の BL-21 での測定データ を用いた(図 4.6)。ビームダクトの涸れの進展はこの PSD カーブに基づいて計算される。MolFlow+では、積分 電流値として 0.1~1000 A·h までの 5 段階に分けて、それぞれの照射時間に応じた各メッシュの積分光子数 [photons/cm²]に対応する PSD 係数をそのメッシュに適用させる。

排気速度に関する条件としては、長さ5 cm のポンプポートを電磁石の隙間 7 か所に配置し、各ポートの先端 に 300 K の CO に対して 18.1 L/s の排気速度を有するポンプを接続する。NEG コーティングの排気速度は、吸 着確率を 0.01 と仮定して、300 K の CO に対する理想排気速度 11.9 L s⁻¹ cm⁻² に 0.01 をかけた 0.119 L s⁻¹ cm⁻² (ϕ 25 mm の丸管の場合、1 m 当たり 9.35 L/s)とする。



図 4.4 SynRad+による放射光照射分布シミュレーション(銅ダクト、半セル分)



図 4.5 MolFlow+による圧力分布シミュレーション(銅ダクト、半セル分)



図 4.6 BL-21 での PSD 測定結果。

銅ダクトと NEG コーティングダクトに対する圧力分布計算結果を、それぞれ図 4.7 と図 4.8 に示す。積分電流 値が 0.1 から 1000 A・h に増えるにつれてビームダクトの涸れが進み、圧力が低下していく様子が分かる。



図 4.7 MolFlow+による銅ダクトの圧力分布計算結果



図 4.8 MolFlow+による NEG コーティングダクトの圧力分布計算結果

銅ダクトとNEG コーティングダクトの最も大きな違いは到達圧力であり、運転初期で約4桁、1000 A·h 時で約3桁、銅ダクトの方が圧力が高い。

圧力分布曲線にも大きな違いがあり、銅ダクトの場合はポンプポートで圧力が大きく低下する結果となったが、NEGコーティングダクトの場合は、PSDによるガス放出分布に近い形での圧力分布となり、ポンプポートの効果は限定的に見える。ただし、これらのポンプポートは、NEG ポンプで排気できない希ガスやメタンに対して排気速度を持つスパッタイオンポンプを設置するために不可欠である。

以上の圧力分布計算結果からリング平均圧力を求め、それを積分電流値の関数としてプロットしたのが図 4.9 である。ここでは、先に求めた圧力とビーム寿命の関係式を用いて、ビーム寿命の伸びの様子も合わせてプロットした。



図 4.9 ダクトの涸れとビーム寿命の伸びの予測

銅ダクトのように運転初期にビーム寿命が短いと、同じ運転時間でも積分電流値がなかなか増えないこととな り、ダクトの涸れも進まない。逆に、NEG コーティングダクトのように運転初期からビーム寿命が長いと順調に積 分電流値が増え、ダクトの涸れの進行も速くなる。また、運転中の圧力が速やかに 10⁻⁶ Pa/A 台に到達しない場 合は、後述のイオントラッピングによるビーム不安定性のため、ビームを定格電流まで蓄積することも困難とな る。

以上の結果、KEK-LS のような狭小ダクトに対して真空ポンプを従来の構成で配置する設計では、加速器の 真空システムとしては機能しないことが分かる。NEG コーティングを施すことで大幅に改善されるが、それでも 1000 A・h 時で規格化圧力は 2.7×10⁻⁷ Pa/A である。実際のクロッチアブソーバの配置に即したポンプ位置の最 適化を行う必要もあるが、目標の 1×10⁻⁷ Pa/A を得るためには、例えば、場所によってはアンテチェンバを採用 し、ガス放出源をビーム路から離すなど、更なる改良が必要となる可能性がある。

また、今回ビーム寿命の計算では CO 当量の圧力がビーム路に沿って一様に分布するとしたが、ビーム寿命 をより正確に見積るためには、残留気体分子の種類やビーム路に沿った圧力分布を基にした計算を行う必要が ある。そうすることで、例えばビーム寿命への影響の大きい high-β 関数の領域の圧力を下げるように、ポンプ配 置を最適化することも可能となる。 4.4 低インピーダンスコンポーネント

4.4.1 HOM 励起によるパワーロス

電子蓄積リングの真空コンポーネントには、HOM による異常発熱や放電、および後続バンチへの HOM の影響を抑制するために、低インピーダンス性が要求される。電子ビームが、あるコンポーネントを通過する際に HOM の励起により失うパワーP[W]は

$$P = kqI = k\frac{I^2}{N_{\text{bunch}} f_{\text{rev}}}$$
(4-12)

で与えられる。ここで、q[C/bunch]はバンチの電荷、*I*[A]はビーム電流値、N_{bunch} はバンチ数、frev [Hz]は周回周 波数である。k[V/C]は(縦方向)ロスファクタと呼ばれ、バンチ長が短くなるほど大きくなるという特徴を持つ。複 雑な形状のコンポーネントに対しては、MAFIA や GdfidL などのシミュレーションコードを用いて、ロスファクタの 計算を行う。

パワーロスの例として、KEK-LS ($f_{rev} = 525 \text{ kHz}$ 、I = 0.5 A) に設置された、あるコンポーネントのロスファクタが 0.1 V/pC のとき、 $N_{bunch} = 952$ のマルチバンチ運転では q = 1.00 nC/bunchとなり、50.0 W のパワーロスが生じると 計算される。

PF-ring の場合と比較すると、マルチバンチ運転では上式の *q* と *I* はともに 10%程度の違いしかないが、 KEK-LS ではバンチ長が約 3 mm であり、PF-ring の約 1/3 になる。このため、同様な形状のコンポーネントでも (アパーチャが異なるので単純には比較できないが)、ロスファクタが大きくなる。

また、仮に KEK-LS において、PF-ring のシングルバンチと同じ時間構造で 70 mA 相当のフォトンフラックスを 供給する場合、周長がほぼ 3 倍なので 3 バンチ運転となる。したがって、I = 70 mA、 $N_{bunch} = 3$ となり、マルチバ ンチ運転時(I = 500 mA、 $N_{bunch} = 952$)に比べて、6.2 倍のパワーロスとなる。ハイブリッド運転では、マルチバン チ部分の寄与もあるため、さらに大きなパワーロスを生じる。

4.4.2 低インピーダンス化対策

ビーム路には、真空封止型アンジュレータの磁石列、ストリップライン型 RF キッカー、ビームコリメータ、放射 光アブソーバ、ゲートバルブ、ベローズ、フランジ、真空ポンプ用ポートなど、段差や突起形状を有する機器が 多く設置されることになる。電子蓄積リングでは、これらすべての機器において、ギャップや段差を RF シールド で隠す、テーパーを用いて緩やかに形状を変化させる、などの対策が不可欠である。

とりわけ、放射線安全の観点からビームロスを局在化させる目的で使用するビームコリメータは、ビーム近傍ま で可動コリメータを挿入して動作させるため、大きなインピーダンス源になりやすい。したがって、β 関数を考慮 した設置位置の最適化はもちろんのこと、構造自体に低インピーダンス化のための充分な対策が求められる。 KEK-LS では、大電流加速器である SuperKEKB において実績のあるコリメータデザイン(図 4.10)を参考にしな がら設計を検討する。



図 4.10 SuperKEKB 用ビームコリメータ[4.23]

また、ベローズ、ゲートバルブなどの可動機構を有する真空コンポーネントは、充分な強度のRFシールドをダクト内面が滑らかに繋がるように配置する必要がある。そのような高性能のRFシールドに関しても、KEKBにおいて櫛歯型のRFシールドが開発されている。TPS光源リングにも採用されており、KEK-LSにおいても、このタイプのRFシールドが一つの候補となる。



図 4.11 SuperKEKB 用櫛歯型 RF シールドゲートバルブ[4.24]

インピーダンス対策が必要な機器のうち、最も数が多いのはビームダクトを繋ぐフランジである。通常の ICF フ ランジでは締結後もフランジ面間にギャップが残るため、PF-ring ではギャップを埋めるためにバネ性を持つ BeCu の RF コンタクトを取り付けている。PF-AR では、ビームダクト断面と同じ形状のヘリコフレックスや中空 Oリ ングを用いて、真空シールと RF シールドを両立させている。また、銅ガスケットが真空シールと RF シールドを兼 ねる特殊フランジとして、SuperKEKB では MO 型フランジが、SACLA では ADESY 型フランジが開発されてい る[4.25, 4.26]。 特殊フランジのもう一つの候補は、cERL で開発されたギャップのないフランジ(ゼロギャップフランジ)である [4.27]。そのシール機構を図 4.12 に示す。



図 4.12 cERL 用ゼロギャップフランジ

このフランジの特徴は以下のとおりである。

- 1) ビームから段差やギャップが見えない
- 2) ICF フランジ同様、2 mm 厚の円形銅ガスケットを使用する
- 3) 90 度のエッジがガスケットに食い込み、良好なシール性能を得る
- 4) 45 度のテーパー部がガスケットをキャプチャして応力を保持することで、ベーキングの繰り返しに よるガスケットの塑性変形を防ぐ
- 5) 円形以外の断面形状ダクトにも対応できる
- 6) ガスケット溝の平滑面を利用すれば、メタル O リングでも使用できる
- ガスケット溝部の真空側にできるエアポケットは、2 つのピンホールを通してビームダクト側に排気 される

締結後に段差をなくすためには、フランジどうしが同心軸上に繋がる必要があり、締結時に外から筒状ジャケットを被せて、フランジの芯を合わせる。このため、同心精度の落ちる回転フランジは使用できず、ボルト穴径を 8.4 mmから10 mmに拡げることで多少の回転誤差を吸収する。非円形ダクトの場合は回転が許容されないので、フランジ外周の上下左右に切り欠きを施し、その面を利用して正確な嵌合を行う。

cERL において、10⁻⁹ Pa 台の超高真空にも対応することが確認されており、また、建設において約 160 か所の 締結でもリークは検出されていないなど、良好な実績を有する。ただし、このフランジは面タッチさせた状態で使 用する必要があるため、ガスケットのフランジへの食い込みが大きく、フランジを切り離す際にガスケットが外れに くいという問題がある。したがって、KEK-LS で採用する場合は、シール部溝形状の最適化が必要でとなる。ま た、KEK-LS では、狭いスペースにも応用できるように、フランジの薄肉化も R&D 項目となる。 4.5 イオントラッピングとダストトラッピング

4.5.1 イオントラッピング

イオントラッピングは、電子ビームが残留気体分子を電離して生じた正イオンが、電子ビームのつくるポテンシャルにトラップされる現象で、チューンシフトや Fast ion instability などのビーム不安定性の要因となる。

イオントラッピングの起こりやすさの判断基準として、トラップされたイオンの横方向の運動に関する安定条件から、イオンの臨界質量を求めることができる[4.28]。横方向のうち、水平方向(x 方向)の運動は偏向電磁石磁場のある場所では縦方向の運動と結合するため、ここでは単純な鉛直方向(y 方向)の運動について考える。

y とyをそれぞれイオンの位置と速度とすれば、速度 βc で通過するバンチからの収束力と、そのバンチ通過後の時間aでのドリフトによるイオンの運動は、近似的に次式で記述される。

$ \begin{pmatrix} y \\ \dot{y} \\ \dot{y} \end{pmatrix}_{1} = \begin{pmatrix} 1 & \tau_{b} \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -a & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} y \\ \dot{y} \end{pmatrix}_{0} $	(4.13)
$= \left(\begin{array}{cc} 1 - \tau_b a & \tau_b \\ -a & 1 \end{array}\right) \left(\begin{array}{c} y \\ \dot{y} \end{array}\right)_0$	(4-13)

ここで、

$$a = \frac{2N_{\rm b}r_{\rm p}c}{\beta\sigma_{\rm y}(\sigma_{\rm x} + \sigma_{\rm y})} \frac{z}{A}$$
(4-14)

はキックパラメータと呼ばれる量であり、 N_b はバンチ内の電子数、 r_p は古典陽子半径(1.535×10⁻¹⁸ m)、 σ_x と σ_y は それぞれ x 方向とy 方向の rms ビームサイズ、z はイオンの価数、A はイオンの質量数である。

バンチの強度と間隔がともに一定(uniform fill)の場合、バンチがm回通過にすることによるイオンの運動は、 上記行列をm回かけることで求められる。そして、その場合でも(y, y)が発散しない、すなわち、行列の固有値の 絶対値が1以下となる安定解を求めると、

$$\left|2 - \tau_{b}a\right| \le 2 \tag{4-15}$$

という条件式を得る。これを、キックパラメータを用いて書き換えれば、イオンの運動に関する安定条件

$$A \ge \frac{N_{\rm b} r_{\rm p} c \tau_{\rm b} z}{2\beta \sigma_{\rm v} (\sigma_{\rm x} + \sigma_{\rm v})} \tag{4-16}$$

が得られる。この右辺を臨界質量(A_c)呼び、その質量以上のイオンが安定にトラップされることになる。表 4.4 に、KEK-LS、PF-ring、PF-ARの3リングでのビームパラメータと、1 価のイオンのトラップに対する A_cを纏めた。

	KEK-LS	PF-ring	PF-AR
周長 [m]	570.7	187.1	377.3
ビーム電流 [mA]	500	450	60
バンチ数	952	312	1
バンチ内電子数, Nb	6.24E+09	5.62E+09	4.71E+11
バンチ間隔, む[s]	2.00E-09	2.00E-09	1.26E-06
x 方向 rms ビームサイズ, σ_x [m]	5.3E-05	4.2E-04	1.6E-03
y 方向 rms ビームサイズ, <i>σ</i> _y [m]	8.6E-06	6.2E-05	1.6E-04
臨界質量, Ac	5.4	0.1	475.7

表 4.4 イオントラッピングに対する臨界質量の比較

PF-ring の *A*。は 0.1 なので全てのガス種がトラップされるのに対し、 PF-AR の場合は a が大きい効果でイオント ラッピングは問題とならない。 KEK-LS の場合、 PF-ring よりビームサイズが小さい効果はあるものの、 *A*。は 5.4 と 計算され、水素やヘリウムはトラップされないが、 それ以外のガス種はトラップされると推察される。

イオントラッピングを抑制するための有効な対策には、1)ビームダクト内の圧力を下げる、2)バンチトレインにギャップを開ける、3)クリアリング電極を設置する、などがある。

PF-ring の運転では、312 バケットに対して 220~280 バンチの partial fill を採用し、バンチ毎フィードバックを 併用することで、イオントラッピングによるビーム不安定性を解決している。リングの改造を行った後の立上げ時、 圧力が 10⁻⁵ Pa 台以上の場合にイオントラッピングが原因と考えられるビーム不安定性が観測されるが、10⁻⁶ Pa 台以下に下がれば解消される。その理由としては、圧力が下がることでイオン生成の頻度が下がり、イオンの捕 獲と消散の均衡が崩れる過程が考えられる。

4.5.2 ダストトラッピング

4.5.2.1 ビーム寿命急落現象

電子蓄積リングには、電子ビームの寿命が突然低下して短時間のうちにビームの一部が失われる現象があ り、その状態が長時間持続するとビームの再入射が必要となる。この現象は正に帯電した微粒子(ダスト)が電子 ビームに捕捉されるダストトラッピングによって引き起こされ、以下に示すような特徴を有する。

- 1) 前触れなくビーム寿命が急落する(低下したビーム寿命と圧力に相関がない)
- 2) ガンマ線がビーム進行方向前方で観測される[4.29, 4.30]
- 3) 正電荷ビーム(陽電子や陽子)を蓄積するリングではビーム寿命急落は起こらないか、起こってもその状態は持続しない[4.30, 4.31]
- 4) 加速器の建設や大規模な改造の直後に比較的多く観測される[4.32, 4.33]
- 5) トラップされたダストは高温状態にあり、発光を視覚的に観測できる[4.34]

ダストトラッピングは、1)および 2)の結果によってユーザー実験に対して多大な影響を及ぼし、PF-ring や PF-AR (TRISTAN AR)でも問題となっていた[4.35, 4.36]。世界の加速器では 1980 年代に第1、第2世代光源

等で多くの観測例が報告されたが[4.30, 4.37]、1990 年代以降に建設された第3世代光源では運転初期を除き、ほとんど観測例が報告されていない。その理由については後節で考察する。

4.5.2.2 ダストの発生源

運転中の観測や人為的な実証実験から、以下に示すような機器がビームに有害なダストの発生源となり得る ことが確かめられている。

- 1) ビーム進行方向に沿って設置された、電磁石磁場を利用する分布型イオンポンプ[4.31, 4.33, 4.35]
- 2) 真空封止型アンジュレータやストリップライン型 RF キッカーなど、インピーダンスの高い構造を有し、ビー ムからの電磁場で放電を起こしやすい機器[4.33, 4.38]
- 3) ビームスクレーパやビームシャッターなど駆動機構を有する機器[4.38, 4.39]

1)および 2)では内部での火花放電(スパーク)により、3)では摺動や振動、衝撃によりダストが発生すると考えられる。特に 2)のように運転に不可欠な機器ではインピーダンスの低い構造にするなど、ダストの発生を抑える対策が必要となる。

上記以外のダスト源として、ビームダクトの製造や設置の際に混入した微粒子が考えられるが、計算上、これ らのダストは正に帯電した場合でも、鏡像電荷による導体ダクトからの引力がビームからの引力に勝り、ダストトラ ッピングには至らないと考えられている[4.38, 4.40]。ただし、ダストがビームダクト内に多く存在することで放電が 起こりやすくなり、これが加速器建設や改造の直後にダストトラッピングが多く観測される原因になっていると考 えられる。したがって、ビームダクトの製造や設置の過程において、可能な限りダストの混入を抑えることが重要 である。

4.5.2.3 力学的に安定なトラップ条件

イオントラッピングと同様に、電子ビームにトラップされたダストは、バンチの周期的な通過によって、ビーム軌 道に transverse 方向に引力を受け続ける。その運動の安定条件から、ダストの臨界質量電荷比(*A*/*z*)。を見積もる ことができる[4.28]。そして、ダストの質量を仮定すれば、ある電荷数以下のものが安定にトラップされることにな る。その条件式はイオントラッピングの臨界質量の式と同じであるが、ダストトラッピングの場合、*A* はダストの総質 量数(総核子数)となる。

例えば、KEK-LSの運転パラメータでは、(A/z)_c=5.4なので、直径1 μ mのチタン球($A = 1.4 \times 10^{12}$)を仮定す れば、電荷数 z として 2.6×10¹¹までの広い範囲の安定条件でトラップされる可能性がある。ただし、実際にはイオ ンの電界蒸発による緩和により、 $z = 10^7$ 程度で電荷平衡に至ると考えられている^[40]。

4.5.2.4 熱的に安定なトラップ条件

ダストはトラップされるとビームからのエネルギー付与によって急激に温度が上昇する。蒸発や分裂によって 瞬時にダストトラッピングが解消されれば、一部のビームが削れるだけの現象として観測される。一方、シリカ (SiO₂)、アルミナ(Al₂O₃)、チタンといった高融点かつ低飽和蒸気圧という熱的に安定なダストがトラップされた 場合は、高温になるに従って熱輻射によるエネルギー放出(冷却効果)が増えるため、熱平衡状態、あるいは準 熱平衡状態に達する。その場合、持続型のビーム寿命急落現象として観測され、ビームがほとんどなくなるまで 数十分以上ダストトラッピングが持続する場合もある。

SPring-8 などの 1990 年代以降に建設された低エミッタンス蓄積リングや、KEKB などの大電流蓄積リングでは、持続型のダストトラッピングは発生していない。これは、ビームのフラックスが大きく(バンチ内電子の密度が高く)、熱平衡が成立する前にダストが蒸発や分裂を起こすためと考えられている。

例えば、1950 K にある直径 0.5 μ m のシリカからの輻射パワーはステファン・ボルツマンの法則から 6.4×10⁻⁷ W となり、この値を上回るために必要なビームフラックスは 1.4×10⁵ A/m² と計算される^[40]。

今、ビーム電流が I、rms ビームサイズが Gx とGy のときのビームフラックスを

$$F = \frac{I}{2\pi\sigma_x\sigma_y} \tag{4-17}$$

と定義し、熱平衡条件を上回る目安である 1.4×10^5 A/m² と比較すると、ビームフラックスが 4.1×10^4 A/m² の PF-AR では実際にダストトラッピングが発生しやすく、 2.8×10^6 A/m² の PF-ring(1997 年高輝度化後)、 5.4×10^6 A/m² の SPring-8、 7.2×10^6 A/m² の KEKB-HER では持続型のダストトラッピングは発生していない。KEK-LS の 場合は、エミッタンスが小さい効果によりビームフラックスが 1.7×10^8 A/m² と極めて高く、瞬間的なビームロスを 除き、ダストトラッピングは問題にならないと考えられる。

参考文献

- [4.1] P. Chiggiato and R. Kersevan, Vacuum 60, 67 (2001).
- [4.2] M. Ady, P. Chiggiato, R. Kersevan, et al., Proceedings of the 6th International Particle Accelerator Conference, Richmond, VA, USA, 2015, pp. 3123-3126.
- [4.3] C. Herbeaux, N. Bechu, and J.-M. Filhol, *Proceedings of the 11th European Particle Accelerator Conference, Genoa, 2008*, pp. 3696-3698.
- [4.4] S. Calatroni, P. Chiggiato, P. C. Pinto, et al., Proceedings of the 4th International Particle Accelerator Conference, Shanghai, China, 2013, pp. 3385-3387.
- [4.5] P. C. Pinto, B. Bartova, B. Holliger, et al., Proceedings of the 6th International Particle Accelerator Conference, Richmond, VA, USA, 2015, pp. 3145-3147.
- [4.6] R. M. Seraphim, O. R. Bagnato, R. O. Ferraz, et al., Proceedings of the 6th International Particle Accelerator Conference, Richmond, VA, USA, 2015, pp. 2744-2746.
- [4.7] N. Yoshimura, H. Hirano, T. Sato, et al., Journal of Vacuum Science & Technology A 9, 2326 (1991).
- [4.8] C. Lea and J. Ball, Applications of Surface Science 17, 344 (1984).
- [4.9] H. Ishimaru, Journal of Vacuum Science & Technology A 2, 1170 (1984).
- [4.10] M. Suemitsu, T. Kaneko, and N. Miyamoto, Journal of Vacuum Science & Technology A 5, 37 (1987).
- [4.11] C. K. Chan, G. Y. Hsiung, C. C. Chang, et al., Journal of Physics: Conference Series 100, 092025 (2008).
- [4.12] H.-C. Hseuh, A. Blednykh, L. Doom, et al., Proceedings of the 2011 Particle Accelerator Conference, New York, NY, USA, 2011, pp. 1244-1246.
- [4.13] E. Trakhtenberg, P. D. Hartog, and G. Wiemerslage, *Proceedings of the 2011 Particle Accelerator Conference, New York, NY, USA, 2011*, pp. 2093-2095.
- [4.14] G. Lanfranco, P. Craievich, D. L. Civita, et al., Proceedings of the 1st International Particle Accelerator Conference, Kyoto, 2010, pp. 3138-3140.
- [4.15] X. Hu and L. Yin, *Proceedings of the 4th International Particle Accelerator Conference, Shanghai, China, 2013*, pp. 2193-2195.
- [4.16] I. C. Sheng, C. K. Kuan, C.T.Chen, et al., Proceedings of the 6th International Particle Accelerator Conference, Richmond, VA, USA, 2015, pp. 3225-3227.
- [4.17] 石川雄一, 土佐正弘, 第55回真空夏季大学テキスト (2015).
- [4.18] M. Oishi, M. Shoji, Y. Okayasu, et al., Journal of the Vacuum Society of Japan 53, 140 (2010).
- [4.19] 飯田博美, 放射線概論 (1994).
- [4.20] N. Hubert, N. Bechu, P. Brunelle, et al., Proceedings of the 2nd International Beam Instrumentation Conference, Oxford, UK, 2013, pp. 644-647.
- [4.21] 末次祐介, OHO'94テキスト (1994).
- [4.22] 中村典雄, OHO'91テキスト (1991).
- [4.23] T. Ishibashi, Y. Suetsugu, and S. Terui, *Proceedings of the 10th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, 2013*, pp. 1191-1195.
- [4.24] Y. Suetsugu, K. Kanazawa, K. Shibata, et al., Journal of Vacuum Science & Technology A 30, 031602 (2012).
- [4.25] Y. Suetsugu, M. Shirai, and M. Ohtsuka, Journal of the Vacuum Society of Japan 58, 150 (2015).
- [4.26] T. Bizen, Journal of the Vacuum Society of Japan 52, 271 (2009).

- [4.27] Y. Tanimoto, S. Asaoka, T. Honda, et al., Proceedings of the 4th International Particle Accelerator Conference, Shanghai, China, 2013, pp. 3315-3317.
- [4.28] Y. Baconnier and G. Brianti, CERN/SPS/80-2 (DI) (1980).
- [4.29] Photon Factory Activity Report 1987, 66 (1988).
- [4.30] P. C. Marin, Rev. Sci. Instrum. 63, 327 (1992).
- [4.31] Q. Qin and Z. Y. Guo, Proceedings of the 2nd Asian Particle Accelerator Conference, Beijing, 2001, pp. 451-453.
- [4.32] F. Pedersen, A. Poncet, and L. Soby, *Proceedings of the 1989 Particle Accelerator Conference, Chicago, IL, 1989*, pp. 1786-1788.
- [4.33] Y. Tanimoto, T. Honda, T. Uchiyama, et al., AIP Conference Proceedings 1234, 595 (2010).
- [4.34] Y. Tanimoto, T. Honda, and S. Sakanaka, Phys. Rev. ST Accel. Beams 12, 110702 (2009).
- [4.35] K. Huke, N. Kajiura, Y. Kamiya, et al., IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-30, 3130 (1983).
- [4.36] H. Saeki, T. Momose, and H. Ishimaru, Rev. Sci. Instrum. 62, 874 (1991).
- [4.37] A. W. Maschke, BNL Heavy Ion Fusion Technical Note 84-1 (1984).
- [4.38] D. Sagan, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 330, 371 (1993).
- [4.39] E. Jones, F. Pedersen, A. Poncet, et al., IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-32, 2218 (1985).
- [4.40] F. Zimmermann, PEP-II AP Note No.: 8-94 (1994).

5 制御システム

5.1 概要

加速器制御の根本となるソフトウェア群には、KEK および諸外国において数多くの実績と開発経験のある EPICS(Experimental Physics and Industrial Control System)を使用する(図 5.1)[5.1]。EPICS はネットワーク3 階 層モデルをベースにした分散型制御フレームワークであり、世界中の加速器研究者によって開発されてきたオ ープンソースソフトウェアである。日本では KEK の B-Factory, Linac, PF-Ring, PF-AR, ATF はもちろんのこと、 J-Parc の制御用ソフトウェアとしても全面的に採用されているほか、愛知シンクロトロンでも使用されている。この ように多くの開発が現在も積極的に行われており、その信頼性と高機能性には定評がある。EPICS を採用するこ とによって既存加速器で使用されてきた様々なソフトウェアを有効活用することができるため、迅速なソフトウェア 開発が可能となる。また、後述する各種ビーム調整など高度な制御を行うことも可能となる。具体的には図 5.1 に 示すように「Channel Access」と呼ばれるネットワーク透過なプロトコルを使うことで遠隔機器をシームレスに操作 するフレームワークである。

ビームライン制御には、やはりPF-Ringや愛知シンクロトロンでの実績のあるSTARS (Simple Transmission and Retrieval System) [5.2] を採用するのが妥当であると考えている。既に EPICS とSTARS との間はゲートウェイを 介して互いに制御可能であるため、いままでの実績のあるソフトウェアを採用することがコストと開発時間の最小 化に大きく貢献する。完全に2つのシステムを分離するのではなく、目的に応じて適材適所のソフトウェア実装を おこなって有機的に連携することが重要である。



図 5.1 EPICS の概念図。EPICS の 3 階層制御モデル(制御層、ネットワーク層、プレゼンテーション層)と Channel Access (CA) によるデータ通信概念を示す。

5.2 ハードウェア構成

従来、加速器制御には VME 計算機とリアルタイム CPU/OS が使用されてくることが多かったが、開発にかか る初期コスト(ハードウェア及びソフトウェア)やメンテナンスコスト、長期間にわたるハードウェア保守の面からは いくらか問題があった。近年では CPU 性能の向上や、PLC (Programmable Logic Controller)の制御速度が向 上したことや、市場にある製品群が充実していること、長期サポートが約束されていることなどを鑑みると従来に 比べるとリアルタイム制御プログラムへの障壁は下がっている。ハードウェア制御の基本としては PLC を採用し、 遠隔制御については FL-Net あるいは EtherCAT 規格での通信が最も有望である。特に高速な制御が必要な部 分には国際リニアコライダー計画でも採用が本命視されているマイクロ TCA ベースのハードウェアを採用するこ とを検討している。マイクロ TCA 規格のハードウェアは既に KEK のコンパクト ERL や STF の LLRF(Low-Level RF)制御ボードでも採用され、すでに実際の加速器制御に供されている。高機能性と高速制御を実現可能なハ ードウェアとして有望である。

加速器モデリングや各種のシミュレーションなど、上位プログラムを稼働させるハードウェアは一般的な Linux サーバ計算機を導入する。これには現在稼働中の PF-Ring の制御サーバをそのまま有効活用できると考えてい る。計算機と各種フィールドバスとの間は高速のネットワーク網が必要である。新リング建設にあたっては基幹部 10 Gbps、エッジ部 1 Gbps クラスの高速ネットワーク網をリング全体に敷設する。将来の高速化に対応するた め、基幹部については 40 Gbps 以上に対応可能な光ファイバーを敷設する。

ネットワークは加速器制御・ビームライン制御・安全系・施設系・オフィス系を分離した構成をとる。なぜなら ば、万が一のトラブルが発生した際に互いに影響の及ぶ範囲を限定しておくことが非常に重要であるためであ る。近年、ネットワーク装置の通信速度は向上しており、適切な Firewall および Gateway 機器を設置して互いの ネットワーク間通信を安定に確保可能である(図 5.2)。



図 5.2 加速器ハードウェアとネットワーク構成図

5.3 Timing

タイミング分配には Microresearch 社の Event Generator/Receiver を採用する。通常の同軸ケーブルでは1 つの信号線で1つの信号しか送ることができないが、このイベントシステムでは 255 パターンの任意イベントを 1 本の光ファイバーで送信できるため、例えば入射タイミングやキッカー・セプタムのトリガ信号など、複数の信号 線を1本で伝送可能となる。同じ機能をもつモジュールは中国の上海放射光源制御グループでも開発されてお り、MRF 社にはない高精度タイミングやイベントの上位伝送などの機能を追加した互換ハードウェアが入手可能 である。MRF 社の製品では VME 計算機が必須であったが、PLC でも使用可能なレシーバモジュールも開発し ている。今後も要望に応じて共同研究・開発をすることが期待できる。

前述のイベントシステムは多機能である一方、高精度のタイミング信号を低ジッターで伝送するには適していない。そこで時間ジッターが1~数 ps 程度以下の精度が要請される部分には低ジッター分周器を開発している。これらの信号伝送にはリング建物を建設する時に温度安定化光ファイバーをリング各所に分配・配線する。現実的な範囲で伝送経路は断熱および温度安定化を施すことが求められる。

5.4 High Level Application / GUI

上位プログラムとしては KEK で長年にわたって開発されてきた SAD(Strategic Accelerator Design) [5.3]を使 用する。SAD は加速器の光学設計(オプティクス計算)はもちろんのこと、各種の線形および非線形ビームシミュ レーションやビーム制御にも使用できるため、TRISTAN をはじめとして多くの加速器の設計からコミッショニン グ、そして性能向上に大きく貢献してきた。多くのソフトウェア資産を有効活用することが可能である。

加速器制御には、軌道計算には直接関係しない制御パネルも多く必用である。例えば単に電源の On/Off 操 作やステータス確認の表示などである。これらの GUI 作成には EPICS のツールキットである CSS (Control System Studio) を採用する(図 5.3) [5.4]。CSS は Java 言語をベースにした統合開発環境の1つであり、OPI 画 面作成、アラーム表示・管理、保存データ参照など多くの機能を実装した開発プラットホームである。従来、これ らのソフトウェア群は完全に独立のプログラムであったのに対し、CSS ではプラグイン機構によって複数プログラ ムを有機的に連携させることが可能となり、加速器制御の利便性向上に役立っている。最近ではコンパクト ERL の制御ツールとして多く活用されている。

このほか、スクリプト言語としてオープンソースソフトウェアである python を積極的に活用する。機器制御やデータ解析などに既に多く使用されており、既存のソフトウェア資産として活用可能である。



図 5.3 CSS の例

5.5 Archiver と運転ログ

加速器運転パラメータをはじめとする各種のデータを保存することは効率的な加速器立ち上げやビーム調整 を実現するために特に重要である。データは出来る限り多く・高速に保存しておき、取り出し時間が短いことが理 想ではあるが現実的なハードウェアの制約により調整が困難な部分でもある。

短時間(現在値~数日間を目安)の高速データ保存と取り出しにはSSDをはじめとする高速ストレージを使用 し、それよりも長期間のデータは通常のハードディスクをベースにしたデータ保存を行う。リレーショナルデータ ベースは多機能ではあるが、単に時系列のログデータを追記していくような保存形態にはあまり適しているとは 言えない。しかし、多くのクライアント環境にに対応していることや通信が標準化されていることなど多くのメリット もある。そこで短期間保存にはRDBを使用し、長期間保存にはファイル追記型の Channel Archiver を使用す る(図 5.4)。これは EPICS ソフトウェアの1つであり、Kay Kasemir 氏によって開発されている。日本では PF, Linac, J-Parc などでメインのアーカイブとして採用実績があり信頼性も十分である。

RDB Archive および Channel Archiver いずれのバックエンドも前述の CSS 環境からデータ取り出しと表示 が可能である。時系列およびデータの Zoom In/Out, pan など直観的に操作可能な環境である。2つのアーカイ ブバックエンドを目的によって使い分けることでユーザーからみるとストレスの無いデータ取り出し環境を容易に 構築可能である。

運転記録用の電子ログが恐らく必須となる。それについては、既存ソフトウェアを活用する。ZLog が主に KEKB加速器用に開発され、現在利用されている。SuperKEKBでも使用予定であり、今後の機能追加も検討さ れている。

また、中央制御室の大きさについては、それほど大きい必要は無いと思われる。



図 5.4 CSS Archiver 取り出し例
5.6 安全系

安全管理システムは大別すると人間個人の安全管理(Personnel Protection System, PPS)とハードウェアの機器保護(Machine Protection System, MPS)とに分類できる。本節では主として PPS に関する設計指針について記載する。詳細設計や実装方法については将来の DDR (Detailed Design Report)にて報告する。

PPS が担保すべきもっとも重要な項目は放射線安全管理である。このほかにも広義には高圧ガス安全、高電 圧安全、レーザー安全、個別機器のインターロックなどなども含まれるが、これらについてはKEKの安全ガイド ブックに詳細な記述があるのでこれに準拠することが必須である。どの安全項目に関しても安全教育と意識の徹 底が極めて重要である。過去に発生した事故事例に学ぶとこや、法令で定められている講習会以外にも一般安 全に関する講習と、そのレビューが重要となる。Web などによるオンライントレーニングと試験も導入すべき。しか しこのような対策のみではヒューマンエラーを完全に無くすことは不可能である。むしろ事故を未然に防止する、 あるいは被害を拡大させないため、人間同士のコミュニケーション:すなわち安全文化の醸成に努めることが求 められる。このような意識は加速器の設計段階から運転にいたるまで、常に念頭におくべきである。そして装置 やシステム設計を行う部署とは別に設計や各種業務の適正を確保するための体制を構築・運用することが必要 である。

そのほかに、パーソナルキーを使用した入退出管理、安全装置の2重化、Fail Safe 側設定の必要性、放射線 計測システムとの連携、インターロック、カメラによる監視システムなども必要だと思われる。

今後、Detailed Design Report (DDR)に向け、

マニュアル整備の検討:常に最新情報に更新し周知する。運転マニュアル、安全マニュアルなど。異常時(火災、地震など含む)の対応を整備し、フローチャートを作成する。特にトラブルの拡大を防止するためには実験 機器や周辺環境が異常かどうかの判断基準を明確にすることが重要である。また外部組織によるレビューには このような安全関係も含める必要がある。

マシンプロテクション系の検討:アボートシステムの必要性についても検討が必要であろう。従来の光源加速 器では特にビームダンプが無くても問題なかったが、放射光パワーが集中する新光源では、真空や挿入光源保 護の為に必要になることがあるかも知れない。

などについて検討を進める予定である。

5.7 情報共有・プロジェクト管理

加速器建設にあたっては多くの人々が関わることになる。研究者・技術者・企業関係者などの間での情報共 有は、プロジェクトを円滑に進めるうえで重要である。スペックだけ決めて企業に発注すれば出来上がるような製 品とは異なり、高度な加速器コンポーネントの設計や製作はいわゆる「人月」による見積が困難な面が多く存在 する。市販のプロジェクト管理ツールなどはあるが、加速器の設計と建設、コミッショニングに特化したものは存 在しない。DESY で建設中のEuro-FEL では MSPE(Microsoft Project Enterprise)や EDMS (Engineering Data Management System),の活用などもなされているが上層部と現場との乖離も指摘されている。

現実的にはwikiのような情報ページと、NASやCloud上の共有フォルダ、定例の報告などが重要で、打ち合わせのメモの整理、情報の交通整理に専任する人を割り当てることが望ましい。全体像をつかむことが難しい。 全文検索は特に重要。

