

第4回X線自由電子

世界が注目する日本の技術

コンパクトX線レーザー

第4回X線自由電子レーザーシンポジウム 世界が注目する日本の技術コンパクトX線レーザー 要旨集

2008年12月12日(金) 10:00~17:20

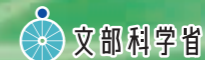
東京国際交流館 プラザ平成
国際交流会議場

〒135-8630 東京都江東区青海2-79

主催◎文部科学省 (独)理化学研究所 (財)高輝度光科学研究センター
後援◎兵庫県 日本物理学会 日本放射光学会 レーザー学会 日本加速器学会

<http://www.kuba.co.jp/XFEL04/>

要旨集



SPring-8



[お問い合わせ先・事務局]

株式会社クバプロ

〒102-0072

東京都千代田区飯田橋3-11-15 UEDAビル6F

TEL 03-3238-1689

FAX 03-3238-1837

e-mail symposium@kuba.jp

目次

第1部 X線自由電子レーザー計画について

X線自由電子レーザー (XFEL) とは	6
----------------------	---

第2部 日本のX線自由電子レーザー開発

国家プロジェクト X線自由電子レーザーとは	12
—世界最高レベルの機器と施設の開発とは—	
熊谷 教孝 (X線自由電子レーザー計画合同推進本部 副本部長 加速器建設グループディレクター)	
大塚 孝 (同加速器建設グループ 建設チーム)	
我が国産業界の国産技術が支えるX線自由電子レーザー	14
—その新たな可能性—	
新竹 積 (X線自由電子レーザー計画合同推進本部 加速器研究開発グループディレクター)	
人類未踏の光 X線レーザーを自在にあやつるための最先端ビームラインテクノロジー	16
矢橋 牧名 (X線自由電子レーザー計画合同推進本部 利用グループ ビームライン建設チーム チームリーダー)	
プロトタイプ自由電子レーザーのビームライン整備と共同利用の開始	18
永園 充 (X線自由電子レーザー計画合同推進本部 利用グループ SCSS 試験加速器利用チームリーダー)	

第3部 日本のX線自由電子レーザーの利用戦略

<X線自由電子レーザー利用推進協議会について>

X線自由電子レーザー利用推進協議会の活動と今後の利用推進研究課題の進め方	22
太田 俊明 (X線自由電子レーザー利用推進協議会 PD、立命館大学総合理工学研究機構 SR センター長)	

<各課題の状況について>

フェムト秒時間分解顕微鏡の構築とMEM電子分布解析の高度化	24
守友 浩 (筑波大学)	
ガス吸着ダイナミクス研究のための時間分解X線回折データ測定技術の研究開発	26
—1千兆分の1秒(フェムト秒)の瞬間におけるナノ気孔分子をみる—	
北川 進 (京都大学)	
癌細胞の転写関連タンパク質の網羅的マップ構築と臨床応用	28
照井 康仁 (財団法人癌研究会 癌化学療法センター臨床部)	
FEL高分解能光電子イメージング装置の開発	30
鈴木 俊法 (理化学研究所)	
フェムト秒精度でのタイミング信号伝達・計測技術開発	32
玉作 賢治 (理化学研究所)	

