新しい回折物理学の展開と放射光科学の推進

(財) 高輝度光科学研究センター 菊田惺志

Seishi KIKUTA: Development of Diffraction Physics and Promotion of Synchrotron Radiation Science

In the 1970's, the X-ray crystallographers have expected to use synchrotron radiation for further developing their researches. We have cooperated to construct the synchrotron radiation facilities, Photon Factory and SPring-8 from the user side. In this report I look back my activities in the user communities to realize the synchrotron radiation sources. Next, I describe some scientific achievements made using synchrotron radiation. They include the studies of X-ray dynamical diffraction, X-ray optics, X-ray surface diffraction, X-ray nuclear resonant scattering, and X-ray quantum optics.

1. はじめに

本稿は、2005年12月6日に日本結晶学会年会で行った西川賞受賞講演を骨子として、それに若干の肉付けをしたものである。私の研究生活のかなりの部分は放射光 (Synchrotron Radiation, SR) にかかわっていた。特に Photon Factory (茨城県つくば市) と SPring-8 (兵庫県西播磨) の放射光光源の実現のために利用者の立場から尽力したので、まずその経緯について述べる。結晶学会ではX線、電子線、中性子線などによるビーム実験が主要な部分を占め、光源の高性能化が研究の進展に不可欠であるので、振り返ってみて私が長期間にわたりそれに相当の時間を費やしたのは、それなりに役立ったことと思う。次に放射光科学の発展をめざして行ってきた研究を中心に述べる。初期に行った動力学的回折現象の観測などに触れたあと、それに関連してX線ビームの高品質化を図ったX線光学の研究について述べる。続いて、放射光利用研究として結晶表面の構造解析法を開拓し、X線核共鳴散乱法の基礎固めをするとともに、X線量子光学のさきがけ的研究などを行ったので、それらについて紹介する。最後に放射光科学全体の発展状況と将来展望に言及する。

なお、放射光施設の実現とその利用のような大きなプロジェクトは、いろいろな機関の多くの関係者がそれぞれの役割を果たして達成されるものであるから、回顧すればそれぞれの道筋があるはずである。ここでは私が辿った道筋であることをお断りしておきたい。

2. 放射光光源とのかかわり

X線源の輝度が年代的に増加していく様子を表したのが図1である。輝度の増加はもっぱら放射光によっており、最初は偏向電磁石光源が利用された。さらに挿入光源

図1 X線源輝度の年代的な向上。(Yearly increase of the brilliance of X-ray sources.)

の導入により高輝度化が図られている。近い将来にはX線自由電子レーザーが利用可能になる見通しである。これまでの放射光光源の高輝度化は光源用円形加速器の発展によって段階的に分類することができる。第1世代は高エネルギー物理用の既存のリングで、放射光用に寄生的に使用された。第2世代は光源専用の蓄積リングで、偏向電磁

石光源が主体である。X線用のリングについてみれば、Photon Factoryは第2世代であるが、その後のリングの高度化により性能的に第3世代に近づいている。第3世代は低エミッタンスの大型蓄積リングで、アンジュレーター光源が主体である。これにはヨーロッパのESRF、米国のAPSとともにSPring-8が入る。さらに最近、スイスのSLSのようにミニギャップ・アンジュレーターを利用する低エミッタンスの中型蓄積リングが第3世代に参入しつつある。

2.1 PFの実現に向けて

電機関係の会社から戻り1962年から東京大学教養学部物理教室の高良和武先生の研究室で、シリコンのような完全に近い単結晶におけるX線の動力的回折現象の研究を始めた。二結晶あるいは三結晶配置の回折計を用いた実験では、X線強度の弱さが研究遂行上のネックであった。当時、X線結晶学の分野は手法の面では、その限られたX線強度の範囲ではすでにかなり成熟期に達しているように思われた。このような状況の中でX線利用の研究を将来、飛躍的に発展させるには超強力なX線源の実現が不可欠であると痛感された。高良研究室は1964年に工学部物理工学科に移り、X線光学の研究が進められた。当時、原子核研究所の電子シンクロトロン(1.3 GeV)から得られる放射光を寄生的に利用し、世界に先駆けて極紫外線分光の研究が進められていた。それに刺激されて、もっと電子エネルギーの高い円形加速器からの放射光を利用

することにより強力なX線源ができるのではないかと考え、適当な規模の加速器を想定して放射光強度を試算すると、X線管と比べて特性線のところでも管電流にして数100Aに相当するほど超強力であることが判明した。¹⁾ 高良先生もその数値に驚嘆された。1971年の物理学会において「超強力X線束の発生とその応用」という主題のシンポジウムが開かれ、線源についていろいろな可能性が議論されたが、そこで放射光の利用を提案したところ、大方の賛同が得られた。これを契機に、超強力なX線源として放射光用リングを建設しようという気運が高まっていった。同じ年に科研費(総合研究)「超高出力X線発生装置建設計画」が高良先生を代表者として組織され、回折結晶学の先生方に富家雄先生をはじめ加速器関係の方が加わりこの議論が深められた。²⁾ 私はその年に生産技術研究所に移り8年間在籍した後、工学部物理工学科に戻った。生産研で研究室を立ち上げ、その前から継続中であったラボ軟X線によるホログラフィの実験で像再生に成功した。さらに核研の電子シンクロトロンから得られる放射光を初めて利用し同様の実験を行い、放射光の強度が格段に強いことを実感した。また真空工学の辻泰先生のご指導のもとで真空内での結晶表面のX線回折の研究も始めた。