専門性が高い事項に関して、設計や検討に時間がかかり、また時間が予測できない

この分野の議論や経験の報告はPACやICALEPCSなど国際学会でも報告されているが、いずれの組織でもできる限りプロジェクトの初期段階でツールの選定と共有、そして意思疎通をおこなうことが重要という結論が挙 げられている。

また、今後はセキュリティ管理(情報セキュリティ)についても考える必要性があるかも知れない。

参考文献

- [5.1] EPICS http://www.aps.anl.gov/epics/
- [5.2] STARS http://stars.kek.jp/
- [5.3] SAD http://acc-physics.kek.jp/SAD
- [5.4] CSS http://controlsystemstudio.org/

参考資料

- 制御システム
- * DESY XFEL : http://icalepcs.synchrotron.org.au/talks/moa3o02_talk.pdf

安全関連

- * J-Parc 報告: https://j-parc.jp/HDAccident/images/HDAccident20141029_02-3.pdf
- * ヒューマンエラー:https://staff.aist.go.jp/toru-nakata/index-j.html
- * cERL 安全: http://pfconrg07.kek.jp:8082/trac/cerl/wiki/facility

プロジェクトマネージメント

- $*\ http://accelconf.web.cern.ch/AccelConf/ICALEPCS2013/papers/tucobab04.pdf$
- * http://accelconf.web.cern.ch/AccelConf/PAC2009/papers/th1pbi04.pdf
- * http://accelconf.web.cern.ch/AccelConf/icalepcs2009/papers/tup048.pdf
- * DESY XFEL : http://accelconf.web.cern.ch/AccelConf/e08/papers/tupd030.pdf

6 診断システム

6.1 はじめに

新リングのコミッショニングをスムーズに進め、安定なユーザー運転を早期に実現するためには、蓄積ビームの様々なパラメータを精密に測定し得るビーム診断機器の存在が欠かせない。特に、ビームサイズが数ミクロンに及ぶ新リングでは、ビーム軌道の位置と角度の時間変動をサブミクロン以下のオーダーまで抑制することが必須であり、その実現には高精度のビーム位置モニターと高速で動作する補正電磁石を組み合わせた軌道フィードバックシステムが重要となる。コスト削減のため、現有の PF リングや PF-AR 用の機器で新リングにおいても利用可能なものは、できる限り再利用することを検討する。また、新しく調達・開発すべきものについても、必要とされる性能や信頼性の高さに加え、導入にかかるコストや期間等も考慮して慎重に選定する。

6.2 ビーム位置モニター(BPM)

蓄積ビームの軌道を制御する上で中心となる BPM は、入射セルに 11 台、ノーマルセルに 10 台設置される 予定である。1 周 20 セルから構成される蓄積リングを想定すると、BPM の総数は 201 台となる。図 6.1 にバンチ 内散乱を無視した場合のノーマルセル 1 セルにおけるビームサイズの変化、及び BPM の設置予定位置を示 す。これらのうち、長直線部の前後(#1 と#10)と短直線部の前後(#5 と#6)に位置する4台の BPM は、各挿入光 源ビームラインにおける光軸の精密調整にも利用される。



図 6.1 ビームサイズと BPM 位置。ノーマルセル 1 セルにおけるビームサイズを実線(青が水平・左軸、赤が垂直・右軸)で示し、BPM 設置予定位置を縦の破線で示す。

BPM ダクトの断面形状についてはまだ暫定的であるが、現状では内径 24 mmの円形を予定している。このダ クト内を伝わる最低次の導波管モードは TE₁₁モードであり、そのカットオフ周波数は 7.32 GHz となる。電極には 予定されている蓄積ビームのバンチ長を目安に直径 4 mmのボタン型電極を採用し、放射光の直撃を避けるた め上下左右から 45°回転させた位置に 4 電極を配置する。電極の厚みと電極~ダクト間の距離は、物理的強 度や工作精度、マルチパクタ放電の発生閾値等を考慮して、それぞれ 2 mm と 0.5 mm に設定する。この場合、 電極とダクト間に生じる静電容量は 0.5 pF 程度となる。図 6.2 にこの BPM の模式図を示す。



電荷 1 pC、バンチ長 4 mm (RMS) のガウシアンビームがダクト中心を通過したときの出力信号とその周波数ス ペクトルを図 6.3 に示す。ビーム位置計算に使用する 500 MHz 成分の信号レベルはおよそ-76 dBm であり、100 mA (~200 pC/bunch)の蓄積電流に対して-30 dBm 程度の出力を期待できる。これは、途中の同軸ケーブルに よる減衰量を考慮しても後述する信号処理回路の入力レベルとして十分である。ただし、この計算ではフィード スルーを考慮していない。フィードスルーの材質や詳細構造は、高周波信号の通過特性や出力信号の時間応 答、ビーム結合インピーダンス等を考慮して決定される。



図 6.3 ボタン型電極の出力信号とそのスペクトル(CST Particle Studio[6.1]で計算)

図 6.4(a)は、ビームの通過位置を1 mm ずつ水平方向(鉛直方向)へずらしていったときに、各電極の出力信号の振幅 *V*₁, *V*₂, *V*₃, *V*₄(定義は図2を参照のこと)から次式で定義される *U*(*V*)をプロットしたものである。

$$U = \frac{V_1 + V_4 - (V_2 + V_3)}{V_1 + V_2 + V_3 + V_4}, \qquad V = \frac{V_1 + V_2 - (V_3 + V_4)}{V_1 + V_2 + V_3 + V_4}$$

ダクトの中心付近におけるビームの重心位置 X, Yは、これら U, Vの値にそれぞれの感度係数 k_x, k_yをかける ことによって得られる。

$$X = k_x \cdot U, \qquad Y = k_y \cdot V$$

図 6.2 のような電極配置の場合、その対称性から $k_x = k_y$ となる。図 6.4(a)のグラフを直線でフィットし、その傾き の逆数からこの BPM における感度係数を見積ると、およそ 8.9(単位は mm)となる。この係数を使って計算した ビーム位置と実際のビーム位置を横方向面内で重ねてプロットしたものを図 6.4(b)に示す。これらの図から、実 際のビーム位置に対して U, V が線形に応答する範囲は、ダクト中心から±3 mm 程度の範囲であることが分か る。それ以上の範囲では UとVの多項式で定義された感度曲線が使用される。



図 6.4 BPM のマッピング結果 (a)水平軸上 (b)横方向面内

BPM の位置分解能を示す例として、最小ビームサイズの 1/10、すなわち 0.4 μ m のビーム変位に対する SN 比を計算してみる。このときの U(V)の変化は上式より 4.5×10⁻⁵と見積られ、100 mA 蓄積時の出力変化に換算 すると-117 dBm となる。一方、信号処理回路で生じる熱的なノイズ電圧 U_{noise} は次式から評価できる。

$$U_{\rm noise} = \sqrt{4k_{\rm B}TR\Delta f}$$

ここで、 k_B はボルツマン定数、Tは温度、Rはインピーダンス、 Δf は信号処理の帯域幅である。今、室温(298 K)で管理された 50 Ω の回路を想定し、10 kHz の帯域幅で処理した場合を考えると、ノイズフロアは-128 dBm と

なる。したがって、100 mA 蓄積時には 0.4 μm のビーム変位を 11 dB の SN 比で検出可能であることが分かる。 定格の 500 mA では 25 dB まで改善する。

6.3 BPM 信号処理回路

現在稼働中の PF リングでは、全 65 台の BPM に対して 12 台の信号処理回路を使用しており、各電極並び に各 BPM からの信号を半導体スイッチで切り替えながら順次処理している[6.2]。複数の BPM で同じ回路を共 用するこのような切り替え方式は、蓄積電流や温度に対する依存性が比較的小さいという利点を持つが、処理 速度については高速なものでも数 10 Hz 程度に制限されてしまう。この処理速度は後述する軌道フィードバック の有効帯域と比例関係にあるため、より速い軌道変動まで抑制するためには各電極からの信号をできるだけ並 列に処理することが求められる。そこで、新リングでは BPM と同数の信号処理回路を導入する。

その候補としては、PF-AR や各国の蓄積リング型光源で実績のある Libera Brilliance+(Instrumentation Technologies, 以下 Libera) が挙げられる[6.3]。 Libera は BPM の信号処理に特化された市販のデジタル信号処 理回路で、各電極から入力された4信号を独立した4系統の回路で並列に処理する。図 6.5 に Libera の外観と 処理回路のブロック図を示す。アナログのフロントエンド回路は、帯域幅 10 MHz のバンドパスフィルター(BPF) とRF アンプ、可変減衰器から構成されており、BPM の生信号からビーム位置計算に使用する周波数成分を抜 き出して後続のADCへ入力するのに最適な信号レベルに調節する。このアナログ回路の前後にはクロスバース イッチが設けられており、4系統の回路を時間的にシャッフルすることで回路間の個体差を軽減している。高速 の ADC(130 MS/s, 16 bit) でデジタル化された信号は、FPGA 上のデジタルダウンコンバータ(DDC) でビームの 周回周波数までダウンコンバートされ、さらに後続のデジタルフィルターを通じて平均化される。このような一連 の信号処理により、Libera からは ADC のサンプリング周波数 (ADC rate, ~117 MHz)、ビームの周回周波数 (TBT, ~1 MHz)、短時間平均(FA, 10 kHz)、長時間平均(SA, 10 Hz)という4つの異なる帯域幅で処理された データが同時に出力される。ビーム位置の分解能は、入力信号レベルを-20 dBm、周回周波数を 300 kHz、感 度係数を 10 mm と仮定すると、TBT データで最高 0.35 µm(RMS)、FA データで 0.07 µm(RMS)となっており、 いずれの場合も目標であるサブミクロン以下のオーダーを達成している。また、Libera は複数の制御システムに 対応しており、新リングで採用される EPICS[6.4]からも容易に制御することができる。もし Libera を採用しない場 合でも、最新のデジタル技術を駆使すれば同等の性能を持った信号処理回路を開発できると考えている。







6.4 軌道フィードバック

冒頭でも述べたとおり、最小のビームサイズが数ミクロンに及ぶ新リングでは、その 10%に当たるサブミクロン 以下の軌道安定度が必要である。軌道変動の周期はその要因によって異なり、自然環境に起因する比較的ゆ っくりとした変動からビーム起因の速い変動まで様々である。主なものとしては

- ・自然環境に由来するもの:気温変動,潮汐力,日照による建屋の歪み,風波等
- ・実験環境に由来するもの:空調,冷却水,交通振動,機械振動,電源ノイズ等
- ・ビームに由来するもの:挿入光源ギャップ変更、入射振動、シンクロトロン振動、ベータトロン振動、ビーム不安定等

が挙げられる。特に、関東平野では地盤を形成する関東ローム層の固有振動(~3 Hz)の影響が大きく、関西地 方よりも床振動の累積変位が大きくなる傾向がある。例えば、KEK のつくばサイトに建設された ERL 開発棟で は、0.7 Hz~100 Hzの帯域で水平・鉛直方向とも0.1 µm 程度の累積変位が観測されている(9.3 「建物床の振動 測定」参照)。これは関西に立地する SPring-8 と比較すると1桁程度大きな値である。このような床振動は、床を 支える杭を地下の硬い岩盤まで打ち込む等すればある程度軽減できるが、つくばの地表から岩盤まではおよそ 300 m と深く、現実的ではない。そこで重要になってくるのは、この床振動を電磁石架台を通じて増幅させないこ とである。そのためには架台の固有振動数ができるだけ高くなるよう設計するのが有効であり、これによりビーム の軌道変動に直結する電磁石の振動を最小限に抑えることができる。

以上のような床振動対策を施した上で、BPM と計算機、補正電磁石を組み合わせた高速軌道フィードバック システムを導入する。利用できるBPMの最大数は201台、補正電磁石は水平161台、垂直121台である。BPM の測定データには10 kHzの帯域幅で測定したFAデータを使用し、高速のデータリンクを介してリング1周に渡 るグローバルなフィードバックシステムを構築する。上述したLiberaには、拡張機能としてこのような複数台のグ ルーピングを想定したGDX (Gigabit Data eXchange)モジュールも用意されている。フィードバックの有効帯域と しては、10 kHzのフィードバック周期から考えて100 Hz~200 Hz 程度を目標とする。最近 BNL に建設された NSLS-II の例を見ると、床振動はつくばサイトとほぼ同じレベル (75 nm)でありながら、それをほぼ増幅しないよう 設計された電磁石架台とLibera 相当の信号処理回路を用いた高速軌道フィードバックによって、およそ100 Hz のフィードバック帯域を実現している[6.5]。ビームサイズに対する軌道変動は、水平方向で1%、鉛直方向で5% 程度に抑えられており、新リングで目標としている軌道安定度を十分クリアしている。ミリ秒のオーダーより速い周 期を持つビーム不安定等による変動は、別途個別バンチフィードバックを導入することで抑制する。逆に、気温 の季節変化や潮汐力等による月単位のゆっくりとした変動は、定期的な光軸確認によって補正する。一方、リン グの場所によって周期が異なるインコヒーレントな振動はこのようなグローバルフィードバックでは抑えらず、見か け上のビームサイズ増大につながる。よって、将来的にはセルごとに独立したローカルフィードバックの導入を検 討し、ビームラインも含めた更なる軌道安定化を目指す。

6.5 個別バンチフィードバック

2.11「抵抗性インピーダンスの影響」で述べられたように、長尺の真空封止型アンジュレータが多数設置される 新リングでは、加速空洞の高次モードだけでなくアンジュレータギャップで生じる横方向の抵抗性インピーダンス によりバンチ結合型のビーム不安定性が発生すると予測されている。また、ダクト内の真空度やリングのフィルパ ターンによっては、イオントラッピング現象に起因するビーム不安定も懸念される[6.6]。したがって、ビームを定 格の 500 mA まで安定に蓄積し、目標としている高い軌道安定度を実現するためには、バンチごとに振動を検 出してそれらを個別に減衰させることができる個別バンチフィードバックの導入が不可欠である。

個別バンチフィードバックシステムは、各バンチの重心振動を独立に検出するための高速位置検出部、得られた位置情報からフィードバックに必要な信号を計算して適切なタイミングで出力するための信号処理回路、その信号を増幅して実際にビームを蹴り戻すためのキッカー部から構成される。バンチの振動検出には、上述したボタン電極型 BPM を使用する。この場合の位置計算には、BPM の感度とダクトのカットオフ周波数を考慮して3 GHz 成分(RF 周波数の 6 倍)を用いる予定である。4電極の生信号からこの周波数成分をコムフィルター等の BPF により抽出し、複数のハイブリッド合成器を用いて各方向のビーム変位に比例する高周波信号に変換した後、同期検波で位置情報とする。信号処理回路には、KEK-SLAC-INFN 間で共同開発された高速デジタルフィルター"iGp(Integrated Gigasample Processor)"を使用する[6.7]。この回路でフィードバックに不要な信号成分の除去や位相シフト、1ターン遅延等の信号処理を行い、広帯域のパワーアンプで増幅後にキッカーへ伝送する。キッカーは振動検出に使用した BPM からフェイズアドバンスがおよそ 90°進んだ場所に設置する。このシステムは現在 PF リングで運用しているものとほぼ同じ構成となることから、ハードウェアだけでなく詳細設計のノウハウ等も多分に流用できる。参考のため、図 6.6 に PF リングで稼働中の横方向個別バンチフィードバックシステムのブロック図を示す。



図 6.6 PF リングの横方向個別バンチフィードバックシステムのブロック図[6.8]

横方向キッカーにはストリップライン型のキッカーを採用し、水平方向用と鉛直方向用の2台を設ける予定である。予測されているバンチ結合型不安定性の成長率が最大で $1.8 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$ 程度であることから、少なくとも 50 μ s以下の減衰時間を実現しなくてはならない。フィードバックによる振動の減衰時間を τ とすると、ビーム軌道上に必要なキック電圧 V_{\perp} は

$$V_{\perp} = 2 \quad \frac{T_{\rm rev}}{\tau} \quad \frac{E}{e} \quad \frac{x_{\rm max}}{\sqrt{\beta_{\rm m}\beta_{\rm k}}}$$

で与えられる。ここで、*T*_{rev}はビームの周回時間、*E*はエネルギー、*x*_{max}は振動の最大振幅、β_mとβ_kはそれぞれ BPM とキッカーの位置でのベータトロン関数である。ベータトロン関数をいずれも6 m と仮定した場合、最大

振幅 0.5 mm の振動を 50 μs の時定数で減衰させるためには、およそ 14.7 kV のキック電圧が必要であることが 分かる。仮に最大出力が 1000 W (500 W×2台)の広帯域アンプを使用したとすると、キッカーに求められるシャ ントインピーダンスは 108 kΩとなる。一方、対向する 2 枚のストリップライン電極からなる単純な横方向キッカーの 場合、シャントインピーダンス *R*_は解析的に次式で表される。

$$R_{\perp} = 2Z_0 \left(\frac{2g_{\perp}L}{d}\right)^2 \left(\frac{\sin kL}{kL}\right)^2, \qquad g_{\perp} = \tanh\left(\frac{\pi w}{2d}\right)$$

ここで、Z₀はストリップライン電極の特性インピーダンス、Lは進行方向の長さ、wは横方向の幅、dは対向電極 までの距離、kは入力する高周波電力の波数である。今、幅 20 mmの電極をダクト中心から 10 mmの位置に配 置したキッカーを想定すると(見込み角 90°)、シャントインピーダンスの周波数特性は図 6.7 のようになる。この 図から分かるように、キッカーのシャントインピーダンスは電極が長い程大きくなるが、帯域幅は狭くなる。個々の バンチを異なる極性と強さで蹴るためには最大 250 MHzの帯域幅が必要であり、電極長はバンチの間隔、すな わち 60 cmを超えてはならない。これらの条件を基に 100 MHz 以下の帯域で 100 kΩ以上のシャントインピーダ ンスが得られることを目標にすると、図7より電極長は 40 cm 程度に選ぶべきことが分かる。各電極とダクト間の距 離は、反射波を抑えるため特性インピーダンスが 50 Ωになるよう設定する。そうするとキッカーダクトは通常のダ クトより内径が大きくなると考えられるので、キッカーダクトの両端にはそれらを滑らかに繋ぐテーパー管を設置す る。テーパー部分の長さはビーム結合インピーダンスやロスファクターを考慮して決定する。



図 6.7 ストリップラインキッカーのシャントインピーダンスの周波数特性

ビーム進行方向のフィードバックシステムも横方向と同様の構成となるが、キッカーは DAFNE タイプの空洞型 キッカーとなり、QPSK 変調器を用いてビームとの同期を図る。空洞の中心周波数は、ビームローディングを避け るため 1.125 GHz(RF 周波数の 2.25 倍)とし、帯域幅は 250 MHz とする。図 6.8 に PF リング用進行方向個別バ ンチフィードバックシステムのブロック図と空洞型キッカーの構造図を示す。



図 6.8 PF リングの進行方向個別バンチフィードバックシステムのブロック図と、空洞型キッカーの概念図[6.9]

6.6 放射光モニター

高いビーム安定度を求められる新リングにおいて、ビームを非破壊で精密に観測できる放射光モニターは強 カなツールとなる。偏向電磁石を光源とするビームラインのうち、少なくとも2本をビーム診断に利用する。ひとつ は可視光用で、水冷式のベリリウムミラーにより放射光に含まれる可視光成分を大気中へ取り出し、専用の暗室 へと導く。光の転送ラインで使用する真空窓や中継ミラーには、後述する放射光干渉計の測定限界を下げるた め大口径かつ高面精度のものを使用し、途中の光路は気密パイプで覆うことにより気流の影響を抑える。適切 に温度管理した暗室内では複数のビームスプリッターを用いて光を分割し、主に次の測定機器へ分配して利用 する。

- (1) 可視光イメージングによるビームプロファイルモニター
- (2) 放射光干涉計
- (3) ストリークカメラ
- (4) 高速ゲートカメラ

(1)は長焦点の望遠レンズ等を用いて放射光を高感度 CCD カメラの受光面に結像し、ビームの横方向断面 における2次元プロファイルを光学的に観測するものである。光の回折効果によりその空間分解能は 50 µm 程 度に制限されるが、ビーム強度やビームサイズの変動をリアルタイムで視覚的に確認できるため、新リングにお いても蓄積ビームの常時モニターとして有用である。ビームサイズの絶対値測定には、(2)の放射光干渉計を使 用する[6.10]。これはダブルスリットを通過した光が作る干渉縞のコントラストから光源点の大きさを評価するもの で、上記のような結像法の測定限界よりも小さなビームサイズまで測定可能である。ただし、新リングで予定され ている数 µmのビームサイズを十分な分解能で測定するためには、干渉計を構成する光学素子の分散をできる だけ小さく抑えなければならない。そこで、新リングでは従来の屈折光学系ではなく、分散の影響を受けない反 射光学系による干渉計を採用する。図 6.9 にそのレイアウトを示す。このような反射式干渉計は PF リングや KEK-ATF のダンピングリング、Australian Synchrotron (ASLS)等で実績があり、特に ASLS ではダブルスリットへ の入射光量を意図的にアンバランスにすることで CCD ノイズの影響を軽減し、3 µm 以下のビームサイズまで測 定できる可能性を示した[6.11]。計測すべきビームサイズが非常に小さいため、ベリリウムミラー本体や転送ライ ン、暗室の機械的振動を極力避ける設計も重要となる。真空窓の直後には、ベリリウムミラーの熱変形の影響を 校正するためのハルトマンスクリーンを設置する。



蓄積ビームのバンチ長は(3)のストリークカメラで測定する(浜松ホトニクス, C5680)。バンチトレインに沿った バンチ長の時間変化も観測できるよう、ビームの繰り返し周波数に同期するシンクロスキャンユニット(M5675)と 水平掃引を可能にする2時間軸拡張ユニット(M5679)を組み合わせて使用する。新リングとPFリングでは RF 周 波数がほぼ同じであるため、現在 PF リングで使用しているものをそのまま流用できる。最速の掃引レンジにおけ る時間分解能は 2 ps 以下 (FWHM)と現行の汎用モデル (C10910,時間分解能: 1 ps 以下)よりは劣るが、新リン グでのバンチ長は高調波空洞を使用しない場合でも 24 ps 程度 (FWHM)であるので十分な性能と言える。色収 差による時間分解能の悪化を避けるため、放射光を光電面に結像する際の入力光学系にはオフナー式の反射 光学系を使用する[6.12]。(4)は高感度のイメージインテンシファイア(浜松ホトニクス, C4078-01,以下 I.I.)を備 えた CCD カメラで、I.I.を構成する光電面とMCP の間に負極性のパルス電圧を印加することで最短 3 ns の高速 ゲート動作が可能である。ビーム不安定性や入射に伴うビーム振動の様子をバンチトレインの任意の場所で観 測するのに使用する。また、入射ビームからの微弱な放射光でもターン毎に捉えることができるので、入射機器 の最適化やコミッショニング初期のビーム調整にも有用である[6.13, 6.14]。なお、最初のベリリウムミラーを透過 した X 線はビームライン下流の実験ハッチ内へ導き、アバランシェ・フォトダイオード(APD)を用いたバンチ純度 モニターに利用する[6.15]。

もうひとつの診断用ビームラインには、X線領域の放射光を利用したビームプロファイルモニターを設置する。 X線は可視光よりも回折限界が小さいため、より高分解能なビームプロファイルを得ることができる。この波長領域での結像素子としてはピンホールや屈折レンズ等いくつか考えられるが、現状ではフレネルゾーンプレート (FZP)を第一候補として考えている。FZPとはX線を透過させる間隙輪帯とブロックする物質輪帯とを交互に同心円状に並べた回折光学素子で、間隙輪帯を透過したX線が焦点面で互いに同位相で干渉するよう作られているため結像が可能となる。薄いベリリウム窓を介してビームラインに取り出されたX線は、回折の波長依存性による色収差の影響を抑えるため結晶分光器で単色化されてからFZPに照射される。1枚のFZPによる縮小光学系では検出器側に過度の空間分解能が要求されるため、2枚のFZPを用いて数10倍程度の倍率を持つ拡大光学系を構築する。焦点面にX線CCDカメラを設置すれば、2次元の電子ビームプロファイルをほぼリアルタイムで観測できる。この画像を解析して得られる横方向のビームサイズと傾きは、蓄積ビームのエミッタンスとその結合比の常時モニター等に利用される。大気によるX線の吸収を抑えるため、ベリリウム窓以降のビームライン は10⁻³ Pa程度の高真空に保つ必要がある。また、可視光ラインと同様、各光学機器を乗せる架台の振動対策やアライメントが重要となる。KEK-ATFのダンピングリングでは、上記の構成でサブミクロンレベルの空間分解能を持つX線ビームプロファイルモニターを開発し、6μm以下のビームサイズ測定に成功している[6.16]。 6.7 その他のモニター

蓄積ビームのフィルパターンは壁電流モニター、あるいは高速電流トランス(FCT)を用いて測定する。BPMの 4電極の和信号よりもビーム位置やバンチ長に対する依存性が小さく、より正確にバンチ電荷に比例した大きさ の信号を得ることができる。得られた個々のバンチ電荷の情報は入射バケット選択システムに送られ、マルチバ ンチフィルの平滑化やハイブリッドフィルの維持に利用される[6.17]。蓄積電流の測定には、PFリングをはじめ多 くの加速器で実績のある Bergoz 社製の直流電流トランス(DCCT)を用いる[6.18]。FCT 及び DCCT の心臓部で あるトロイダルコアは、ビームダクトに設けたセラミックブレークの近くに設置し、RF ノイズや周辺磁場をシールド するための専用筐体で覆う必要がある。ビームロスの検出には光ファイバーを用いた高速ロスモニターを採用す る[6.19]。これは大口径の光ファイバーをリング全周のビームダクトに沿って敷設しておき、ビームロスで生じた高 エネルギーの2次電子がファイバー内を通過したときに放出されるチェレンコフ光をファイバー端に取り付けた光 電子増倍管で検出するものである。ビームの損失量をリアルタイムで把握できるだけでなく、信号の時間構造を 解析すればおおよそのロスポイントも判断できる。補助的なロスモニターとして、市販の PINフォトダイオードの利 用も考えている。これらは PF リングやコンパクト ERL の運転で十分な使用実績がある。 参考文献

- [6.1] https://www.cst.com/Products/CSTPS
- [6.2] T. Obina et al., "Global Feedback System for Photon Factory Storage Ring", in Proceedings of EPAC98, Stockholm, 1998, pp. 1726.
- [6.3] http://www.i-tech.si/accelerators-instrumentation/libera-brilliance-plus
- [6.4] http://www.aps.anl.gov/epics
- [6.5] W.X. Cheng et al., "Characterization of NSLS2 Storage Ring Beam Orbit Stability", in Proceedings of IBIC2015, Melbourne, 2015, THALA02.
- [6.6] W.X. Cheng, "NSLS2 Transverse Feedback System Design", in Proceedings of BIW10, Santa Fe, 2010, pp. 473.
- [6.7] http://www.dimtel.com/products/igp
- [6.8] R. Takai et al., "Bunch by Bunch Feedback System using iGp at KEK-PF", in Proceedings of DIPAC09, Basel, 2009, pp. 59.
- [6.9] T. Obina et al., "Suppression of Longitudinal Coupled-bunch Instabilities at the KEK-PF", in Proceedings of BIW08, Tahoe City, 2008, pp. 120.
- [6.10] T. Mitsuhashi, "Spatial Coherency of the Synchrotron Radiation at the Visible Light Region and its Application for the Electron Beam Profile Measurement", in Proceedings of PAC97, Vancouver, 1997, pp. 766.
- [6.11] M.J. Boland et al., "Intensity Imbalance Optical Interferometer Beam Size Monitor", in Proceedings of IBIC2012, Tsukuba, 2012, pp. 566.
- [6.12] T. Obina and T. Mitsuhashi, "Measurement of Bunch Lengthening Effects Using a Streak Camera with Reflective Optics", in Proceedings of DIPAC07, Venice, 2007, pp. 256.
- [6.13] A. Ueda et al., "Investigation of Injection for the Low-emittance Lattice with New 6.25□ Kicker Magnet System at the Photon Factory", in Proceedings of EPAC04, Lucerne, 2004, pp. 710.
- [6.14] A. Ueda and T. Mitsuhashi, "Optimization of Kicker Pulse Bump by Using a SR Monitor at the Photon Factory", in Proceedings of PAC05, Knoxville, 2005, pp. 2717.
- [6.15] S. Kishimoto, "An Avalanche Photodiode Detector for X-ray Timing Measurements", Nucl. Instr. and Meth. A309, (1991) 603.
- [6.16] H. Sakai et al., "Improvement of Fresnel Zone Plate Beam-profile Monitor and Application to Ultralow Emittance Beam Profile Measurements", Phys. Rev. ST Accel. Beams 10, (2007) 042801.
- [6.17] R. Takai et al., "Test of Hybrid Fill Mode at the Photon Factory Storage Ring", in Proceedings of IPAC10, Kyoto, 2010, pp. 2564.
- [6.18] http://www.bergoz.com
- [6.19] T. Obina and Y. Yano, "Optical Fiber Based Beam Loss Monitor for Electron Storage Ring", in Proceedings of IBIC2013, Oxford, 2013, pp. 638.

7 挿入光源

7.1 はじめに

KEK 放射光(仮称)は、世界最先端の光源性能を達成可能である。Damping Wiggler(DW)等を設置していない Bare Lattice において、水平方向の自然エミッタンスは 0.13 nmrad に達する極低エミッタンスリングである。 設計蓄積電流値 500 mA においては Intra Beam Scattering(IBS)の効果で電子ビームの水平方向エミッタンス は 0.31 nmrad に増大するものの、将来的には、高調波加速空洞を用いることでバンチ長を伸ばして IBS を抑制 し、自然エミッタンスに近づける計画である。このような超低エミッタンスリングを用いることで、ナノメートル領域の 空間分解能を実現する最先端軟 X 線光源を実現することが可能となる。PF リングに比べて 2 桁程度高い超高 分解能により不均質系のサイエンスといった、これまで PF リングでは探索できなかった領域への展開が期待され る。また、本計画がもたらす PF リングに比べて 2 桁から 3 桁程度高い輝度の光は、すでに実施されている多岐 にわたる放射光利用実験を大幅に進展させる。

薬学や機能生物学、物質材料分野など幅広い分野において、1マイクロメートル以下のナノメートル領域の微細構造(ナノ構造)が持つ機能に注目が集まっている。放射光をナノ構造に対するプローブとして用いるには、放射光をそのような空間サイズへと集光(ナノフォーカス)、あるいは空間制限する必要がある。回折限界を考慮すると光子エネルギー数 eV から数 keV(波長 1 nm から 100 nm)の XUV 領域以上の高エネルギー光子が必要となる[7.1]。集光あるいは空間制限によって光は重なり合い、光強度の損失やノイズ強度に対する信号強度比の低下を引き起こし、測定を困難にする。そのため、空間分解能の向上には放射光を構成する光子の空間位相(光の伝搬方向に垂直方向の位相)を揃えることが重要となる。

放射光はその一部の光子の位相が揃った部分的なコヒーレント光である。光の伝搬方向に垂直な方向(横方向)にコヒーレントな光(回折限界光)の割合を表す指標として Coherent Fraction という量が使われる。Coherent Fraction は、

(7-1)

$$\varsigma = (\sigma_r \sigma_{r\prime})^2 / (\Sigma_x \Sigma_y \Sigma_{x\prime} \Sigma_{y\prime})$$

と表される。ここで、回折限界にある波長 λ の光の伝搬方向に垂直な方向の大きさを σ_r 、角度拡がりを σ_r ,とし、電子ビームの大きさ $\sigma_{x,y}$ および角度発散 $\sigma_{x,y}$ による拡がりを考慮した実効的な放射光の大きさを $\Sigma_{x,y}$ 、角度拡がりを $\Sigma_{x,y}$ とする。すなわち、式7-1は光の伝搬方向に垂直な位置および角度の4次元空間における、回折限界にある光が占める空間領域(自然エミッタンス)と、電子ビームの大きさおよび角度拡がりを考慮した放射光が占める空間領域(実効エミッタンス)との比である。

長さLのアンジュレータが生成する放射光ではorとor,は、

$$\sigma_r = \sqrt{2\lambda L} / (4\pi)$$

$$\sigma_{r\prime} = \sqrt{\lambda/2L}$$
(7-2)

で与えられる[7.1, 7.2]。なお、Lは磁石周期長 λ_u と周期数 N_u を使って、 $L = N_u \lambda_u$ となる。また、電子ビームサイズ $\sigma_{x,y}$ および角度拡がり $\sigma_{x',y'}$ は、

$$\sigma_{x,y} = \sqrt{\beta_{x,y}\varepsilon_{x,y} + \left(\eta_{x,y}\frac{o_E}{E}\right)^2}$$

$$\sigma_{x',y'} = \sqrt{\left(1 + \alpha_{x,y}^2\right)\varepsilon_{x,y}/\beta_{x,y} + \left(\eta_{x,y}'\frac{o_E}{E}\right)^2}$$
(7-3)

となり、実効的な放射光のサイズ $\Sigma_{x,v}$ および角度拡がり $\Sigma_{x',v'}$ は、それぞれ、

$$\Sigma_{x,y} = \sqrt{\sigma_{x,y}^{2} + \sigma_{r}^{2}}$$

$$\Sigma_{x',y'} = \sqrt{\sigma_{x',y'}^{2} + \sigma_{r'}^{2}}$$
(7-4)

となる。ここで、 $\varepsilon_{x,y}$ は電子ビームの水平・垂直方向のエミッタンス、 $\alpha_{x,y}$ および $\beta_{x,y}$ は水平・垂直方向の各ツイス パラメータ、 η は分散関数、 η 'は分散関数の軌道長に対する微分係数、 o_E/E は電子ビームのエネルギー拡がり である。

アンジュレータ放射の、周波数 ω を中心とした 0.1%の周波数域に含まれる単位時間当たりの光子数を全光束 と呼び、これを \mathfrak{F} と書けば、電子ビームのサイズおよび角度拡がりを考慮した実効光束角密度は、式 7-4 の実効 光源角度拡がり $\Sigma_{x'}$ および $\Sigma_{y'}$ を用いて、

$$\mathfrak{D}[6 - \text{photons/s/mrad}^2/0.1\%\text{b. w.}] = \frac{\mathfrak{F}}{2\pi\Sigma_{x'}\Sigma_{y'}}$$
(7-5)

となる。実効輝度は、

$$\mathfrak{B}[6-\text{photons/s/mm}^2/\text{mrad}^2/0.1\%\text{b. w.}] = \frac{\mathfrak{D}}{2\pi\Sigma_x\Sigma_y} = \frac{\mathfrak{F}}{4\pi^2\Sigma_x\Sigma_y\Sigma_{x'}\Sigma_{y'}}$$
(7-6)

と書ける。

本計画は長さ5.6mの長直線部と長さ1.2mの短直線部をそれぞれ1箇所ずつ有する区画を1セルとして、20セルで構成する。そのうち1セルは入射点に使用され、他の19箇所のノーマルセルとは異なる光学関数を有する。本章における計算では、ノーマルセルの長直線部と短直線部における光学関数を用いる。表7.1に、偏向部および短直線部、長直線部それぞれの中心位置におけるビームパラメータを示す。

表 7.1 本計画のビームパラメータ。IBS を考慮した場合および無視した場合の、偏向部、短直線部、長直線部 それぞれの中心位置でのビームパラメータ。

(v03_68)	IBS あり			IBS なし		
	偏向部	短直線部	長直線部	偏向部	短直線部	長直線部
電子エネルギー <i>E</i> [GeV]		3		3		
蓄積電流 I [mA]	500			500		
エネルギー拡がり σ_{E}/E	7.9E-04			6.4E-04		
水平サイズ <i>σ</i> _x [µm]	12	21	44	7.8	16	30
水平角度発散 σ' _x [µrad]	29	22	8.1	19	14	5.3
垂直サイズ <i>σ_y</i> [µm]	13	3.3	4.4	13	3.3	4.3
垂直角度発散 $\sigma'_{\scriptscriptstyle Y}$ [μ rad]	0.8	2.5	1.9	0.8	2.4	1.8

表 7.2 には表 7.1 のパラメータに合わせて想定した代表的な光源パラメータを示す。UL12N416 および MPW を除いて、広範なスペクトル領域をカバーすることを念頭にパラメータを選んだ標準的なパラメータである。直線 部の長さからそれぞれ 0.6 mを差し引いた長さ(長直線部 5 m、短直線部 0.6 m)を磁石列長に使えるものと仮定 して周期数を決定している。なお、表 7.2 に示した各光源パラメータは、加速空洞の RF パワーに対する負荷や、ビームライン等への熱負荷、ビームラインの設計、放射光の利用方法などの検討を経て今後さらに最適化を行う。