XFEL光による分子・クラスターの構造とダイナミクス	34
山内 薫 (東京大学)	
K・Bミラー光学系によるXFELナノ集光システムの開発	36
山内 和人 (大阪大学)	
コヒーレント散乱による材料科学現象可視化基盤技術の研究開発	38
—XFELシングルパルスX線回折顕微鏡法実現のための基盤技術開発—	
松原 英一郎 (京都大学)	
高エネルギー密度物性を利用したX線光学研究	40
米田 仁紀 (電気通信大学レーザー新世代研究センター)	
極小デバイス磁化挙動解析のための回折スペックル計測技術の開発	42
角田 匡清 (東北大学)	
生体単粒子解析用クライオ試料固定照射装置の開発	44
中迫 雅由 (慶應義塾大学)	
FEL励起反応追跡のための電子・イオン運動量多重計測	46
上田 潔 (東北大学)	
超短パルスX線を用いた超高密度状態と相転移ダイナミクスの研究	48
中村 一隆 (東京工業大学)	
蛋白質単粒子解析用液体・分子ビーム生成装置の開発	50
中嶋 敦 (慶應義塾大学)	
非線形X線ラマン分光法の開拓	52
初井 宇記 (理化学研究所)	
FEL多元分光を用いたナノ構造体の電荷移動ダイナミクス	54
八尾 誠 (京都大学)	
広範な生体試料に対応したターゲット・デリバリーシステムの開発	56
岩本 裕之 (高輝度光科学研究センター)	
生体分子の立体構造決定手法の開発に向けた理論基盤の構築	58
郷 信広 (日本原子力研究開発機構)	
<産業界からの期待>	
X線自由電子レーザーがもたらす新技術開発と産業への貢献	60
丹羽 紘一 (株式会社富士通研究所 顧問、神奈川工科大学 特別研究員)	

第1部 X線自由電子レーザー計画について

X線自由電子レーザー (XFEL) とは ... 6



X線自由電子レーザー (XFEL) とは

レーザー光

- 波が揃った質の良い光 (=高干渉性)
- 短時間の現象を捕捉 (=短いパルス)
- × 短い波長の光 (X線) が困難

放射光

- 短い波長の光 (=X線) を放射
- 非常に強力 (=高輝度)
- × 必ずしも干渉性は高くない

X線自由電子レーザー

◎ レーザーと放射光の優れた特質を併せ持つ夢の光

各種ランプ

10 μm 1 μm 100 nm 10 nm 1 nm 1 Å

THz光 赤外線 可視光 紫外線 軟X線 X線 硬X線

長波長 (低エネルギー) ← [光の波長] → 短波長 (高エネルギー)

X線領域のレーザーを実現する唯一の方式 **X線自由電子レーザー X-ray Free Electron Laser (XFEL)**

POINT XFELは超強力なX線領域のレーザー

- ◎ **短い波長** [硬X線 (波長0.1ナノメートル以下)] → 原子・分子レベルでの超微細構造解析
- ◎ **短いパルス** [フェムト秒パルス (10兆分の1秒以下)] → より高速な動態・変化を捕捉
- ◎ **強力な光** [超高輝度 (SPring-8の10億倍以上)] → 物質深部の解析、瞬時のデータ取得
- ◎ **質の良い光** [高干渉性 (コヒーレント性100%)] → よりシャープな像の取得・精密計測

X線自由電子レーザーで広がる研究例

気体を自由に制御できるナノ細孔

SPring-8構造解析によってナノ細孔に気体分子が整列する様子を解析できている

このナノ細孔を、機能性材料として活用するためには・・・?

気体分子の出し入れ機構
気体分子の種類選別機構
の解明が必要!

Bad 従来光源 (SPring-8) では、分子の“動き”を解析することが困難。⇒ 試行錯誤が唯一の手段。

Good X線自由電子レーザーにより、ナノ細孔に気体分子が吸着される際の細孔と分子の相互作用をリアルタイムに直接観察。

POI!!! 新規ナノテクノロジー

- ◎ 気体スイッチング素子、ガス回路 (電子材料)
- ◎ 燃料電池、水素吸蔵 (エネルギー)
- ◎ シックハウス対策壁 (環境)

創薬に直結! 膜タンパク質の解明

膜タンパク質とは?

- ★ 細胞膜にあって、細胞内外の物質・情報伝達を担い、細胞の生理現象を調節する重要なタンパク質で、全ゲノムの3~4割を占める
- ★ 膜タンパク質の構造・機能が解明できれば、細胞内の生理変化を誘引・制御できる物質 (=薬剤) の開発につながる!