放射光X線の利用を提案したころは、まだ世界的にSRX線に対する関心はほとんどなく、専用リングが実現すればSRX線利用の一番手になるはずであった。しかし1970年代後半には米国で既存の高エネルギー物理用リン

(a)

(b)

図2 (a) KEK と (b) SPring-8 における放射光用加速器の配置図. (Maps of (a) KEK and (b) SPring-8.)

グを寄生的に利用し始め、西独、仏もそれに続いた。この外国の情勢に影響されてリング建設計画は具体化した。1973年にフォトンファクトリー世話人会が発足し、1975年にはフォトンファクトリー懇談会が設立された。私もこれらの活動に参加した。1978年に放射光実験施設の建設が始められ、懇談会の作業グループが建設に協力した。1982年にPF (2.5 GeV) (図2a) がX線領域の専用リングとして完成し、世界で専用のX線リングをもつ先行グループの仲間入りをした。初代の施設長を高良先生が務められ、そのあと佐々木泰三先生、千川純一先生と続き、PFの基礎が築かれた。私たちのグループはX線光学、表面構造解析などで従来まったく不可能であった研究を行うことができた。

2.2 AR, MRの利用

一方、高エネ研では高エネルギー物理のトリスタン計画が進んでいて、周長3 kmの巨大な主リングMR (30 GeV) と入射蓄積リングAR (6.5 GeV) が建設されていた(図2a)。1987年にそのARが放射光用に寄生的に利用できるようになった。1990年に真空封止型アンジュレーターが初めてARに導入され、X線領域での挿入光源利用の幕開けとなった。このアンジュレーターは ^{57}Fe 同位体の核共鳴エネルギー14.4 keVに最適化されており、私たちが長年準備してきた核共鳴散乱の研究を科研費(特別推進研究)の支援を受けて、一挙に進展させることができた。なおPFは建設フェーズから本格的な利用フェーズに移り、フォトンファクトリー懇談会の役割が変わってきたので、1990年に私が改組のまとめ役として施設者側と利用者側の交流が活発になるように運営体制を変更した。さらに改称したPF懇談会の会長として懇談会の活性化に努めた。ちょうどそのころ、高エネルギー物理のトリスタン計画が終了した後に、MRを放射光光源に転用しようという計画がもち上がり、1991年にMR放射光計画推進室(安藤正海室長)が発足した。このリングからの放射光は第3世代リングを超える特性をもつということで、その実現に大きな期待が寄せられた。この計画の精緻化をするため1992年にPF懇談会に超高輝度放射光計画検討委員会が設けられ、私が委員長を務めた。その後MRは高エネルギー物理のBファクトリー計画に使われることになり、不本意ながら、放射光への転用計画は消滅した。³⁾ その代わりBファクトリーの工事が始まる前の1995年に短期間(3カ月の準備期間と3カ月の実験期間)であるが、MRの放射光利用の機会が作られた。10種類近い実験が実施され、われわれもX線領域で光子相関の観測に初めて成功した。

2.3 放射光科学コミュニティの形成

放射光利用研究が発展し、放射光科学と呼ばれる分野が確立してきたので、1988年に日本放射光学会が設立された。当時日本全国で共同利用の放射光施設の建設計画が多数提案されていたので、放射光学会将来計画特別委員会で

総合的に検討された。私は委員長を務め、アカデミックな立場からSPRing-8とMRの大型施設計画はともに独自性と相補性をもつので両者とも推進すべきものと提言し、中型施設計画については7計画を評価して、調査報告書をまとめた。^{4),5)} 1993年に放射光学会の会長を務めたとき、全国の放射光施設で個別に行われていたシンポジウムの研究成果の発表会を学会の年会とまとめて、一堂に会する合同シンポジウムとするのを企画した。またアジア地域での放射光研究交流をめざして第1回放射光アジアフォーラムを催した。いずれも好評で、以後これらの行事は定着していった。