図 7.1 に、PF リングで稼働中のアンジュレータ U13、PF-AR リングの NW12、SPring-8 (NA-mode)の標準アン ジュレータ(λ_u =32 mm、 N_u =140、*L*=4.48 m)[7.3]、本計画(実線は IBS の効果を考慮したもの、破線は IBS の効 果を無視したもの)の coherent fractionを式 7-1 より光エネルギーに対して計算して比較した結果を示す。本計画 において利用を想定する 10 eV から 100 keV 程度の光子エネルギー範囲全般にわたって、PF および PF-AR、 SPring-8 の標準アンジュレータいずれよりも高いことがわかる。光子エネルギー1keV の軟 X 線に注目して現在 KEK で稼働中の PF および PF-AR と比べると、PF では 0.01%オーダー、PF-AR では 0.0001%オーダーである のに対して、本計画では短直線部で 10%前後、長直線部で 10%を優に超えるなど、おおよそ 3 桁から 5 桁向上 することがわかる。このことから、本計画が PF リングに比べて桁違いに高い輝度による放射光プローブが利用可 能であることがわかる。現在 PF リングにおいて軟 X 線領域のわずかな coherent fraction を利用したナノ構造に 対する先進的な分析実験が試みられている。しかし、輝度の低い光から必要なコヒーレンスを得るには光強度の 大部分を切り捨てなければならず、可能な分析手法は非常に限られている。KEK 放射光(仮称)の高輝度光に より、これらの先進的な実験の飛躍的な高分解能化・高速化、測定次元の追加といった発展がもたらされると期 待される。

	BM	MPW	UL12N416	UL20N30 (短直線部)	UL20N250	UL48N104	UL160N31
周期長λ _u [mm]		120	12	20	20	48	160
周期数 Nu		42	416	30	250	104	31
磁石列長 L[m]		5.0	5.0	0.6	5.0	5.0	5.0
最小 Gap [mm]		12	4	4	4	12	12
(最大)磁場 B _(max) [T]	0.68	1.80	0.8	1.13	1.13	0.9	0.5
最大K値 K _{max}		20.2	0.9	2.1	2.1	4.0	7.5
臨界エネルギ ーE _{pc} [keV]	4.1	10.8					
1 次エネルギー E _{p1} (K _{max}) [keV]			5.1	1.3	1.3	0.2	0.02
出力 [kW]	0.039 [kW/ mrad]	46.5	9.1	2.2	18.2	11.5	3.5

表 7.2 本計画の代表的な光源パラメータ。



図 7.1 PF リングと既存施設との Coherent Fraction の比較。PF リング U13 (灰色実線)、PF-AR リング NW12 (黒 色実線)、SPring-8 標準アンジュレータ(磁石列長 4.48 m) (緑色実線)、本計画 (実線(破線)は IBS の効果を考 慮(無視)した場合)の長直線部に設置した磁石列長 5 m の挿入光源(赤色)、短直線部に設置した 0.6 m の挿 入光源(青色)それぞれの光子エネルギーに対する Coherent fraction。

図 7.2 に、本計画 (DW を稼働させない Bare Lattice)で IBS の効果を考慮した場合 (赤・青色実線)と無視した 場合 (赤・青色破線)と、最新の 3GeV リングである NSLS-II (4 台の DW を稼動時)のアンジュレータ EPU49 (L~3.8 m) [7.4]、MAX IV (3 台の DW を稼動時) に磁石列長 4 m を仮定したアンジュレータ[7.5]、それぞれに対 して式 7-1 より計算した coherent fraction の比較を示す。合わせて示した SPring-8 の標準アンジュレータ(磁石 周期長 32 mm、周期数 140、磁石列長 4.48 m)の曲線と比べ、図示した光子エネルギー範囲において 3GeV リ ングの放射光がより高い Coherent fraction を有することがわかる。

3GeV リングで比べると、2 keV 程度を境に低エネルギー側では NSLS-II が、高エネルギー側では MAX IV がわずかに高い。NSLS-II および MAX IV と同程度の強度が、IBS の効果を抑えることで、本計画の短直線部 にわずか 0.6 m の磁石列長の挿入光源を設置することで得られることがわかる。また、長直線部においては蓄積 ビーム電流 500 mA において想定される IBS の効果を考慮しても同程度に得られ、さらに、IBS を抑制すること でさらに高い coherent fraction を実現することができることがわかる。

以上の coherent fraction の議論においては一般的な coherent fraction の式 7-1 を用いた。すなわち、エネル ギー拡がりによる coherent fraction の低下の効果を考慮していない。後述する光スペクトルの計算では、エネル ギー拡がりの効果を考慮しているが、例えば X 線アンジュレータの輝度スペクトルを比べると、光子エネルギー 10 keV 程度以上では SPring-8 で本計画よりも高い輝度が得られる。本節での coherent fraction に関する議論 は、10 keV 程度以下の光子エネルギー領域における一般的なものであることを注記する。

次節以降、まず初めに、広範なスペクトル領域をカバーすることを念頭に置いた挿入光源の光源性能を、硬 X線領域、軟X線領域、VUV領域、偏向部およびウィグラーに関して述べる。続いて、本計画と他施設との光 源性能の比較を行う。そして、さらに高い光源性能を得る可能性に関して言及する。



図 7.2 本計画と最新の 3GeV リングとの Coherent Fraction の比較。SPring-8 標準アンジュレータ(磁石列長 4.48 m)(緑色実線)、本計画(実線(破線)は IBS の効果を考慮(無視)した場合)に長直線部に設置した磁石列 長 5 m の挿入光源(赤色)、短直線部に設置した 0.6 m の挿入光源(青色)、MAX IV(DW4 台稼動時)の 4m 挿入光源(黒色一点鎖線)、NSLS-II(DW3 台稼働時)EPU49(灰色一点鎖線)、それぞれの光子エネルギーに 対する Coherent fraction。

7.2 X線アンジュレータ(UL20N30、UL20N250)

本計画の電子ビームサイズは長直線部、短直線部のいずれにおいても小さく、X線光源用の真空封止アンジ ュレータはどちらの直線部に設置しても有効な光源となりえる。熱負荷や電子ビーム寿命、電子蓄積リングのイ ンピーダンスへの影響などに関して、今後も検討を進める必要があるが、ダイナミックアパーチャに影響与えな い挿入光源の最小 Gap 値は 4 mm 程度と見積もられる。

図 7.3(a)に、本計画の 1.2m 短直線部に磁石列長 0.6 m の X 線挿入光源 UL20N30 および、5.6m 長直線部 に磁石列長 5 m の UL20N250 をそれぞれ設置した場合に得られるそれぞれの 1~9 次光までの最大値をつなぎ わせた全光束スペクトルを、PF リングで稼働中の SGU01 (λ_u =12 mm、 N_u =39、L=0.5 m)の 1 次光、SGU03 (λ_u =18 mm、 N_u =26、L=0.5 m)の 3 次光、SGU15 (λ_u =17.6 mm、 N_u =27、L=0.5 m)の 1 次光、SGU17 (λ_u =16 mm、 N_u =29、L=0.5 m)の 5 次光 (全て灰色実線)、PF-AR リングで稼働中の NW12 (λ_u =40 mm、 N_u =95、L=3.8 m)、NW14-20 (λ_u =20 mm、 N_u =75、L=1.5 m)、NW14-36 (λ_u =36 mm、 N_u =79、L=2.8 m)の各 1 次光 (全て黒色 実線)とともに示す。また、図 7.3(b)にはそれぞれの輝度スペクトルを示す。なお破線は IBS の効果を無視した場 合のそれぞれの輝度スペクトルである。

図 7.3(a)から、本計画の短直線部挿入光源 UL20N30 は 10 keV 程度以下の領域で PF および PF-AR リン グよりも高い光束を有するとともに、長直線部挿入光源 UL20N250 では 30 keV 程度のまでのエネルギー範囲全 般にわたって PF および PF-AR リングを凌駕する全光束が得られることがわかる。図 7.3(b)をみると、本計画の短 直線部および長直線部いずれにおいても PF および PF-AR に比べて桁違いに高い強度の輝度の放射光の利 用が可能であることがわかる。



図 7.3 X線アンジュレータの輝度と光束。本計画の長直線部(青実線)および短直線部(赤実線)に設置したア ンジュレータ UL20N250(青色曲線)および UL20N30(赤色曲線)から得られる全光束(a)および輝度スペクトル (b) (1~9次光、実線(破線)は IBS の効果を考慮(無視)した場合)。灰色実線は PF リングで稼働中の各アンジュ レータ(SGU01 の 1 次光、03 の 3 次光、15 の 1 次光、17 の 5 次光)、黒色実線は PF-AR のアンジュレータ (NW12、14-20、14-36、全て 1 次光)。

7.3 軟 X 線可変偏光型アンジュレータ(UL48N104)

軟 X 線領域では可変偏光型アンジュレータを用いることで、左・右円(楕)偏光、縦・横・斜め直線など放射光の偏光状態を切り替えることが可能である。これを用いて、X 線吸収分光(XAFS)や X 線共鳴散乱(XRS)において、偏光状態を様々に切り替えて測定する磁気円二色性(MCD)や磁気線二色性(MLD)などの測定が精力的に行われている。

図 7.4 には、本計画の長直線部にアンジュレータ UL48N104 を設置した場合の全光束および輝度スペクト ルをPFリングで稼働中のアンジュレータU13(λ_u =76 mm、 N_u =47、L=3.6 m)、U02-1(λ_u =60 mm、 N_u =60、L=3.6 m)などともに示す。図から、U48N104からは 200 eV から数 keV の広範な領域に渡って PF リングのアンジュレータよりも高い全光束が得られ、なおかつ輝度に関しては 200 eV から 10 keV 程度のさらに広範な範囲にわたって PF に比べて 3 桁程度高い輝度の放射光が得られることがわかる。



図 7.4 軟X線アンジュレータの輝度と光束。本計画の長直線部(青実線)および短直線部(赤実線)に設置した アンジュレータ UL48N104 から得られる全光束(a)および輝度スペクトル(b) (1~9 次光、実線(破線)は IBS の効 果を考慮(無視)した場合)。灰色実線はPFリングで稼働中の各アンジュレータ(U02-1の1次光、U13の1次光、 U01の1次光、U03の3次光、U15の1次光、U17の5次光)、黒色実線はPF-ARのアンジュレータ(NW12、 NW 14-20、NW 14-36、全て1次光)。

7.4 VUV アンジュレータ(UL160N31)

図7.5に本計画の長直線部にアンジュレータUL160N31を設置した場合の全光束および輝度スペクトルをPF リングで稼働中のアンジュレータU13 やU28(λ_u =160 mm、 N_u =22、L=3.5 m)などともに示す。全光束は PF で 稼働中の同じ磁石周期長を持つアンジュレータU28よりも高く、輝度は1桁から2桁向上するものと期待できる。 また、PF に比べてビームサイズが小さいためギャップを狭くすることができ、高い最大磁場強度が得られるため、 結果として同じ磁石周期長のU28より低いエネルギーまで利用することができることも図から読み取れる。なお、 UL48N104 の曲線からわかるように、使用する光子エネルギー範囲を選ぶことでさらに高い全光束や輝度を得 ることも可能である。



図 7.5 VUV アンジュレータの輝度と光束。本計画の長直線部(青実線)および短直線部(赤実線)に設置した アンジュレータ UL160N31 から得られる全光束(a)および輝度スペクトル(b) (1~9 次光、実線(破線)は IBS の効 果を考慮(無視)した場合)。UL48N104 もあわせて示す。灰色実線は PF リングで稼働中の各アンジュレータ (U02-1の1次光、U13の1次光、U15の1次光、U28の1次光)、黒色実線は PF-AR のアンジュレータ(NW12、 NW14-36、全て1次光)。

7.5 偏向部およびウィグラー

KEK では電子エネルギー6.5 GeV の電子蓄積リング PF-AR も運転し、数十 keV オーダーの高エネルギー 光子が硬 X 線 XAFS やイメージング実験などに精力的に利用されている。図 7.6 に示すように、本計画の偏向 部(電子エネルギー3 GeV、偏向磁場 0.85 T)の臨界エネルギーは 5 keV であり、PF リングの偏向部に比べると 高いが、PF-AR と比べると低く、数十 keV オーダーの硬 X 線領域側で十分な輝度を確保できない。また、短周 期アンジュレータ UL20N250 からそのような高エネルギー光子を得ることも難しい。そこで現在、ウィグラーを用 いた硬 X 線領域の光の確保を検討している。

図 7.6 に、検討中の多極ウィグラーMPW および超電導ウィグラーSCW の全光束と輝度をそれぞれ示す。 MPWとしては、PFで稼働中のMPW#5(ピーク磁束密度1.4 T、臨界エネルギー11 keV、周期長120 mm、磁極 長 60 mm、21 周期)を参考に、Gapを12 mmにとってピーク磁場を1.8 Tと見込み、さらに磁石列長を2.5 mか ら本計画の長直線部に合わせて5 m(42 周期)に伸ばしたものを検討した。SCWとして、PFで稼働中のVW#14 (ピーク磁場 4.8 T、磁極長 120 mm)の設置を検討したが、この場合、SCW の使用によるエミッタンスの増大を 無視することができず、その他の光源の強度低下を引き起こすため、設置にはさらなる検討が必要であることが わかった。SCW の設計検討およびリングへの影響のさらに詳細な評価などが必要ではあるものの、例えば磁極 長 30 mm かつ磁極間隔 20 mm へと装置および磁極の小型化が実現できた場合には、ピーク磁束密度 5 T(臨 界エネルギー30 keV)の SCW を使用することによるエミッタンスの増大を無視できることがわかっている。ここで は、ピーク磁場 5 T の SCW を長直線部で使用した場合のスペクトルを示す。また比較のため、あわせて PF-AR リングで稼働中の EMPW NE01-W、PF の偏向部、本計画のアンジュレータ UL20N250 も示す。

図から、MPW が 10 keV 強までの高輝度光源となり得ること、SCW を設置できれば、さらに高エネルギーの領域においても高い輝度の光源となり得ることがわかる。なお、MPW に関しては、5 m の磁石列長では RF パワー に対する負荷が大きいため、周期数を減らすことも含めて検討していきたい。



図 7.6 偏向部およびウィグラーからの輝度スペクトル。本計画の偏向部(BM)および長直線に設置した MPW (1.8 T, 42 周期)および SCW(5 T, 1 周期)から得られる全光束(a)および輝度スペクトル(b) (実線(破線)は IBS の効果を考慮(無視)した場合)。本計画のアンジュレータ UL20N250 のスペクトルもあわせて示す。灰色実線は PF リングの偏向部(PF-BM)および PF で稼働中の MPW05(1.4 T, 21 周期)および SCW VW14(5 T, 1 周期)、 黒色実線は PF-AR の EMPW NE01(1 T, 21 周期)。

7.6 本計画の光源性能

7.6.1 PF および PF-AR、SPring-8 との比較

図 7.7 に、本計画の標準的な光源と、PF リング、PF-AR リング、SPring-8 (Non-Achromat モード、電子エネル ギー8 GeV、ビーム電流 100 mA、自然エミッタンス 2.4 nmard、エネルギー拡がり 0.109%) [7.3]の光源との VUV からX 線領域における輝度スペクトルの比較を示す。なお、本計画の MPW は RF パワーに対する負荷な どの点から周期数 42 での稼働は容易ではないが、ここでは参考までに 42 周期 MPW の結果を示す。また、前 節で述べた SCW の結果もあわせて示す。SPring-8 の光源としては標準アンジュレータ(λ_u = 32 mm、 N_u = 140、 *L*=4.48 m)と BL25SU(λ_u =120 mm、 N_u =12×2、*L*=2.88 m)を示す。光子エネルギー10 keV 程度以下の領域に おいて、SPring-8 の標準アンジュレータおよび BL25SU の輝度および全光束を凌ぐ光が得られることがわかる。 また、本計画の短直線部アンジュレータ UL20N30 からは 10 keV 程度以下の領域で SPring-8 の標準アンジュレ ータに匹敵する輝度の光が得られることも大きな特徴である。



図 7.7 本計画と既存施設との比較。本計画、SPring-8 の標準アンジュレータおよび BL25SU(いずれも緑色実線)、PFリング(灰色実線)、PF-ARリング(黒色実線)それぞれの光源の全光束スペクトル(a)および輝度スペクトル(b)の比較。破線は IBS 効果を無視した場合。
7.6.2 最新の 3GeV リング NSLS-II および MAX-IV との比較

図 7.8 に、本計画と同じ電子エネルギー、ビーム電流で設計されて運転が始まった NSLS-II (3 台の Damping Wiggler を稼働、水平エミッタンス 550 pmrad、垂直エミッタンス 8 pmrad)および MAX-IV (4 台の Damping Wiggler を稼働し且つ IBS の効果を無視、水平エミッタンス 263 pmrad、垂直エミッタンス 8 pmrad)との比較を示 す。NSLS-II の光源として IVU20 (λ_u =20 mm、 N_u =148、L=3 m)および SCW60 (λ_u =60 mm、 N_u =17、B=3.5 T) を、MAX-IV の光源として PMU18P5 (λ_u =18.5 mm、 N_u =205、L=3.8 m)および EPUI38 (λ_u =38 mm、 N_u =103、L=3.9 m)を、さらに SPring-8 の標準アンジュレータおよび BL25SU を示す。

図から、本計画のアンジュレータは IBS 効果を抑制することで他の最新の 3GeV リングである NSLS-II および MAX-IV を凌ぐ輝度が得られること、また、たとえ IBS 効果があったとしても他の 3GeV リングと同程度の輝度が 得られることがわかる。



図 7.8 本計画と最新の 3GeV リングとの比較。本計画(破線は IBS 効果を無視した場合)、NSLS-II(3 台の Damping Wiggler を稼働した状態)の IVU20 および SCW60、MAX-IV(4 台の Damping Wiggler を稼働し、且 つ IBS の効果を無視した状態)の PMU18P5 および EPUI38、それぞれの光源の全光束スペクトル(a)および輝度スペクトル(b)の比較。

7.7 光源性能のさらなる可能性

7.7.1 高輝度短周期アンジュレータの可能性(UL12N416)

光エネルギーの利用範囲を絞り込むことで特定の波長において高い輝度を得ることも可能である。図7.9に磁 石周期 12 mm、磁石長 5.2 m、周期数 416、最小 Gap 値 4 mm とした場合の全光束および輝度スペクトルを示 す。図に示すように、IBS 効果を考慮しても10²²台の輝度が得られる可能性があることがわかる。

このように、他の光源パラメータに関しても、各ビームライン、各プロジェクトに合わせて検討を続ける。



図 7.9 本計画の長直線部に設置した UL12N416 から得られる全光束(a)および輝度スペクトル(b) (実線(破線) は IBS の効果を考慮(無視)した場合)。1~9 次光。

7.7.2 CPMU および SCU の可能性

最新の 3GeV リングである NSLS-II[4]や MAX-IV[5]などの施設では、磁石列部を冷却して磁場強度を増強 するタイプのアンジュレータ CPMU や、超電導電磁石を用いる SCUの検討・開発が進められている。これらのア ンジュレータの運用に向けては磁石材料開発、超電導材料開発、熱負荷対策、磁石列磁場の補正および測定 技術の開発などといった様々な開発要素が存在するものの、より短い周期長で高い磁場が実現できることによる 光エネルギーの利用可能範囲の高エネルギー領域への拡大という魅力から、精力的な開発が進められている [7.4, 7.5]。図 7.10 に、本計画の長直線部に MAX-IV の CPMU16 (λ_u =16 mm、最小 Gap 4.2 mm、冷却温度 140 K、磁場強度 1.17 T)、NSLS-II の SCU14 (λ_u =14 mm、最小 Gap~5 mm、冷却温度 4 K、磁場強度 1.68 T) およ び CPMU17 (λ_u =17 mm、最小 Gap=5 mm、磁場強度 1.05 T)を長直線部の長さに合わせた周期数にして設置し た場合に得られる輝度スペクトルを示す。通常の永久磁石タイプのアンジュレータに比べて短周期 (周期数の増 加) で高い磁場強度が得られることを反映して、低エネルギー領域までカバーするとともに、特に高エネルギー 領域において大きく強度が向上することがわかる。なお、本計画のビーム品質の高さから、他施設においてより も高い輝度が得られることが予想される。



図 7.10 CPMU および SCU のスペクトル。本計画の長直線部 ((a)IBS の効果を考慮した場合、(b)IBS の効果を 無視した場合) に MAX-IV の CPMU16、NSLS-II の SCU14 および CPMU17 を設置した場合の輝度スペクトル を UL20N250(長直線)および UL20N30(短直線部)と比較。破線は各施設での輝度、実線は本計画の長直線部 の長さに合わせて周期数を変更したもの。

7.7.3 直線部の長さに関して

ラティスの最適化などを通してさらに長い磁石列長の挿入光源が設置可能になれば、さらに高い輝度を得る 可能性も残されている。図 7.11 に、長直線部の長さによらずビームのパラメータが変わらないという極端な仮定 のもとに、単純に磁石列長(磁石周期数)を変化させた場合にどのように各光源の輝度スペクトル曲線のピーク 輝度が変化するかを示す。計算は IBS の効果を無視したリングの長直線部に設置する UL20N250 および UL12N416 に対して行った。破線はエネルギー分散が無い場合の曲線で、磁石周期数の2乗で輝度が上昇す る場合の曲線である。ピーク輝度は磁石列長の伸長に応じて緩やかに向上することがわかる。また、青色破線 で現在の 5.6 m の位置を示す。長直線部の長さを 2~3 m 程度を超えて伸ばす場合、磁石周期数に対する輝度 の上昇率は 2 乗の傾きから次第に低下することがわかる。

なお、磁石列長の伸長は挿入光源で消費するパワーを増大させ、加速空洞への負荷やビームラインへの熱 負荷などの増大を招くなど、ラティスの設計とともに多くの検討が必要となる。



図 7.11 長直線部の長さとピーク輝度の関係。アンジュレータ磁石長 L と輝度の関係。磁石周期長 12 mm と 20 mm に対して、長直線部の長さに合わせて周期数を変更した時のピーク輝度(それぞれ約 5.1 keV および約 1.3 keV)の変化(実線)。破線はエネルギー分散が無い場合の曲線。

参考文献

- [7.1] David Attwood, Klaus Halbach and Kwan-Je Kim, Tunable Coherent X-rays, Science vol.228 pp.1265– 1272 (1985).
- [7.2] Kwan-Je Kim, Characteristics of synchrotron radiation, AIP Conf. Proc., vol.184 pp.565-632 (1989)
- [7.3] SPring-8-II Conceptual Design Report, RIKEN SPring-8 Center, (November, 2014). 各種挿入光源の紹介 (http://www.spring8.or.jp/ja/about_us/whats_sp8/facilities/bl/light_source_optics/sources/insertion_device/i ntro_insertion_devices/).
- [7.4] NSLS-II Source Properties and Floor Layout (April 12, 2010) (https://www.bnl.gov/ps/docs/pdf/SourceProperties.pdf).
- [7.5] DETAILED DESIGN REPORT ON THE MAX IV FACILITY, MAX IV Facility, First Edition (August, 2010) (https://www.maxlab.lu.se/node/1136).

8 放射光ビームライン基幹チャンネル(フロントエンド)

8.1 概要

加速器光源(偏向磁石または挿入光源)から取り出された放射光は、リングトンネル内にある基幹チャンネル を通り、実験ホールへ取り出される。基幹チャンネルの役割は以下の4つである。

放射光に空間的制限を加え、光軸近傍のユーザーの欲する良質な光だけを切り出し、安全かつ安定に光学系に供給する。

実験ホール側の真空機器の真空悪化を検知し、その影響が蓄積リングに及ばぬよう、基幹チャンネルのゲートバルブを速やかに閉じるという真空保護の役割。

基幹チャンネルのゲートバルブが閉じられている時に、ゲートバルブが放射光の熱で損傷しないようにするた めのアブソーバを基幹チャンネルの最上流部に設置している。(放射光の熱を吸収する役割)

蓄積リングに連続で電子を入射する場合に、実験ホール側で放射線強度が高くなる恐れがある場合に基幹 チャンネル内の放射線防護シャッター(ビームシャッターと呼ばれている)を閉じることで、実験ホール側の放射 線強度を低く抑える役割。また、緊急時には速やかにビームシャッターを閉じて、実験ホール側にいる実験者が 被曝することを防ぐ役割。(放射線を遮蔽する役割。)

特に基幹チャンネルを構成する各機器は、加速器運転中に人が立ち入ることが絶対に不可能なリングトン ネル内に設置されているので、万一、基幹チャンネルが故障した場合には、加速器の運転を止めてから人がト ンネルに立ち入って修理することになる。それはすべての放射光ビームラインの運用が停止されてしまうことを意 味する。多くのユーザーに影響を与えることを避けるためには、基幹チャンネルの設計、建設において信頼性の 高いものを製作することに加え、建設後の運用時にも、普段からメンテナンスを良く行って、予防保守に努めるこ とが重要である。

そして、基幹チャンネルが正常に運用されているかぎりにおいて、実験ホール側に設置されている機器が万 一故障した場合においても、その故障対象のビームラインの基幹チャンネルのシャッターとゲートバルブを閉じ ることで、加速器運転中においても故障を修理することが可能となる。また故障対象以外のビームラインでは、 何ら問題なく通常の状態でユーザー実験を継続することが可能である。このように基幹チャンネルが正常に動 作し続けることは、蓄積リングの運転を続けることと、ユーザー実験を滞りなく続ける上で、重要である。 8.2 熱負荷対策

現時点で KEK 放射光(3GeV)の最も熱負荷を受ける基幹チャンネルの過酷な条件と想定しているのが、5m の長さの真空封止短周期アンジュレータ(SGU)からの放射光熱負荷であり、3GeV、500mA でトータル・パワー は 18.2kW が想定されている。この強大な熱負荷を受ける方策としては、現在PF-AR リングの NW2、NW12、 NW14 で採用されている放射光基幹ビームチャンネルの耐熱負荷対策構成要素(具体的には、前置マスク、主 マスク、アブソーバ、XYスリット(図 8.1)を原型とし、現在 PF-AR 基幹チャンネルでは放射光が当たる耐熱負荷 部分には無酸素銅が使用されているが、それよりも高温強度特性に勝るアルミナ分散銅(GlidCop)を代わりに 用いることで、この強大な熱負荷に対応可能である。



図 8.1 PF-AR NW14 の基幹チャンネル・レイアウト. 放射光の進む向きは右から左である.

基幹チャンネルにおける高熱負荷への対処方法の基本は、斜入射技術を軸とする。単位面積当たりの熱負荷量を軽減するために、受光部を光軸に対して傾けて照射面積を増加させることで対処可能である。しかし、放射光の受光部での反射光強度が急激に増大する恐れがあるので、受光部での反射光を増大させないための表面粗さの設定および増加する反射光を受けるための対策が必要となる。その点では PF-AR の NW2、NW12、NW14 で採用されているアブソーバは、上記の点が十分に考慮された設計となっており、今回の蓄積リング計画に、その基本設計を採用するのに問題が無いことを強調しておく。

また 5m 長の SGU 以外の挿入光源および偏向磁石ビームラインのように、5m長 SGU よりも熱負荷が小さくな る基幹チャンネル部の耐熱負荷対策構成要素については、新規に PF BL-15 のために開発を行った 従来型 の機能を損なうことなく、簡潔な構造に機能を集約することで製造コストを低減し、かつ冷却水の取り入れ口を従 来の 2 つから 1 つに集約することで、冷却水の監視管理の手間とコストを低減した V字型水冷ブロック・アブソ ーバ(図 8.2)、そしてコストのかかる熱間等方圧加圧接合法(HIP 法)を用いないで製造した、低コストかつ冷却 効率に優れた新設計水冷マスク(図 8.3)をKEK放射光の機器を原型とする。このことで、KEK 放射光の基幹チ ャンネルの安定運用、かつ製造コストと運用コスト、運用の手間の低減が図れると期待される。



図 8.2 PF BL-15のアブソーバ。PF BL-15 に採用した V 字型アブソーバの水冷銅ブロック部分の 3D モデル図 (左図), V 字型受光部側(中央写真)とその反対部分(右写真).反対部分(右写真)には下流の放射線を低減 するためのヘビイメタルブロック(銀色)がボルト締めで固定してある.



図 8.3 PF BL-15 に採用した基幹チャンネル用 低コスト水冷マスク

なお、基幹チャンネル部に真空を切り離して、硬X線のみを通過させる窓の役割を持つ水冷ベリリウム窓を設置する際には、ベリリウムを熱損傷から保護するために、硬X線以外の放射光成分を吸収してベリリウムへの熱 負荷を軽減するグラファイト・フィルターを設置することが必要となる。

放射光は発光点からの距離に比例して、水平方向および鉛直方向に広がっていく性質を持っているため、放 射光進行方向に垂直な単位面積当たりの放射光からの熱負荷は、発光点からの距離の2乗に反比例する。そ のため発光点からの距離が比較的大きい実験ホール側の光学機器よりもさらに距離が短いリングトンネル内の 基幹チャンネルは、より激しい熱負荷密度にさらさる。また、より精密な設置精度が要求されることは、発光点に 近づけば近づくほど放射光サイズがより小さくなることから明らかである。同様に、KEK 放射光よりも大型の光源 加速器においては、基幹チャンネルが設置される発光点からの距離は大きくなるので、熱負荷密度は小さくなる 方向になり、熱負荷のハンドリングは楽な方向へ移行する。しかし、建設コストの観点からむやみに光源加速器 を大きくすることはできない。よって、基幹チャンネルがより大きな熱負荷密度に対応し、設置精度をより高精度 にすることは、KEK 放射光の建設コストを低減するための鍵の一つである。

8.3 放射線防護

現在、PFリングにおいては、基幹チャンネルの放射線防護シャッターのシャッター・ブロックは旧型のものに関 しては400 mm厚のステンレス、新型のものは250 mm厚のヘビイメタル(タングステンを主成分とした合金、純粋 なタングステンの加工が極めて困難なためタングステン合金を採用している。鉛は超高真空に不適合なため基 幹チャンネルのブロック材に採用しない。)を採用している。かつて行われていた PFリングの3 GeV 運転におい ても、これらの放射線防護シャッターに関して問題は生じなかった。そこで基本的には KEK 放射光 3 GeV 蓄積 リングにおいても、現在 PF でのヘビイメタルビームシャッターを基本形と考え、放射光のビームサイズを考慮し て、シャッターブロッブのビーム軸に対する断面形状を決定していくことで対応可能である。なおこの放射線防 護シャッター・ブロックについては万一シリンダーから外れて脱落した場合でも放射線事故の無いように PF リン グ運転開始当初からシャッター・ブロックの脱落防止板がブロックの直下に人間の安全防護の観点で備えられ てきた。KEK 放射光でもそれを踏襲する。

8.4 真空防護

基幹チャンネルの真空に要求される機能は多岐にわたる。その理由は以下に集約される。

8.4.1 蓄積リング真空を保護する役割

ユーザー実験において原子・分子分野および触媒化学分野などにおいて、ガスを利用した実験は多く行わ れており、通常、実験者サイドでも差動排気を駆使する、コンダクタンスを小さくするためのオリフィスを設けるな どして、上流側にある基幹チャンネルの真空度の悪化を食い止める工夫がなされている。それでも、基幹チャン ネル部へのガスの完全な流入の遮断は不可能である。また、実験者側での意図しない真空漏れや、操作の手 違いによる急激な脱ガスなども起こり得るので、基幹チャンネル部での真空ポンプの設置ならびに真空計の設 置および監視によって、真空度悪化の際には蓄積リングの真空を保護するために、基幹チャンネルのシャッタ ーおよびゲートバルブを閉じる役割を担っている。なおトンネル内に設置されている基幹チャンネル部では、加 速器運転時には大強度放射線に弱いメカニカル・ポンプは使用せず、イオンポンプなどの機械的な動作を要し ないポンプを使用するのが一般的である。

8.4.2 ベリリウム窓

硬X線は、低真空、ヘリウム、大気中の環境下であっても、あまり減衰することがないという特徴を持つ。これは 超高真空環境下での実験を必要とする軟X線、真空紫外線とは大きな違いである。このため硬X線ビームライン においては、蓄積リングが要求する超高真空と真空を切り離し、必要な硬X線のみを通過させる窓材としてベリリ ウムを設けることで、それよりも下流では超高真空を要しない環境を得ることを可能とする。超高真空を要しない ことは、ビームラインの機器の設計に大きな自由度を与え、使用する材料の制限の大幅な緩和、真空を良くする ためのベーキングが必要ないなど、大きなメリットがあり、建設コスト削減と建設期間の短縮に大いなる効果をも たらす。ただしベリリウムの熱負荷による損傷を避けるために、ベリリウムの上流に水冷グラファイト・フィルターを 設置し、またベリリウム窓自身も効率の良い水冷機構を設けることは必須となることに留意が必要である。

また、近年では硬X線ビームラインにおいても、さらに低いエネルギーの軟X線も利用したいという要望が増加してきているため、あえてベリリウム窓を設置せずに、軟X線も利用可能なビームラインの建設が増えている。 この場合は、ベリリウム窓を設置する代わりに、差動排気を何段かタンデムに設置することで、その下流側では 超高真空を要しない設計となっている。ただし、低真空側での予期せぬ真空悪化に備えて、ゲートバルブを遮 断する真空度のセット・ポイントを不用意に甘くしない、真空漏れに備えて、要所に真空悪化を緩和するための バッファー・チャンバーや開口サイズを必要最小限とした水冷マスクをタンデムに設ける、など厳重な管理と細心 の注意を払うことが必要となる。

8.5 設置精度

基幹チャンネルの設置については、これまでの PF と PF-AR での設置を行ってきた背景を説明する必要があ る。PF で 1980 年代においては、基幹チャンネルの各構成要素は個別にオートレベルとトランシットを用いて設 置されてきた。これは各コンポーネントを独立に測量、設置が必要で、大変な手間と人手、作業時間を要した。 この問題を改善しようと試みたのが 1997 年に行われた PF 高輝度化改造に伴うPFリング・アーク部の基幹チャン ネル改造であり、この時に基幹チャンネルの各構成要素を 1 本のレールの上に設置することで、測量と設置の 手間を簡略化し、作業時間の短縮を図ろうとした。しかし、このことは 1 本レール上に設置された各コンポーネン トすべての位置合わせをたった 1 本のレールで合わせるという難儀な作業を要し、位置合わせ調整が非常に難 しくなるというデメリットが発生した。

そのため近年建設された PF-AR 基幹チャンネルにおいては、反省に基づいて、2 本レール上に各構成要素 を設置するという方式に改めた。この2 本レール方式は、1 本レールに比べて格段に設置調整が容易になった。 この2 本レール方式は SPring-8 基幹チャンネルの設置でも用いられており、高精度設置が要求される基幹チャ ンネルの設置では標準的な技法となっている。

また、近年、海外の放射光施設の挿入光源を含めた様々な機器の精密設置にレーザー・トラッカーが用いられるようになってきていることを鑑み、基幹チャンネルの各構成要素の設置にもレーザー・トラッカーが使用可能な機構を取り付けておくことを計画している。

設置精度の観点から、最後に指摘しておく重要事項は架台である。1980年代の日本の放射光施設において 基幹チャンネル、放射光ビームライン機器の架台に対する問題意識と予算の不足から、アングルを切って溶接 しただけの簡易的な架台が用いられることが多かった。これは溶接による歪みが残り精度が出ず、床からの振動 が減衰せず機器に伝わるなど多くの問題を抱えていた。一方で海外の施設においては架台の重要性が早期か ら認識されていて、華奢なアングルではなくボックス・セクションを用いた頑丈な架台、定盤のように鋳鉄、花崗 岩を架台に用いて精度出しと振動対策を施したものが用いられてきた。近年では、日本でも架台の重要性が認 識されて、上記の対策が施されてきている。KEK放射光においても高輝度低エミッタンス光源であることから、設 置精度と振動対策の観点から架台の重要性はより増しており、基幹チャンネルの機器本体だけでなく考慮すべ き重要事項であると結論される。

8.6 まとめ

KEK 放射光において、基幹チャンネルは既存の要素技術を上手に組み合わせることで実現可能である。今後の課題としては、各ビームラインの光源の熱負荷の状況に応じて、過不足なく要求するスペックにして、リーズ ナブルなコストで建設、維持をしていくバランスのとれた設計を実現していくことである。そのためには、各基幹チャンネルの上流に位置する光源である挿入光源グループとマグネットグループ、真空グループ、そして下流に 位置するビームライン建設グループとともにスペックの詳細を綿密に詰めていくことによって最適な基幹チャンネ ルの設計と精密設置を行うための仕組みづくりを行っていくことになる。

9 建物・設備

ここでは、施設の建物及び設備の概要を示す。また、地盤の常時微動の影響を大まかに見積るために、KEK つくばキャンパス内で過去に行われた建物床の振動測定の結果についても触れる。図 9.1 は、建物の概観(鳥 瞰図)である。



図 9.1 施設建物の概観(鳥瞰図)

9.1 建物の配置・構成

建物についても概念設計の段階であるが、ここに1つのたたき台となる素案を示す。図 9.2 はその平面図であり、表 9.1 にその建物面積の内訳を示す。建物は、光源棟、設備棟(MR1-4)、研究棟(オフィス+ラボ 1)、実験準備棟(ラボ 2-4)、入射器からのリング入射点までの入射路で構成される。その他、冷却水を外気によって冷却する冷却塔を光源棟内側に置く。