NMRで膜タンパク質解析可能 (既存技術の空白域)

SPring-8で解析可能

Bad 従来光源 (SPring-8) では、結晶化が必須 ⇒ 膜タンパク質の結晶化は困難

Good X線自由電子レーザーなら、単分子で構造解析可能!

超高輝度のX線自由電子レーザーなら、単分子で構造解析可能!

POI!!! 戦略的・効率的なライフサイエンス

- ◎ 新しい薬のデザイン・効率の開発
- ◎ 生体ナノマシン開発

X線自由電子レーザーで初めて可能になる画期的研究テーマ

タンパク質分子構造解析

短時間解析可能 = 結晶化不要

XFEL

細胞内分子計測

サマノ空間分解能

フェムト秒時間分解能

バイオチップ

生体ナノマシン

ナノダイナミクス

ナノマテリアル

X線天文学

10億倍強いX線

強光子場

従来技術の限界

結晶化がボトルネック

ナノメートル分解能

XFEL

X線領域の強度が不足

X線領域のコヒーレント光が存在しない

X線顕微鏡システム

完全コヒーレントX線

超高精度イメージング

XFEL

XFEL

XFEL

XFEL

XFEL

XFEL

X線自由電子レーザーの開発

X線自由電子レーザー計画

- ★ 現在の10億倍を上回る高輝度のX線レーザーを共振し、原子レベルの超微細構造、化学反応の超高速動態・変化を瞬時に計測・分析することを可能とする世界最高性能の研究施設を、平成23年度からの供用開始を目指して整備する。
- ★ ライフサイエンス分野やナノテクノロジー・材料分野など、様々な科学技術分野に新たな研究領域を開拓し、欧米に先んじる成果の創出を目指す。 (開発期間 (平成18年度~平成22年度))