2.4 SPRing-8の実現に向けて

PFにおける放射光利用研究の発展によりもっと高輝度の光源を望む声が大きくなり、挿入光源を主体とした第3世代リングの実現をめざす動きが出てきた。1983年に6 GeV放射光施設を関西に建設しようという計画が関西SOR計画世話人会から提案された。これには三井利夫先生がまとめ役となり、その後角戸正夫先生が会長として尽力された。私たちは1988年に建設地を特定しないサイト・インデペンデントの立場で次世代大型X線光源研究会をオールジャパンの体制のもとに発足させた。そのときの世話人の名簿を表1に示す。⁶⁾ 塩谷巨弘、下村 理両氏とはその後も長く、ともに活動した。運営ワーキンググループでは施設完成後の共同利用体制について検討され、利用研究関係では10の研究分野のサブグループが立ち上げられた。同年に原研と理研の共同チームが結成され、上坪宏道先生がリーダーを務められた。研究会は科技厅、共同チームと頻繁に会合をもち、目標達成に努力した。SPRing-8の光源の性能は研究会において検討されたが、その際まとめられた各研究分野別サブグループが必要とした放射光のエネルギーと光子数を図3に示す。これをもとにして蓄積リングのエネルギーが当初案の6 GeVから8 GeVに変更された。1989年に科学技術庁によるSPRing-8の建設計画が軌道に乗り、原研と理研が共同で建設をするようになった。⁷⁾ 1990年にSPRing-8完成後にその運営を行う財団法人高輝度光科学研究センターが設立された。1990年から4年間、研究会のサブグループが共同チーム利用系の研究開発プログラムに参加し、放射光利用のための機器開発を行った。1993年にはSPRing-8計画が準備フェーズから建設フェーズに移行したので、研究会を発展的に解散し、SPRing-8利用者懇談会を発足させた。会員には広報誌「光彩」が配布され、1996年頃には会員は千名を超えた。研究課題別サブグループは35チームに達し、各サブグループが研究目標を掲げてそれを実現するためのビームラインと実験ステーションの構想を練ったものが、SPRing-8 Project—Scientific Programとしてまとめられた。⁸⁾ 最初に設置が予定されていた10本の共用ビームラインに対してサブグループから実験ステーション建設の提案が行われ、

表1 次世代大型X線光源研究会の1988年度世話人名簿. (List of representative members of the society for next generation large-scale X-ray source.)

顧 問		高良 和武 佐々木泰三 田中 治朗	東京大名誉教授 東京大名誉教授 高エネ研名誉教授
世話人代表	庶務・会計	菊田 惺志	東京大・工
幹 事	運営WG(主) 庶務・会計 庶務・会計 利用WG(副) 利用WG(主) 運営WG(副) 広 報	植木 龍夫 大野 英雄 塩谷 亘弘 下村 理 飛田 守孝 原 雅弘 藤井 保彦 横溝 英明	大阪大・基礎工 原研・材料設計研(共同チーム) 理研・金属物理(共同チーム) 無機材研・超高压 岡山大・工 理研・放射光(共同チーム) 筑波大・物質工 原研・放射光(共同チーム)
運 営 W G		植木 龍夫 大野 英雄 菊田 惺志 坂田 誠 塩谷 亘弘 下村 理 近浦 吉則 入戸野 修 飛田 守孝 原 雅弘 藤井 保彦 本堂 武夫 升島 努 松井 純爾 横溝 英明 早稲田嘉夫	大阪大・基礎工 原研・材料設計研(共同チーム) 東京大・工 名古屋大・工 理研・金属物理(共同チーム) 無機材研・超高压 九州工大・工 東工大・工 岡山大・工 理研・放射光(共同チーム) 筑波大・物質工 北海道大・工 広島大・医 日電・研究開発G 原研・放射光(共同チーム) 東北大・選鉱研
利 用 W G	物性・構造 分 析 EXAFS 生物構造(結晶) 生物構造(非結晶) 医学応用 原子・分子 極端条件 トポグラフ 軟X線アンジュレーター	坂田 誠 坂井 信彦 大嶋 健一 高橋 敏男 泉 弘一 合志 陽一 中井 泉 大柳 宏之 田中 信夫 猪子 洋二 竹中 栄一 宇山 親雄 栗屋 容子 辻 和彦 本堂 武夫 石黒 栄治	名古屋大・工・応物 理研・磁性研 筑波大・物理工学 東京大・物性研 東京大・工・物工 東京大・工・工化 筑波大・化学 電総研 東工大・理・生命理学 大阪大・基礎工・生物 防衛医大・放射線部 循環器センター・放射線 理研・原子物理 慶応大・理工・物理 北海道大・工・応物 大阪市大・工・応物

ビームライン検討委員会において1993年度に4本、1994年度に6本の研究分野が決定された。これらの実験ステーションの建設には懇談会のサブグループの建設チームが共同チームに協力した。1997年にSPring-8(図2b)は研究者の熱望に応じて、科技庁、原研・理研が主体となり、兵庫県、関西を中心とした財界・産業界の支援のもとで共用開始を迎えることができた。ESRF(6 GeV)、APS(7 GeV)とともに第3世代大型リングの3極を形成することとなった。1998年3月には財団と懇談会が共催で第1回のSPring-8シンポジウムを開いた。

共用開始後は原研・理研の委託を受けた財団がSPring-8の共用業務、運転・維持管理・高度化などを行うことに

なり放射光研究所の所長を上坪先生が務められた。私は1998年に東京大学を定年退官し、財団に移り、その副所長を6年間務めた。加速器は高度化により、低エミッタンス運転とともに、最近トップアップ運転を実現している。また多種の仕様の挿入光源、ビームラインと実験ステーションの利用により続々と顕著な研究成果が得られており、それらを目の当たりにできたのは私にとってとても幸せであった。現在稼動中のビームラインは48本で、まだ14本が残っているおり、施設の有効利用のためにその建設が待たれる。

図3 次世代大型X線光源研究会において検討された、各研究分野で必要とされる放射光のエネルギーと光子数.
(Energy and photon number of synchrotron radiation necessary for various research fields surveyed by the society for next generation large-scale X-ray source.)