光源棟は周長約 600m の光源リングと多数の放射光ビームラインが設置される実験ホールを包含する。図 9.3 に研究棟を含む光源棟の断面図を示す。図ではリングトンネル側壁と床のコンクリート厚は 1m、ビームラインの 床厚は 50 cm であるが、今後の放射線遮蔽計算や振動解析等の検討結果を踏まえて厚みを増やすことも考え ている。これらの床は、地下 30-50 m に存在する N 値 (標準貫入試験値) 50 以上の層に直接多数のパイルを通 して支持される。実験ホールの床ではさらに短い間隔でパイル間に小梁を入れて床の剛性を強化する。光源棟 は直径約 230 m の大規模構造であるが、リングトンネルと実験ホールは一体構造にする。ただし、図 9.3 に示さ れるように、日照や外気温の変化による変形や外からの振動を極力遮断するために、建物の屋根や側壁とは構 造的に切り離す。リングや実験ホールと切り離された実験ホール外周には有効利用のために空調機器等を設置 することも検討している。リングトンネルの内側は保守通路を設け、リング用機器のラック類を設置する。図 9.3 で は実験ホールとリングの共用のクレーンが示されていて、リングトンネルの天井は機器の搬入のために取り外し ができるようになっている。これとは別に、機器搬入のために光源棟内側と外側を結ぶトンネルが設けられ、機器 を搭載したクレーン車等が光源棟内側にアクセスできるようになっている。搬入された機器の多くは、設備棟ある いはリングトンネルなどに最終的に設置されることになる。機器搬入経路などの詳細や運搬に必要なクレーン等 の仕様は今後検討する。



図 9.2 建物平面図の例

棟名		地階	1 階	2 階	計
光源棟	リングトンネル		1(700	1(700	
	実験ホール		16700		16/00
設備棟	MR1		860		
	MR2		560		2660
	MR3		620		
	MR4		620		
研究棟	ラボ 1/オフィス		1120	1120	2240
実験準備棟	ラボ 2		540		
	ラボ 3		540		1620
	ラボ 4		540		
小計					23220
入射路					1000
合計					24220

表 9.1 建物面積の内訳(単位:m²)





設備棟は、加速器用電磁石及び高周波加速用電源や冷却水などのユーティリティ設備を収納するとともに、 大型装置の組立て、性能評価、磁場測定などにも使用する。研究棟や実験準備棟は、施設の管理業務や共同 利用の運営、試料作成や実験装置の組立てなど放射光実験の準備、実験機器の開発や保守作業などを行うと ともに、職員の一部や協力研究者等の居室も提供する。入射器となる既存電子リニアックからリング入射点まで の入射路は約200-300 mが想定されていて、大部分が地下のトンネルで光源棟リングトンネルの下を潜り終えて からスロープ勾配約1/8 で立ち上がり、入射点数メートル手前でリングと同じレベルになってリングと合流する。現 段階では、キャンパス内での施設配置は確定していないが、入射器となる可能性がある既存電子リニアックにも 近いキャンパス南側の敷地が候補の1つになる(図 9.4)。



図 9.4 KEK つくばキャンパス内での施設配置例(円が光源施設)

9.2 電気·機械設備

電気設備としては、特別高圧受変電設備(既存設備の改造)、高圧受変電設備、装置幹線設備、実験用分 電盤設置、建物幹線設備、動力設備、照明・コンセント設備、通信設備、防災設備などがある。装置への供給電 力としては、100 V、200 V、400 V系統があり、最大電気容量として 5 MVA 程度を考えている。

機械設備としては、空調設備、換気設備、給排水衛生設備、消火設備、冷却水設備(冷却塔、熱源、一次ポ ンプ、取り合い点までの一次配管)などがある。リング及び実験ホールの冷却水及び空調の温度制御条件は、 要求される温度の安定度を検討した上で決定する。空調方式、冷却水及び空調の設定温度等も今後検討す る。

9.3 建物床の振動測定

本リングのような高輝度光源において光源の高い輝度や小さなビームサイズを有効に利用するために、ビーム位置の高い安定度が要求される。ビーム位置の安定度の要件としては、本リング内での最小の電子ビームサイズは約3µm(垂直方向)であるので、その10%である0.3µm以内にビーム変動を抑えることが1つの目安となる。水平方向については最小でも10µm以上なので1µm程度で十分である。ここでは、以前行われたつくばキャンパス内の建物の床振動測定の結果を示し、地盤の常時微動によるビーム変動への影響についても触れる。

まずは、図 9.5 と図 9.6 につくばキャンパス地下にある KEK-B の 2 カ所の電源棟 D3,D9 での垂直方向の振動測定の結果を SPring-8 の地上 2 カ所での結果と比較して示す[9-1]。それぞれ 2002 年 12 月と 2003 年 6 月 の運転停止期間中にサーボ型振動計(東京測振 VSE355G2)によって測定された。図 9.5 は振動のパワースペクトルで、図 9.6 は振動の累積変位である。図 9.5 でわかるように 2 つのピークが見られる。1 つは 3Hz 付近にある交通振動などの人工的な雑音(cultural noise)を原因とする関東ローム層の固有振動ピーク、もう 1 つは 0.2-0.3 Hz 付近にある波浪を源とする深い地層での固有振動ピークである。ただし、後者は数百メートル以上に 渡りほぼ同じ位相を持つコヒーレント振動であることから、本施設への影響はほとんどないと言っていい。他方、前者は施設内の場所によって位相が異なるインコヒーレントな振動成分を多く含んでいると考えられる。図からも わかるように人工的な振動源が原因なので昼間の方が夜間よりも大きくなる。また、交通振動の影響のために大通りに近い D3 が D9 よりも振動がやや大きい。SPring-8 との比較では、KEK-B では 0.1-50 Hz の帯域で振動の 盛り上がりが見られる一方、0.1 Hz 以下では大きな差はないことがわかる。図 9.6 を見ると、KEK-B での振動の 累積変位は昼夜の差こそあるものの、1-50 Hz のインコヒーレント振動で 0.1 µm 前後であることがわかる。



図 9.5 KEK-BとSPring-8 における垂直方向の振動のパワースペクトル測定結果。左は昼間、右は夜間での測定である。



図 9.6 KEK-BとSPring-8における垂直方向の振動の累積変位。左は昼間、右は夜間での結果である。

図 9.7 には、同じく KEK つくばキャンパスにある ERL 開発棟の床面で 2013 年 3 月 8 日に測定された 3 方向 の振動のパワースペクトルとその累積変位を示す。小型サーボ型振動計(東京測振 VSE-15D)で測定された。こ こでも波浪を起源とする 0.4 Hz 付近のコヒーレント振動のピークと人工的な振動源による 3 Hz 付近の振動ピーク が KEK-B の測定結果と同じように見られる。測定時期やキャンパス内での場所の違いはあるが、振動スペクトル の強度も非常に近いこともわかる。1-100 Hz の振動成分を積分した累積変位はおよそ 0.1 µm 前後であり、これ も KEK-B での垂直方向での累積変位の測定結果とおよそ一致していて矛盾はない。



図 9.7 ERL 開発棟の床振動のパワースペクトル(左)と累積変位(右)の測定例。図中のYは垂直(鉛直)方向の変位、X,Zは床面と平行の2方向成分である。

以上の振動測定の結果から、KEK つくばキャンパス内での建物床振動は、時間帯での多少の差はあるが、1 Hz 以上の累積変位において水平・垂直方向共に 0.1 µm 程度であることがわかる。これは、0.3 µm 以内というビ ーム位置の安定度の目安を十分に満足している。振動の波長がビームライン光学系の長さやリングのベータトロ ン振動の波長よりも大きければ、1 Hz 以上の振動成分でもその影響は実質的に小さくなる。1 Hz 以上の振動成 分の内、どれだけの割合がリングやビームラインに実効的に有害な振動成分であるかを今後調べていく。また、 建物等の設計によって地盤からの振動を減衰させることも検討する。一方、床振動はリング電磁石あるいはビー ムライン機器の架台の共振によって増幅するので、その設計・製作には注意が必要である。ERL 開発棟に建設 されたコンパクト ERL(cERL)では構造解析を通して共振周波数が高く振動の増幅度が小さい弧部共通架台を 開発した[9.2]。また、PF の放射光ビームラインの一部でも剛性の高い御影石をベースとした架台が採用され、 振動の減少に貢献した[9.3]。このような架台の検討を行うことで建物床振動の架台による増幅率を1に近づける ことができる。架台の振動増幅がなくても、リング床の振動は電磁石振動を通して主に 4 極磁場の変動によって 電子ビーム軌道を揺らし、その軌道変動の大きさは電磁石振動の大きさに対して増幅される。この軌道変動は 高速高精度の軌道フィードバックシステムを用いて0.3 µm以内に抑える予定である。1 Hz以下の振動成分につ いては既に述べたように施設全体に渡って位相が揃ったコヒーレント振動が主であるのでビーム変動への影響 はほとんどない。さらに低い周波数成分(< 0.1 Hz)は、コヒーレント振動の他に地盤の長期的な変動[9.4]による ものが考えられるが、フィードバックなどの軌道補正や定期的なアライメントの実施などで対応する。この他、建 物内の機械的振動や建物近傍での交通振動などの地盤の常時微動以外の振動や変形に対する評価・対策 も、建物や光源・ビームラインの詳細設計と並行して今後進めていく。

参考文献

- [9.1] Y. Nakayama et al., Proc. of EPAC2004, Lucerne, Switzerland, pp.1711-1713 (2004).
- [9.2] 石井篤,「cERL 弧部共通電磁石架台の構造解析」, KEK Internal Report 2014-8, March 2015.
- [9.3] Photon Factory Activity Report 2014, **32**, pp.92-93 (2014).
- [9.4] V. Shiltsev, "Space-Time Ground Diffusion: The ATL Law for Accelerators", DESY-MPY, Notkestrasse 85, 22603 Hamburg, Germany.

7. ビームライン技術

1. ビームライン光学系デザイン

KEK 放射光は,長年待ち望まれていた超低エミッタンス光源である。ここでは,輝度向 上によるナノ集光ビーム(空間分解能~10 nm)や,高エネルギー分解能ビーム(ΔE~10 meV@1 keV),さらには高輝度光源の最大の特長であるコヒーレントビームを利用した,新 しいサイエンスの展開が期待されている。そこで,ナノビーム,高エネルギー分解能,コ ヒーレンス利用に焦点を絞り,それらを利用するためのビームライン光学系を検討した。 ここでは,硬X線,軟X線領域に分けて,それぞれの検討結果を示す。また,サイエンス ケースを実現するために必要となるいくつかの特殊な光学系(ビームサイズ可変,軟 X 線+ 硬 X 線ハイブリッドビームライン)の検討や,ミラーのスロープエラー(製作誤差,熱負荷, 機械振動に起因)および床の振動の影響の見積もりも行う。

1-1. 硬 X 線ビームラインの光学系デザイン

硬 X 線領域(主に 2 keV から 20 keV 程度)のビームラインとしては、二結晶分光器を用いた分光光学系を使用する予定である。本デザインレポートでは、以下の条件のもとで光学系の設計を行う。

- (1) 標準的なエネルギーとして 10 keV を選択。周期長 20 mm, 周期数 250 のアンジュレ ータの 7 次光ビークを用いる。
- (2) シールド壁の位置を考慮して、最初の光学素子は光源から30m地点に設置する。
- (3) 実験ホールの大きさを考慮して、試料位置は光源から58mとする。
- (4) 分光器前に入射スリットを設置し、後段の適切な仮想光源でのアパーチャー制限と 併せて、光源の位置や角度の変動の影響(試料位置での位置変動、強度変動として現 れる)を抑制する。
- (5) 分光結晶としては、エネルギー範囲から Sill1 反射を基本とする。
- (6) 集光素子としては、より広範な利用を想定し、ミラー光学系を採用する。コート材 としてロジウム、反射角は4mradを基本とする。高輝度ビームを活かすため、ミラ ー長を100mm~300mm程度とし、ミラー表面形状のエラーの極小化を目指す。
- (7) 2 keV までのテンダーX 線領域やコヒーレンスを積極的に活かすため,窓材や光学素 子の数を最小にする(窓材については,硬X線領域のみ Be 窓 0.5 mm 厚を想定して 設計を行うが,差動排気システムの採用も検討する)。また,高エネルギー分解能化, 偏光制御については,四結晶高分解能モノクロや偏光素子を利用することを想定す る。

(1) 光学系の配置

図 1-1 にビームラインの模式図を示す。いずれも、垂直方向については最上流にスリット を配置し、二結晶分光器に入射するビームの制限を行う。入射スリットを通った発散光を 二結晶分光器で分光し、集光光学系へ出射する。分光された単色光は、コヒーレンス利用 ビームラインでは直後にスリットを配置して水平方向のビーム制限を行い、仮想光源とす る。集光光学素子は、試料直前に K-B 配置のミラーを設置し、試料位置に集光する。この ようなシンプルな光学系を採用することで、コヒーレンスをなるべく乱さず試料に照射で きるものと考えている。

ナノ集光光学系では、分光器直後に K-B 集光光学系を配置し、一旦仮想光源(Virtual Source)に集光し、仮想光源の開口によって最終的なビームサイズを調整する。この一段階 目の集光の縮小率は、ナノ集光光学系(1)の場合は鉛直方向が約 7:1、水平方向が約 3:1 とし た。もちろん、縮小率を上げるほど微小なビームが実現可能になるが、発散角が大きくな りすぎて後置集光鏡で受けきれなくなり、縮小率を上げずに仮想光源を絞った場合と同様 にビームをロスすることになるので、この程度の縮小率にしている。仮想光源から出射さ れたビームは、同じく K-B 配置の後置集光鏡により試料位置に集光される。後置集光鏡の 位置と大きさは、試料周辺で使える空間をビーム方向で 150 mm 程度(チェンバー末端から 試料位置まで)確保することを想定し、最下段の光学素子を 57.7 m、長さを 200 mm とした (後段の縮小率は、鉛直方向が約 30:1、水平方向が約 36:1。したがって全体ではそれぞれ 210:1、108:1 となる)。このような試料空間を確保することで、ほとんどのナノビーム利用

実験を展開できるのではないかと考えている。

ナノ集光光学系(2)では、同様の配置をとるが、仮想光源スリット位置の最適化(縮小率 は、鉛直方向が3.7:1,水平方向が6.2:1)、後段集光鏡の最小化(長さ100mm)及び反射角 の最大化(6mrad)、試料空間の極小化(利用可能空間がビーム方向で50~70mm程度)を 行うことでより微小なビームを実現している。後段の縮小率は、鉛直方向が106:1,水平方 向が73:1となり、全体としてはそれぞれ392:1,453:1となる。後置集光鏡の反射角を最大 化するために、ミラーコート材に白金を採用しており、白金吸収端より高エネルギー側の 利用は想定していない。また、試料空間も極小なため、利用できる実験はかなり制限され る。50~100 nm以下のビームを利用する際には、後置集光系としてフレネルゾーンプレー ト等の回折格子型の集光素子を利用することも検討している(その際には仮想光源位置の 最適化が必要となる)。

高分解能ビームラインでは、分光器直下に(+,-,-,+)配置のSi333反射を利用した高分解 能モノクロ、その下流に集光系を配置している。大規模装置の設置を想定して、試料空間 を最大化するため、最下段の光学素子を試料位置から7m手前に配置し、マイクロビーム程

2 / 70

度のビーム利用が可能になる光学系デザインとしている(通常のエネルギー分解能でマイ クロビーム利用の場合も同様の光学系デザインが想定される)。高分解能モノクロから出射 されたビームは,水平方向のみ一旦仮想光源スリットに集光されて開口制御され,後段の 水平集光ミラーで試料位置に再集光される。前段と後段の集光率は,それぞれ 4.5:1,1:1 としている。鉛直方向については入射スリットのみで開口制限し,48 m 位置に設置した鉛 直集光ミラー(4.8:1)で試料位置に集光する。



(2) ビーム性能の見積もり

硬 X 線領域におけるビームサイズや発散角, エネルギー分解能の見積もりは, 光線追跡 法を用いて行った (XOP ver2.4/Shadow VUI ver1.12による計算)。コヒーレンスの割合につ いては, ここでは光線追跡によって得られたビームサイズと発散角の積を回折限界条件と 比較することによって見積もるにとどめた。今後より詳細な検討を行う予定である。フラ ックスの見積もりに際しては, 幾何学的なスループットに加えて,分光器の反射率や回折 効率, ミラーの反射率,窓の吸収率等を考慮したが,ミラーの表面精度の情報や熱負荷に よる表面性能の劣化については,この節では考慮していない。ミラーサイズの極小化によ るミラー表面精度の向上や,後段集光鏡の近接化による表面精度の影響の低減などを考え ており,熱負荷についても低減するための検討を進めているが,ビームサイズや性能につ いてファクター程度の悪化の可能性があることに十分な注意が必要である。詳細は1-5節で 検討する。

図1-2にコヒーレンス利用ビームラインでの試料位置でのビームプロファイルを示す。入 射スリット及び仮想光源スリットの開口は、図中に示した通りである。集光ミラーの表面 形状は非球面を想定しているが、Bimorphミラーなどの補正機能を装備することで、理想的 な表面を高精度に実現できるものと考えている。概ね縮小率から予想される通りのビーム サイズが得られており、フラックスは 1.2×10¹² ph/s 程度、そのうちコヒーレントな成分が 1×10¹² ph/s 程度と見積もられる。光源点におけるコヒーレント比が 1%程度であり、入射ス リット及び仮想光源点で 1/100 の開口制限をかけていることを考えると妥当な見積もりだ と思われる。もちろん各光学素子表面性能の悪化や窓材の影響により乱される分を考慮す る必要はあるが、かなり高いコヒーレント成分を安定に利用できるものと考えている。



図 1-2: コヒーレンス利用ビームラインにおける試料位置でのビームプロファイル。

図1-3にナノ集光光学系に対する,試料位置でのビームプロファイルを示す。入射スリット及び仮想光源スリットの開口は,同様に図中に示している。鉛直方向の仮想光源におけるビームサイズは,数µm程度まで集光されているため,開口制限はせずに後段集光光学系に照射している。これらも概ね縮小率から予想される通りのビームサイズが得られており,フラックスはそれぞれ1.5×10¹² ph/s, 1.1×10¹² ph/s程度と見積もられる。水平方向に関してはスリットにより十分コリメートされているので問題無いが,鉛直方向については仮想光源点位置あるいは後段集光光学系でのビーム位置制御が重要である。適切なビームモニタ及びビーム制御システムを装備することで,提案のようなナノビーム利用を十分実現できると考えている。



図 1-3: (a) ナノ集光光学系(1)および(b)ナノ集光光学系(2)に対する試料位置でのビーム プロファイル。

図 1-4 に高分解能マイクロフォーカスビームラインでの試料位置でのビームプロファイ ルを示す。Si333の反射を利用した高分解能モノクロで分光しているため、10 keV でエネル ギー分散が 0.0 53eV と、 ΔE/E = 5.3×10⁶ のエネルギー分解能となっている。この時のビー ムサイズは 2 µm 程度、フラックスは 8.7×10¹⁰ ph/s となり、十分な性能を達成できていると 思われる。この光学系でも鉛直方向には数 µm 程度の位置制御が必要であり、同様に適切な ビーム制御システムを装備することで解決できるものと考えている。



図 1-4: 高分解能マイクロフォーカスビームラインにおける試料位置でのビームプロファイル。

1-2. 真空紫外・軟 X 線ビームラインの光学系デザイン

軟 X 線領域(主に 100 eV から 2 keV 程度)のビームラインとしては,斜入射回折格子分光 器を用いた分光光学系を使用する予定である。本デザインレポートでは,以下の条件のも とで光学系の設計を行う。

- (1) シールド壁の位置を考慮して、最初の光学素子は光源から30m地点に設置する。
- (2) 実験ホールの大きさを考慮して、 試料位置は光源から 58 m とする。
- (3) 入射スリットを設置し、分光器に対する(垂直方向の)仮想光源とする。これによって、エネルギー分解能に大きく寄与する、分光器から見た光源のサイズを制御できるし、光源の位置や角度の変動の影響(分解能の悪化や単色化後のエネルギーのずれ)を大幅に抑制することができる。
- (4) 分光器の長さ(入射スリットから出射スリットまで)は 15 m 前後とし,可変偏角の Monk-Gillieson 型不等刻線間隔平面回折格子分光器[1]を採用する。

(1) 光学系の配置

図1-5にビームラインの模式図を示す。いずれも、垂直方向については最上流のサジタル (Sagittal)配置の円筒(Cylindrical)鏡によって5:1の縮小率で入射スリット(Entrance Slit)に集光 し、分光器に対する仮想光源とする。入射スリットを通った発散光をトロイダル(Toroidal) 鏡もしくはサジタル配置の円筒(Cylindrical)鏡によって出射スリット(Exit Slit)付近へ向けて 収束光にし、平面(Plane)鏡で偏角を決めたのちに不等刻線間隔平面回折格子(VLSPG)に照射 する。VLSPGによって波長分散された軟X線を出射スリットで切り出すことで単色化する。 波長掃引は、VLSPGの一軸回転のみで行えるが、広い波長範囲で分解能と強度を保つため に、平面鏡を同期回転させてVLSPGにおける偏角を最適な値に設定する。なお、平面鏡は 並進と回転を同時に行うことで常にVLSPGの中心に軟X線を照射する必要があるが、この 二つの動きは、軸外しの一軸回転で代用できる。出射スリットを抜けた単色光は、簡易集 光光学系ではトロイダル鏡によって、ナノ集光光学系ではK-B(Kirkpatrick-Baez)配置の楕円 (Elliptical)鏡によって試料位置に集光される。垂直方向の縮小率は簡易集光、ナノ集光それ ぞれについて、1:1、785:15 (=52:1)である。なお、垂直方向については出射スリットが第2 の仮想光源となるが、ナノ集光光学系においては、後置鏡の縮小率を稼ぐために、分光器 の全長を14 m としている。

水平方向については、分光器とは独立に集光が可能なので、簡易集光光学系においては 入射スリット下流のトロイダル鏡、ナノ集光光学系においては上流から2枚目の楕円 (Elliptical)鏡によって、一旦、水平方向の仮想光源(Horizontal Virtual Source)に集光し、仮想 光源の開口によって最終的なビームサイズを調整する。この一段階目の集光の縮小率は, 簡易集光光学系の場合は5:2, ナノ集光光学系の場合は44:6.5 とした。もちろん,縮小率を 上げるほど微小なビームが実現可能になるが,発散角が大きくなりすぎて後置集光鏡で受 けきれなくなり,縮小率を上げずに仮想光源を絞った場合と同様にビームをロスすること になるので,この程度の縮小率にしている。また,楕円鏡ではなく円筒鏡を用いた場合で も,水平方向の仮想光源における多少のビーム強度のロスに目をつぶれば,試料位置では 同程度の集光サイズが期待できる。仮想光源からの発散した軟 X 線は,簡易集光光学系で はトロイダル鏡,ナノ集光光学系では楕円鏡によって試料位置に集光される。この二段目 の集光の水平方向の縮小率は,簡易集光,ナノ集光に対してそれぞれ,4.5:3,232:3 である。 したがって,ビームライン全体としての水平方向の縮小率は,それぞれ 198:19.5 (= 10.2:1), 7192:10.5 (= 685:1)となる。



図 1-5: 簡易的な集光(上)および K-B 光学系による集光(下)を採用した軟 X 線ビームラインの 模式図。

なお、ナノ集光光学系で前置鏡を2枚に分割したのは、一つには第2ミラーを楕円鏡とす ることによって水平方向の仮想光源への集光特性をよくするためであるが、その他にも垂 直方向と水平方向の集光を別のミラーにすることによって調整の自由度が高まることや、 高い精度が要求される楕円鏡を第2ミラーとすることで熱負荷を軽減できることなどのメ リットがある。

8 / 70

(2) 分光器の設計とエネルギー分解能の見積もり

本デザインレポートでは、標準分光器と高分解能分光器の二種類の設計を行い、それぞれ 1 keV において 50 meV, 10 meV の分解能を目標とする。分光器のパラメータの最適化は、以下の手順にしたがって行った[1]。なお、回折格子の刻線密度 N は、 $N = N_0 (1 + a_1 x + a_2 x^2 + a_3 x^3)$ と定義する(x は回折格子上の光軸方向の位置で、中心を 0 とする)。

- エネルギー(*E*1, *E*2)と対応する偏角(2*K*1, 2*K*2)の組み合わせを2組選び、それらにおいて defocus 収差がゼロになるように、*a*1,および M1 のサジタル方向の曲率半径*p*を決める。
- (2) E1, E2以外のエネルギーについては, defocus 収差がゼロになるように偏角を決める。
- (3) エネルギー(E3)を選び、そこで coma 収差がゼロになるように a2を決める。
- (4) エネルギー(E4)を選び、そこで spherical 収差がゼロになるように a3を決める。

表 1-1, 1-2 に, 全長 16 m の分光器(簡易集光光学系で採用したもの)について, 最適化に用 いたパラメータをと最適化の結果を示す。なお,標準分光器では3種類の回折格子に対して 同じpになっているので,回折格子を切り替えるだけで広いエネルギー範囲がカバーできる。 一方,高分解能分光器の場合は,回折格子によって異なるpになっており,回折格子を切り 替えて用いるためには円筒鏡も切り替えることになるが,ここに示したのは異なる分解能 を有するいくつかの設計例であり,これらを切り替えて利用するという意味ではない。

溝本数 N ₀ (l/mm)	600	1000	1800
E1(eV)[defocus=0]	300	500	900
E2(eV)[defocus=0]	1200	2000	3600
E3(eV)[coma=0]	600	1000	1800
E4(eV)[spherical=0]	600	1000	1800
2K1(deg)	174.3	174.3	174.3
2 <i>K</i> 2(deg)	176.8	176.8	176.8
$\rho(m)$	1.3907E-01	1.3907E-01	1.3907E-01
$a_1(\text{mm}^{-1})$	-3.3238E-04	-3.3238E-04	-3.3238E-04
$a_2(\text{mm}^{-2})$	8.2785E-08	8.2785E-08	8.2785E-08
$a_3(\text{mm}^{-3})$	-2.4243E-11	-2.4243E-11	-2.4243E-11

表 1-1: 標準分光器(全長 16 m)の最適化パラメータ

溝本数 N ₀ (l/mm)	2400	1800	1200
E1(eV)[defocus=0]	500	500	500
E2(eV)[defocus=0]	1000	1000	1000
E3(eV)[coma=0]	750	750	750
E4(eV)[spherical=0]	750	750	750
2 <i>K</i> 1(deg)	172.9	173.3	174.3
2 <i>K</i> 2(deg)	174.85	175.1	175.9
$\rho(m)$	1.2998E-01	1.3595E-01	1.3528E-01
$a_1(\text{mm}^{-1})$	-3.3119E-04	-3.3140E-04	-3.3085E-04
$a_2(mm^{-2})$	8.2013E-08	8.2202E-08	8.1950E-08
$a_3(\text{mm}^{-3})$	-1.8348E-11	-1.9546E-11	-1.9641E-11

表 1-2: 高分解能分光器(全長 16 m)の最適化パラメータ

次にこれらの分光器に対して分解能の見積もりを行う。光源としては長直線部に設置さ れた長さ5mのアンジュレータを仮定し,入射スリット開口と回折格子のスロープエラーは 標準分光器についてはそれぞれ5µm,0.25µrad,高分解能分光器については2.5µm,0.1µrad とした。平面回折格子に対するスロープエラーとして,0.25µrad は比較的小さいが,通常 の業者から入手可能と考えられる。一方,0.1µrad は現時点では若干挑戦的な値であろう。 なお,スロープエラーの影響が最もシビアなのは回折格子なので,ここでは円筒鏡と平面 鏡のスロープエラーは考慮していない。また,分解能の見積もりにおいては,(仮想)光源サ イズや収差はもちろん,回折格子の照射面積も考慮している。出射スリットの開口は,そ れぞれのエネルギーにおいて分解能と強度のバランスが最適になるように設定するものと する[1]。

図 1-6 に標準分光器に対して見積もった分解能(スロープエラーによって決まる分解能と, それも含めた全体の分解能)を示す。目標とした 50 meV @ 1 keV を達成できるとともに,3 種類の回折格子を切り替えることで,250-2000 eV の範囲にわたって E/ΔE = 20,000 以上の分 解能が実現できている。



図 1-6: 標準分光器(全長 16 m)に対するエネルギー分解能の見積もり。

同様に高分解能分光器に対して見積もった分解能を図 1-7 に示す。1 keV における分解能 に着目すると、2400 l/mm の回折格子を用いた場合に、目標としている 10 meV がぎりぎり 達成できている。ただし、スロープエラーによる制限がかなり厳しくなっており、このよ うな高分解能は、0.1 µrad という値が実現して初めて達成可能である。

また、ナノ集光光学系で採用した、全長が14mの分光器についても、同様に分解能の見 積もりを行った。回折格子分光器は、入射スリット開口が同じであれば、基本的には全長 が長い方が高分解能を実現できる(ただし、スロープエラーの影響は、基本的に一定である) が、ここでは全長14mでも16mの場合と同程度の分解能が得られるように、縮小率を調整 している(具体的には、入射スリットから円筒鏡までの距離に対して、そこから出射スリッ トまでの距離を短く設定している)。表1-3に最適化に用いたパラメータと最適化の結果を、 図1-8、図1-9にエネルギー分解能の見積もりを示すが、いずれも全長16mの場合と大差な いことがわかる。なお、分光器をはじめとする光学系全体のパラメータは、様々な条件を 考慮して決めていくものであり、ここ示したのはあくまでも一例である。


図 1-7: 高分解能分光器(全長 16 m)に対するエネルギー分解能の見積もり。

	標準分光器			高分解能分光器		
N ₀ (l/mm)	600	1000	1800	2400	1800	1200
E1(eV)	300	500	900	500	500	500
E2(eV)	1200	2000	3600	1000	1000	1000
E3(eV)	600	1000	1800	750	750	750
E4(eV)	600	1000	1800	750	750	750
2 <i>K</i> 1(deg)	174.3	174.3	174.3	172.9	173.3	174.3
2 <i>K</i> 2(deg)	176.8	176.8	176.8	174.85	175.1	175.9
ho(m)	1.1914E-1	1.1914E-1	1.1914E-1	1.1032E-1	1.1609E-1	1.1544E-1
$a_1(\text{mm}^{-1})$	-4.4318E-4	-4.4318E-4	-4.4318E-4	-4.4158E-4	-4.4186E-4	-4.4113E-4
$a_2(\text{mm}^{-2})$	1.4717E-7	1.4717E-7	1.4717E-7	1.4580E-7	1.4614E-7	1.4569E-7
$a_3(\text{mm}^{-3})$	-5.404E-11	-5.404E-11	-5.404E-11	-4.330E-11	-4.550E-11	-4.564E-11

表 1-3: 全長 14 m の分光器に対する最適化パラメータ



図 1-8:標準分光器(全長 14 m)に対するエネルギー分解能の見積もり。



図 1-9: 高分解能分光器(全長 14 m)に対するエネルギー分解能の見積もり。

(3) ビームサイズの見積もり

試料位置におけるビームサイズは、光線追跡法を用いて行った。特にナノビームを目指 す場合、本来は波動光学の計算も必要になるが、ここでは光線追跡によって得られたビー ムサイズと発散角の積が、回折限界条件を下回っていないことを確認するにとどめた。ま た、分光器としては標準分光器を用い、回折格子に対するスロープエラー(0.25 μrad)のみを 考慮した。したがって、特に楕円鏡の製作精度によって、ビームサイズが大きくなる可能 性があることに十分な注意が必要である(具体的には 1-5 節で検討する)。フラックスの見積 もりに際しては、幾何学的なスループットに加えて、ミラーの反射率および回折格子の回 折効率と反射率を全て考慮した。ただし、ミラーの面粗さは考慮していない。なお、取り 込み角は水平 60 μrad、垂直 80 μrad とした。

図 1-10 に簡易集光光学系に対する,試料位置でのビームプロファイルを示す。入射,出 射スリット,および水平方向の仮想光源の開口は,図中に示した通りである。おおむね縮 小率から予想される通りのビームサイズが得られている。フラックスは 3×10¹² ph/s 程度, そのうちコヒーレントな成分は 2×10¹¹ ph/s 程度である。光源点におけるコヒーレント比が 10%程度であることを考えると,コヒーレントフラックスが若干低いように思えるが,これ は主に,回折格子のスロープエラーによって像が拡がるためと考えられる。

ナノ集光光学系を用いた場合のビームプロファイルを図 1-11 に示す。ビームサイズはσ 値で示しているが、半値全幅(FWHM)に換算して 50 nm 程度のビームサイズが実現している。 水平方向の仮想光源を、その位置でのビームサイズより大幅に絞っていることと、ミラー が1枚多いために反射率によるロスが増えることによって、フラックスは 1.7×10¹¹ ph/s 程度 まで減少している。

文献

[1] K.Amemiya and T.Ohta, J. Synchrotron Rad. 11 (2004) 171.