X線自由電子レーザーのしくみと開発

電子銃 Electron gun

自由電子 Free electrons

電子銃の電子源

熱電子銃が高品質な電子ビームを生み出す

加速器 Accelerator

Cバンド加速器

Cバンド加速器が電子を効率よく加速

アンジュレータ Undulator

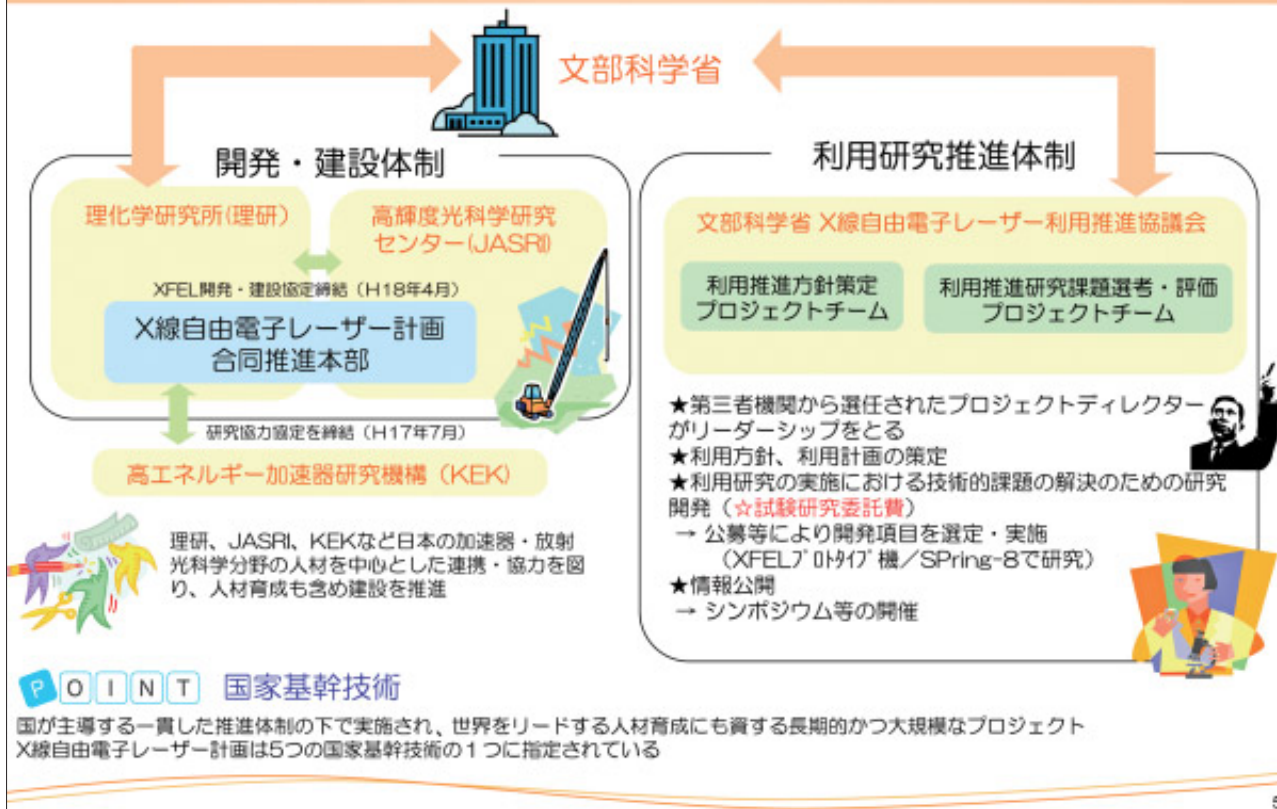
放射光 Synchrotron radiation

X線レーザー X-ray laser

真空封止型アンジュレータ

強力なX線レーザーを生み出すアンジュレータ

X線自由電子レーザー計画実施体制



X線自由電子レーザー年次計画

	2006 (H18)	2007 (H19)	2008 (H20)	2009 (H21)	2010 (H22)	2011 (H23)	2012 (H24)	2013 (H25)
全体計画	← 建設期 →				XFEL(8GeV,0.06nm)発振! 調整・試運転/共用			
施設整備等	線型加速器収納部建屋		電子ビーム輸送系トンネル		入射器、加速器、電子ビーム輸送系		電子ビーム制御系	
	ビームライン収納部建屋		ビームライン		共同実験棟・共同研究棟		施設開発研究	
利用開発等	利用研究開発							
予算[億円]	23.1	107.7	140.0	99.3	19.0	総額 389.1億円		
運営費				5.8	44.8	44.8	44.8	44.8