3. 放射光科学の発展をめざして

3.1 放射光利用以前の研究

Photon Factoryの放射光が利用できるようになる以前、1977年に結晶学会学術賞を受賞した。そのころまでの研究は、結晶学会誌に受賞にかかわって記載した報告に含まれているので、概略を述べる。

① X線平面波の作製とその応用

1960年代から動力的回折の理論的、実験的研究が盛んであった。普通の実験条件では入射線は球面波であるが、二結晶あるいは三結晶配置の回折計を用いて平面波による動力的回折現象の観測を行った。小さい視斜角の非対称反射を(+, -)あるいは(+, -, +)平行配置で繰り返すことによる擬似平面波の作製法を考案し(図4a)、発散角0.1秒～0.01秒のビームを作製した。^{10),11)} それを用いてシリコン結晶の固有な回折強度曲線の精密測定を行い、その半値幅から結晶構造因子を決定した。¹²⁾ また薄い結晶からのロッキングカーブは振動的になることが古くから知られていたが、それをラウエースで初めて観測した。¹³⁾ 平面波トポグラフィにも応用し、薄いくさび形結

図4 多重結晶配置のX線光学系。(X-ray optical system of multi-crystal arrangement.) (a) 平面波化:(+, -, +) 平行配置 (b) 超単色化:(+, +, -, -) 配置 (c) 超単色化:(+, -, -, +) 配置.

図5 X線定在波の形成による結晶からの光電子放射の収量変化。(Anomalous change of electron emission from a single crystal under the X-ray diffraction process.) (a) 真空内X線二結晶回折計 (b) $\text{CuK}\alpha$ 線のSi220面での回折過程で放射されるSi光電子の収量変化。回折強度曲線も図示している。

晶からのペンデル縞を初めて観察し、また極微小な格子歪みの検出を試みた。

②X線定在波形成による光電子の収量変化の観測

動力学的回折過程で生ずるX線定在波と結晶内原子の相互作用により光電子やオージェ電子などの二次放射の収量がブラッグ角近傍で変化するのを初めて観測した(図5)。¹⁴⁾ 非対称反射の場合には、高角入射のほうが低角入射より収量が際立って大きくなった。これらの観測は動力学的回折理論とよく一致した。^{15),16)}

③中性子線の動力学的回折現象の研究

中性子線でも、日本原子力研究所の中性子原子炉を用いて動力学的回折現象の研究を行った。中性子線では厚い結晶を用い、波の扇(wave fan)あるいはビームの路を効果的に利用できる。Wave fanの中心部分を取り出して擬似平面波を得て、それによりブラッグケースのロッキングカーブがシルクハット形になるのを初めて観測した。またwave fanの角度拡大作用($\sim 10^5$ 倍)を利用して中性子線の極微小偏向角を測定した。¹⁷⁾ さらにwave fanの中から2つの路を選び出すタイプの、2ブロックからなる干渉計を考案し、作製した。¹⁸⁾

3.2 X線ビームの高品質化によるX線光学への寄与

Si単結晶はその回折幅が放射光の発散角に近く、放射

図6 左右円偏光X線の作製。(Production of circularly polarized X-rays by X-ray quarter wave plate using Bragg case diffraction.)

光用のX線光学素子を作るのに適しており、それによりX線光学系が構成される。X線ビームの高品質化のうち、平面波化についてはすでに述べた。

①超単色化

エネルギー幅 ΔE を狭くするには、エネルギー分散型の(+, +)配置が基本で、高次の非対称反射を組み合わせるとエネルギー幅をより狭くできる。図4bの(+, +, -, -)配置は(+, +)に(-, -)を組み合わせ、入射方向と反射方向を一致させてある。これにより $\Delta E \sim 1$ meVのビームが得られる。¹⁹⁾ エネルギー幅の下限は実際上Si単結晶の極微小格子歪みによる制約を受けるが、ビーム幅を狭く限ることで、図4bの(+, -, -, +)配置で $\Delta E \sim 0.1$ meVが得られる。²⁰⁾ さらにエネルギー幅を極端に狭くするには、後述の核共鳴散乱が用いられる。核共鳴準位の自然幅に応じて、 μeV からneVレベルのエネルギー幅の超単色ビームが得られる。最近、完全性の高い $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶を育成し、ネール温度(75℃)近くまで加熱することにより超微細構造に基づくエネルギー分裂をなくして、333反射で $\Delta E = 1.5 \times 10^{-8}$ eVの超単色のX線ビームを得ている。²¹⁾