図 1-10: 簡易集光光学系に対する試料位置でのビームプロファイル。

1000 l/mm, 1 keV, ∆*E*~50 meV



図 1-11: ナノ集光光学系に対する試料位置でのビームプロファイル。

1-3. 軟 X 線・硬 X 線ハイブリッドビームラインの検討

KEK 放射光の特長の一つは,主に電子状態を観察するのに適した軟 X 線と,構造を決定 するのに適した硬 X 線の両方において,高輝度なビームが得られることである。もちろん, 軟 X 線と硬 X 線それぞれのビームラインにおいて同じ試料に対する実験を行うだけでも極 めて有用であるが,KEK 放射光の特長をさらに活かし,同じ試料位置において軟 X 線と硬 X 線の両方が利用できるビームラインでサイエンスを展開するという提案が数多くなされ ている。ここでは,そのような要望を満たす,軟 X 線・硬 X 線ハイブリッドビームライン の検討を行う。

すでに述べた通り、分光器としては軟 X 線領域では斜入射回折格子分光器、硬 X 線領域 では二結晶分光器が適している。現在、PF の BL-2 において、これら二つのタイプの分光器 を統合し、30 eV – 4 keV という広いエネルギー範囲をカバーするビームラインが稼働中で ある。そこで本デザインレポートでは、PF の BL-2 のコンセプトを採用し、軟 X 線・硬 X 線両方において高輝度なビームが得られるビームラインを設計する。

図 1-12 にビームラインの模式図を示す。1-2 節で検討した,軟 X 線領域におけるナノ集光 ビームラインを基本とするが,不等刻線間隔回折格子(VLSPG)の下流に二結晶分光器(DCM) を配置している。軟 X 線ビームラインにおいては,M2 によって跳ね上げられたビームは回 折格子によって分散され,そのなかで必要な波長のみを出射スリット(Exit Slit)で切り出して いるが,この時ビームの高さは M2 に照射される前と比べて 17 mm 高くなっている。従っ て,DCM の二枚の結晶の配置を,ビームの高さが 17 mm 高くなるように設定すれば,軟 X 線利用時(DCM を横に退避)と硬 X 線利用時(M2 を横に退避)とで,光軸を全く同じにするこ とができる。なお,DCM には集光機能がないため,硬 X 線利用時に垂直方向のフォーカス がうまくいかないと思うかもしれないが,本デザインレポートで採用している Monk-Gillieson 型の斜入射分光器は,VLSPG を通さない場合でも,入射スリット(Entrance Slit)の下流の集光鏡(M1)によって,垂直方向のビームがほぼ出射スリット位置(厳密には出 射スリットの約 50 mm 上流)に集光されるので,以下に示す通り大きな問題にはならない。



図 1-12: 軟 X 線・硬 X 線ハイブリッドビームラインの模式図。軟 X 線利用時には二結晶分光器 (DCM)を横に退避し,硬 X 線利用時には平面鏡(M2)を横に退避する。

16 / 70

光学素子のパラメータを表 1-4 にまとめる。ここで、ミラーの入射角とコート材に注意が 必要である。同じミラーを使って軟 X 線と硬 X 線の両方を反射させるためには当然、より エネルギーの高い硬 X 線領域に合わせてこれらを設定するべきであるが、あまり入射角を 浅くすると発散角の大きい軟 X 線領域において取りこぼしが多くなる。ここでは比較的要 望の強い、300 eV – 10 keV をカバーすることを想定して、10 keV で十分な反射率が得られ ることを目指し、Pt コート、入射角 0.4 度を採用する。この条件であれば、300 eV – 2 keV および 3–10 keV において、75%以上の反射率が得られる。残念ながら 2–3 keV の間では、 Pt の吸収端のために反射率が著しく低下するが、ここではこれで妥協する。なお、2–3 keV 領域が必要な場合には例えば Ni コートを用いることが考えられる。

名称	形状	長さ	入射角	コート	R	ρ
M0	Cylindrical (sagittal)	300 mm	0.4 deg	Pt	∞	69.81 mm
M0'	Cylindrical	300 mm	0.4 deg	Pt	1821 m	x
M1	Cylindrical (sagittal)	150 mm	0.4 deg	Pt	∞	47.66 mm
M2	Plane	310 mm	0-4 deg	Au	∞	x
VLSPG	Plane	100 mm	0-8 deg	Au	∞	x
VFM	Elliptical	300 mm	0.4 deg	Pt	_	00
HFM	Elliptical	300 mm	0.4 deg	Pt	∞	_

表 1-4: 軟 X 線・硬 X 線ハイブリッドビームラインの光学素子のパラメータ

図 1-13 と図 1-14 にそれぞれ,軟 X 線領域,硬 X 線領域における試料位置でのビームプロ ファイルの計算結果を示す。300 eV – 10 keV の範囲を一台のアンジュレータでカバーする ことは難しいので,便宜上,硬 X 線,軟 X 線領域それぞれ,1-1,1-2節で仮定したのと同じ アンジュレータを用いている。したがって,例えば 2 台の短いアンジュレータをタンデムに 配置した場合には,得られるフラックスは見積もられた値よりも小さくなることに注意が 必要である。計算結果を見ると,軟 X 線・硬 X 線いずれも,サブミクロン程度のスポット サイズが得られている。なお,1-1,1-2節で検討したナノ集光光学系に比べてスポットサイ ズが大きいのは,縮小率をあまり高くしていないからであるが,これは,例えば軟 X 線領 域におけるナノ集光光学系のままで,入射角だけを 0.4 度入射にしてしまうと,ビームの取 り込み角が大幅に減少し,回折限界に達してしまうことによって,縮小率の割にはスポッ トサイズが小さくできないからである。なお,軟 X 線領域では出射スリットにおいて垂直 方向に波長分散した X 線が得られるため,垂直方向の強度分布はフラットになっており, それを反映して試料位置でもほぼフラットな像が得られるのに対し,硬 X 線領域では単純 な反射光になるため,出射スリットおよび試料位置において垂直方向に分布が見られる。 そういったビーム形状の違いを反映して FWHM は異なっているが,基本的には試料位置で のビームサイズは水平仮想光源と出射スリットの開口によって決まっている。なお,硬 X 線領域におけるエネルギー分散は 10 keV で 2.5 eV, 5 keV で 0.98 eV と見積もられた。10 keV での値は 1-1 節で得られたものに比べて 2 倍程度大きいが,これは DCM への入射ビームが 垂直方向に収束光になっており,しかも M0 の縮小率のために光源からの発散ビームよりも 収束角がきつくなっているためと考えられる。



図 1-13: 軟 X 線モードにおける試料位置でのビームプロファイル(1 keV および 300 eV)。



図 1-14: 硬 X 線モードにおける試料位置でのビームプロファイル(10 および 5 keV)

1-4. スポットサイズ可変ビームラインの検討

様々なサイエンスケースにおいて、微小なビームだけでなく、同じ位置でビームサイズ を可変にしてほしいという要望がある。典型的には 100 µm から 1 µm 程度の間で連続可変 という要望であるが、中には数 10 nm から数 100 µm という、4 桁にもおよぶ変化を希望す るケースもある。ここでは、スポットサイズを可変にできるビームライン光学系の可能性 を検討する。

まず単純に考えられるのは、試料位置への集光ミラーにベント機構を導入して曲率半径 を可変とすることである。もちろん、ミラーを思い通りにベントすることさえできればス ポットサイズは自由に変えられるが、実際には様々な困難が予想される。考えられる問題 点は以下の通りである。

- (1) 微小ビームを実現するには非球面形状(多くの場合楕円形状)が必要になるので、少なくとも微小スポットに対応する曲率半径では正確な形状が要求される。
- (2) 微小スポットを実現するためには焦点距離が短い(曲率半径が小さい)ミラーが必要 となり、ベントが困難になることがありうる。
- (3) ベントすることによってミラーの入射角や位置が変わるとスポットの位置が変化するので、調整に注意が必要である。

例えば、自然な状態では焦点距離の短い正確な楕円形状であるミラーを用意し、そこから ベント機構によって曲率半径を変えていくという方法が考えられるが、そのような方法で どれだけ再現性良く形状を制御できるか、どこまで曲率半径を変化させられるか、慎重な 検討が必要である。

もう一つの単純な可能性は、集光ミラーを切り換え式にすることであるが、この場合ス ポットサイズは離散的にしか変化させられないし、ミラーの枚数分だけミラー自身とホル ダーのコストがかかることになる。

ここでは別の可能性として,仮想光源への集光ミラーにベント機構を導入する方法を検 討する。仮想光源のある集光光学系では,前段のミラーによって一旦ビームを集光し,そ こでビームを適切な大きさに成形して仮想光源としたあとで,後段のミラー(例えば楕円鏡) によって試料位置へ集光する。この際,後段の集光ミラーの収差やスロープエラーが十分 に小さければ,試料位置におけるビームサイズは,仮想光源のサイズ,および後段のミラ ーの縮小率で決まる。ごく単純には,仮想光源におけるビームサイズを故意に大きくして おけば,仮想光源の開口によって試料位置でのビームサイズを自由に変えられるが,この 場合,試料位置で微小ビームを得るために仮想光源を絞ると,大幅にビームをロスするこ とになってしまう。これではあまり意味がないので,ここでは,仮想光源への集光を行う 前段のミラーの曲率を可変とする。この方法の利点は以下の通りである。

- (1) 必要なビームサイズに合わせて仮想光源の開口を設定し、それに合わせて前段のミ ラーの曲率半径を変化させることによって、ビーム強度のロスを最小限に抑えるこ とができる。
- (2) 後段の集光光学系は通常,高い縮小率になっているため,仮想光源のサイズは試料 位置のスポットサイズよりも大きい。したがって,前段の集光ミラーの形状には, それほど高い精度は要求されないことが多い。
- (3) ベント機構によって正確なミラー形状が得られない場合にも、仮想光源によってビームを成形するので、試料位置におけるビーム形状は保たれる(もちろんビーム強度は若干ロスすることになる)。
- (4) 前段の集光ミラーは曲率半径が比較的大きくベントしやすい場合が多い。

このような光学系の有効性を確認するために,硬 X 線領域のビームラインの一例として図 1-15 に示すような光学系を設計した。なお,本来は第一ミラーの上流に二結晶分光器があ るが,光線追跡上は影響を与えないので省略している。

		Cylind (radius	Virtu rical Sour	rce Ellip	Ellip	Sample
		Cylindrical (radius = R1)	<mark>830 μm</mark> 83 μm 8.3 μm	n <mark>X 410 μn</mark> n X 41 μm n X 4.1 μm	n 10 1	<mark>0 μm X 100 μm</mark> 0 μm X 10 μm 1 μm X 1 μm
•	38 m	7.0	7.0	4.5	0.5	0.6

図1-15: スポットサイズ可変ビームラインのレイアウト例。ミラーの入射角は全て4 mradとした。 仮想光源の開口と試料位置におけるスポットサイズの組み合わせを黒,青,赤で示す。

光源からの発散光は,二枚のベント機構付き円筒(Cylindrical)鏡によって仮想光源(Virtual Source)に集光される。仮想光源で成形されたビームは二枚の楕円(Elliptical)鏡によって試料 位置に集光される。後段の集光光学系の縮小率は,8.3:1 (水平)および4.1:1 (垂直)である。 したがって,仮想光源の開口を8.3 μm (h.) × 4.1 μm (v.)に設定することによって,試料 (Sample)位置において1 μm (h.) × 1 μm (v.)のビームが得られる。

ここで、二枚の円筒鏡の曲率半径を変化させることによって、仮想光源におけるビーム サイズを制御する。この原理を図 1-16 に模式的に示す。垂直方向については、Side view に 示すように、前段集光の焦点を上流にずらしていくことによって、仮想光源におけるビー ムサイズを大きくする。どこまでビームサイズが大きくなるかは、ビームの発散角に依存 するが、ここでは例として、5m直線部に周期長 20mmのアンジュレータを設置し、そこか ら得られる 10 keV の X 線を利用することを想定している。その場合,図 1-16 に示すように 前段集光ミラーの曲率半径(R1)を本来の値である 5120 m から 4700 m, 2400 m と変化させる ことで、仮想光源における垂直方向のビームサイズを約 5μm, 50 μm, 500 μm と大きくする ことができる。一方、水平方向に関しては、同じように焦点を上流にずらしてしまうと、 ビームの発散角が大きくなりすぎ、後段のミラーで受けきれなくなるので、垂直方向とは 逆に、焦点を下流にずらしていくことによって仮想光源におけるビームサイズを大きくす る。図 2 に示すように前段集光ミラーの曲率半径(R2)を本来の値である 3030 m から 3400 m, 10000 m と変化させることで、仮想光源における垂直方向のビームサイズを約 10 μm, 100 μm, 1000 μm と大きくすることができる。このようにして仮想光源において大きくなったビ ームを適切な大きさに成形し、試料位置に再集光することで望みのビームサイズを得るこ とができる。



図 1-16: 円筒鏡の曲率半径を変化させることによるビームサイズ制御の模式図。黒,青,赤のラ インがそれぞれ,1µm,10µm,100µmのビームサイズに対応する。

図 1-17 に光線追跡法によって見積もった,試料位置におけるビームサイズを示す。上記 のように、ミラーの曲率半径と仮想光源の開口を変化させることによって、ビームサイズ を 1µm, 10 µm, 100 µm と制御できることがわかる。なお、幾何学的スループットの違いは 仮想光源におけるビームのロスによるものである。1 µm の場合にビーム強度のロスが大き いのは、光源サイズと前段の集光ミラーの縮小率で決まる仮想光源におけるスポットサイ ズが、それほど小さくはないので、1/4 程度までビームを削る必要がある(これは可変スポッ トサイズにしなくても同様である)ためである。また、スポットサイズ 10 µm, 100 µm におい ても、ビームの均一性をある程度確保するために仮想光源におけるスポットサイズが開口 よりも十分大きくなるように曲率半径を設定しているため、1/2 程度のビーム強度のロスが ある。



図 1-17: 光線追跡法によって見積もった,試料位置におけるビームサイズと発散角。前段集光ミ ラーの曲率半径,仮想光源の開口,幾何学的スループットも示した。

今後,この方法が本当に適用可能かどうか,ベント機構も含めた詳細の検討を行うとと もに,より小さいビームサイズまで可変にできるかどうかを検討する予定である。また, 軟X線領域(回折格子分光器)では,分光器によって垂直方向のビームが分光器の出射スリッ トに集光され,スリットへの集光とスリットの開口がエネルギー分解能を決めてしまうの で,ビームサイズの制御に対する自由度が少なくなる(集光光学系のために自由に使える距 離が短い)。水平方向はここで検討したものと同様の方法が使えるが,垂直方向については さらなる検討が必要である。

1-5. ミラーのスロープエラーおよび機械的振動の影響

ここまでの計算はすべて,理想的なミラー形状を仮定している(回折格子のスロープエラ ーを除く)。本節では,実際に起こり得る様々なエラー(製作時のスロープエラー,熱負荷に よる変形,機械的振動による角度変動)が,ビームサイズやエネルギー分解能,フラックス にどのような影響を与えるかを検討する。なお,熱負荷による変形や機械的振動による角 度変動は,近似的にミラー製作時のスロープエラーと同等なので,以下ではミラーのスロ ープエラーのみを扱う。

(1) 硬 X 線ビームライン(ナノ集光光学系)

まず,1-1節の図1-1の上から2番目に示した,硬X線領域のナノ集光光学系(1)について 検討を行う。このビームラインは上流から、二結晶分光器、K-B光学系(上流)、仮想光源、 K-B光学系(下流)からなる。水平仮想光源の開口は 1-1 節と同様に 1.8 µm とするが、ここで は垂直仮想光源の開口も 1.5 μm に制限する(1-1 節では全開としていた)。図 1-18 に,二結晶 分光器の第1分光結晶のスロープエラーの影響を示す。白色 X 線をダイレクトに受けるた め、熱負荷が圧倒的に大きい光学素子である。ここで、スロープエラーは凹面モデルおよ び凸面モデルを用いて近似し,結晶面の長手方向全体の rms 値として定義する(硬 X 線ビー ムラインについて、以下同様)。ただし、凹面と凸面で目立った違いは見られなかったので、 結果は凹面モデルに対するもののみを示す。図1に試料位置におけるビームサイズ、フラッ クス, エネルギー分解能を示す。 エラーがない場合を1としてプロットした。 下流に仮想光 源があるので、ビームサイズにはほとんど影響せず、フラックスのみが低下することがわ かる。また、エネルギー分解能については、確かに第一分光結晶後では入射角の変化によ ってエネルギー広がりが大きくなるが、入射角がずれた成分(結果的にエネルギーがずれる) は、第2結晶への入射角が第1結晶と異なるため、ブラッグ反射を起こしにくくなる。した がって結果的に、エネルギーが広がった成分は下流に到達しないため、試料位置での分解 能はほとんど変化しないと理解できる。なお、フラックスの低下は、下流の仮想光源にお けるビームサイズの広がりが主な原因である。この結果から、性能(この場合はフラックス) が 20%低下するスロープエラーを Er(20%)と定義すると, Er(20%)=4.2 µrad 程度になる。



図 1-18: 第一分光結晶のスロープエラーの影響。

次に上流側の K-B 光学系に対するスロープエラーの影響を図 1-19 に示す。下流に仮想光 源があるため,試料位置でのビームサイズはさほど変化しないが,フラックスは低下する。 同様に Er(20%)を見積もると,縦振り,横振りミラーそれぞれに対して 0.10, 0.70 µrad とな る。



図 1-19: K-B 光学系(上流)の縦振り(左)、横振り(右)ミラーに対するスロープエラーの影響。

最後に下流側の K-B 光学系に対するスロープエラーの影響を見積もる。この光学系は, 仮想光源で切り出したビームを試料位置に集光するものであり,光学系の下流にスリット 等はないため,スロープエラーの影響は直接ビームサイズの増大として現れる。この影響 は単純に距離から見積もることができ,焦点位置までの距離をr,スロープエラーをsとす ると 2sr となる。ただし、最終的なビームサイズは、本来のビームサイズとエラーによる広がりのコンボリューションになる。このようにして見積もったビームサイズを図 1-20 に示す。これまでと同様に、性能(ビームサイズ)が 20%悪化する時のスロープエラーを Er(20%) とすると、縦振り、横振りミラーに対してそれぞれ、0.012, 0.023 μrad となる。



図 1-20: K-B 光学系(下流)に対するスロープエラーの影響。

(2) 軟 X 線ビームライン(簡易集光光学系)

次に1-2節の図1-5の上段に示した,軟X線ビームライン(簡易集光)について検討を行う。 このビームラインは上流から,M0:円筒鏡(サジタル集光),入射スリット,M1:トロイダル 鏡,M2:平面鏡,VLSPG:平面回折格子,水平仮想光源,M3:トロイダル鏡の順に並んでい る。これらのうち,M1のサジタル方向およびM2,VLSPGのタンジェンシャル方向のエラ ーはエネルギー分解能に影響を与えるが,M0のサジタル方向のエラーについては,入射ス リットがあるため,エネルギー分解能への影響は小さいと考えられる。なお,軟X線領域 では,スロープエラーは2σ制限をかけたガウス分布の乱数を用いてミラーの局所的な角度 を変化させることでシミュレートする。

図 1-21 に M0, M1 のサジタル方向のスロープエラーの影響を示す。予想通り, M0 のエラ ーはエネルギー分解能にはあまり影響せず, もっぱらフラックスの低下として現れる。一 方, M1 は逆に主にエネルギー分解能に影響する。M0, M1 それぞれ, 影響の大きい要素に 対して Er(20%)を見積もると, 13, 28 µrad になる。続いて, タンジェンシャル方向のエラー の影響を図 1-22 に示す。これは水平仮想光源における像の広がりになるので, 試料位置で のフラックスの低下につながる。Er(20%)は M0, M1 に対してそれぞれ, 1.0, 0.64 µrad となる。



図 1-21: M0, M1 のサジタル方向のスロープエラーの影響。



図 1-22: M0, M1 のタンジェンシャル方向のスロープエラーの影響。

図 1-23 に、M2, VLSPG に対するスロープエラーの影響を示す。サジタル方向はエネルギ ー分解能には影響しないが、水平仮想光源点における像の広がりを生じるために試料位置 でのフラックスの低下につながる。一方、タンジェンシャル方向はエネルギー分解能に大 きく影響する。同様にして Er(20%)を求めると、サジタル方向は M2, VLSPG それぞれ 22, 18 µrad、タンジェンシャル方向は 0.29, 0.32 µrad となる。なお、回折格子のスロープエラーは 0.25 µrad で設計しているので、その時の分解能を 1 としてプロットした。



図 1-23: M2, VLSPG のサジタル(左)およびタンジェンシャル(右)方向のスロープエラーの影響

最後に M3 のスロープエラーの影響を見積もる。焦点位置までの距離を r,スロープエラ ーを s とするとタンジェンシャル方向については上記の通り 2sr となるが,サジタル方向に ついては sin θ (θは入射角:この光学系では 1°)をかける必要がある。このようにして求めた エラーの影響(ビームサイズの増大)を図 1-24 に示す。Er(20%)はそれぞれ,13,0.4 µrad であ る。



図 1-24: M3 に対するサジタル(左)およびタンジェンシャル(右)方向のスロープエラーの影響

(3) 軟 X 線ビームライン(ナノ集光光学系)

最後に、同じ軟 X 線でもスロープエラーの影響がよりシビアになると思われるナノ集光 光学系について検討を行う。1-2 節の図 1-5 下段に示すように、このビームラインは上流か ら、M0: 円筒鏡(サジタル集光)、M0': 楕円鏡、入射スリット、水平仮想光源、M1: トロイダ ル鏡、M2: 平面鏡、VLSPG: 平面回折格子、M3, M3':楕円鏡(K-B 配置)の順に並んでいる。 ここで、入射スリットと出射スリットの間にある光学素子については、主にエネルギー分 解能に影響するが、その影響は簡易集光光学系と大差ないと考えられるのでここでは検討 しない。

図 1-25 に M0, M0'に対するスロープエラーの影響を示す。サジタル方向については, M0, M0'それぞれ Er(20%) = 11, 12 µrad と見積もられる。タンジェンシャル方向も同様に, 0.66 µrad, 0.78 µrad である。これらの値は, 簡易集光光学系の M0 と比べて, 大きくは異なって いない。



図 1-25: M0 および M0'に対するサジタル(左)およびタンジェンシャル(右)方向のスロープエラーの影響

続いて図 1-26 に, 試料位置での集光サイズを決める M3 および M3'に対するスロープエ ラーの影響を示す。Er(20%)はそれぞれ, 0.022, 0.047 µrad と見積もられる。試料までの距離 が硬 X 線の光学系よりも短いために Er(20%)は若干大きな値になっているが, それでもかな りの精度が要求される。



図 1-26: K-B 光学系(M3, M3')に対するスロープエラーの影響。

以上の検討によって見積もった Er(20%), すなわち性能が 20%低下するスロープエラーを 表 1-5 にまとめる。これは、ミラー製作上の精度の目安となると同時に、熱負荷によるミラ ーの変形および機械的振動などによるミラーの角度変動の抑制に対する目安でもある。

硬 X 線(ナノ集光)	軟 X 線(簡易	集光)	軟 X 線(ナ	ノ集光)
光学素子	Er(20%)	光学素子	Er(20%)	光学素子	Er(20%)
第1結晶	4.2 μrad	M0(sagittal)	13 µrad	M0(sagittal)	11 μrad
		(tangential)	1.0 µrad	(tangential)	0.66 µrad
K-B(上流)	0.1 µrad	M1(sagittal)	28 µrad	M0'(sagittal)	12 µrad
縦振り		(tangential)	0.64 µrad	(tangential)	0.78 µrad
K-B(上流)	0.7 µrad	M2(sagittal)	22 µrad	M3	
横振り		(tangential)	0.29 µrad	(tangential)	0.022 µrad
K-B(下流)	0.012 µrad	VLSPG(sagittal)	18 µrad	M3'	
縦振り		(tangential)	0.32 µrad	(tangential)	0.047 µrad
K-B(下流)	0.023 µrad	M3(sagittal)	13 µrad		
縦振り		(tangential)	0.4 µrad		

表 1-5: 性能が 20%低下するスロープエラー, Er(20%)

1-6. 床振動の影響の検討

ここでは床の振動,特に,位置によって位相の違う「インコヒーレント」な振動の影響 を検討する。これは言い換えれば,ビームライン上の異なる位置の間の相対的な位置が変 動した場合の影響を見積もることになる。最終的には,様々なビームラインの様々な位置 について検討を行う必要があるが,まずは代表的なものとして,軟 X 線領域のナノ集光光 学系(1-2節の図1-5下段)について,垂直方向の相対変位(振動)の影響を見積もることにする。

(1) 光源-ビームライン間

まず、0 m 地点にある光源点の垂直方向の位置が、30 m 以降のビームライン全体に対し て変動(振動)した場合の影響を見積もる。ここで、振動はガウス分布とし、その大きさ をσ値で示す。この場合、実効的には光源点が垂直方向に大きくなるため、入射スリッ トにおけるビームサイズが増大し、そこを通過するビームのフラックスが減少する。入 射スリットより上流のエラーがエネルギー分解能にほとんど影響しないのは、ミラー (M0, M0')のスロープエラーの影響で確認した通りである。図 1-27 に、このような振動 の影響を示す。前節と同様に性能が 20%低下する振動の大きさを Er(20%)と定義すると、 Er(20%) = 10 μm となる。図 1-27 には、光源の角度変動の影響もあわせて示す。これも フラックスの低下となって現れ、Er(20%) = 11 μrad である。



図 1:-27 光源点とビームラインの間の相対位置および角度変動の、フラックスに対する影響。

(2)入射スリットー分光器間

次に,入射スリットと分光器(M1以降)の間の相対変位の影響を図 1-28 に示す。これは, 入射スリット開口が大きくなったことに相当し,分解能の低下をもたらす。入射スリッ トの開口が 5 µm である割に,振動の影響が比較的小さく感じられる。これは,このビ ームラインの設計では,エネルギー分解能が主に回折格子のスロープエラー(0.25 µrad) によって決まっているためである。Er(20%)は同様に,7.3 µm と見積もられる。



図 1-28: 入射スリットと分光器の間の相対位置変動のエネルギー分解能に対する影響。

(3) 出射スリット-K-B集光系間

最後に、出射スリット(K-B集光系に対する垂直方向の仮想光源)とK-B集光系の間の相 対変位の影響を見積もる。この際、K-B集光系と試料の相対位置は変動しないとする。 このような変位(振動)は、仮想光源の開口が大きくなったことに相当し、ビームサイズ の増大をもたらす(図1-29)。Er(20%)=0.68 µm と見積もられる。ここで、振動の大きさ の割にビームサイズへの影響が小さいのは、集光系が縮小光学系であるために出射スリ ット(仮想光源)における変動が試料位置では縮小率の分だけ小さくなるからである。な お、集光ミラーに対して試料の位置が変動すると、そのまま(縮小率による軽減なしに) ビームサイズの増大につながるので、図1-29 に比べてはるかに影響が大きくなる。し たがって当然、K-B集光系と試料は一体になるように設計すべきである。



図 1-29: 出射スリットと K-B 集光系(試料を含む)の間の相対位置変動の, ビームサイズに対 する影響。

以上,一例ではあるが,床(地盤)の振動として比較的大きいと考えられる,垂直方向の振 動の影響を見積もった。特に,ナノ集光において影響の大きい,仮想光源とK-B集光系の 間の相対変位(図1-28)について,変位(インコヒーレント振動)をサブミクロン程度に抑える ことが重要であることがわかる。この結果は逆に,50 nm 集光をするために床振動を 50 nm 以下に抑える必要はない,とも言える。KEK つくばキャンパスにおける地盤自体の振動の 実測結果は,上記の条件(振動がサブミクロン程度以下)を満たしており,建屋や架台によっ て地盤の振動を不用意に増幅しないように注意すれば,ナノ集光は十分可能であると考え られる。もちろん,K-B集光系と試料の間の相対変位に関しては,集光レベル以下の変動(振 動)に抑える必要があるが,これは集光ミラー(仮想光源は含まない)と試料の間を一体にす ることで実現できると考えられる。なお,これは地盤とは関係ないが,空調やポンプなど の機械的な振動源の影響を抑える必要があるのは当然である(抑制の目安については前節で 検討した)。

2. 光学素子開発

設計されたビームラインの分光・集光性能を実現するためには、もともとの光学素子の 表面精度の向上とともに、放射光の熱負荷により生じるミラーや分光結晶のスロープエラ ーの低減、乱れた波面の補正機能、及びそれら光学素子への振動を抑制するホルダーや架 台の設計が重要である。本章では、熱負荷の影響の評価と対策、振動抑制対策、及び光学 素子表面精度の評価システムの検討について述べる。

2-1. 光学素子に対する熱負荷評価及び冷却方法の検討

KEK 放射光計画では、加速エネルギーや蓄積電流値、挿入光源の長さについて、現在の PF リングとほぼ変わらないため、全放射パワーは同等となる。しかし、エミッタンスが二 桁程度小さくなり、パワー密度が格段に大きくなる。また、実現できる集光サイズから、 光学素子性能への要求が非常に厳しいものとなるため、熱負荷による歪みを極小に抑えこ む必要がある。これまでの PF リングでの経験から、硬 X線・軟 X線ともに分光器通過後の 単色光の熱負荷についてはほぼ無視できるものと考え、ここでは白色光を受けるミラー・ 結晶面のスロープエラーについて検討する。前章で示したスロープエラー Er (20%)を考慮 すると、ビームライン性能に影響を与えないスロープエラーは、硬 X線ビームラインの第1 結晶では 1 μrad、軟 X線ビームラインの M0 (M0')・M1・M2 はサジタル方向に数~10 μrad、 タンジェンシャル方向に 0.3~1.0 μrad 程度となる。これらのミラーで熱負荷を受け止め る冷却機構として、大きく分けて以下の3種類を検討する。

- (1) 水による間接冷却。
- (2) 液体窒素による間接冷却。
- (3) 水による直接冷却。

上記のいずれにおいても、ミラー母材や分光結晶には、(a) 高い熱伝導率と低い線膨張係数、(b)高いヤング率(保持により歪まない)、(c)大型で良質な材料が安価で入手可能、といった性質が要求される。

(1) はミラーや分光結晶に接触する銅ブロックを水冷する方式であり、現在の PF のほとん どのビームラインがこの方式である。(2) は銅ブロックを液体窒素で冷却するもので、BL-15 や BL-17 などの二結晶分光器がこの方式である。実験ホール広域にわたる液体窒素循環機 構がない限り、個別のビームライン脇に液体窒素発生・循環装置を設置する必要がある。 一方で、シリコンの線膨張係数が-148 ℃付近でゼロとなるため、スロープエラーは非常に 小さく抑えることが可能になる。このことについては、以下の節で詳しく検討する。 一方、(3) はミラーや結晶本体に刻んだ水路 (チャンネル) に冷却水を循環させるもので、 現在の PF BL-3 や AR-NE1 の分光結晶でマイクロチャンネル水冷方式が採用されている。世 界では、Advanced Light Source のアンジュレータビームライン 11.0 を始めとして MAX-IV、 Diamond 等の顕微/コヒーレンス利用ビームラインの白色光ミラーに数 mm の溝によるチ ャンネル水冷が採用されている。一方で、PF では過去にトラブルにより冷却水が停止、そ の後再起動し、温度が急激に変化したために直接冷却のシリコン結晶が割れて冷却水が真 空チャンバーに漏れ出すという事故も発生している。Adanced Light Source 11.0 の直接水冷 ミラーは GlidCop (銅) 材を使用しているためにこのような事故は考えにくい。しかし、銅の 線膨張係数はシリコンのそれよりも一桁近く大きいため、この機構をそのまま採用しても 以下の節で検討する極限条件でのスロープエラーを十分小さくすることはできない。

熱負荷を低減する重要な方法のひとつとして、フィルターの使用が考えられる。これは 主に4 keV 以上の光を利用する硬 X 線ビームラインにおいては特に重要で、第一結晶の熱 負荷を大きく低減させることができる。材質に要求される性質は (a) 高い熱伝導率、(b) 化 学的に安定で蒸気圧が無視できるほど低い、あるいは融点が高い、(c) 軽元素で構成されて いる、などである。グラファイト・CVDダイヤモンドなどを検討しており、硬 X 線 5 m ア ンジュレータ (UL20N250) ビームラインにおいては必須と考えられる。一方で、テンダーX 線領域や軟 X 線領域ではフィルターの使用は制限される (熱負荷の低減と透過率による強 度損失のバランスによって、薄めのフィルターを適用する場合もある)。

(1) 極限条件での低スロープエラーの実現

KEK 放射光では、例として VUV (UL160N31)、軟 X 線 (U48N104)、硬 X 線 (UL20N250)の 3 種類の 5 m 級アンジュレータが想定されている。前節で述べたように硬 X 線領域ではフィ ルターを用いることが可能なので、これらのうち最もミラーに対する熱負荷が大きいと考 えられるのは、軟 X 線アンジュレータである。SPECTRA を用いて軟 X 線アンジュレータの 光を計算し、ビームラインの MO・M1・M2 に対して ANSYS および Autodesk Simulation Mechanical を用いたシミュレーションを行った。

光エネルギーは1keVとし、U48N104においてK値1.25(1次光利用)を想定した。U48N104 で得られる全エネルギー域(200~2 keV)で大部分の光を利用するには、縦横ともに 100 µrad程度のマスク開口が必要で、M0直前のトータル熱負荷は122 Wとなる。種々の条件で の検討を行ったが、この条件でサジタル方向に数~10 µrad、タンジェンシャル方向に 0.3 ~1.0 µradの低スロープエラーを実現することはできなかった。そこで、KEK 放射光でサ イエンスケースのフラッグシップとなると考えられるコヒーレンス利用を軸に検討するこ ととした。KEK 放射光の5 m 直線部で1 keV におけるコヒーレント比は 20 %前後と見積も

35 / 70

られている。より低いエネルギーではコヒーレント比がさらに向上するものの、試料を透 過しにくくなることや、回折限界を与える波長が長くなることから、コヒーレンス実験の メリットは逆に弱くなると考えられる。そのため 1 keV を想定し、多少の光強度をロスし てでもエネルギー分解能・コヒーレンスにおいて極限の性能を発揮するための低スロープ エラーを実現することには大いに意義がある。このことから、マスク開口を縦横 50 µrad に制限した場合のシミュレーションを行った。この場合の全熱負荷は 30 W 程度となり、1 keV においては 90 %以上の光束を拾うことができるが、より低いエネルギーでは 7 割程度の強 度をロスすることになる。

	M0	M1	M2
光源からの 距離	30 m	44 m	46 m
入射角	1.5°	2.0°	2.0°
入熱	14.9 W	3.99 W	$1.67~\mathrm{W}$
照射範囲	$1.5 imes 57 \ \mathrm{mm^2}$	$2 \times 66 \text{ mm}^2$	$1.8 imes 42 \text{ mm}^2$
発熱密度	0.174 W/mm^2	0.030 W/mm^2	0.022 W/mm^2
母材	Si	Si	Si
表面処理	Au	Au	Au
サイズ	L300×H30×T20 mm ³	L300×H30×T20 mm ³	L150×H30×T20 mm ³
冷却機構	液体窒素・間接	冷却水・間接	冷却水・間接
流量	0.5 ℓ/min.	0.5 ℓ/min.	0.5 ℓ/min.
冷却熱伝達	0.002 W/mm ² K	0.004 W/mm ² K	0.004 W/mm ² K

表 2-1:低スロープエラー光学系のシミュレーション条件

各種ミラーの条件を表 2-1 に示した。想定した光学系は(図 1-5 の SX 簡易集光)であり、 M0 を液体窒素間接冷却、M1・M2 は従来の間接水冷としている。液体窒素または冷却水は銅 ブロック内の内径 4mm のパイプ内を 0.5 0/min. で流れるものとし、乱流とみなして計算し ている。まず、シリコン母材と銅ブロックの間の熱接触抵抗を考えない場合の定常到達温 度とミラー歪みを図 2-1 に示す。図 2-1 (d) および (e) を見て分かるとおり、常温では温 度上昇によってミラーは凸に変形する。一方、液体窒素付近の温度ではシリコンは負の線 膨張係数をもつため、図 2-1(b) のようにミラーは凹む。



図 2-1: Autodesk Simulation Mechanical を用いてシミュレーションした (a、 b) M0、(c、 d) M1、(e、 f) M2 の定常到達温度およびミラー歪み。

次に、シリコン・銅ブロックの間の熱接触抵抗が温度の結果をどのように変えるかを図 2-2 に示す。熱接触抵抗は部材間に挟み込む媒質や部材表面処理、押し付け圧力に応じて何 桁も変わりうることに注意が必要である。ここでは熱接触抵抗の影響を評価するため、「比 較的ずさんな条件」まで含めて考えられる範囲をカバーするシミュレーションを行ってい る。熱接触抵抗により、ミラー本体の温度が上昇することが分かる。



図 2-2:熱接触抵抗を変化させた際の MO の定常到達温度。(a) 0 Kmm²/W、(b) 100 Kmm²/W、(c) 300 Kmm²/W、(d) 1000 Kmm²/W、(e) 3000 Kmm²/W。

得られた変形から、タンジェンシャル方向(X とする)の RMS スロープエラーを

$$\Delta \theta_{\rm X} = \sqrt{\int \left(\frac{dz}{dx}\right)^2 dx \, dy}$$
、サジタル方向(Y とする)を $\Delta \theta_{\rm Y} = \sqrt{\int \left(\frac{dz}{dy}\right)^2 dx \, dy}$ として計算できる。

積分範囲は光照射範囲、あるいはミラー全面をとりうる。結果を表 2-2 から表 2-4 にまと めた。

M 0	光照射範囲のみ		ミラー全面	
熱接触抵抗 [Kmm²/W]	Tangential error [µrad]	Sagital error [µrad]	Tangential error [µrad]	Sagital error [µrad]
0	0.076	0.15	0.32	0.21

表 2-2:熱負荷により生じる MO のスロープエラー。

100	0.081	0.16	0.36	0.24
300	0.089	0.18	0.44	0.30
1000	0.12	0.20	0.72	0.51
3000	0.19	0.18	1.6	1.2

☆23. 窓賃何により主じる MI のパロークエク 。				
M1	光照射範囲のみ		ミラー全面	
熱接触抵抗	Tangential	Sagital	Tangential	Sagital
[Kmm ² /W]	error [µrad]	error [µrad]	error [µrad]	error [µrad]
0	0.44	0.71	0.68	0.32
100	0.45	0.83	0.72	0.40
300	0.46	0.99	0.79	0.51
1000	0.49	1.3	1.1	0.77
3000	0.58	1.5	1.8	1.2

表 2-3: 熱負荷により生じる M1 のスロープエラー。

表 2-4:熱負荷により生じる M2 のスロープエラー。

M2	光照射範囲のみ		ミラー全面	
熱接触抵抗	Tangential	Sagital	Tangential	Sagital
[Kmm ² /W]	error [µrad]	error [µrad]	error [µrad]	error [µrad]
0	0.31	0.51	0.52	0.29
100	0.31	0.58	0.54	0.36
300	0.32	0.65	0.60	0.46
1000	0.34	0.75	0.80	0.72
3000	0.41	0.82	1.4	1.4

以上のスロープエラーの結果を検討する。全てにおいて、タンジェンシャル方向で要求 を満たすようならば自然とサジタル方向の要求も満たされる傾向にある。MOの1.0 µrad (タ ンジェンシャル)および13 µrad (サジタル)、M1の0.64 µrad (タンジェンシャル)、およ び28 µrad (サジタル) という要求は満たせている。また、ここでは M1 上流に設置される 入射スリット (図1-5)を考慮していない。たとえば高いエネルギー分解能を実現する際に は、入射スリットを狭めるので M1・M2 への熱負荷はさらに低減される。そのため、M2 の 0.29 µrad (タンジェンシャル) という要求もほぼ満たしていると言える。ここではマスク 開口を 50 µrad としたが、どれだけ開口を拡げることができるかについては今後検討する。

一方、液体窒素冷却機構に必要な循環装置を全ビームラインに配置するのは、初期投資・ 消費電力・マンパワーの各方面から現実的とは言えない。仮に MO を間接水冷とした場合の 結果を図 2-3、表 2-5 に示す。



図 2-3:間接水冷とした場合の MO の定常到達温度およびミラー歪み。

M 0	光照射範囲のみ		ミラー全面	
熱接触抵抗	Tangential	Sagital	Tangential	Sagital
[Kmm ² /W]	error [µrad]	error [µrad]	error [µrad]	error [µrad]
0	2.7	4.3	3.6	1.8
100	2.7	4.0	3.8	2.2
300	2.8	5.9	4.3	2.8
1000	3.0	7.5	5.6	4.2
3000	3.6	9.2	9.3	6.7

表 2-5:間接水冷と	した場合の MO のス	ロープエラー。
-------------	-------------	---------

シリコンの線膨張係数は常温では低温よりもずっと大きい。そのため、温度上昇度合い は液体窒素冷却の場合の数倍であるのに対し、スロープエラーは 30 倍程度に大きくなる。 ただし、MO は水平反射配置であるのでエネルギー分解能に影響するのは主にサジタル方向 であり、サジタル方向のスロープエラーは上記の条件(13 μrad 以下)を満たしている。そ のため、エネルギー分解能が重要であってトータル光強度やコヒーレンスをさほど要求し ない場合には、このマスク制限下であれば MO を間接水冷としても許容される。

以上の結果はすべて間接冷却であり、シリコン母材と銅ブロックの間の熱接触抵抗をい かに低減できるかでスロープエラーの値は大きく変わる。ミラーと銅ブロックを強く接触 させれば熱接触抵抗は下がるが、ミラーを変形させないように注意が必要である。今後、 モデル系を用いた実験をするなどして、ミラーを安定に保持しつつ低い熱接触抵抗を実現 する機構の開発に取り組む。具体的には、ミラー母材と銅ブロックの間にAuフォイル、グ ラファイトシートなどを挟み込んで熱接触抵抗がどう変わるかを検討する。硬 X 線ビーム ラインの場合にはベーキング・UHV を要求されないので、これまで二結晶分光器などで広く 使われている In シートの利用も考えられる。

そのほか、マスクやスリットの熱吸収についても今後検討する。マスクは数百 W のパワ ーを受け止めなければならないので、斜入射となるようテーパー形状を要する。スリット は 5 µm といった狭い開口を実現する必要があり、熱膨張がどう影響するかを確かめなけれ ばならない。これらのことについて、シミュレーションを行っていく。

(2) どれだけのスロープエラーを許容するか?