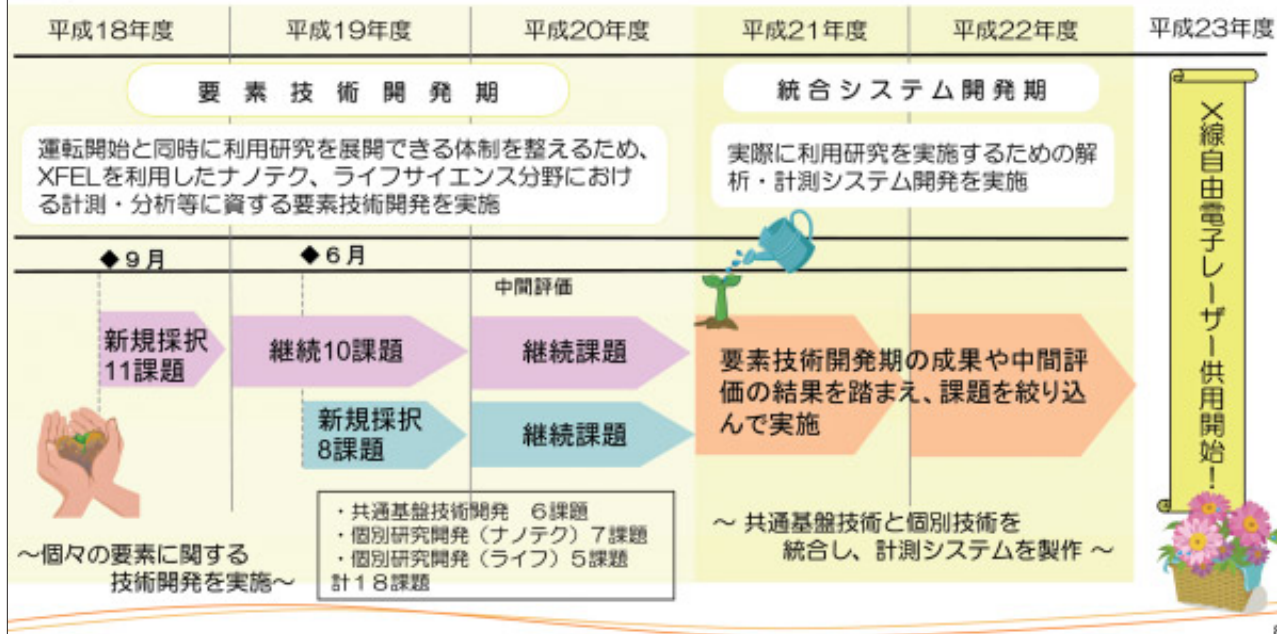
※平成21年度予算編算要求ベース。単位：億円。四捨五入により、総額は合わない

X線自由電子レーザー施設の整備



利用推進研究の年次計画と進捗状況

- ★ 利用推進研究・・・XFEL完成後すぐに利用できるようなするための研究・開発
- ★ 多くの利用研究で共通に必要な「共通基盤技術」と、個々の利用研究に応じて必要となる「個別技術」を並行して開発
- ★ これらの技術を実際のビームで評価・検証しながら完成させ、計測装置として統合



第2部 日本のX線自由電子レーザー開発

国家プロジェクト X線自由電子レーザーとは …12 —世界最高レベルの機器と施設の開発とは— 熊谷 教孝 (X線自由電子レーザー計画合同推進本部 副本部長 加速器建設グループディレクター) 大塚 孝 (同加速器建設グループ 建設チーム)
我が国産業界の国産技術が支えるX線自由電子レーザー …14 —その新たな可能性— 新竹 積 (X線自由電子レーザー計画合同推進本部 加速器研究開発グループディレクター)
人類未踏の光 X線レーザーを自在にあやつるための最先端ビームラインテクノロジー …16 矢橋 牧名 (X線自由電子レーザー計画合同推進本部 利用グループ ビームライン建設チーム チームリーダー)
プロトタイプ自由電子レーザーのビームライン整備と共同利用の開始 …18 永園 充 (X線自由電子レーザー計画合同推進本部 利用グループ SCSS試験加速器利用チームリーダー)



国家プロジェクト X線自由電子レーザーとは

—世界最高レベルの機器と施設の開発とは—

熊谷 教孝 (X線自由電子レーザー計画合同推進本部 副本部長 加速器建設グループディレクター)
 大塚 孝 (同加速器建設グループ 建設チーム)

X線自由電子レーザーとは

XFEL とは、X線自由電子レーザー (X-ray Free Electron Laser) の略で、波長がX線 (波長0.1ナノメートル) 領域のレーザーである。さらに、光のパルスが100フェムト秒程度と非常に短く、SPring-8の10億倍も明るい次世代光源である。このXFELを使うと、物質を原子レベルの大きさで、かつ瞬時の動きを観察することができると考えられている。そのため基礎研究にとどまらず、広く国民の生活に有意義な影響を及ぼすような画期的な光源として期待されている。そのような理由からXFEL計画は、我が国の科学技術を牽引する世界最高性能の研究・技術開発として、『国家基幹技術』に認定されている。