②円偏光の生成

薄い結晶板を用い、ブラッグケースの回折条件のもとで透過波に注目すれば、全反射角度領域の両側のブラッグ角からずれた角度位置で σ 偏光と π 偏光の透過波の波数ベクトルに差がある。その移相量が $\pm \pi/2$ のとき左右円偏光が得られる。実際には散乱面から斜め45°に傾いた方向の電場ベクトルをもつ直線偏光のX線を入射する。このとき σ 成分と π 成分は可干渉であるので、円偏光が生成する(図6)。さらに結晶を回転してその2つの角度位置の間を行き来させると、左右円偏光のスイッチングができる。^{22),23)}

3.3 結晶表面の構造解析法の開拓

X線表面回折法としてはX線を表面へ微小角で入射させて、X線の侵入深さを浅くする手法が先行していた。こ

図7 広角入射・広角反射のX線表面回折法 (a) 波長を変えながら逆格子ロッドによって回折強度を測定 (b) 決定されたSi(111) $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag構造. (The Si(111) $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag structure determined by X-ray surface diffraction under the high angle incidence.)

の場合、散乱ベクトルは表面にほぼ平行になり、トランケーション・ロッドの根元の部分が測定される。したがって結晶構造を表面に平行な面に投影した二次元的な構造が得られる。これに対して、広角の入射条件で波長を変えながらトランケーション・ロッドに沿って強度分布を測定する方法がとられ、表面構造が深さ方向も含めて三次元的に決められた(図7)。この場合、表面層では表面に垂直な方向に対して周期性をもたないためフーリエ合成は使えず、いくつかの構造モデルを仮定して回折強度を計算し、プロファイルのフィッティングから構造パラメータを求める。²⁴⁾ Si(111) 表面にAgを1原子層吸着させたときにできる $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 構造は、いろいろなモデルが提示されており、未解決であった。STMによる観察が論争にさらに火をつけていたが、この方法により図7のように決着した。表面最上層にあるAg原子は三角形に配列し、その三角形が蜂の巣状に連結した構造をとる。^{25), 26)}

3.4 X線核共鳴散乱研究の基礎固め

低い核励起準位をもつメスバウアー同位体とその遷移エネルギーをもつX線を入射すれば、核準位の自然幅ぐらいのごく狭いエネルギー範囲で核共鳴散乱を起こす。核共鳴散乱振幅の大きさはトムソン散乱と同程度の場合もある。この核共鳴散乱を利用して、従来のメスバウアー γ 線分光の枠を越えた各種の手法が開発された。

①核共鳴ブラッグ散乱

核共鳴エネルギーをもつX線を共鳴核が三次元的に規則正しく配列した完全結晶に回折条件を満たして入射すると、核共鳴ブラッグ散乱が起きる。その場合、動力学的回折によって結晶中に生ずる波動場が多数の共鳴核と集団的に相互作用をする結果、個々の励起核の形成は抑制されて、回折への寄与が大きくなる。⁵⁷Fe同位体で富化したヘマタイト結晶 α -⁵⁷Fe₂O₃(777)面からの核共鳴ブラッグ散乱の時間スペクトルを図8に示す。²⁷⁾ 単バンチモードでの放射光パルスが入射した後、トムソン散乱は瞬時

図8 ヘマタイト結晶 α -⁵⁷Fe₂O₃(777)面からの核共鳴ブラッグ散乱の時間スペクトル. (Time spectrum of nuclear Bragg scattering from ⁵⁷Fe₂O₃(777).) 付図は実験配置.

に起きるのに対して、核共鳴散乱はナノ秒オーダーで減衰しながら続く。孤立した共鳴核では励起準位の自然幅に対応する約100 nsの半減寿命で減衰するが、いまの場合、多数の共鳴核との集団的な相互作用のためにその減衰はスピードアップされる。また、ディケイ・プロファイルには、超微細構造をもつ準位からの許容な遷移がすべてコヒーレントに励起されるので、それらの間の干渉によって量子ビートが生ずる。いまの場合は偏光状態と印加磁場の向きにより超微細構造に基づく6本の遷移のうち4本が許容になっている。²⁸⁾ 一方、この核共鳴ブラッグ散乱線が長い可干渉距離をもつことを利用して、波面分割型のX線干渉計を実現させた。²⁹⁾

②核共鳴前方散乱

前方散乱では散乱体の結晶性を問わずに位相が揃うので、ブラッグ散乱と同じようにディケイ・プロファイルに量子ビートがみられる。従来のメスバウアー γ 線吸収スペクトルがエネルギー軸で測定されるのに対して、放射光を用いた核共鳴前方散乱は、核共鳴ブラッグ散乱の場合と同じように時間軸で測定される。⁵⁷FeBO₃結晶に高周波磁場やパルス磁場を印加したときの核共鳴前方散乱の動的過程が解析された。図9のように高周波磁場が印加すると、磁気弾性波が生じ結晶中の共鳴核の位置が周期的に変位する。X線が入射した時刻に共鳴核が同位相で散乱していたものが、その後位相のずれのために散乱強度が減るが、初