前節で検討した軟 X 線アンジュレータ UL48N104 で、広いエネルギー領域で余すことなく 光を受けられるようにマスク開口を縦横 100 µrad とすると、1 keV における熱負荷は最大 でトータル 122 W である。さらに熱負荷の大きくなる 200 eV (K 値で 4 程度) であっても 410 W 程度であり、現行 PF の軟 X 線アンジュレータ BL-13 (トータル 131 W @250 eV) と比 較してそれほど大きい熱負荷ではない。シミュレーションのテストケースとして BL-13 の M1・M2 のスロープエラーを計算したところ、いずれも無視できないレベルであることが分 かった。BL-13 で実際に、水平直線偏光モード(高い熱負荷)では計算上のエネルギー分解 能が得られておらず、円偏光モード(低い熱負荷)へ切り替えるとエネルギー分解能が向 上することが分かっている。これまでは「スロープエラーの影響を考慮せずに使用してい た」というだけのことである。ただし、円偏光を用いると直線偏光に比べて熱負荷が低減 できるのは KEK 放射光でも同様であり、究極の性能を実現しようとする際には一考に値す る。

スロープエラーは熱負荷に依存し、熱負荷はマスクやスリットを用いれば光強度と引き 換えに低減できる。逆に、光強度を得るためにマスクやスリットの開口を大きくしたり、 ミラー入射角を小さくして反射率を向上させたりすれば、より下流へ大きな熱負荷が伝搬 する。以上のことから、「KEK 放射光の 5 m 挿入光源部において、すべてのエネルギー領域 で、光源からの光を余すことなく分光・集光し、各光学素子のスロープエラーがすべて無 視できて、光強度・エネルギー分解能・コヒーレンス・集光特性のすべてで限界の性能を 発揮する」ような理想の光学系は存在しないと考えるべきである。以下、熱負荷とスロー プエラーの観点から考えた利用ケースごとの指針を提案する。

光強度を何よりも重視するならば、各種スロープエラーはその大きさを評価するにとど め、極限のエネルギー分解能や集光特性が得られないことを許容すべきである。それでも、 たとえば軟 X 線吸収分光の自然幅に対して許容できる程度のエネルギー分解能(E/ΔE > 5000)、数十~百μm 程度の集光サイズは得られるものと予想される。

極限のエネルギー分解能を目指すには、スロープエラーを極限まで低下させねばならな い。軟 X線ビームラインでは前節で検討したようにマスクと入射スリットを用い、硬 X線 ビームラインではフィルター・入射スリット・高分解能モノクロを用いる。ターゲットと する吸収端・エネルギー領域を限定し、光強度をロスしてでも熱負荷を低減できるように マスク開口やミラー反射角を決定することも必要である。

コヒーレンス利用においては、測定精度・測定時間を決定づけるのはトータル光強度で

はなくコヒーレントフラックスである。最終的に光の「芯」だけを利用するので、前節の 例、あるいはそれ以上に上流部のマスク開口を小さくし、下流への熱負荷をできる限り低 減すべきである。同じアンジュレータであれば低エネルギーほど大きな発散をもつので、 低エネルギーほどマスク開口制限による強度ロスが大きくなる。そのため、ビームライン 光学系をコヒーレンス利用に最適化する場合には、VUV~SX あるいはテンダーX線~硬X線 といった広いエネルギー域における多目的利用は得策とは言えない。可動マスク等を用い て利用に応じて開口を調整し、コヒーレンス利用をしない場合には多少のスロープエラー を許容する、といった運用は可能である。

ナノ集光を目指す場合、仮想光源点より上流部のミラー・分光器におけるスロープエラ ーをある程度許容し、仮想光源点より下流において理想的な光学系を構築することを目標 とすべきである。光強度重視の場合と同様、想定される分光・散乱実験に影響しない程度 のエネルギー分解能は十分に得られると予想される。上流部のスロープエラーにより仮想 光源点への集光が甘くなることが予想されるが、これは光強度ロスと引き換えに下流の光 軸・光強度がより安定する方向へ寄与する。

2-2. 光学素子の振動を抑制する設計の検討

KEK 放射光の集光特性に影響を与えないビームライン光学系を実現するには、各素子のインコヒーレントな振動をサブミクロン程度に抑えることが目標となることは前章で述べた。 ここでは、ミラーや分光器といった光学素子の架台・ホルダー等について検討する。

つくば市を含む関東一円の表層地盤である関東ローム層には 2~3 Hz の固有振動があり、 地盤は近隣の道路交通などの影響により比較的日較差の大きな振動を生ずる。地震波の速 度が 1~10 km/sec であることを考慮すれば、2~3 Hz の振動の波長は km 程度であり、施設 全体が剛体的に振動するモードであると言える。一方、放射光実験ホール内には各種粗引 きポンプ・チラー・電源といった震動源が多数存在する。これらのモーターやファンから くる振動は 50 Hz、100 Hz といった AC 電源と連動した大きな振動を生む。

構造物の振動は、ばねと剛体から成る調和振動子の組み合わせで考えることができる(図 1)。この調和振動子の固有振動数は $\sigma_0 = \sqrt{k/M}$ である。ある周波数 ω の振動による床の変位 uに対して、構造物の変位をxとすると、この調和振動子における振動の伝達率は $T = \frac{|x|}{|u|} = \frac{1}{1 - \sigma^2/\sigma_0^2}$ と書ける。構造物が堅く固定されており、十分軽い(k >> M 場合は $\sigma_0 \to \infty$ となって伝達率T = 1、すなわち床と構造物はコヒーレントに剛体として振舞う。



ミラー架台は床に対して、さらにミラーホルダは架台に対して、上記の調和振動子とし てぶら下がっていると考えればよい。ナノ集光光学系の最下流部を除く大部分のビームラ イン光学系は、床に対して剛体的に繋がっていることが理想である。ミラーそのものの重 量や形状は決まっているので、ミラーホルダに対して架台は十分な慣性質量と剛性をもち、 架台はその重量にくらべて十分な強度で床に固定されていればよいことになる。一方、こ れまでのPFの多くの光学系では、ミラーホルダを細い柱で支えたり、架台下部を細い高さ 調整ねじで支えたりする構造となっている。これらの細い構造は、定数の低いばねとして 作用し、系の振動特性を悪化させるため避けなければならない。

具体的には、ミラー架台をグラナイトとし、コンクリートまたはエポキシ樹脂等で床に 固定する。グラナイト架台高さは、ミラーホルダ形状と真空チャンバー形状の許す限り高 い位置まで及ぶものとする。また、架台上の構造物はなるべく小さく軽く設計する。一方、 真空チャンバーは一般的にその重量にくらべ肉薄であり、十分な剛性を得ることは不可能 である。そのため、すでに広く知られているように、ミラーホルダ構造は真空チャンバー と切り離されている必要がある。

一方、ポンプやチラーの振動が床に伝わらないためには、十分柔らかいばねを用いれば よい (k << Mのとき $T \rightarrow 0$)。これは、柔らかいゴムやエラストマーの防振材を床とポンプ やチラーの間に入れることで実現できる。

ナノ集光光学系の最下流から試料ステージまわりについては、床の振動を減衰させる必要がある。走査型プローブ顕微鏡や電子顕微鏡などで一般的に用いられる柔らかいばねや エアサスのような除振機構は、0.5~2 Hz 程度に共振点をもつ。そのため、2~3 Hz の床振 動を却って増幅するか、そうでなくとも剛体的に振動している光源・光学系から切り離し てしまうことになる。ここで用いる除振機構は、10~20 Hz 程度に共振周波数をもつように 設計すべきである。具体的には、グラナイトやハニカム構造の光学定盤と、柔らかいゴム やエラストマーの防振材でこれを実現できる。除振機構上のコンポーネントは、定盤に対 して剛体的であればよいわけであるから、最低共振モードがおおむね 150~200 Hz 以上と なるよう小さく・軽く設計すべきである。

今後、これまでに PF で広く使われてきたタイプの架台と、上記のタイプの架台について、 シミュレーションによる固有値解析を行って振動特性を評価し、ミラーホルダ・架台設計 の指針とする。

2-3. 光学素子表面精度の評価システム(原稿準備中)

3. ビームライン設備

KEK 放射光計画で想定される高輝度ビームを実効的に利用するためには、ビームライン の光学系や実験装置のみならず、それらを取り囲む光学ハッチや実験ハッチ、そして冷却 水、液体窒素などの冷媒配管、ガス配管、さらには電力供給などにおいても細心の注意を 払う必要がある。ここでは、それらビームラインに付随する共通の設備についての検討ポ イントをリストする。詳細設計は今後順次進める予定である。

3-1. 光学・実験ハッチおよび恒温ブース

(1) 構造設計

ビームライン光学系、および実験装置の周辺を取り囲む光学ハッチ、および実験ハッチ は、放射線防護を第一の目的としているが、光学系および実験装置周辺の環境を制御する 上でも重要な働きを持つ。また、放射線防護を必要としない V/UV/SX のビームラインの実 験装置においても、その周辺の環境を制御するために、恒温ブースなどで取り囲むことは 重要である。

これらハッチおよびブースは大型で重量のあるものが殆どであり、それらが振動をして しまうと、いくら光学系等を実験ホール床に強固に固定していても床を通じて光学系に振 動が伝達してしまい、ビームの変動へと繋がる。従って、ハッチおよびブースは出来るだ け高い固有振動数を持つような剛性の高い構造として設計する必要がある。今後適切な振 動モデルを仮定し、振動解析を行うことで、実験ホール床への影響を最小化するような構 造設計を進める予定である。

ビームライン光学素子や装置などのメンテ作業も考慮に入れる必要がある。ビームライン傍で移動を伴うような作業をしても、実験ホール床に振動を与えないよう、エアパッド を利用した移動方法なども検討したい。

(2) ハッチ/ブース内の温度制御

ナノビーム、マイクロビームを取り扱う光学系、および実験装置は、その周辺温度が極 カー定である必要がある。そのためハッチおよびブース内部の温度を精密に制御する必要 があり、±0.1度で制御することを目標とする。このために、ハッチのサイズに合わせた十 分な出力の精密温調装置、及びソックスダクトによりハッチ内へ温調された空気を均一か つ静かに送り込む仕組みを検討している(実験ホールの空調制御が重要であり、±0.5度の 温度安定性を目標としている)。また、発熱を伴うような装置(コントローラ、電源、チラ ー、ポンプなど)はハッチ内には設置しないようにする必要がある。このような発熱を伴う 装置はハッチ外に出しても実験ホールに露出させては、実験ホール内の温度不安定性を引 き起こす原因となるため、別途隔離して温度制御をするコントロールキャビンなどを整備 し、直接実験ホール外に排気するような構造を検討している。

3-2. 液体窒素、冷却水、各種ガスの利用

(1) 液体窒素の供給について

ほどんどの長直線部ビームラインでは、液体窒素冷却型のミラーや分光器を採用する可 能性がある。また、タンパク質 Χ 線結晶構造解析用ビームラインを始めとして、多くのビ ームラインでは実験でも多量の液体窒素を消費する。このため、各ビームラインに安定か つ安全に液体窒素を供給する必要がある。特に、液体窒素冷却型分光器への液体窒素の供 給については、ビーム位置や強度変動に直結するため、例えば RI Research Instruments 社 が 製 売 す 诰 眅 ろ Crvo cooler (http://research-instruments.de/frontend/products-cryo-cooler)のような、冷凍機を 必要とせず多量の熱を処理することが可能な装置が適していると思われる。この場合、ま ず施設の共通の液体窒素ラインから各ビームラインに液体窒素を分取し、Cryo cooler へと 供給する。Cryo cooler ではこれを冷媒として更に分光器との間を閉経路で液体窒素を循環 させる。また、他の実験系への液体窒素供給も共通の液体窒素ラインから気液分離器を通 じて行う。気液分離器を置くことで、経路内で気化した窒素は常時速やかに大気へと放出 される。これによって配管内は常時液体窒素で満たされ、バルブを開けると速やかに液体 窒素を供給することができる。これは供給開始時の液体窒素の突発的な気化による実験装 置への振動の伝達などを避けるなどのメリットがある。

(2) 冷媒およびガス配管

ビームラインでは上述の液体窒素の他、冷却水や各種ガス(圧縮空気、ヘリウム、窒素等) が必要であり、これらは施設の共通供給源から各ビームラインに分取される。これらの配 管は通常、ハッチなどの建造物もしくは床に設置されたサポート等に固定されるが、その 固定にも緩衝材を用いるなどの工夫が必要である。

また、冷却水についてはその脈流による装置への振動を防ぐために、経路にエアダンパー などの設置も検討する必要があるだろう。

3-3. 電力供給

各ビームラインへの電力供給は、ビームライン毎に十分な量の電力が供給出来る分電盤 を設置する。電気的なノイズが測定器の信号に乗ることのないよう電力配線は他の配線 とは隔てた専用のラックを用いる。
4. ビーム制御技術

KEK 放射光リングで生み出される高輝度・高コヒーレント光を十分に生かした実験を行 うためには、いかにしてビームを劣化させずに試料位置まで導けるかが重要となる。考慮 すべき要素としては、光学素子もしくは試料位置でのビーム位置安定性制御、波面制御な どのビーム特性制御、光源アンジュレータと分光器の同期制御などの統合ビームラインシ ステム制御などがあげられる。本章では、これらの項目において必要となる個々の技術に ついて列挙し、先行技術開発として現 PF リングで行っているシステム開発の現状を踏まえ つつ、KEK 放射光の運転において必要な技術を検討する。

4-1. 白色ビーム位置安定性制御

KEK 放射光リングからの高輝度光をミラーで集光すると、計算上は試料位置でのビーム サイズはミクロン〜サブミクロンオーダーとなる。また、仮想光源システム等を組み合わ せたナノ集光ビームラインではビームサイズは 50 ナノメートルを切ってくると見積もられ ている。これはミリメートル〜サブミリメートルのオーダーで運用している現 PF リングと は3桁以上小さい値であり、それに伴って許容されるビーム照射位置の誤差も小さなものが 要求される。特に最もビーム位置安定性に影響を与えるのは、機械的な動作を伴う分光器 と推測され、分光器を駆動させた際のビーム位置制御は最重要課題である。また、光源リ ングのビーム位置モニタと、ビームラインでのビーム位置モニタは、その設置位置の関係 から特に出射角度がずれた場合のビーム変動はビームラインのモニタの方がとらえやすい。 従って、ビームラインで精密に測定したビーム位置情報をどのようにして電子リングの軌 道フィードバックに取り込むのかも重要な開発要素である。本節では、主に電子リング軌 道の揺れを検知し、光源制御にフィードバックするための白色ビームポジションモニタシ ステムと、ビームラインの光学系や実験ホールの振動によるビームの揺れを検知し、試料 位置でのビーム位置安定性を確保するための制御システムの概念について記述する。

(1) 白色ビームポジションモニタ

光源電子リングはフィードバックシステムにより安定な軌道が保たれるように制御され ているが、環境温度の変化やフィードバックシステム自身による軌道制御誤差の蓄積等に よりごくわずかな軌道のドリフト等が現 PF リングでは観測されている。このドリフト量は 現行の PF 電子リング軌道モニタではとらえられるかどうかの微少量ではあるが、ビームラ イン下流のビーム位置モニタでは比較的大きな値としてとらえられることがある。特にビ ーム出射角が変動した場合は光学素子やスリットの芯からビームが外れる恐れがあり、ビ をどれだけ精密に測定できるかということになるが、精度が足りなければ過小評価される 可能性もある。そこで、光源点から数十メートル離れたビームライン側で精密ビーム位置 モニタを設置することでビーム軌道の変位を正確に捉えるアプローチを考える。まず、ビ ーム位置モニタの配置に関しては、これまでの通常のビームラインだと、白色区間に4 象 限のビーム位置モニタを1 台設置することが多いが、これではビーム位置が変位した場合 に、水平もしくは垂直方向へのドリフトなのか、ビーム出射角(ビーム傾斜)が変わった のかが判別できない。PF の BL15A では常時挿入型の白色モニタは1 台しか設置されておら ず、やはり同様の問題が発生している。そこで BL15A ではさらに下流にあるワイヤモニタ を使用してビーム傾斜の測定を行っているが、ワイヤモニタの性質上常時測定はできず、 どのタイミングで軌道変動が起こったかを知ることは難しい。そこで BL15A では4 象限ス リット型の常時挿入型ビーム位置モニタをもう 1 台追加することでビーム位置・傾斜の常 時監視システムを構築しているところである。この例から、新光源におけるビームライン においても最低限位置と傾斜を常時観測できるように2 台以上のビーム位置モニタを設置、 もしくは同等機能を有するビーム位置モニタを開発する必要がある。

本システムで必要なビーム位置モニタは光源からの出射ビームそのものを評価する必要 があるため、分光器やミラーよりも上流のいわゆる白色区間に設置することが望ましい。 ただしこの領域は熱負荷も高くなるため、ビーム位置モニタの精度と共に耐久性にも注意 しつつ機種選定を行う必要がある。ビーム位置モニタにはいくつかのタイプがあるが、多 くのものは金属をビーム外周に接触させ、光電効果による電流をとらえるものである。た とえばワイヤー形状のタンタルやタングステンを使用するタイプではワイヤーを細く(~ 数十ミクロン)することで分解能の向上が可能であるが、その反面熱には弱く、放射光の 白色モニタとしては適さない。ワイヤーの素材をカーボンなどにする方法もあるが、ワイ ヤー形状ではどうしても材料の熱膨張により分解能が落ちるなどの可能性がある。一方で ブレード形状のタイプでは、比較的冷却機構も取り付けやすく、比較的熱に対する耐久性 は強いが、それでもブレード面に入射するタイプは熱負荷が大きくなりすぎる。そこで、 現 PF の BL1A や BL15A で採用しているタイプでは、放射光をブレードの端面に照射し、見 かけの断面積を小さくしつつ、熱負荷にも耐えられる仕様となっている。このタイプのも のは、ビームから見ると針のような形状となるため、複雑な空間分布をもつアンジュレー タ光の最適な部分を狙って挿入することができる。また、このビーム位置モニタを 2 台使 用した際も断面積が小さいが故に、1 台目のブレードの影を避けて 2 台目のブレードを挿入 することも容易である。新光源においてもこのタイプの白色ビーム位置モニタを使用して +分なビーム位置変動情報が引き出せるかの R&D を行っている (BL-15A での R&D 詳細につ いては原稿準備中)。

(2) 光源連携フィードバックシステム

ビームライン側で精密なビーム位置変動測定が可能となれば、そのデータを光源電子リ ングにフィードバックすることにより、ユーザー実験に影響が出る前にビーム軌道を補正 することが可能になる。2 台の白色ビーム位置モニタから得られる信号は各ブレードからの 電流値であるため、合計 8 つの電流信号をリアルタイムに演算することで、ビームの位置 情報に変換する。高速の AD 変換器を搭載した PLC 等を使用することで、演算サイクルは 150 マイクロ秒程度まで高速化可能である。実際の使用では伝達システムやフィードバックシ ステムの応答速度もあるためここまで高速性は求められないが、その分計測確度を高める ことができる。ビームライン側から光源側への信号伝達はそれぞれがどのような制御シス テムを採用するかによって考慮する必要がある。現 PF ではビームライン側が STARS、光源 側が EPICS と違うシステムを採用しているが、それぞれのシステム間を接続するためのブ リッジクライアントが開発されており、現行のシステムにおいても情報伝達に支障は無い。 ただし、早い時間周期でフィードバックをかける必要が出てきた場合は、現行の TCP/IP に よる通信ではレイテンシが 50 ミリ秒程度と、通信網がボトルネックとなる可能性があり、 将来的には拡張する可能性も検討する必要がある。

4-2. 後段ビーム位置高速制御システム

白色ビーム位置モニタは主に光源電子リングの変動を検知するものであるが、ビームラ イン光学素子の熱膨張や振動によるビーム位置の補正システムも同様に必須のシステムで ある。このシステムは基本的にビームの最終到達点での位置変動を補正するものであり、 試料位置や仮想光源スリットといった主に集光ミラーの集光点に当たる部分に着目してい る。

(1) ビーム位置モニタリングシステム

まず、補正を行うにはビームの変動値を測定する必要があるが、理想的には集光点直前 にビーム位置モニタを置き、精密計測を行うことになる。KEK 放射光では集光点前であって もビームサイズはかなり小さくなるため精度の高い位置測定が求められる。たとえば高エ ネルギー領域であれば数ミクロンのダイヤモンドブレードを使用した透過型ビーム位置モ ニタが利用できるが、市販品ではブレードギャップが5ミクロン程度であり、狭ギャップ のビーム位置モニタを開発するか、モニタの設置位置を上流側に寄せて対処できるかの検 討が必要であるが、このあたりは各ビームライン光学系に依存するのでケースバイケース となるであろう。白色ビーム位置モニタと同様にこちらも計測系はAD変換と演算が必要で あるが、こちらの場合は高速化する実験に対応するためにできるだけ高速にフィードバッ クをかけておく必要があり、たとえば XAFS 実験では数ミリ秒のデータサンプリングを要求 されることから、フィードバックサイクルはそれより 1 桁下のサブミリ秒オーダーが目標 値である。また、フィードバックをかけてビーム軌道を動かすためには、ミラーや分光器 などどこかの光学素子にビームを振るための機構をあらかじめ用意しておかなくてはいけ ない。どの素子でビームを振るかにもよるが、オーダーとしては 0.数秒の補正値となるこ とと、高速駆動のため、ピエゾアクチュエーターによる駆動方式を現実解として考えてい る。先行 R&D を行っている BL15A では、ブレードギャップ 6 ミクロンのダイヤモンド透過 型ビーム位置モニタと高速 PLC (制御サイクル 1kHz 以上)を組み合わせたシステムをテス トしており、現状で 20 ミクロンのビームを使用した際に、分光器を動かしても 1.5 ミクロ ン以下の位置変動に押さえ込むことに成功している (詳細は準備中)。

4-3. ビーム特性制御

KEK 放射光の特徴の一つは回折限界光でのユーザー実験となっている。つまりは光源からのコヒーレント光をいかに効率よく試料まで届けられるかということになる。ビームラインにはミラーなどの光学素子が存在するため、その表面形状誤差によっては波面が乱れ、コヒーレント比は低くなってしまう。そこで、ビームの波面を随時測定し、それを元に波面の補正を行うためのシステムが有効であると考えられる。また、KEK 放射光のように高パワーの X線を受ける光学素子は、たとえば集光ミラーの場合、熱ひずみなどでミラーの曲率が変化し、ビームが設計通りに集光しない場合がある。このような条件下でも実験に影響が出ないように、ビームの形状もモニタリングし補正する必要がある。本節では主に X線ビーム波面のリアルタイム測定と補正システム、および X線ビーム形状のリアルタイム測定と補正システム、および X線ビーム形状のリアルタイム測定と補正システムについて記述する予定である。

・波面補正システム(詳細準備中)

・ビーム形状補正システム(詳細準備中)

4-4. 統合ビームライン制御

アンジュレータ光源と分光器を組み合わせて単色 X 線による実験を行うビームラインは 多く、特に XAFS などのエネルギースキャンが必要な実験においては、アンジュレータ光 源と分光器の両方を最適な状態に設定しないと光源特性を生かした実験ができない。これ は偏向電磁石光源の場合は分光器のみ駆動すればよかったが、アンジュレータ光源の場合 は、光源からのエネルギースペクトルがピーク状となっており、分光器のみを駆動すると ビーム強度や集光形状に影響が出るためである。本節では主にアンジュレータ光源と分光 器の同時制御システムについて記述する。

(1) 光源・分光器連携制御システム

分光器とアンジュレータをどの程度協調駆動させないといけないかは、アンジュレータ の設計や実験の要求するビーム性能に大きく依存する。たとえば現 PF の BL15A では周期長 17mm、全長 50cm の短周期アンジュレータを用いてエネルギースキャンを伴う XAFS 実験を 行っているが、XAFS 実験が要求するエネルギースキャン幅は 1^{~1}.5keV であり、それに対し てアンジュレータスペクトルのピーク幅は半値で 150eV 程度しかない。このような条件下 では分光器だけを動かすと 1 つのデータを測定する際に 1 桁以上強度が変化し、集光特性 も変化してしまう。従って分光器を動かすと同時にアンジュレータギャップも駆動してそ れぞれのエネルギーを一致させる機構が必要である。

(2) BL15A での R&D

現 PFの BL15A では 2013 年の建設段階から将来的にこのような問題が発生することを想 定し、アンジュレータギャップの動きに分光器が自動追従するシステムの開発を行ってき た。方式としては、BL15A に導入されている計算結合型分光器のモーター制御コントロー ラに従来の単機能なパルスコントローラではなく、NC 装置などに使用されるモーションコ ントローラを採用し、分光器のすべてのモーターをソフトウェア制御することでこの機能 を実現している。マスターとなる信号は光源アンジュレータに設置されたギャップ計測用 のエンコーダ信号であり、これをハードワイヤーでビームラインに設置したモーションコ ントローラに入力している。モーションコントローラ内では入力されたギャップ情報を元 に、現在のアンジュレータスペクトルのピークエネルギー値を計算する。その際にはあら かじめ測定してモーションコントローラに入力しておいたギャップ値とピークエネルギー 値の関係式を利用する。計算されたピークエネルギー値から分光器の各軸(BL15A 型分光 器の場合は合計6軸)の理想位置を計算し、移動命令を出す。この際に分光されたビームは 定位置出射を保つように各軸の動作スピードはリアルタイムに制御され、エネルギー変更 動作中でもビームの出射方向は維持される。このようなシステムを構築し、基本的にはア ンジュレータのギャップを駆動するだけで自動的に分光器が追従して連続的に分光光を取 り出すことに成功した。

(3) KEK 放射光での連携制御システム

上記の BL15A でのシステムはたとえば On the fly 方式の連続 XAFS 測定システムなどに は有効であるが、多くの場合は分光器側をマスターとしてアンジュレータギャップを追従 させる方式の方が望まれるであろう。もっと理想的なことをいえば、状況によりアンジュ レータと分光器どちらもマスターになれるシステムがよい。NSLS-II の例を挙げると、アン ジュレータと分光器の制御システムのそれぞれモーションコントローラを導入し、それら を光ファイバーで接続している。2つのモーションコントローラは見かけ上1つのコントロ ーラとして動作し、より複雑な要求に対しても柔軟な対応が可能である。これを実現する ためにはアンジュレータの設計段階からこのような用途を想定しておく必要があり、光源 側とビームライン側で十分な協力体制を構築しておくことが重要である。

5. 真空系開発

KEK 放射光計画では高輝度光源の低エミッタンスを活かしたナノビーム、マイクロビー ム利用が予定されている。そこで、ビームライン最上流部と真空紫外軟 X 線ビームライン については振動を全く発生しないスパッターイオンポンプ、非蒸発ゲッター (non-evaporable getter, NEG) ポンプのみでビームラインや実験装置の真空の維持を行うことが望ましい。 KEK 放射光施設が現 PF と PF-AR の後継機であることを考えると、現在 PF、PF-AR で稼働 している真空機器を可能な限り再利用することも望まれる。一方で、建設コストの削減と 真空維持労力の低減が求められていることから、高排気速度長寿命低コスト NEG ポンプの 開発、高排気速度長寿命低コスト NEG コーティングの開発が重要である。また、ビームラ イン建設とメンテナンスの労力低減の観点から、真空紫外軟 X 線用ビームラインおよび X 線ビームラインの真空システム、真空ポンプの防振システム、排熱対策、放射線対策、光 学素子の炭素汚染除去法の標準化も望まれる。本節では各項目について具体的に記述する。

5-1. 高排気速度長寿命低コスト非蒸発ゲッター(NEG) ポンプの開発

真空紫外軟 X 線ビームラインでは蓄積リングの真空に悪影響を及ぼさないようにするとともに、光学素子の炭素汚染を防ぐために 10⁸ Pa 台の超高真空に維持する必要がある。一方、表面研究用超高真空装置でも、残留ガスによる試料表面の汚染を防ぐため、1×10⁸ Pa 程度の超高真空が望まれる。非蒸発ゲッター (NEG) ポンプは、超高真空中で蒸発を使わずに反応性の高い清浄表面を作製し(活性化)、室温において残留気体を吸着させて排気する真空ポンプである。金属(M)を NEG 材料として使用した場合、M+O₂→MO、M+N₂→MN、M+CO₂→MO + MC、M+CO→MO + MC、M+H₂O→MH (バルク) + MO、M+H₂→MH (バルク) などの吸着反応により、O₂、N₂、CO、CO₂、H₂O、H₂などを排気できる。NEG ポンプはエネルギー消費が極めて少ない、活性気体に対して大きな排気速度を持つ、振動・騒音を生じない、油をまったく使用しないといった利点を持つので、ビームラインや超高真空装置の圧力を 10⁸ Pa 台に維持する目的には適している。実際我々は、PF の BL-13A/B においては 13 台以上の NEG ポンプを使用し、その有効性を確認している (図 5-1)。



図 5-1: PFの BL-13A/B における NEG ポンプ使用例。

(1) 現在の超高真空維持用真空ポンプの問題と NEG ポンプの開発

現在の BL-13 以外の PF の真空紫外軟 X 線ビームラインではスパッターイオンポンプ、チ タンサブリメーションポンプが 10⁻⁸ Pa 台の超高真空維持に使われている。しかしながら、 スパッターイオンポンプは 60 L/s の排気速度の機種でも制御電源・ケーブル込みで 100 万円 程度、600 L/s の排気速度の機種で 200 万円程度、チタンサブリメーションポンプは制御電 源・ケーブル込みで 60 万円程度と高価である。また、スパッターイオンポンプは強い磁場 を発生させる、スパッタリングで炭化水素を生じる、非常に重いといった問題もある。一 方、チタンサブリメーションポンプはチタンの昇華を伴うのでビームラインや超高真空装 置内部をチタンで汚染する恐れがあり、最近の放射光施設では使用されない傾向にある。 一方、市販の NEG ポンプも 100 L/s の排気速度の機種で 45 万円程度、1000 L/s の排気速度 の機種で 133 万円程度(制御電源・ケーブル別)と高価である。KEK 放射光施設建設にお いてはコスト削減も重要であるので、我々は低コストで高い排気速度を実現できる NEG ポ ンプを開発した。

我々が開発した ICF70 マウント NEG ポンプを図 5-2 に示す(特許出願中[1])。本 NEG ポ ンプを 400℃、30 分加熱で活性化した場合の排気速度を実測し、市販品に劣らない性能を示 すことを確認した(表 5-1)[2]。また、本 NEG ポンプはヒーターユニットと NEG モジュー ルから構成されているので、希望する排気速度の NEG ポンプを低コストで製作できる(図 5-3)。本 NEG ポンプは蓄積リングにも利用可能である。



図 5-2: ICF70 マウント NEG ポンプ。

表 5-1:	ICF70マウント	ヽNEG ポンプの 400℃、	30分加熱で活性化し	た場合の排気速度[2]

気体	H ₂	N ₂	СО	CO ₂
排気速度(L/s)	140–130	200–140	190–130	35-17



図 5-3: ICF114 マウント NEG ポンプ。

また、ICF70NEG ポンプの活性化は 1 回あたり 3A×20V×30 分程度であるので、電源とし ては出力電圧 0~36V、出力電流 0~3A の定電圧電源(たとえば、松定プレシジョン、超低 ノイズ直流電源、PL-36-3、消費電力 200W、6.2kg)とケーブルを用意すればよい。電源は NEG ポンプの活性時のみ使用するので、1 台の電源を切り替えて使用することも可能である。 このように本 NEG ポンプでは電源コストと電源設置スペースも大幅に節約できる。

(2) NEG ポンプの開発の今後の課題

NEG ポンプ開発の今後の課題は、NEG ピルからのダストの発生を抑制すること、大気圧開放と活性化を繰り返しても排気速度が低下しないようにすること、製造コストを削減することの3点である。現在、これらの課題を解決するために研究を進めている。

- [1] 間瀬一彦、菊地貴司「非蒸発型ゲッターポンプ」(出願番号:特願 2015-233674、出願日 2015 年 11 月 30 日)
- [2] H. Kodama, S. Ohno, M. Tanaka, M. Tanaka, K. K. Okudaira, K. Mase, T. Kikuchi, J. Vac. Sci. Technol. A 34, 051601 (2016).

5-2. 高排気速度長寿命低コスト非蒸発ゲッター(NEG)コーティングの開発

MAX-IV などの最先端の放射光蓄積リングでは真空ダクトの内壁に、Ti-Zr-V 合金などの NEG 材料をコーティングし、ベーキングにより活性化して、高排気速度を実現している[3]。 しかしながら、従来の NEG コーティングには活性化と大気圧開放を繰り返すと排気性能が 低下するという問題がある。そこで我々は高排気速度を持ちながら、活性化と大気圧開放 を繰り返しても排気性能が低下しない NEG コーティング法の開発を進めている。光学素子 用チェンバーの内壁の表面積は大きいので、NEG コーティングできれば大きな排気速度を 実現できると期待される。また、蓄積リングの真空ダクトなどへの応用も期待できる。

[3] O. B. Malyshev, K. J. Middleman, J. S. Colligon, and R. Valizadeh, J. Vac. Sci. Technol. A 27, 321 (2009);

5-3. 真空紫外軟 X 線ビームライン用標準真空システム

本節では、ナノビーム、マイクロビーム利用に対応した真空紫外軟 X 線ビームラインの 真空ポンプ、真空計、真空コンポーネントを提案する。

真空紫外軟 X 線ビームラインでは蓄積リングの真空に悪影響を及ぼさないようにすると ともに、光学素子の炭素汚染を防ぐために、炭化水素を含まない 10⁻⁷~10⁻⁸ Pa 程度の超高真 空に維持する必要がある。一般に、真空装置の到達圧力は

$$p = \frac{q \times A + Q_L}{S} \tag{1}$$

で与えられる。ここで、qは真空装置内の平均ガス放出率、Aは真空装置内の全表面積、QL は全リーク量、Sは真空ポンプの排気速度である。したがって、振動の全くない真空ポンプ のみで 10⁸ Pa 台の超高真空に維持するためには

57 / 70

- (1) 真空装置内の平均ガス放出率(q)を10⁻¹⁰ Pa·m·s⁻¹台程度に小さくする。このため、 真空チェンバーの内壁と真空内金属部品は原則としては電解研磨あるいは化学研磨 後、純水洗浄仕上げとする。ベアリング、ベローズは特級エタノールで超音波洗浄 する。真空チェンバー内は完全オイルフリーとして、固体潤滑剤を使用する。また 真空チェンバーは 100℃~150℃に数十時間ベーキングして表面に吸着している水分 子、炭化水素分子を排気できる仕様とする。
- (2) 超高真空装置内の全表面積(A)を小さくする。
- (3) NEG ポンプなど、超高真空領域で高い排気速度(S)を持つ真空ポンプで排気する。
- (4) 全リーク量 (Q_L) は 1×10⁻¹¹ Pa·m³·s⁻¹以下にする。

を実現すればよい。したがって、 $A = 10 \text{ m}^2$ 、 $q = 5 \times 10^{-10} \text{ Pa} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 、 $S = 0.5 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ 、 $Q_L = 1 \times 10^{-11}$ Pa·m³·s⁻¹なら $p = 1 \times 10^{-8}$ Pa の超高真空を実現できる。我々はすでに PF の BL-13 において、 真空紫外軟 X線ビームライン全体を 1×10^{-8} Pa 以下の超高真空に保つ技術を確立している[4]。 KEK 放射光施設では低コスト、省労力、無振動で真空紫外軟 X線ビームライン全体を 10^{-7} ~ 10^{-8} Pa の超高真空に維持する技術を導入することを提案する。

[4] A. Toyoshima, H. Tanaka, T. Kikuchi, K. Amemiya and K. Mase, J. Vac. Soc. Jpn. 54, 580 (2011).