施設の進捗概要

X線自由電子レーザー装置は、高品質電子ビームを生成する電子銃部と、その電子を加工し8 GeVまで加速する長さ約400mの線型加速器、その電子ビームからX線レーザーを生成するアンジュレータ部、そしてその発生したX線レーザーを利用するビームライン・測定器からなる。加速器、クライストロン、電磁石、真空、制御等の加速器機器は、現在機器の製作・納入が順調に進んでいる。アンジュレータ部およびビームライン機器の製作と、高品質電子ビームをSPring-8蓄積リングに輸送する電子ビーム輸送トンネル建設が平成20年度から開始された。その中でレーザー生成の中心となるアンジュレータの発注が本年10月に終了し、その他の機器については順次仕様が確定され次第発注作業に入る。現在、

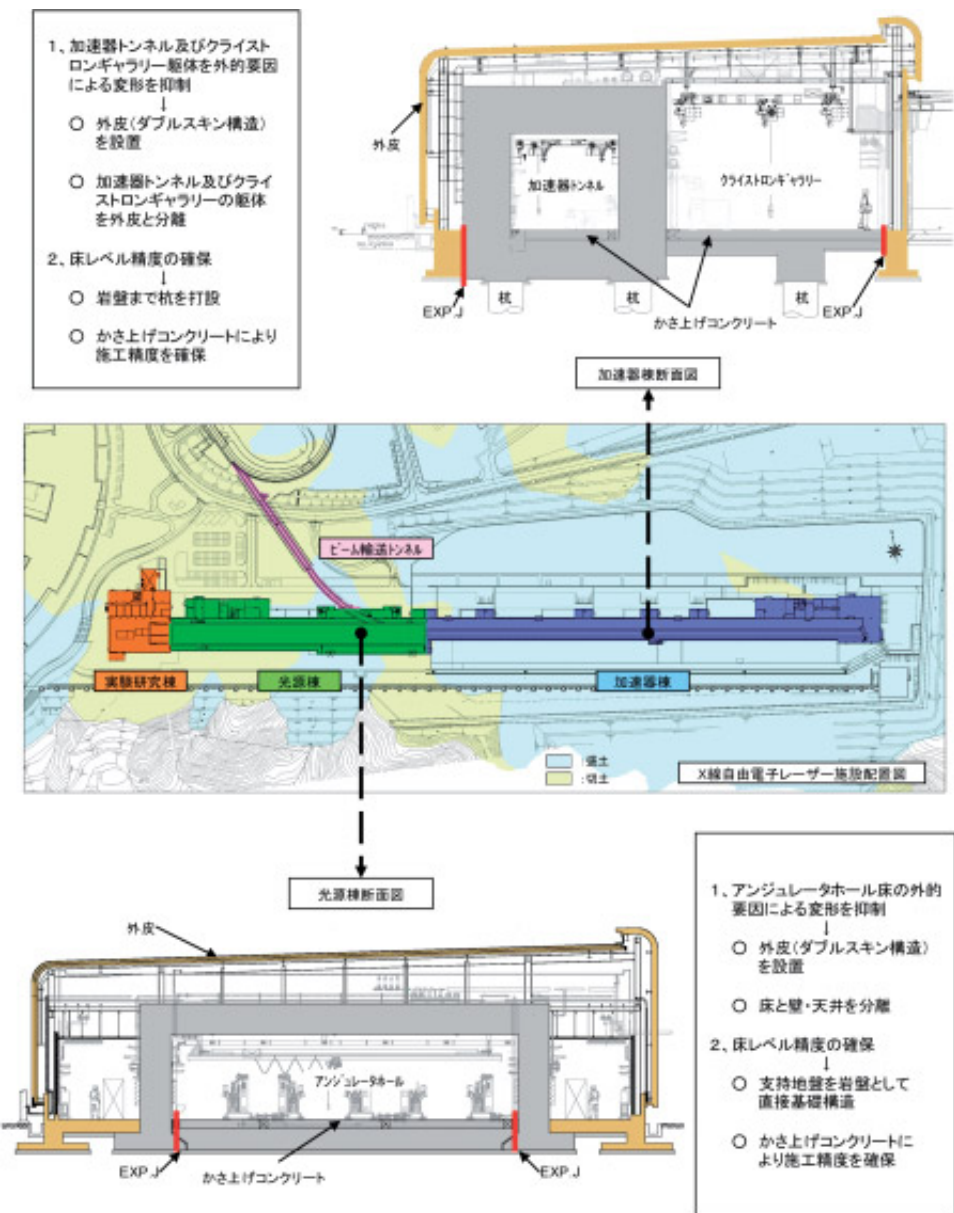
電子ビームの加速およびレーザー増幅を平成22年度中に、そして23年度にX線領域で安定なレーザー増幅と利用開始を目指し計画が進められている。利用開始後、できうる限り早急にSASE光からFELへのアップグレードが可能な加速器システムに、また、将来的にSCSS試験器 (XFELプロトタイプ機) をXFELのBL01ビームラインの上流側空間に移設し、より柔軟なレーザーと放射光利用のコラボレーションを可能とするように設計された。