めの状態に戻った時刻で強度の増大が観測された。これは一種のエコタイプ現象である。³⁰⁾ 一方、時間遅れを伴う核共鳴散乱の干渉現象が、X線干渉計に共鳴核を含む位相物体を挿入しドップラー振動させるなどして調べら

れた。³¹⁾

③核共鳴非弾性散乱

メスbauer- γ 線よりもエネルギー幅の広い放射光を利用するので、従来のメスbauer- γ 線分光では難しかった固体中のフォノンを伴う核共鳴散乱現象が観測された。入射X線を数meVに単色化し、核共鳴エネルギーを中心に走査すれば、散乱体中のフォノンを生成あるいは吸収するエネルギー分だけ入射エネルギーが増減したところで核共鳴散乱が生ずる。 ^{57}Fe 箔を用いた観測によりフォノンスペクトルの新しい測定法が確立され、³²⁾ さらにAl, Cu金属中における希薄Fe原子の局所的振動状態が解析された。³³⁾ また同様の手法で溶液系への最初の応用が塩酸溶液中の鉄イオンについて行われた。溶液中での ^{57}Fe の反跳エネルギーを補った核共鳴励起が観測され、ブラウン運動によるピークプロファイルの広がりから拡散定数が求められた。³⁴⁾

3.5 X線量子光学研究のさきがけ

①2光子相関

可視光やマイクロ波で観測された2光子がかかわる強度の干渉であるハンプリー・ブラウン・ツイスの実験をMRからの放射光を用いてX線領域で試みた(図10)。放射光はSi高分解能モノクロメーターによって $\Delta E = 6 \text{ meV}$ に時間的コヒーレンスを高くしたうえで、スリット幅を $20 \mu\text{m}$ まで狭くして空間的コヒーレンスの高い状態でビームスプリッターのSi結晶に入射した。透過方向と回折方向に進む2光子のコインシデンスのレートを測定すると、光子のバンチング効果によってランダムコインシデンスに比べて0.6%増加しているのが初めて観測された。^{35),36)} これは光源の特性評価にも役立つ。

図9 高周波磁場変調下の $^{57}\text{FeBO}_3$ からの核共鳴前方散乱の時間スペクトル (a) 10Oeの定常磁場を印加 (b) 15Oe, 2.384 MHzの高周波磁場をさらに印加。(Time spectra of nuclear forward scattering from a $^{57}\text{FeBO}_3$ thin crystal. (a) Only the static magnetic field is applied and (b) the rf magnetic field is also applied.) 付図は実験配置。

図10 SRX線の2光子相関、二次のコヒーレンス関数 $\gamma^{(2)}$ のスリット幅による変化を測定。(Two-photon correlation of X-rays from synchrotron radiation source analogous to Hanbury-Brown and Twiss experiment.) 付図は実験配置。

図11 X線パラメトリック変換(0.65 ÅのX線, ダイヤモンド結晶, 400反射)結晶の回転角の関数として測定されたパラメトリック変換のコインシデンスレートと回折強度. (Spontaneous X-ray parametric conversion in a diamond crystal.) 付図は実験配置.

②2光子生成

光学のパラメトリック変換では, 1つの光子が非線形感受率をもつ媒質に入射し吸収されて, エネルギー保存則を満たす2つの光子が自然放出される. X線の場合にはそれと異なって, 逆格子ベクトルを含めた形で位相整合条件を満たさせる. ダイヤモンド結晶でブラッグ角から高角側へわずかに回転させて, 2方向へ放射される2光子がコインシデンス法により検出された(図11).³⁷⁾ これはX線非線形光学研究への端緒の1つである.

4. 放射光科学の発展と将来

PFの供用開始からすでに24年も経過し, SPring-8の供用開始からでも8年を越えており, その間わが国のSRX線を利用する研究は質・量ともに飛躍的に発展している. 生命科学, 物質科学, 地球科学, 環境科学などの基礎科学から, バイオテクノロジー, ナノテクノロジーなどの応用研究まで広範な科学・技術の分野でめざましい貢献をしてきた. 産業界からの利用が着実に拡大しているのも, まことに喜ばしい. 初期には放射光技術の専門家やそれに近い研究者の利用が多かったが, 施設側の努力により, それにまったく慣れていない諸分野の専門家が利用するようになっている. ラボX線と同じように放射光のツール化が進んでいると言える.