(1) 真空紫外軟 X 線ビームラインの真空排気システム

PFの真空紫外軟 X線ビームラインにおける標準的な真空排気システムを図 5-4 に示す。 PFでは油回転ポンプが使用されているが、第3世代以降の放射光施設では、スクロールポ ンプあるいは多段ルーツ型ポンプといったドライポンプを使用することが一般的である。 磁気浮上型ターボ分子ポンプは完全オイルフリー、取り付け方向の自由度が大きい、振動 が小さい、メンテナンスコストが小さい、地震に対して耐性があるという理由から日本の 放射光施設では広く使用されている。また、停電/故障時には真空チェンバーとターボ分子 ポンプの間のゲートバルブとターボ分子ポンプと油回転ポンプ(ドライポンプ)の間のア ングルバルブを自動で閉めて、排気システム中の気体が真空チェンバーに逆流しないよう にインターロック機構を持たせている。また、ビームライン最上流部と最下流部に複数の 差動排気部を設け、スパッターイオンポンプ、NEG ポンプを効率的に配置することで、大 気突入などの不慮の事故に対応している。ユーザービームタイム中は真空チェンバーとタ ーボ分子ポンプの間のゲートバルブを閉じて、スパッターイオンポンプと NEG ポンプのみ でビームラインを排気することにより、無振動、無排熱、省エネルギーでビームラインの 真空を 10⁻⁷~10⁻⁸ Paに保つことができる。本真空排気システムは KEK 放射光施設において も適用可能であるが、コスト削減のために、PFで開発した NEG ポンプを採用することを考

58 / 70

えている。KEK 放射光の標準的な真空紫外軟 X 線ビームラインに設置する真空ポンプの例 を表 5-2 に示す。



- 図 5-4: PF の BL-13 で使用されている真空排気システムの例。油回転ポンプを使用しているが、 フォアライントラップとアイソレーションバルブを設置して、超高真空チェンバーへの油 蒸気の拡散を防いでいる。
- 表 5-2: KEK 放射光の標準的な真空紫外軟 X 線ビームラインに設置する真空ポンプ、真空計、真 空機器の案。コスト削減のため、ドライポンプの代わりにマグネットカップリング式油 回転ポンプを使用する可能性もある。

	ドライ	ターボ	NEG	スパッター	ピラニ	冷陰極	酸素
	ポンプ	分 子	ポンプ	イオン	真空計	電 離	導入
		ポンプ		ポンプ		真空計	
差動排気	0	0	0	0	0	0	
熱負荷除去鏡	0	0	0		0	0	\bigcirc
前置集光鏡	0	0	0		0	0	\bigcirc
入射スリット			0		0	0	
分光器	0	0	0		0	0	\bigcirc
分岐鏡	\bigcirc	\bigcirc	0		\bigcirc	0	\bigcirc
BBS			0		0	0	
出射スリット			0		0	0	
後置集光鏡	0	0	0		0	0	\bigcirc
光量モニター			0		0	0	

(2) 真空紫外軟 X線ビームラインの真空計測システム

真空紫外軟 X 線ビームライン標準真空システムにおいて利用される真空計は、1×10³ Pa から 1×10⁸ Pa まで計測できること、複数の接点出力が使用できること、集中監視が可能な こと、大気突入などの不慮の事故が起きてもフィラメントが焼損しないことが求められる。 既存の PF、PF-AR ではこれらを考慮し、ピラニ真空計と冷陰極電離真空計を組み合わせて 1×10³ Pa から 1×10⁸ Pa まで計測できる自動レンジ真空計を使用している。これまでほぼト ラブルなく運営できていること、低コストであること、既存品を再利用できることから、 KEK 放射光においても同様の真空計測システムで対応予定である(表 5-2 参照)。

(3) その他の真空紫外軟 X 線ビームラインの真空コンポーネント

既存の PF、PF-AR の真空紫外軟 X 線ビームラインでは、超高真空仕様ゲートバルブ、超 高真空仕様オールメタルアングルバルブ、ターボ分子ポンプインターロックシステム、後 述する光学素子洗浄用酸素導入など多数の真空コンポーネントが使われている。いずれも これまでほぼトラブルなく運営できていること、低コストであること、既存品を再利用で きることから、KEK 放射光においても同様の真空コンポーネントで対応予定である(表 5-2 参照)。

5-4. 硬 X 線ビームライン用標準真空システム

硬X線は透過率が高く、前述の通りフィルターも適用可能であり、光学素子の炭素汚染 に対する要求も厳しくないため、超高真空状態である蓄積リングと基幹チャンネルをベリ リウムなどの窓材で分離しビームラインを低真空から高真空状態にすることができる。光 学機器は真空リークによる蓄積リングへの影響や、耐ベーキング性能のことを考えずに設 計できる。一方で、硬X線と軟X線の境界付近の2~6 keV付近のエネルギーでは、透過率 やフィルターの問題から、蓄積リングと真空的に直結した窓無しのビームラインが望まし い。この場合は、窓の替わりに差動排気システムを積極的に導入し、光学機器の設計の自 由度を保ちつつ蓄積リングの真空悪化を回避するという方策がとられる。

(1) 硬 X 線ビームラインの真空排気システム

既存の PF、PF-AR の硬 X 線ビームラインでは、粗排気にスクロールポンプや多段ルーツ ポンプ等のドライポンプ、高真空領域の排気に磁気浮上型のターボ分子ポンプを用いてい る。この真空排気システムは広く放射光施設の硬 X 線ビームラインで使用されてきた、高 信頼かつ低コストの排気システムである。そこで、KEK 放射光においても同様の真空排気シ ステムを採用することを提案する。ただし、ドライポンプ、磁気浮上型ターボ分子ポンプ の振動が光学素子に伝達しないように、ミラーチェンバーと排気チェンバー間、および排 気チェンバーとターボ分子ポンプ間に防振ダンパーを設置する。また、スパッターイオン ポンプが気体を溜め込みすぎて排気速度が低下したときに、排気速度を回復できるように スパッターイオンポンプを 150℃程度にベーキングできる仕様にしておく。KEK 放射光の 標準的な硬 X 線ビームラインに設置する真空ポンプの例を表 5-3 に示す。

表 5-3: KEK 放射光の窓無しの硬 X 線ビームラインに設置する真空ポンプ、真空計、真空機器の 案。酸素導入は炭素汚染除去の要望がある場合のみに設置する。

	ドライ ポンプ	ターボ 分 子 ポンプ	NEG ポンプ	スパッター イ オ ン ポンプ	ピラニ 真空計	冷陰極 電 離 直空計	酸 素 導入
差動排気	0	0	0	0	0	0	
BBS	0	0	0	0	0	0	
水冷可動4象限	0	0	0	0	0	0	
ワイヤモニター			0	0	0	0	
差動排気				0			
分光器	\bigcirc	\bigcirc		0	\bigcirc	0	\bigtriangleup
DDS				0	\bigcirc	0	
KBミラー	0	0		0	0	0	\triangle

(2) 硬 X 線ビームラインの真空計測システム

既存の PF、PF-AR では、ピラニ真空計と冷陰極電離真空計を組み合わせて 1×10³ Pa から 1×10⁻⁷ Pa まで計測できる自動レンジ真空計を使用している。これまでほぼトラブルなく運 営できていること、低コストであること、既存品を再利用できることから、KEK 放射光に おいても同様の真空計測システムを提案する(表 5-3 参照)。

(3) 差動排気システム

PFのBL-1A、BL-15など2keV~6keVの硬X線が利用できるビームラインでは、差動 排気システムを利用して窓無し(蓄積リングと真空的に直結した状態)で運用されている。 硬X線ビームラインで用いられている通常の液体窒素冷却式分光器の直上流に差動排気シ ステムが設けられており、冷却配管継ぎ手から窒素がリークする可能性も想定したものと なっている。差動排気システムはコンダクタンスの小さな配管やオリフィス、バッファー チャンバーを多段に設置したものとなっており、ビームラインの真空悪化が蓄積リングに 影響しないよう設計されている。これまでほぼトラブルなく運営できていること、低コス トであること、既存品を再利用できることから、KEK 放射光においても同様の差動排気シ ステムを考えている。

5-5. ビームライン最上流部の真空コンポーネント

本節では、ビームライン最上流部に設置する真空コンポーネントを検討する。

(1) 差動排気システム

真空紫外軟X線ビームラインでは第一光学素子の炭素汚染を除去するために、第一光学 素子チェンバーに10⁻⁵ Pa 程度の酸素を導入することを計画している。また、硬X線ビーム ラインではベリリウム窓の損傷等によりビームラインの真空が急激に悪化する可能性があ る。そこで、遮蔽壁貫通管の直下流に差動排気チェンバーを設置することを提案する。遮 蔽壁貫通管の内径が30mm、長さが1200mm程度の場合、差動排気チェンバーに500 L/sの ターボ分子ポンプ、1000 L/sの NEG ポンプ、400 L/sのスパッターイオンポンプを設置すれ ば、光源基幹部は10⁻⁸ Pa 台の真空を維持できる。また、KEK 放射光 3GeV リングではエミ ッタンスが小さいことから光も細く、細い真空配管を用いることができるので差動排気シ ステムを導入して、下流部の真空が悪化したときにゲートバルブを閉めるインターロック システムを導入しておけば光源基幹部の真空悪化を避けることができる。

(2) 水冷可動四象限

KEK 放射光 3GeV リングでは PF 2.5 GeV リングより熱負荷が増大し、かつ放射範囲が集 中する。光学素子本体の熱負荷の問題については別項に譲るが、ビームライン基幹チャン ネル部においては必要な光の範囲外の光を遮り、余分な熱負荷を除去することが重要であ る。PF の BL-13 では図 5-5 に示すような 0.2%ベリリウム銅合金製水冷可動四象限を設置し て余分な熱負荷を除去している[5]。本水冷可動四象限は、真空内に動作部分がなく、異種 金属接合部もないことから低コストでありながら信頼性が高い。また、コンダクタンスが 小さいのでビームラインで大気突入が起きても、基幹チャンネル部の真空悪化を低減でき る。KEK 放射光 3GeV リングでは加速器室壁外付近でのビーム垂直な面での面積当たりの パワーが PF2.5GeV リングの 2 倍程度と見込んでいるため、水冷可動四象限の受光面を 2 倍 程度傾けることで対処できる。また KEK 放射光 3GeV リングでは、偏向電磁石による電子 軌道曲率が緩やかになることから光源から加速器室を出てくるまでの距離が大幅に伸びる ため、アパーチャーを大きくとる必要がある。そのため、大型になると予想されるが、既 存技術の応用で十分対処可能である。



図 5-5: PFの BL-13 で使用されている水冷可動四象限[5]。

[5] H. Tanaka, T. Kikuchi, A. Toyoshima, Y. Nagatani, T. Kosuge, K. Mase, F. Watanabe, and H. Nishiguchi, J. Vac. Soc. Jpn. 54, 481 (2011).

5-6. 真空ポンプの防振、排熱対策、放射線対策

ビームライン最上流部および真空紫外軟 X 線ビームラインでは、光学素子の振動を避け るためにユーザービームタイム中は無振動の NEG ポンプ、スパッターイオンポンプのみで ビームラインの真空を維持する。しかしながら、硬 X 線ビームラインおよびエンドステー ションにおいて、ユーザービームタイム中にドライポンプ、ターボ分子ポンプなどの振動 を伴う真空ポンプを使用することは避けられない。そこで本節では真空ポンプの振動が光 学素子に伝達しないような防振システムを提案する。また、真空ポンプの排熱は局所的な 室温の上昇を招き、光学素子の不安定化や空調コストの増大を招く。そこで、真空ポンプ の排熱対策についても提案する。ケーブルおよび真空機器の放射線対策についても記述す る。

(1) 真空ポンプの防振

現在の PF の走査透過 X 線顕微鏡 (STXM) 装置ではドライポンプ等を、α ゲル防振材を 介して台車に載せ、床への振動伝達を低減している (図 5-6)。また、ターボ分子ポンプと ドライポンプの間のフレキシブルチューブに除振錘を接続することで大きな振動を切り離 している。さらに、ターボ分子ポンプとチェンバーの間にα ゲル防振材と溶接ベローズを 利用した防振ダンパーを設置することでチェンバーの振動を低減している。KEK 放射光に おいても同様の手法に基づく防振対策を行う。



図 5-6: PF の STXM 装置で使用されているドライポンプの防振システム。台車の上に防振ゴム を介してスクロールポンプを設置している。

(2) ポンプの排熱対策

真空ポンプは通常運転時の使用電力が小さい機種を選定する。放射線防護ハッチには排 熱ファンを設置して、ハッチ内が一定温度に保たれるように調整する。必要に応じて、冷 却水を用いたラジエーターを使ってハッチ内を冷却する。温度が安定しない場合はハッチ 内全体をやや高温に保つことにより安定化を図る。放射線防護ハッチ外の光学素子チェン バーは塩化ビニルフードで覆って温度を一定に保つ。ターボ分子ポンプ、ドライポンプ等 は必ず塩化ビニルフードの外に設置して光学素子チェンバーの温度上昇を防ぐ。

(3) 放射線対策

遮蔽壁貫通管を通過し光学素子で散乱されたエネルギーの高い放射光(硬 X 線)は、ケ ーブルや真空機器を損傷させる。このため、遮蔽壁貫通管は必要最小限の大きさにすると ともに、放射線防護ハッチ内に設置するケーブルや真空機器は耐放射線性が高い製品を使 用する。

5-7. 光学素子の炭素汚染除去法

光学素子の炭素汚染は炭素 K 吸収端における光量の大幅な低下をもたらすため、様々な 炭素汚染除去法が開発されてきた。PF では 10⁻² Pa~10⁻⁴ Pa の酸素導入下で光学素子に非分 光放射光を照射するという簡便な *In-situ* 光学素子炭素汚染除去法を開発し、ビームライン のすべての光学素子の炭素汚染を除去することに成功している[6]。本手法は低コストで技 術的に確立しており、労力もほとんどかからないことから KEK 放射光においても採用する。

[6] A. Toyoshima, T. Kikuchi, H. Tanaka, J. Adachi, K. Mase, and K. Amemiya, J. Synchrotron Rad. 19, 722 (2012).

(1) 光学素子の炭素汚染の現状

ビームラインに設置された光学素子に放射光を当てると、チャンバー内に残存した炭化 水素と光電子が反応して、光学素子表面にグラファイト状の炭素が堆積し、反射率が低下 する(図 5-7)。とくに炭素 K 吸収端と呼ばれる 280-330 eV の光エネルギー範囲での反射率 の低下が深刻であり、放射光利用実験の妨げになる。従来の光学素子の炭素汚染除去は、 光学素子を大気中に取り出して再蒸着、もしくはオゾン洗浄を行う方法が主流であった。 しかし、いずれの方法でも超高真空チェンバーの大気圧開放、光学素子の取り外し、炭素 汚染除去、再設置、真空排気、ベーキング、光学素子の再調整などの作業を行う必要があ り、コストと労力が非常に大きいという問題があった。また、大気圧開放のときにチェン バー内に有機分子が侵入するため、炭素汚染除去後も一定量の炭素汚染が残るという問題 もあった。



図 5-7:光学素子の炭素汚染(中央の 黒い線)。

(2) 光学素子の炭素汚染除去法

光学素子の炭素汚染を最小に抑えるためには、炭素汚染の元である残留炭化水素分圧を 極限まで下げる必要がある。そのため、PFのBL-13では、

- (1) 真超高真空装置内面および真空内金属部品はすべて電解研磨を行ったのち、純水洗 浄を行なう。
- (2) 電解研磨できないベアリング、ベローズ等は特級エタノールで超音波洗浄する。
- (3) 真空チェンバー内で潤滑油は全く使用せず、必要な場合は固体潤滑剤のみ使用する。
- (4) 真空排気は、油を全く使用しない磁気浮上型ターボ分子ポンプ、非蒸発ゲッター (NEG) ポンプ、スパッターイオンポンプで排気する。油回転ポンプを使用する場合はフォアライントラップを設置して、真空チェンバーへの油蒸気の拡散を防ぐ。

という対策をとっている[4]。しかしながら、大気中での光学素子への有機分子の付着、真 空チェンバーを大気開放したときの有機分子の侵入を完全に防止することはできない。 そこで我々は、10⁻² Pa~10⁻⁴ Pa の酸素を導入しながら、光学素子に非分光放射光を照射して、 ビームラインのすべての光学素子の炭素汚染を短時間でほぼ完全に除去する手法を開発し た。炭素汚染除去前後の炭素 K 吸収端におけるビームライン最下流での光量を図 5.8 に示す [6]。光照射後に炭素 K 吸収端の光量が顕著に増加していることが確認できる。KEK 放射光 では光量が増大するため、炭素汚染除去は1時間以下で終了できると予想される。



図 5.8 炭素汚染除去前後の炭素 K 吸収端における放射光量[6]。

(3) 光学素子の炭素汚染防止法

ビームライン光学素子のうち回折格子より上流側に設置される光学素子は常に非分光放 射光に照射されている。したがって、光学素子チャンバーを1×10⁸ Pa 程度まで排気したの ち、~10⁻⁷ Pa 台の酸素を常時導入して運用することで回折格子より上流の光学素子の炭素汚 染を防止することができる。この手法を導入すれば回折格子より上流については炭素汚染 除去の必要さえなくなり一層の労力削減を実現できる。

6. インフラ施設

KEK 放射光計画では高輝度光源の低エミッタンス性能を活かしたナノビーム、マイクロ ビーム利用が予定されている。効率よく放射光実験を進めるための周辺環境だけでなく、 極小ビームを安定的に扱うための建屋構造(振動対策)、安定な空調、冷却水、寒剤、液体 He 再利用システム、可燃性/不燃性排ガス処理、電気設備等のほか、安全確保にも気を配る 必要がある。オンサイトに必要な準備室の床面積など、現在調査を進めている。本節では 各項目についての検討状況を記述する

6-1. 実験ホール床構造

現在の PF 実験ホールは、床構造が弱く、排気ポンプや通路からの振動が実験装置に伝わ ってしまう問題がある。KEK 放射光計画では、ナノビーム、マイクロビーム利用を予定し ていることから、徹底した振動対策が求められる。ビームラインを設置する実験ホールの 床構造はリングトンネルと一体形成とし、50cm 以上の厚みを持たせる。振動抑制のための 施工方法については現在調査・検討を進めている。実験ホールと光源リング床は、建屋の 屋根を支える基礎とは分離して別構造となるよう検討している。また、実験ホール外周通 路部分と側室部分についても、ビームラインが並ぶ床の構造体とは分離することを検討し ている。また、ビームラインの排熱処理やインフラ配管、空調配置の引き回しなど、建屋 構造に関係するため、検討を進めている。

ビームラインのコンポーネントや実験装置の搬入出作業についても、ビームライン側の 実験ホールはエアパッドを使用するなど、実験ホール床に振動を与えないような対策を検 討している。

6-2. 実験ホール空調

ナノビーム、マイクロビームを扱う上で、空調温度の揺らぎはビームの不安定要因に大 きく関わるため温度を一定に抑えることは必須である。KEK 放射光計画では、実験ホール の床面積 16700m²(トンネル含む)を±0.5℃以下(ハッチ/ブース内の目標は±0.1℃以下) で安定させることが必要となる。

システムとしては、リング内周側に複数台のチラーユニットを設置し、ここで得られた 温冷水を熱源として、エアーハンドリングユニットにて熱交換しホール全体の空調を行う。 機械室は4つのエリアに分けてそれぞれに空調システムを構築する。

PF 施設のように、中央にエネルギーセンターを設置して大型冷凍機を用いて温冷水を作る方式も検討しているが、共同溝の設置、搬送動力を考えると、複数台のモジュールチラーによる運用のほうがコストを抑えられると考えている。

6-3. 冷却水供給

ビームラインで使用する冷却水(循環水)は、既存 PF 実験ホールと同様に差圧 0.2MPa(送 水 0.4MPa→復水 0.2MPa)温度安定度±0.5℃以下として、ビームライン当たり 50L/min を確 保する。空調と同様に、4 カ所の機械室にエリア分けし、それぞれ 730L/min 送水可能とす る(合計で 2900L/min)。空調同様にリング内周部に設置したチラーユニットで生成した温 冷水を熱源として、循環水を熱交換器による熱交換を行い送水する構造とする。発熱量に 関しては検討中であるが、ビームシャッターなどの遮蔽機器のほか、ビームラインの光学 素子冷却などで標準となりつつある液体窒素冷凍機の排熱を充分吸収できるものを算定す る必要がある。循環水は純水を使用する。機械室は空調同様リング内周部に設置され、そ れぞれ膨張水槽、デミナーユニット、送水ポンプと純水供給設備が設置される。

6-4. 寒剤・ガス供給ライン

実験で使用する寒剤(液体窒素)を供給するために1機(最終的には2機)の液体窒素CEを 建屋外側に整備する。また、実験ホール内周側に、窒素ガス、ヘリウムガス等の供給ライ ンを設置し、必要に応じて各ビームラインに配管を引き込むことが出来るよう検討中であ る。

使用後のヘリウムガスを再利用するためのヘリウムガス回収ステーションを整備する。 回収されたヘリウムガスは、パイプラインを介して KEK 低温センターへ送られ再処理され る。

6-5. ガス排気ダクト

実験ホールには、実験用の可燃性・支燃性・毒性ガスの持ち込みに対応するために防爆 構造の排気ダクト2系統(可燃性ガス持ち込み用/支燃性ガス持ち込み用)を設ける。持ち 込まれたガスは、排気ダクトに接続されたシリンダーキャビネット内に収納した状態で実 験に使用することが可能となる。ガス漏れが発生した時のための除外設備はシリンダーキ ャビネット内に設けることする。また、実験室内の油汚染を防止するため、ロータリーポ ンプ用排気ダクトを整備する。

6-6. 電気設備

KEK 放射光計画の新リングでは、6-7MW 程度の電力需要が見込まれる。この需要を満た すため、新たに受電設備を整備する必要がある。必要な変電所は、特高変電所1カ所、サブ 変電所6カ所を想定している。特高変電所は66KV→6.6KV に変圧して施設に必要な電力を

69 / 70

送り、サブ変電所は各施設内に設置され、使用者が必要な電圧(6.6KV→100V,200V,etc.)を 供給することを考えている。

特高変電所については、下記2案で検討している。

(1) 既存変電所更新 PF エネルギーセンター内に設置されている PF 特高変電所を更新して、現状 16MW 受電系統を 20MW に更新する。

(2) 新規受電設備設置

新リング近くに、新たに特高変電所を設置する。10MW 受電(5MW×2系統)とし

て、受電幹線は、KEKAR 変電所、もしくは PS 変電所から分岐して接続する。

どちらかの案になると考えているが、新リングの運転に KEK ライナックを使用する場合、 既存の受電設備も更新時期に来ていることに留意する必要がある。サブ変電所は伝送距離 が長くなるとコストがあがるため施設内に設置する必要がある。加速器運転用2カ所、実験 用4カ所を想定している。

6-7. ネットワーク設備

各ビームラインや実験室へ、高速ネットワーク環境を供給できるような設備を検討する。 特に今後の実験で必要となってくるビッグデータ解析では、各装置から高速演算/大容量 サーバが必須であり、実験ホールからサーバまでダイレクトに繋ぐ必要がある。また、自 動測定や遠隔操作実験などには、別途ネットワーク設備を整備する必要があると考えられ、 物理的・論理的に複数にネッッとワーク設備を敷設することで、安定かつ高精度、高速度 なデータ測定が実現できるものと考えている。

6-8. 側室環境、中尺実験ホール

オンサイトで必要な側室等の環境についても現在調査中である。コントロール室、低温 庫、工作室、当番室、監視員室、部品保管庫、搬入口、出入り口、ビームライン毎の実験 準備室、化学試料や生物試料などの準備室、サーバールーム、データ処理室、ユーザ控室、 見学フロアなど必要な配置および面積の検討を進めている。

また、コヒーレンス利用や非弾性散乱など、ビームライン距離や特別に実験スペースを 確保しなければ遂行することができない実験を対象に、実験ホール外にビームラインを引 き出して、中尺実験ホールを整備することも検討に入れている。

8. 測定技術

<計測技術>

1. はじめに

1-1. 何を開発するか

1) 多次元情報を高速に取得できる高性能検出器の開発

放射光利用研究のX線領域では、次世代太陽電池や光触媒への応用、先端的機能性材料の開発研究のため、X線回折による構造解析実験だけでなく、パルスX線ビームを使って時間応答を調べる時間分解X線回折実験や分光実験が展開されている。高輝度新光源による利用研究ではnmサイズビームを使った試料走査・高速測定、ns間隔パルスによって構造時間変化を調べるなど、空間・時間やエネルギーなどの情報を合わせた多次元情報を高速に取得できる高性能検出器の開発が必要となっている(図1)。CMOS ピクセルセンサ

、フロントエン
ド ASIC、FPGA による高集積度電子回路技術をキー・テクノロジーとする
高度な多次元計測系システム開発を
PF でも進める。

X 線領域の研究 を支えるものとし て、ピクセルアレ イ検出器 (PAD) があ り、センサーと信号 処理回路をバンプボ



図1 空間・時間やエネルギーなどの情報を合わせた多次元情報 を高速に取得できる高性能検出器の開発(イメージ)

ンディングにより結合するハイブリッド型検出器において、国内外の大型放射光施設な どでめざましい開発の進展がある。一辺が数 10mm-数 100mm 領域の画像記録、パルス計 測では6桁以上のダイナミックレンジで強度分布の解析を可能とすること、50µm以下の 空間分解能、1フレームあたりのデータ記録を 1ms以下に高速化することなどがすでに進 行中であり、製品としての開発も進んでいる(表1)。日本では独自にセンサーと電子回 路を一体化できる SOI(Silicon On Insulator)技術による検出器開発が行なわれている [1]。PFでは 2010 年の物構研・計測システム開発室発足以後、2 次元検出器開発について あらためて検討が開始された。2013 年より科研費・新学術研究によるプロジェクトに参 加し、理化学研究所が開発した積分読み出し型検出器: SOPHIAS の X 線小角散乱・回折実 験への応用を理研との共同研究として進め、計数型検出器はテスト用センサーチップ (Test Element Group-TEG) 開発から開始した。時間分解実験では XAFS で実績がある。

Facility Detector name	Pixel size (μm)	Pixel no. per module (Max. pix. no. of detector)	Module size (mm) (Max. size)	Frame rate (Hz) (Rate for Max. size)	Type etc
PSI PILATUS3	172	100k (6M)	84x34 (424x435)	0. 5k (0. 1k)	Pulse DECTRIS Ltd.
PSI EIGER X	75	0.5M (16M)	77x40 (311x328)	3k (0. 13k)	Pulse DECTRIS Ltd.
DESY Lambda (Medipix3)	55	0.39M (2M)	42x28 (85x85)	2k	Pulse X-Spectrum GmbH. Sensor: GaAs, CdTe
SPring-8 II	70	0.3M (22M)	54x27 (324x324)	17k	Integral, Dynamic Range ~10 ⁶ 2017~2019:Up to 22M pix.

表1 ピクセルアレイ検出器の開発例

PF-AR リングの単バンチモード運転を利用する dispersiveEXAFS 実験ではシリコンスト リップ検出器システムによる 1µs ごとのデータ取り込みを使ったポンプ-プローブ実験 が実施されている。今後、20-40keV 領域の検出効率を引き上げるためのセンサー開発と 独自の信号処理系の開発が必要とされている。高速パルスが得られナノ秒時間分解能を 有する Si-APD ピクセルアレイは 100 チャンネル規模のリニアアレイがすでに放射光核共 鳴散乱実験へ応用されつつあるが、さらに SOI 技術による 2 次元アレイ開発をめざす。

VUV/SX 領域では、10²¹(光子数/秒・mm²・mrad²・0.1%バンド幅)を超える高輝度ビーム の利用が可能になると期待されている。ナノメートルオーダーの集光ビームを使って高 速・高効率で測定を行うには、多チャンネル素子による計測(1次元、2次元)、データ収 集の高速化が必要とされている。現在、軟 X 線磁気円二色性測定のための 30 チャンネル・ マルチアノード・マイクロチャンネルプレート(MCP)による 10Hz の高速偏光スイッ チングに対応した高速計測システム開発がスタートしている。このシステムを基礎に 2次 元アレイ用信号処理システムの開発、エネルギー分析を可能とすることや CMOS アレイ センサーなど半導体センサーによる検出器開発などにも取り組む。

2) 大容量・高速データ処理を可能とする通信制御の要素技術開発

検出器と計算機を結ぶデータ入出力と制御は、今後はイーサネットによる通信が主流 となると考えられ、それをいかに高効率・高速で行なうかが重要である。ハードウェア の限界に達する速度と高い効率でデータ収集する技術として SiTCP がある[2]。現在、 通信速度 1Gbps のものは実用化され、10Gbps が準備中である。10Gbps 回線を複数利 用するシステムの開発を進める。 3) ビームライン制御と計測技術との統合

挿入光源、ビームライン光学系、試料環境の制御(試料交換含む)と検出器データ収 集との統合が必要である。XAFS では 100 個レベルの試料を連続的に数時間内で測定す るため、ハイスループット自動測定技術の開発が必要となっている。この開発には、試 料交換、試料位置調整や最適なビーム照射位置を求めるためのプレ測定などを行なうこ とが含まれる。PF で進められてきた STARS による光学系制御、検出器データ収集をさ らに進展させる。

2. どのように開発を進めるか

- 1) 現在進行中のプロジェクトを開発の軸とし、以下の目標を数年内で達成する。
 - ・X線小角散乱・構造解析測定のための SOPHIAS 検出器(高精細)応用
 - ・計数型 SOI 検出器(高感度-軟 X 線領域での測定): プロトタイプ開発
 - ・深さ分解 XMCD 測定(SX 領域):マルチアノード MCP 検出器(高計数率、10Hz 偏光切替え対応、30 チャンネル)システムの完成
 - ・核共鳴散乱・時間分解 X 線測定のための Si-APD リニアアレイ検出器システム (128 チャンネル)の完成
- 2) 以下の新規プロジェクトの開始と長期(5年~10年)の目標達成をめざす。
 - ・DXAFS: Ge ピクセルアレイ検出器システム
 - ・XAFS 測定などのためのハイスループット自動測定システム
 - ・SOIによるナノ秒応答 Si-APD 2 次元アレイ検出器システム
 - ・軟X線用CMOSピクセルアレイ検出器システム

3) PF 内外の組織との共同開発を進める。

すでに Si-APD リニアアレイ検出器システム開発や 30 チャンネル・マルチアノード MCP 検出器システムの開発において、物構研・計測システム開発室を通した素核研エレクト ロニクスシステム (Esys) グループとの ASIC 開発・FPGA 技術による共同開発が 2010 年 から進展している。KEK 測定器開発室には APD リニアアレイ、高速シンチレータ開発に おけるプロジェクト参加を行いアクティビティの一端を担っている。KEK 外では SOI 検 出器である SOPHIAS 検出器の応用研究を理化学研究所と 2013 年から進めている。今後は 計測技術ネットワーク" Open-It" による大学・企業との連携、海外研究機関との連携を 進める。

参考文献

- [1] Y. Arai *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. A **636**, 531 (2011).
- [2] T. Uchida, IEEE Trans. Nucl. Sci. 55, 1631 (2008)

2. SOI 技術を用いたピクセル検出器開発

(1) 背景

PFでは新学術領域研究「3次元半導体検出器で切り拓く新たな量子イメージングの展開」 (H25~H29)の計画研究の一つとして、Silicon-On-Insulator (SOI) 技術による光子計数にお ける高精細さと高速性とを両立した放射光 X 線実験用 SOI ピクセル検出器の開発を進 めている[1, 2]。図1に SOI ピクセル検出器のもととなる SOI ウェハーの概要示す。



図1 SOI ウェハー

図1には SOI ウェハーの構造を、各層のおおよその厚みとともに示した。上下の二層の Si 層に挟まれているのは SiO₂ の絶縁層である。右図は、下部の厚い Si 層を基板として上部 の薄い Si 層に信号処理回路を実装した様子を示す。SOI 技術によるセンサー開発のポイ ントは、この下部の Si 基板をセンサーとして用い、電荷収集端子を設けて回路層と接続す ることで検出器として使用できるようにしたことである。製作は半導体プロセスのみで行 われ、センサーと回路は初期の製造工程から一体になっている。このようにセンサー・回路 一体の構造の検出器をモノリシック型検出器と呼ぶが、バンプボンディングによる制約が ないため、

・寄生静電容量に起因する信号レベルの低下や雑音の増大を大幅に軽減することができる、
・ピクセルサイズの縮小はハイブリッド型検出器よりも有利に進められる、

等の利点がある。図2に SOI ピクセル検出器の概要を示す。図中で使用されている SOI ウェハーは Double-SOI 構造と呼ばれるもので、絶縁層中にもう一枚 Si 層 (Middle-Si

層)が挿入されている。Middle-Si 層は固定 電位に接続されることによりセンサー層を介 して発生するクロストークに対するシールド の役割を果たす。また、X 線照射を繰り返す ことで絶縁層にホール電荷が蓄積され回路が 正常に動作しなくなる(Total Ionizing Dose effect; TID 効果)が、Middle-Si 層に蓄積電 荷を打ち消すような電圧を印加することで



図2 SOI ピクセル検出器

TID 効果による回路性能の劣化を補償することができる。これらの SOI の特徴を生かし、 高精細・高速応答可能な X 線検出器の開発を行っている。さらに、薄い裏面不感層の実現、 センサー表面処理を施すことで 2 keV 程度の軟 X 線にも感度を持たせることを目指して いる。現在 PF では後述する 二つのプロジェクトを行っている。

(2) 放射光 X 線実験用パルス計数型ピクセル検出器開発

Si ピクセル検出器の検出光子の信号読み出し手法にはパルス計数型と電荷積分型があり、 前者はピクセルからのパルス出力のうち波高閾値を超えた信号を計数するもの、後者はピ クセルに蓄えられた総電荷量をデジタル変換するものである。ピクセルに搭載する回路が 異なる他、両者の検出器としての仕様・特性が実験に対するメリット・デメリットのいずれ になるかを検討し、測定に最適化した検出器設計が必要である。現在の PF や新光源で展 開される構造解析実験のうち X 線回折・小角散乱を想定すると、1 ピクセルへ複数光子が 同時に入射して信号が重なり合う可能性が低いことからパルス計数型検出器の使い勝手が 良い。パルス計数型は、低ノイズレベルが実現されれば広いダイナミックレンジを確保でき る、X 線の検出タイミングやエネルギー分解能の情報を精度よく得られる等の利点があげ られることから、開発目標を

・50 µm 角以下のピクセルサイズ、

- ・メモリ内蔵によりマイクロ秒の連続記録を可能とする、
- ・軟 X 線に対して感度を持たせる、

としてパルス計数型ピクセル検出器の開発 を開始し、現在は Test-Element-Group (TEG)を製作しピクセル性能の評価を行っ ている。

図3に現在評価中の CPIXPTEG1 チップ を示す。中央付近の赤枠部分には 16 bit カ ウンタ搭載の 64 µm 角ピクセルによる 32 ×32 アレイを、その上部青枠の二か所には アンプ、ディスクリミネータ等ピクセル内ア ナログ回路性能評価用の TEG を配してい る。ピクセルサイズの 50 µ m 以下への縮小

図3 CPIXPTEG1 チップの写真

や回路性能のアップグレードを積み重ねて計数 図3 (型 SOI ピクセル検出器の完成を目指す。

(3) SOPHIAS による放射光 X 線構造解析

理研により開発された SOPHIAS [3] は 30 µm 角ピクセルのセンサーチップを実装し た高ダイナミックレンジ・高精細積分型検出器である。撮像領域として 26.73 mm (H) × 64.77 mm (V) (不感領域除いた画素数としては 891 (H) × 2157 (V) 画素)のチップを二 枚搭載している。PF では計数型ピクセル検出器の完成に先駆けて、高精細ピクセル検出器 の放射光 X 線実験への応用として SOPHIAS による X 線回折・小角散乱実験を進めて いる。現在行っている実験の一つに、SmBaMn₂O₆を試料とした X 線回折がある。この試 料は相転移によって強誘電性が変化することが知られており、相転移に伴い結晶中の原子 位置が変位することで元々 1 本だった回折ピークが近接した 2 本に分離する [4]。X 線 回折実験において、このように近接する回折ピークを持つ試料の構造解析ではピークの分 離が重要であることからピクセル検出器には空間分解能の高さが要求される。

(4) 今後の SOI ピクセル検出器開発

TEG による電子回路・センサー性能の評価を行なっているパルス計数型ピクセル検出器 について、数 10 mm 角サイズのプロトタイプ検出器システムの製作へと数年内で進める。 まず、ピクセルサイズ 50 µm 以下、1 フレーム(数 100 k ピクセル)あたり 1 ミリ秒以 下の読出し速度、数 keV までの X 線 1 光子の検出という目標を達成したい。このため KEK 素核研・新井グループの協力を得るとともに中国高能研グループとの共同研究を進め ている。1 光子に対して複数のピクセルが応答してしまう問題に対応できる回路の実装の 他、

・軟 X 線検出のためのセンサー表面処理および空乏層厚さの最適化、

・ピクセル搭載型メモリを実装することによる信号読み出し高速化、

についての検討を進め、次世代の放射光実験で要求される高精細、高速、高感度の計数型ピ クセル検出器を開発する。

(5) Si-APD ピクセルアレイ検出器について

比例モードで動作するシリコン・アバランシェ・フォトダイオード(Si-APD)は内部増幅 率が~100倍にとどまるが、ナノ秒幅の高速パルス応答が可能である。そのため、X線検出 器自体の応答をマイクロ秒からナノ秒へと 1000倍に高速化することができる。たとえば、 サンプリング 0.5ns 程度の時系列連続計数測定(MCS)をASICアンプとFPGAによって行い 各ピクセル最大 10⁸ s⁻¹の高計数率のまま、Si-APDピクセルアレイにより、試料温度等を変 えながら X線強度の時間変化の迅速な記録を可能にする[5]。すでに 64 チャンネル Si-APD リニアアレイ検出器(ピクセルサイズ:100x200µm、有感部:9.6mm)による 0.5ns 時間分 解計数を実現させており、PFでの Si-APD 開発(浜松ホトニクスに素子製作を委託)と素核 研エレクトロニクス・システムグループの超高速 ASIC 開発・FPGA 技術による共同研究とベ ンチャー企業での信号処理ボード製作を進めている(図4)。1000 チャンネル規模(32×32) のセンサー開発を経て 100×100 チャンネル以上の二次元検出器の開発へと進める。信号読 み出し回路としてアナログメモリセル[6]を採用、X線強度をデジタル処理の時間応答限界 に制約されず超高速応答でアナログ波形として記録することも可能である。この方式は散 乱強度大でパルスが同じタイミングで数多く重なる場合や 1ns 以下の間隔のパルス X 線を 使う測定にも対応できる。



図4 64 チャンネル Si-APD リニアアレイ検出器

上述のように科研費・新学術「3次元半導体検出器で切り拓く新たな量子イメージングの 展開」の計画研究のもとで、ピクセルサイズ 30 µm 角をめざす計数型チップ開発や積分型セ ンサー応用を進めている。この SOI 技術を応用するプロジェクトではフォトダイオードタ イプのピクセルだけでなく、比例モード Si-APD ピクセルセンサーの試作が行なわれており、 2 次元 Si-APD ピクセルアレイ検出器の実用化のための開発を協力して行なう。2017 年度ま での SOI プロジェクトに続いて Si-APD ピクセル X 線センサーの開発を PF において継続さ せる。

参考文献

- [1] Y. Arai et al., NIM A636, 531 (2011)
- [2] T. Miyoshi *et al.*, NIM A**732**, 530 (2013)
- [3] T. Hatsui, Synchrotron Radiation News, Vol. 27, No. 4, (2014)
- [4] H. Sagayama et al., Phys. Rev. B 90 241113(R) (2014)
- [5] S. Kishimoto et al., Rev. of Sci. Instrum. 85, 113102 (2014).
- [6] H. Friederich, et al., IEEE Trans. on Nucl Sci. 58(4), 1652 (2011).