線形加速器の主要構成要素であるS-bandおよびC-band加速管等の高周波機器の製作は順調に進み、S-bandシステムは全数、C-bandについては128本中約50本が納入され、月産6、7本の割合で製作が進んでいる。テストスタンドでは、納入された高周波機器の健全性を確認するために測定を開始し、機器の信頼性および再現性を最優先して製作を進める。

SCSS試験器の運転では、C-band加速管において当初設計を上回る37 MV/mの高加速電界運転を低いトリップレートで実現、実機での安定な8 GeV運転に目処が立った。また、電子銃や電源の開発では、電圧安定度として仕様値0.01% (標準偏差) を満たすものも実現し、これにより電子ビームの安定な生成と加速が確実となった。

建屋の概要と進捗状況

X線自由電子レーザー施設は4つの建物に分けて建設中であり、1. 加速器棟 (平成21年3月竣工予定)、2. 光源棟 (平成21年3月竣工予定)、3. ビーム輸送トンネル (平成22年3月竣工予定)、4. 実験研究棟 (平成22年5月竣工予定) で構成する建屋である。



今回の施設において、建物に要求される最も重要な部分は、マシンが設置される床レベルの恒久的精度の確保であると考え、建物を計画した。加速器棟は電子銃・線型加速器等を収納する加速器トンネルとクライストロンを設置するクライストロンギャラリーの床は一体となる構造とし、床の変形を押さえるために、外皮となる構造とは分離された構造となっている。また、アンジュレータを収納する光源棟のアンジュレータホール、ビーム輸送トンネル、X線レーザーを利用するための実験研究棟の実験ホールにおいても、床と壁の構造を分離し、床変形に対する影響をできるだけ少なくする構造としている。

建設状況

加速器棟は平成19年6月～11月の間で、杭工事を施工した。この杭は加速器トンネルとクライスト

ロンギャラリーを支えるもので、最大長さ52m、直径約1.5mの場所打ちコンクリート杭を136本施工した。加速器トンネル躯体のマスコンクリートは、工場での試験練り及び現場での試験施工を行い、コンクリートの性能と施工性を考慮したコンクリートを選定し、施工した。

光源棟のアンジュレータホール床は直接基礎であり、支持地盤となる中硬岩まで深い部分は、平成19年9月～翌5月の間で、掘削工事及び地盤改良工事を施工した。中硬岩が現れる最大深さ16mまで掘削し、人工岩盤を形成した。アンジュレータホール躯体のマスコンクリートも加速器棟同様に試験を行い、コンクリートを選定し、施工した。現在は、両棟ともに外装・内装工事、設備工事を施工中で平成21年3月竣工に向けて順調に進行している。

我が国産業界の国産技術が支える X線自由電子レーザー —その新たな可能性—

新竹 積 (X線自由電子レーザー計画合同推進本部 加速器研究開発グループディレクター)