解析手法や技術面での進歩で注目すべき点を挙げると, (1) まず結晶構造解析では三次元の周期性をもつ結晶の解析から二次元の周期性をもつ結晶表面・界面の解析ができるようになり, 最近では量子細線のような一次元周期のものも解析の対象になっている. さらに孤立した(0

次元の)分子の解析も視野に入ってきた. (2) 構造解析はもともと原子配置を決めるのが主目的で, その高精度化が図られてきた. その一方で, 結晶内の電子密度分布がリートベルト法/最大エントロピー法により正確に得られるようになり, またATS散乱により軌道秩序が観測されるようになり, 物性の解析に役立っているのは特筆すべきことである. (3) タンパク質の結晶構造解析の最近の進展は私の予想を超えている. ハイスループットの測定システムによる解析が大量に行われるとともに, 難解な巨大分子複合体の解析も進められている. (4) 物質の構造評価のためのイメージングでは, 回折, 屈折, 吸収や位相コントラストによるイメージング, X線マイクロトモグラフィ, 結像型と走査型のX線顕微鏡, コヒーレントX線散乱顕微鏡などの多種多様な手法が展開されている. (5) 別の観点からみれば, 放射光とコンピュータの組み合わせが威力を発揮している. 放射光を用いて取得される高精度のデータがコンピュータによるパラメータ・フィッティングなどに活かされて, 例えばリートベルト法, 最大エントロピー法, 逆モンテカルロ法, オーバーサンプリング法の解析で従来不可能であったような新しい解析結果が得られている. (6) 放射光の効果的な利用には, 高性能の検出器の開発の果たしている役割も大きい. 特に二次元検出器のイメージングプレートやCCDの出現はインパクトを与えており, ラボX線の守備範囲も広げている.

放射光X線源についてみれば, 今後リニアック形加速器の発展が期待されている. X線自由電子レーザーでは, 長尺のアンジュレーターの入り口付近で放射された光が種として働き, 電子集団が次第にマイクロバッチ化し, 増幅した自然放射が生ずる. 理化学研究所がSPring-8のサイトにSPring-8 Compact SASE Source (SCSS)の建設することとなった. これは米国とドイツの計画(LCLSとEXFEL)の半分程度のスケールのコンパクトタイプで同じような性能をもつ. それから得られる放射光には従来の放射光にない高ピーク輝度, 極短パルス, 高コヒーレンス(高光子縮重度)の特長がある. これにより反応過程, 非平衡系・過渡現象などを追跡する極短時間分解実験や, 単分子観察をめざすコヒーレントX線散乱顕微鏡, X線量子光学などのコヒーレンスのかかわる実験が発展し, さらに強光子場科学など未踏の研究分野が開拓されると期待されている. これまでのリング形加速器の放射光光源は高平均輝度の特長によりいわば百貨店的に広範な研究課題に利用されるのに対して, この光源は専門店的に特化した研究課題に利用されることになり, 両者は相補的な役割をもつ. 一方, すでに24年ぐらい共用されているPFリングについては後継加速器としてエネルギー回収型リニアックの建設が計画されている. この方式では, 電子ビームがRFエネルギーにより加速されるとともに, RFが逆位相のときに減速してRFエネルギーとして回収し, それが周回部を通

って戻ってくる電子の加速に利用される。これから得られる放射光は高平均輝度、極短パルスの特長をもち、コヒーレンスもかなり高い。したがって百貨店的な利用とともに極短時間分解実験などが可能で専門店的な利用もできる。

放射光科学は上述のようにまさに成熟期に入っており、今後既存の放射光施設を利用して多くの研究分野の発展に一層貢献するであろう。さらにX線自由電子レーザーなどの実現によって未踏の研究領域が開拓されるのが期待される。

謝 辞

最後になりますが、40数年にわたる長い研究生生活でお世話になった多くの方々から感謝いたします。特に高良和武先生にはX線動力学的回折とそれによるX線光学のご教示をいただき、さらに放射光科学の推進についてご指導をいただきました。辻 泰先生には超高真空内でのX線回折実験をするきっかけを与えていただきました。各種の研究課題は、東大・教養では中野 滋、高野幸男、安中正一、杉田吉充、生産研では寺田啓子、青木貞雄、工学部では高橋敏男、石川哲也、泉 弘一、平野馨一、依田芳卓などの諸氏との共同で行われたものです。当時院生の鈴木カルロス健一、秋本晃一、中谷信一郎、後藤俊治、張 小威、百生 敦、長谷川祐司、工藤喜弘、斎藤 彰、三井隆也、小山一郎、矢橋牧名、今井康彦などの諸氏は独自の研究を展開しました。星埴禎男先生をはじめ、武居文彦、藤井保彦、雨宮慶幸、瀬戸 誠の諸氏にも研究面でのお世話になりました。放射光利用の推進に関しては、KEKでは佐々木泰三、千川純一、安藤正海、松下 正、SPRING-8関係では上坪宏道、塩谷亘弘、植木龍夫、下村 理をはじめ多くの先輩、同僚の諸氏とのお付き合いは、かけがえのないものでした。これらの皆様のお陰で放射光とのめぐりあわせを有意義に展開させることができました。