3. 原子層レベルの深さ分解能を実現する角度分解型軟 X 線・電子検出器の高 速高感度化

薄膜の軟 X 線吸収 (XAFS) スペクトルを測定する際、表面敏感であるという利点から、X 線 吸収後の緩和過程で生じるオージェ電子を検出する、いわゆる電子収量法を用いることが 多い。さらに二次元型 (Microchannel plate; MCP) 検出器を使って角度分解して検出するこ とで、深さ方向の情報を付加することができる。この特長を利用した解析法が「深さ分解 XAFS 法」である。様々な出射角の電子を別々に取り込むことで、全ての検出深度に対応す る X 線吸収スペクトルを一括に取り込み、解析的に表面(あるいは界面)成分と内部成分の XAFS スペクトルを得ることができる (図 1)。従来の深さ分解法では、MCP 検出器の感光部 を蛍光スクリーンに投影し、CCD カメラで記録する方式を採用しており、これまでに原子層 レベルの深さ分解能を達成し、薄膜表面や界面の電子状態分析を行ってきた。さらに試料へ の磁場の印加が可能なセットアップにすることで、深さ分解 X 線磁気円二色性(XMCD)スペ クトルも得られる仕様になっている。この手法を磁性薄膜に適用することで、成長過程にお ける磁気異方性変化の「その場観察」が可能となり、スピントロニクス分野で注目される薄 膜や多層膜の基礎物性を調べるツールとして威力を発揮してきた。

表面成分の XAFS/XMCD スペクトルを得る手法としては高い信頼性を誇るが、界面成分の 抽出に関しては大きな課題がある。表面から数 nm の上の界面層は観察できても、さらに深 い**下の界面層**を同等な精度で観察することは困難を極める。というのも、従来の検出方式 (蛍光スクリーンと CCD の組み合わせ)における検出効率やダイナミックレンジでは、例え

ば数 10 nm 程の厚い被膜層で覆われた層からの微弱なシグナルを、感度よく得ることが非 常に難しいからである。光

源の性能があがり、高フラ ックスの光を使えるよう になったとしても、検出器 の問題で深さ分解能を制 限されることは避けるべ きである。

そこで計測システム開 発室だけでなく、素粒子原 子核研究所エレクトロニ クスシステムグループ、お よび計測技術の専門家ネ



図1 従来の深さ分解 XAFS 法(左)と 30 チャンネルマルチ アノード MCP 検出器システム(右)。



図 2:マルチアノード MCP 検出器システムの概略。MCP で増幅され たシグナルが ASIC と FPGA を介して信号処理される。

ットワークである Open-It と連携して開発を進めているのが、マルチアノード MCP 検出器 を用いた新しい深さ分解測定システムである。図2に測定システムの概略を示す。MCP で増 幅されたシグナルが、ASIC と FPGA を介して電気的に信号処理される仕組みとなっている。 30 チャンネルのアノードが1 mm 間隔で平行に並んでおり、電子収量モードでは素子面から 試料までの距離を約 60 mm にセットすることにより、検出角(θ_d) 0-15°の範囲を1°刻み で取り込むことで、検出深度(λ)が0.5-2 nm のスペクトル群を得ることができる。一方 軟 X 線蛍光収量モードでは、電子収量の場合の3 倍ほど距離を離すことで角度分解能を稼 ぎ、0-4.5°の範囲を0.3°刻みで取り込むことによって、λが0.5-17.5nm のスペクトル群 を得ることができる。いずれの収量モードにおいてもサブ nm の深さ分解能の達成が可能と なり、世界的に見ても例のない電子・蛍光収量モード対応の軟 X 線深さ分解測定システムの 構築を目指す。近年ではデバイスの動作時に近づけるため、電場などの外場をかけた状態で 深さ分解測定を行うオペランド観察の需要が高まっていることから、特に外場の影響を受 けない蛍光収量モードを用い、多様な測定に対応できるように高度化することが重要であ る。

また ASIC と FPGA の高速信号処理能を生かし、将来的にはピコ秒からナノ秒の高速反応 を追跡することが可能である。繰り返し周波数 500MHz のマルチバンチ構造を有する運転モ ードでは、GHz 領域で動作する素子におけるスピンのダイナミクスを観察するのに適した時 間構造になっており、ナノビームとポンププローブを組み合わせることによって、例えばス ピン伝播の時間発展を 3 次元的に観察することが可能となる。近年スピン波を利用した機 能デバイスの開発がますます盛んになっており、動作中におけるスピン波伝播の様子を、元 素選択的にナノメートルオーダーで観察する手法が確立すれば、機能性の理解が飛躍的に 上がることが予想される。

実際のデバイス構造に近い物質群を観察対象とする場合、注目する元素の微量性に加え、 被膜層など他の構成元素からのシグナルによって、鮮明なXMCD シグナルを得ることは難し いと予想される。この問題を回避するには、捉える電子や蛍光のエネルギー選別をすること でより高いS/Bを実現する必要がある。電子収量の場合には、グリッド電極に印加する阻止 電場を変化させて特定のエネルギーの電子のみをカウントすることによって、約20倍のS/B が期待される。一方蛍光収量の場合には、波高分析機能を利用することによってエネルギー 選別が可能になる。これらの特長を生かすことで、スピン波伝播以外にも、外場による応答・ 緩和過程や、表面化学反応の吸着・脱離過程の、今まで観測されてこなかった時間スケール での観察が可能となり、たとえその対象が厚い被膜層や吸着層に埋もれた界面層であって も、鮮明な XAFS/XMCD スペクトルが得られると期待される。また通常はパルスカウント型の 検出法を用いているが、カウント数が多い場合には数え落としが生じることがある。この問 題を回避するには積分型の検出法が有効とされていることから、並行して開発を進めたい。

4. SiTCP によるデータ収集システムの高速化と効率化

データ収集システムの役割は検出器が生成する信号データを損失無くかつ効率よく計算 機へ転送しデータを記憶装置に記録する事である。近年のデータ収集システム開発時の課 題は指数関数的に増加する実験データへの対応である。

加速器科学実験は高輝度・高強度を進めているが、その背景には実験結果を得るまでの時 間を短縮する意味でのコストが重視されている。放射光実験でも高輝度化が進められてお り、新たなサインエンスを展開するとともに以前はビーム利用時間の制限等で不可能だっ た実験も実施可能になっている。この事は単位時間当たりの実験データ量を爆発的に増大 させた事を意味する。高輝度化により短時間で十分なイベント数が取得できるようになる と複数の検出器を 2 次元面に配置する事も可能になる。また、短時間で十分なイベント数 を得ることができるなら時間分解能を上げて時間構造を見ることも可能となる。空間的、時 間的に拡張されたこれらの観測データを得るために検出器数と時間方向のサンプリング数 が上昇するため単位時間あたりに処理すべき信号データ量は指数関数的に増加する。指数 関数的に増加するデータ量を生成する検出器の例としてたんぱく質構造解析などで利用さ れる2次元検出器がある。既に製品化されている EIGER X4M はピクセル数が約4.5M、1 ピクセル当たりのデータサイズが 12 bit、最大フレーム・レートが 750 Hz であり1 秒間に 生成されるデータ量は約 40 Gbit になる。データ圧縮技術などを採用すれば数十パーセン トのデータ量を削減する事はできるが削減率はデータに依存するのでシステム設計の立場 からは要求データ転送速度として最大値の 40Gbit/sec を採用する事になる。この様に莫大 なデータが生成される実験が特別な事ではなく通常の実験として行われる時代になりつつ ある。技術の進歩は速いので、時が経てばさらに高い性能が求められるであろう。以上のよ うに時が経つにしたがい指数関数的に増加する膨大な実験データを処理可能なデータ収集 システムの開発が求められている。

データ収集システムの役割は検出器が生成する信号データを損失無くかつ効率よく計算 機へ転送しデータを記憶装置に記録する事である。検出器が生成するデータは指数関数的 に増加しているので単位時間あたりに計算機へ転送するデータ量も指数関数的に増加して いる。このように増大する検出器データは近年著しい電子機器の性能向上により比較的容 易に処理できると感じるかもしれない。しかしながら、データ収集システム固有の問題があ るため、実現する事は容易ではない。データ収集システムはフロントエンド・エレクトロニ クスとバックエンド・エレクトロニクスで構成される。フロントエンド・エレクトロニクス は検出器近傍に配置され検出器信号を処理したデータをバックエンド・エレクトロニクス へ転送する。バックエンド・エレクトロニクスは主に計算機で構成され転送されたデータの 解析や記録装置への保存処理などを行う。計算機性能は年々向上しているので、計算機の構 成などを工夫することで指数関数的に増加を続けるデータに対してもバックエンド・エレ クトロニクスは対応可能であると考えられる。一方、フロントエンド・エレクトロニクスに 関しては注意が必要である。フロントエンド・エレクトロニクスは検出器近傍に配置される ため形状、体積、発熱、消費電力など様々な制約が課せられる。この制約下において指数関 数的に増大するデータを高速に処理し計算機へ転送する必要がある。同時に検出器の空間 密度増大により一つのフロントエンド・エレクトロニクスが処理すべき検出器(チャンネル) 数も増大している。この様な制約下の装置に対して発展目覚ましい計算機をそのまま適用 する事はできない。

検出器が出力する多チャンネルの信号を高速処理する回路は集積回路化することで解決 可能である。この事は 2 次元センサが集積回路技術で実現されていることからもわかる。 問題は集積回路内で処理した膨大なデータを計算機へ送るデータ転送インターフェース部 である。近年では最低でもギガビット以上の転送速度が要求されている。このデータ転送イ ンターフェースは開発期間、性能、保守管理などシステム全体のコストを考慮すると標準イ ンターフェースとも言えるイーサネット技術が有力候補である。イーサネットは技術世代 間の互換性を重視した規格であるため新旧規格の機器が直接またはハブと呼ばれる機器を 介する事で容易に接続可能でありシステムを部分的に高速化することができる。これは既 存データ収集システムに新しい検出器を容易に導入できる事を意味する。例えば、あるビー ムラインに新たに設置する検出器が膨大なデータを生成する場合、該当部分のみに最新機 器を設置して対応する事ができる。他の部分は性能やコストなどを考慮して数世代古い機 器をそのまま使用できる。イーサネットの転送速度は 10 Mbit/sec から 100 Gbit/sec まで 規格化されおり用途に合わせて必要十分な速度を採用可能である。この互換性はシステム 保守管理の観点からも有効である。通常古い世代の技術を採用した製品は製造中止となり 購入や保守が不可能となる。技術世代間の互換性が無い場合、一部の装置故障やアップグレ ードのために全ての装置を入れ替える必要があるが、イーサネット採用はこの問題を解決 する。さらに、イーサネットは広く使われているため高機能高性能な多種多様で高性能な製 品を安価で活用できる点も大きな長所である。

イーサネット採用は様々な長所があるが、イーサネット規格はデータ転送の無損失を保 障していない。そのためデータ転送の健全性(無損失転送)は他のソフトウエア的な通信手 段と組み合わせて実現する。無損失データ転送を保障するために TCP/IP と呼ばれる通信プ ロトコルと共に用いることが一般的である。データ損失時は TCP/IP のデータ再送機構によ りデータが修復され無損失で計算機へ転送される。TCP/IP は比較的複雑な処理が要求され るため、一般に CPU を用いたソフトウエア技術を用いて実装される。しかしながら強い制 約が課せられているフロントエンド・エレクトロニクスで CPU を採用する事は難しい。1 Gbps 通信以上の高速データ転送を実現するためには高性能 CPU が必要である。しかし、 高性能 CPU は消費電力が大きいため発熱が大きくなり冷却機構が必要になるなど装置が 大きくなる。また、CPU を動作させる際にオペレーティングシステム(OS)を採用する事は ー般的であるが、Linux などの汎用 OS を動作させるためには大容量メモリが必要となり装
置の大きさが大きくなるとともに消費電力・発熱量も大きくなる。汎用 OS は背景で多くの タスクが動き続けるので、十分に高性能な CPU を用いないと長時間安定して高速通信する 事は難しい。例えば、転送速度が不定期に突然 µ s から ms 程度の短期間に大きく低下する ことなどが報告されている。これらの挙動は OS の内部動作で決まるためユーザーによる調 整や対応は容易ではない。OS を採用しない実装方法もあるが、開発や保守について考慮す ると多くの経済的・人的リソースが必要になるため採用は困難であろう。

フロントエンド・エレクトロニクスがイーサネットと TCP/IP の組み合わせを採用する利 点は多いものの、その実現に関して問題があることを示した。この問題を解決するために SiTCP^(1,2)と名付けた TCP/IP およびイーサネット処理専用ハードウエア(デジタル回路) を開発した。1 Gbps まで実用化されており、10 Gbps 版を開発中である。この SiTCP によ りフロントエンド・エレクトロニクスでイーサネットと TCP/IP の組み合わせを採用する事 が容易に可能になった。SiTCP の開発目的は検出器近くに配置されるフロントエンド・エ レクトロニクスをネットワーク装置化する事である。図1に SiTCP を用いたデータ収集シ ステムの概念図を示す。



図1 SiTCPを用いたデータ収集システム概念図

SiTCP は専用ハードウエアであるため、先に示した以下の制限を満たすことが可能である。

- 装置の大きさ制限
- 消費電力
- 長期安定性

SiTCP は Field Programmable Gate Array(FPGA)と呼ばれる半導体チップに書き込ま れることが多い。FPGA とはユーザーが回路情報をソフトウエアのように書き込むことが できる半導体チップである。SiTCP のユーザーは自ら開発した実験専用回路と共に SiTCP を FPGA に書き込むことでイーサネット通信インターフェースを持つ独自の半導体チップ をその場で作ることができる (図1参照)。これは数センチメートル四方の一つの半導体デ バイスに高性能計算機と同等の通信性能を持たせる事と同等である。SiTCP によりイーサ ネット採用による装置の大きさ制限が大きく緩和された。

CPU と比較すると SiTCP の消費電力は非常に小さい、使用する FPGA の種類などに依 存するものの 1 Gbps 通信の場合で 2W 程度である。高性能 CPU が数十 W 消費する事と 比較すれば非常に小さい事が分かる。消費電力は回路規模と回路動作速度の積に比例する ため、回路規模を小さくすることと回路を低速で動作させることで低消費電力化を実現し た。一般に専用回路と CPU を用いたソフトウエア処理で回路規模と回路動作速度について 比較すると回路規模は小さくなり、回路動作速度は遅くなる。CPU は様々な処理を行うた め多種多様な処理が行うことができるように設計されている、また高速処理に対応するた めに複雑な回路が採用されているため回路規模が大きい、また CPU は逐次処理なので(例 えば1 ワードのデータを処理するために複数の命令を実行させる必要がある)高速データ 転送する際は転送速度よりも十分に高い速度で回路を動作させなければいけない。一方専 用回路の場合、処理毎に専用回路を設けて分散処理するため、回路を最適化する事ができる ため回路規模が小さくなり回路は低速で動作させることができる。CPU は数 GHz 程度の 動作速度であるが FPGA は数百 MHz 程度の速度なので 1/10 程度の回路動作速度である。 近年 FPGA 上に CPU が組み込まれるようになり Linux OS 等が動作可能になり FPGA を 小さな計算機と使用できるようになった。この技術を用いることでも TCP とイーサネット 技術を比較的容易に採用できる。しかしながら、データを高速かつ長時間安定に転送するこ とは難しい。2010 年頃までデスクトップ PC を用いて安定にギガビットの速度で TCP 通 信する事は簡単ではなかった (現在でもノート PC や廉価版計算機では難しい)。 廉価版 PC に搭載されている CPU であっても動作速度は数 GHz である。それと比較して FPGA に組 み込み可能な CPU の動作速度は高々1GHz 程度である。安定に高速データ転送を行うため に十分な性能の CPU であるとは言えない。以前、FPGA の組み込み CPU を用いてシステ ム構築を進めていた実験グループが性能的な問題を解決できず、最終的に SiTCP により問 題を解決した事例がある。 この事からも組み込み CPU を用いてデータ取集システムを構築 することが容易でない事が分かる。

以上のように SiTCP を用いれば実験装置のフロントエンド・エレクトロニクスでイーサ ネットを容易に採用可能である。この利点により SiTCP は多くの実験や観測で採用されて いる。



図2 64 チャンネル光検出器システムのフロントエンド・エレクトロニクス

放射光実験に SiTCP が利用された例として図 2 に核共鳴散乱測定のために開発された 64 チャンネル光検出器システム⁽³⁾のフロントエンド・エレクトロニクスの写真を示す。集 積化技術によりボードサイズは 170mm ×140mm である。検出器が出力する 64 チャンネ ルのアナログ信号を1枚のボードで処理、デジタル化を行い、ギガビット・イーサネットを 介して計算機へデータを転送する。写真から分かるように放熱器などは無く低消費電力で あることが分かる。計算機が複数のギガビット・イーサネット・リンクを処理できる性能を 持っているなら、イーサネット・スイッチと本フロントエンド・エレクトロニクスを複数使 用することでより多数の検出器信号を処理する事も可能である。

現在の SiTCP の転送速度は最高 1 Gbit/sec であるが、近年のデータ量増加に対応するために 10Gbps 版 SiTCP を開発中である。10Gbps 版 SiTCP を用いれば、これらのデータを読み出しシステムを容易に実現できる。レイヤー2 と呼ばれるイーサネット処理と ARP, ICMP などの管理用プロトコルの実装が終了し、TCP 処理部の開発を進めている。2016 年度に試作第一版を開発する予定である。試作完成後は複数の実験グループと協力しながら実際の読み出しシステムに組み込んでテストを繰り返す事で障害修正と性能向上を進める。

10Gbps SiTCP が実現すればたんぱく質構造解析でもちいる 2 次元センサのデータも複数の SiTCP を搭載する事で十分処理可能である。SiTCP の高速化によりフロントエンド・エレクトロニクスの高速化は可能であるが、10 Gbps 以上の転送速度になるとバックエンドの計算機を含めたシステム全体で適切な性能配分を考察し実装する事が重要になる。良くある過ちとして、計算機に 10Gbps インターフェースが付いていれば 10Gbps で通信できると考える事である。計算機に 10Gbps インターフェースが付いていれば、確かにある期間(例えば数 msec など)に限ればその期間は 10Gbps で通信できる。しかし、実験期間全体で常に 10Gbps で通信し続けることができる保証はない。何故なら計算機のイーサネット通信のデータは CPU で処理するため、計算機上で動作している複数の他のタスクの影響

を受けるからである。CPU 性能がタスク量と比較して十分高ければ問題ないが、現時点で は計算機が一つの 10Gbps リンクを受信する事は容易ではない。計算機の機種選定や OS の チューニングなど様々な工夫が必要である。この問題を軽減するために 10Gbps 版 SiTCP では仮想的に複数の 1 Gbps リンクを束ねて一つの 10Gbps リンクとする機能を実装予定で ある。この機能により一つのフロントエンド・エレクトロニクスが出力するデータを複数台 の計算機で受信し記録する事が可能となりバックエンド・エレクトロニクスの構成方法に 柔軟性を高めることができる。もちろん複数の 1 Gbps リンクを一台の PC で処理する事も 可能。この様にデータ送信部のシステム設計も構想時から詳細な検討が必要である。

現時点でイーサネット規格は 100 Gbps まで制定されている。次の規格 400 Gbps の制定 が 2017 年に予定されている。現在使用可能な FPGA 技術では 100 Gbps を処理する事は難 しいが、今後も FPGA の性能は向上すると思われるため、将来は対応可能になると考えら れる。既に 40 Gbps 対応の FPGA も販売され始めているので 10Gbps 版完成後に仮想的に 4 つの 10Gbps リンクを束ねた 40Gbps 版を開発予定である。

SiTCP は指数関数的に増加する放射線検出器のデータ量を計算機へ転送するために適し た技術である。SiTCP の強みは性能に加えてコスト削減効果である。ハードウエアからソ フトウエアまで含めたシステム全体の開発コストを考慮するとデータ転送に TCP/IP とイ ーサネット通信を採用する意義は非常に大きい。イーサネット採用により技術世代間の高 い互換性に起因する様々な利点を享受できる。従って、SiTCP を採用する事でフロントエ ンドも通常のネットワーク機器となるため、年々高性能化する FPGA、計算機、ネットワー ク機器などを部分的に置き換えまたは新規追加することでコストと性能を考慮した最適化 が可能になる。これは日々性能を向上させることが可能な柔軟なシステムであり、計測シス テム性能を常に高く維持するために必要な要件である。以上のように SiTCP は KEK 放射 光計画においても次世代ピクセル型検出器などの大容量データを高速処理するシステム構 築のために必要不可欠な技術と考える。

参考文献

- T. Uchida, Hardware-based TCP processor for gigabit ethernet, IEEE Trans. Nucl. Sci. 55, (1631) 2008.
- [2] http://research.kek.jp/people/uchida/technologies/SiTCP/
- [3] S. Kishimoto *et al.*, Nuclear resonant scattering measurements on (57)Fe by multichannel scaling with a 64-pixel silicon avalanche photodiode linear-array detector, Rev. of Sci. Instrum. 85, 113102 (2014).

5. 超高速時間分解 XAFS のための位置敏感検出器の開発

(1) 背景

これまでの科学技術は、平衡状態(相図)に基づき、材料性能や組成を変えるために急激 な温度勾配 T や圧力勾配 P を与えて、「非平衡状態」を介すことで様々な金属・無機材料を 作り出してきた。しかし従来よりもさらに急激な外場をトリガーとして用いると、従来の比 較的ゆっくりと状態量を変化させる場合とは異なる「極短時間にも現れる準安定の非平衡 状態」が反応の支配因子となると考えられている。こうした「極短時間にも現れる準安定の 非平衡状態」を利用することで、平衡状態もしくは平衡からのずれが小さな条件で状態を変 化させる経路とは異なる経路で反応が進行し、全く新たな反応や反応生成物を創出できる 可能性がある。しかしながら平衡状態からのずれが大きなこうした反応は"不可逆反応"であ り、これまでの観察手法では不可逆反応前と不可逆反応後の定常状態での材料を観察する ことしかできなかった。このため材料設計においてはそこから反応経路を推測し、多くのト ライ・アンド・エラーを繰り返すことで硬い金属、熱に強い材料や、耐衝撃に優れた材料な ど高付加価値の材料を開発してきた。しかし「極短時間にも現れる準安定の非平衡状態」を 観察することにより、材料設計において最も重要な P、V、T などの急激な変化を受けて発 生する材料中での反応起点の解明が可能になり、新たな材料設計が期待できる。

「極短時間にも現れる準安定の非平衡状態」の取り組みとして、我々は PF-AR において 放射光 X 線パルスとレーザーとを組み合わせ、1パルスの X 線で測定可能な時間分解 X 線 回折および吸収分光システムを開発し、外部刺激を付与した直後に材料中で生じる反応の 極初期の状態を観察してきた。近年 X 線自由電子レーザー(XFEL)の実用化によりフェム ト秒オーダーの X 線パルスが得られるようになり、X 線パルスの時間構造を利用した時間 分解 X 線回折や XAFS 測定もフェムト秒オーダーの時間分解能を有するに至った。一方で 鋼の焼き入れに代表される材料の変態は拡散を伴いナノ秒の時間スケールで生じると考え られている。拡散現象はナノ秒からサブナノ秒で進行する典型的な不可逆過程のひとつで あり、秒~サブ秒のレベルでの急激な外場(P、V、T)の変化により反応パスを制御してい ることになる。このように XFEL のパルス X 線を用いたフェムト秒オーダーのみでなく放 射光施設を用いたピョ秒からサブナノ秒の現象を観察することも極めて重要になる。

17 / 21

(2) KEK 放射光における新展開と期待される成果

現在 PF-AR で展開されている 1 パルスの X 線で測定可能な波長分散型 XAFS (Dispersive XAFS: DXAFS) 実験ではレーザーと DXFAS を組み合わせたシステム (図 1) を用いることで、材料の衝撃破壊や高温の鋼を急冷却することによる焼き入れなど不可逆な単発現象のメカニズムを解明することを目的として研究を行っている。例えば、古くから行われている鋼の焼き入れプロセスを考えてみる。鋼の焼き入れは昇温により相転移した鉄を急冷す

ることによる鉄格子の 変態の速度と固溶炭素 の拡散速度が微妙に異 なることを利用して材 料設計を行っており、 結果として炭素を過剰 に固溶した非常に硬い 組織が形成される。拡 散現象はナノ秒からサ



図1 レーザーと DXAFS を組み合わせたシステムの概念

ブナノ秒で進行する典型的な不可逆過程のひとつであり、秒~サブ秒のレベルでの急激な 外場(P、V、T)の変化により、反応パスを制御していることになる。放射光施設から得ら れる1パルスのX線を用いた測定を行えば得られるスペクトルの時間分解能はX線のパル ス幅、すなわち約 100 ps となる。これによりナノ秒からサブナノ秒の時間スケールで「極 短時間にも現れる準安定の非平衡状態」を可視化し、パルス外場による材料の「非平衡状態」 を介した材料創製を行うことが可能になる。このような従来の極短時間の時間分解実験に 加え、KEK-LS ではナノビームを用いることにより従来空間での平均情報であった測定を、 空間の不均一性を含めて評価できるようになり、材料学的に革新的な情報を得ることが期 待される。例えば、上述の炭素などの添加物に由来する析出物の分散制御により材料を高強 度化、高延性化することが可能になる。通常析出物は数 nm~数十 nm サイズであり、これ らは材料中の数 μm~数+ μm 程度の結晶粒もしくは結晶粒界で発生する。既に展開されて いる PF-AR での研究では光源性能により試料位置でのX線ビームサイズは数百μmであり、 材料中に生成するナノ析出物とバルクの情報を合わせた平均情報しか得られない。しかし 新光源では集光光学系を用いることにより試料位置で数百 nm~数十 nm の高強度な X 線を 得ることができる。X 線サイズを適切に調整することにより、ナノ析出物が結晶粒もしくは 結晶粒界のいずれに発生するのか、また析出物のみに X 線を照射することにより析出物の 発現から成長に至るダイナミクスを解明することが可能となる。このような実材料系では、

析出物の発生および成長は不均一に起こると考えられるが、新光源を用いることで析出物 発生サイトによる生成速度の差異などが現れると期待され、不均一に進展する反応の構造 的かつ時間的な基点を解明することが可能となる。これにより高強度、高延性など高付加価 値の材料設計に対して極めて重要な知見を与えると期待される。これを実現させるために は次期光源から供給される X 線パルスを DXAFS システムに最適な形で高精度に検出する ことが必要条件となる。

(3) 検出器開発の目的、着想に至った背景と開発する検出器等の特色

パルス X 線を用いた時間分 解測定には主に X 線パルスセ レクターを用いて物理的に X 線パルスを間引き、目的のタイ ミングの X 線パルスのみを使 用する方法と、極短時間の検出 ゲートを有している検出器を 用いることで目的のタイミン グの X 線パルスのみを選択的 に取り込む方法があり、 DXAFS では後者を用いてい る。DXAFS システムの特徴は



図 2 DXAFS システムの概念図

湾曲結晶によって波長分散され、発散した X線を一度に位置敏感に検出することである(図 2)。このため DXAFS を用いた超高速時間分解測定では検出器の性能が実験データの質を大 きく左右する。パルスX線を用いたDXAFS測定用のX線検出器として必要な主な要素は、

「位置敏感検出」と「孤立バンチを切り出せるゲート時間を持つ」の2点である。次期光源 で目標とする位置敏感検出器のスペックを表1にまとめた。DXAFS では X 線強度を位置敏 感に測定する必要があるため一次元もしくは二次元検出器が必要である。これらはピクセ ルアレイ、ストリップ検出器いずれでも構わない。

カバーするエネルギー域および検出効率

現在の DXAFS システムでは K 吸収端でクロム(約6keV)からセリウム(約40keV)の エネルギー領域での測定が可能な光学系が準備されており、検出器としてはシリコンマイ クロストリップを使用している。シリコン素子は 500 μm 厚、25 μm 間隔で 1024 個が一次 元に配列している。この条件下で例えば 7 keV(鉄の K 吸収端近傍)においては検出器の 1

素子辺り約 10³ photons/pulse の X 線が得られ、数十回の積算で解析に耐える S/N 比のスペ クトルが得られている。500 µm 厚のシリコンでは 3d 遷移金属(5-10 keV)の吸収端エネル ギー近傍でほぼ 100%の検出効率を有している一方で、材料学的に極めて重要な元素である ロジウム(吸収端エネルギー:約 23 keV)、パラジウム(同:約 24 keV)、すず(同:約 29 keV)などの吸収端エネルギー域になると 20-30%と検出効率が

著しく低下する。加えて高エネルギー領域では Si(311)や Si(511)など高次の湾曲結晶を用い る必要があり、試料位置での X 線強度はさらに減少する。このため検出器素子に

ゲルマニウムを用いることにより特に高エネルギー領域でシリコンよりも高感度に検出で きることを目指す。仮に厚さ 1mm の Ge を検出器に用いれば 30 keV で 90%以上の検出効率 が見込まれ、想定している全エネルギー域(5-40 keV)で極めて高効率な検出が可能となる と期待される。

エネルギー分解能

波長分散した幅広の X 線強度を位置敏感に測定するという測定原理上、検出器の空間分 解能が劣化すると XAFS スペクトルのエネルギー分解能も悪化する。既存のシステムでは 上述のエネルギー領域内における任意の元素について、その吸収端近傍 1 keV 程度のエネ ルギー範囲のスペクトルが一度に測定可能である。このためには検出位置(検出器設置位 置)において水平方向に少なくとも 25 mm の幅が必要である。エネルギー分解能に関して は、25 μm ピッチの配列で、通常のステップスキャン方式で得られるスペクトルと同等であ る。このため 25 μm 以下の間隔で 25 mm 以上の水平方向の長さとなる素子数が必要となる。

孤立バンチの切り出し

最も重要な要素のひとつとして孤立バンチを切り出せることがある。これは次期光源の スペックに依存する。例えば PF-AR では X 線パルスは 794 kHz 周期で周回しているため、 連続する X 線パルス間の間隔は 1.26 μs である。シリコンマイクロストリップ検出器は最小 で 0.5 μs のゲートをかけることができるため 1 パルスでの切り出しが可能となっている。 ただし繰り返し時間に関しては最短で 23 μs であることから、連続してやってくる X 線パ ルスを取りこぼすという欠点がある。新規に開発する検出器では KEK-LS から得られる孤 立バンチを検出するために、その周波数に応じたゲートをかけられること、連続して得られ る孤立バンチを取りこぼすことなく検出できる繰り返し速度を有することが重要であり、 これを満たすような読み出し時間、応答速度を有することが必要となる。

KEK-LS の運転モード

放射光パルス X 線の時間構造を用いた時間分解実験には孤立バンチを有する運転モードが 必須である。シングルバンチモード、ハイブリットモードいずれでも構わないが、孤立バ ンチ部分には極力大きな電流を蓄積することが望ましい。年間運転時間のうち一定時間を このような孤立バンチのある運転モードでの運用が期待される。

Detection medium	Ge
Number of pixels or strips	< 1024
Pixel or Strip Pitch	> 25 µm
Detector thickness	1 mm
Energy range	5 – 40 keV
Efficiency @ 30 keV	>90% for the whole system

表1 目標とする位置敏感検出器の仕様

9. 建設予算

<建設予算>

1. 蓄積リング

KEK 放射光のユニットセルは,機能結合型偏向電磁石4台,進行方向勾配型偏向電磁石4台,四極電磁石16台,六極電磁石6台で構成されている.電磁石電源はすべての電磁石 に個別電源を用意し,上記と同数の電源に加えて,水平補正電磁石,垂直補正電磁石電源 がそれぞれ8台と6台ずつ装備される.その他,高速軌道フィードバック専用に応答速度 の速い補正電磁石を8台ずつ各セルに設置する.また入射用に4台のキッカー電磁石及び2 台のセプタム電磁石及びパルス電源が設置される.以上20セル分の電磁石,電源の設計, 製作と設置,アライメント作業及び配線ケーブル等の費用を合計し,電磁石関連の概算見 積額は55億円である.

高周波加速は4台の常伝導空洞(500 MHz)をクライストロンで駆動することを想定し て概算見積もりを行った.また高調波空洞も蓄積ビーム寿命を延ばし,バンチ内散乱によ るエミッタンス増大を緩和し実効エミッタンスを小さくする上で有効かつ不可欠であり, コミッショニング当初から導入すべくその経費を計上している.高周波加速系の概算見積 額は15億円である.

リング真空系については、四極電磁石のボア直径が 30 mm となることにあわせて、従来 の電子蓄積リングよりビームダクトの内径が狭くなるので、ビーム路の圧力を低く保つた めには分布型排気系が重要となる.ビームダクト内面の NEG(非蒸発ゲッター) コーティ ングおよびアンテチェンバー構造を組み合わせて有効な排気速度を確保する設計である. 電気伝導性,熱伝導性ともに優れる無酸素銅あるいは銅合金系の材料でビームダクトを製 作する方針で概算見積もりを行っている.ビーム診断系は、ビーム位置モニター(BPM)を ユニットセルに 10 台~11 台、リング全周で 201 台設置する.周波数帯域 100 Hz~200 Hz の軌道フィードバック系,横方向並びに進行方向の個別バンチフィードバック系,放射光 モニター系,バンチ電流モニター,直流電流トランス (DCCT)等を備える.ビーム制御系, ネットワーク、タイミング系及び人的安全システム,機器保護安全システム等を考慮して 概算見積もりを行った.真空系及びビーム診断,制御系の概算見積額は 35 億円である.

以上, 蓄積リングの建設予算見積もり額は合計 105 億円である.

2. 入射器(入射系)

KEK に既存の 8 GeV LINAC を入射器として利用する場合,約 200 m のビーム輸送路が 必要となる.現在建設中の PF-AR 直接入射路にほぼ匹敵する規模となり,電磁石,ビーム ダクト,ビーム診断系,安全システム等の加速器コンポーネントの費用は 10 億円と見積も られる.この他に下記の建物,設備の項にあるようにビーム輸送路の地下トンネル建設も 必要となる.100 MeV~200 MeV 級の LINAC とブースターリングを組合せた入射系を採用 することも検討している.費用はビーム輸送路の加速器コンポーネント,下記のビーム輸 送路トンネルの建設費用の合計と同等で建設可能と見積もっている.

3. ビームライン

挿入光源,ビームライン基幹部,ビームラインの一連の設備を新規に建設する場合の費 用は,エネルギー範囲や光源の種類に依存するが,1ビームライン当たり4億円~6億円と 見積もっている。ただし,挿入光源については現有のアンジュレータのうち10本程度が活 用でき,分光器やミラーチェンバーについても,振動対策を施すなどして利用できるコン ポーネントが数多くあるので,当初建設するビームライン15本程度に対して,概算見積も り額45億円を想定している.

4. 建物, 設備, 建設用地

(建物・設備)加速器と放射光実験ビームラインを収納するための蓄積リング建屋に加 えて電気設備工事,機械設備工事,外構工事,設計費が概算見積もりに含まれる.蓄積リ ング建屋はリング・実験ホールを収納するドーナツ型の建物である.加えて機械室と研究 室,居室等のスペースを備えており,延べ床面積は約23,000 m²である.LINACより蓄積 リングまでの入射引き込み部地下トンネルは,長さが約200m,延べ床面積約1000 m²を想 定している.総電気容量5MVAの電気設備工事には、つくばキャンパスに既存の特高変電 所を改造利用すること,新建屋や電源室への電気配線,実験用分電盤,通信設備,防災設 備などが含まれている,加速器と実験フロアに必要な冷却水設備,空調換気設備,給排水 設備などの機械設備工事,外周,内周道路,駐車場,リング下道路などを含む外構工事, 設計費用をトータルして建屋関連工事費の概算見積額は約180億円である.

(建設用地) KEK 放射光の蓄積リングと放射光ビームラインを収納する建物は, KEK つくばキャンパス内で既存の建物・設備が存在しないフリースペースに収まる大きさである. 地盤調査等の必要もあり建設場所は確定をしていないが, 建設用地の新たな取得は必要とせず, 費用を計上していない.

5. 加速器 R&D 経費

KEK 放射光の加速器コンポーネント製作開始する前に,各々の電磁石の試作,磁場測定, ビームダクト,ビームモニターとの空間的な配置,整合性の検証を行う計画である.以上 の R&D に必要な期間は約1年と考えている.また高周波加速系では,将来の更新に備える 意味も含めて,クライストロンに代わる高効率半導体アンプや新型 damped cavityの開発 を継続して行く計画である.上記の R&D 経費として約10億円を計上している.

以上, 蓄積リング, 入射系, 建物・設備・建設用地, 加速器 R&D 経費を含めて, 総事業経 費は約 350 億円と見積もられる.