文 献

- 1) 菊田惺志：日本結晶学会誌 **18**, 65 (1976).
- 2) 1971年度科研費(総合研究B)「超高出力のX線発生装置に関する研究」報告書。
- 3) 安藤正海、菊田惺志：日本物理学会誌 **50**, 15 (1995).
- 4) 日本放射光学会将来計画特別委員会：次世代大型放射光計画に関する調査報告書、放射光 **3**, 205 (1990).
- 5) 日本放射光学会将来計画特別委員会：中型放射光施設計画に関する調査報告書、放射光 **4**, 199 (1991).
- 6) 財団法人高輝度光科学研究センター10年史 高輝度光科学研究センター編集・発行、2001.
- 7) 上坪宏道、菊田惺志：日本物理学会誌 **44**, 787 (1989).
- 8) 菊田惺志：放射光 **9**, 379 (1996).
- 9) 菊田惺志：日本結晶学会誌 **21**, 327 (1979).
- 10) S. Kikuta and K. Kohra: *Phys. Soc. Japan* **29**, 1322 (1970).
- 11) S. Kikuta: *Phys. Soc. Japan* **30**, 222 (1971).
- 12) S. Kikuta: *Phys. Stat. Sol. (b)* **45**, 333 (1971).
- 13) S. Kikuta and K. Kohra: *J. Phys. Soc. Japan* **25**, 924 (1968).
- 14) S. Kikuta, T. Takahashi and Y. Tujii: *Phys. Letter* **50A**, 453 (1975).
- 15) 高橋敏男、菊田惺志：応用物理 **47**, 853 (1978).
- 16) T. Takahashi and S. Kikuta: *J. Phys. Soc. Japan* **46**, 1608 (1979).
- 17) S. Kikuta, T. Ishikawa, K. Kohra and S. Hoshino: *J. Phys. Soc. Japan* **39**, 471 (1975).
- 18) S. Kikuta, T. Takahashi, K. Nakayama, Y. Fujii and S. Hoshino: *J. Phys. Soc. Japan* **45**, 715 (1978).
- 19) T. Ishikawa, Y. Yoda, K. Izumi, C. K. Suzuki, X. W. Zhang, M. Ando and S. Kikuta: *Rev. Sci. Instrum.* **63**, 1015 (1992).
- 20) M. Yabashi, K. Tamsaku, S. Kikuta and T. Ishikawa: *Rev. Sci. Instrum.* **72**, 4080 (2001).
- 21) 三井隆也、武居文彦、北尾真司、増田 亮、瀬戸 誠、依田芳卓、張 小威、菊田惺志：日本物理学会講演、2005年9月、同志社大。
- 22) 平野馨一、石川哲也、菊田惺志：放射光 **4**, 357 (1991).
- 23) K. Hirano, T. Ishikawa and S. Kikuta: *Rev. Sci. Instrum.* **66**, 1604 (1995).
- 24) 高橋敏男、菊田惺志：応用物理 **55**, 978 (1986).
- 25) T. Takahashi, S. Nakatani, T. Ishikawa and S. Kikuta: *Surf. Sci.* **191**, L825 (1987).
- 26) T. Takahashi, S. Nakatani, N. Okamoto, T. Ishikawa and S. Kikuta: *Jpn. J. Appl. Phys.* **27**, L753 (1988).
- 27) S. Kikuta: in *Resonant Anomalous X-ray Scattering* (ed. G. Materlik et al.) Elsevier Science, p.635, 1994.
- 28) 菊田惺志：日本物理学会誌 **50**, 630 (1995).
- 29) K. Izumi, T. Mitsui, M. Seto, Y. Yoda, T. Ishikawa, X. W. Zhang, M. Ando and S. Kikuta: *Jpn. J. Appl. Phys.* **34**, 5862 (1995).
- 30) T. Mitsui, T. Shimizu, Y. Imai, Y. Yoda, X. W. Zhang, H. Takei, T. Harami and S. Kikuta: *Jpn. J. Appl. Phys.* **36**, 6525 (1997).
- 31) Y. Hasegawa and S. Kikuta: *Hyperfine Interactions* **123/124**, 721 (1999).
- 32) M. Seto, Y. Yoda, S. Kikuta, X. W. Zhang and M. Ando: *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3828 (1995).
- 33) M. Seto, Y. Kobayashi, S. Kitao, R. Haruki, T. Mitsui, Y. Yoda, S. Nasu and S. Kikuta: *Phys. Rev.* **B61**, 11420 (2000).
- 34) X. W. Zhang, Y. Yoda, M. Seto, Yu. Maeda, M. Ando and S. Kikuta: *Jpn. J. Appl. Phys.* **34**, L330 (1995).
- 35) Y. Kunimune, Y. Yoda, K. Izumi, M. Yabashi, X. W. Zhang, T. Harami, M. Ando and S. Kikuta: *J. Synchrotron Rad.* **4**, 199 (1997).
- 36) 菊田惺志、国宗依信、依田芳卓、泉 弘一、小山一郎、矢橋牧名、張 小威、安藤正海、原見太幹：放射光 **10**, 218 (1997).
- 37) Y. Yoda, T. Suzuki, X. W. Zhang, K. Hirano and S. Kikuta: *J. Synchrotron Rad.* **5**, 980 (1998).

プロフィール

菊田惺志 Seishi KIKUTA
財団法人高輝度光科学研究センター
Japan Synchrotron Radiation Research Institute
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1
1-1-1 Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5198, Japan
e-mail: kikuta@spring8.or.jp
最終学歴：東京大学理学部物理学科
専門分野：X線物理
趣味：草木の育成と観賞