日本のX線自由電子レーザーは、わが国の産業界が有する優れた工業技術を活かして、諸外国がまねのできない、高性能かつコンパクトな設計となっている。その最も重要な技術とは、(1)真空封止アンジュレータ技術、(2)Cバンド高電界加速技術、(3)低エミッタンス熱電子銃であり、いずれも日本発祥の技術であるだけでなく、それを支えているのは日本の産業界が得意とする工業技術の集大成である。

はじめに真空封止型のアンジュレータは、1982年に日本で発明され世界のトップシェアを持つネオジム磁石 (Neodymium magnet) の優れた特性を活かした設計となっており、北村英男などの挑戦的な技術開発により、真空中に磁石列を配置する方式が可能となった (図1)。これによって、磁石列を電子ビームに数ミリメートルの距離まで近づけることが可

能となり、アンジュレータの磁石周期をより短くでき、結果的にX線を発生させるに必要な電子ビームのエネルギーを低く抑え、XFEL 施設をコンパクトにすることが可能となった。またXFELでは磁石列どうしの間隔をミクロン精度で調整する必要があり、永久磁石の強力な吸引力にも耐える高精度位置決め技術が必須である。ここに日本の高精度ボールベアリングの技術が活かされており、日本の産業界が有する基礎技術レベルの高さがXFELを影で支えているのである。

つぎにCバンド高電界加速技術は、高エネルギー素粒子研究向けに日本で開発された加速器技術である (図2)。従来の電子線型加速器で使用されてきたSバンド加速器は、周波数3 GHzのマイクロ波を加速に使用していたが、この周波数を2倍の6 GHz (Cバンド帯) にすることにより、加速勾配35 MV/mという従来の2倍近い高電界加速が可能となった。これを支える工業技術の筆頭は、国内メーカーの高純度無酸素銅の優れた製造技術である。日本独自の真空連続溶解技術とHIP熱処理技術により、結晶粒界に不純物空孔の存在しない優れた銅材料が供給され、加速器空洞の高電界運転に伴う高電圧放電の問題が見事に解決

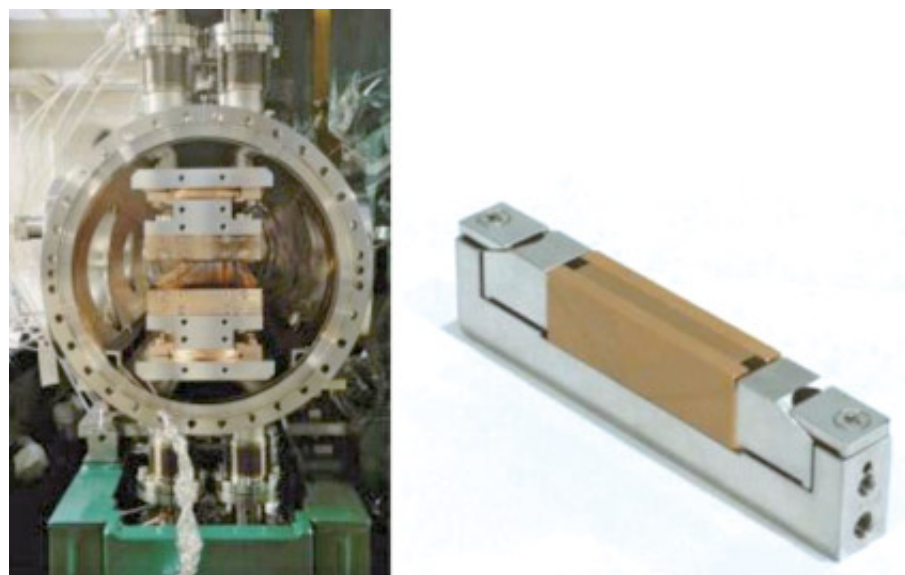


図1 ●真空封止アンジュレータとネオジム磁石 (ハイブリッド型)

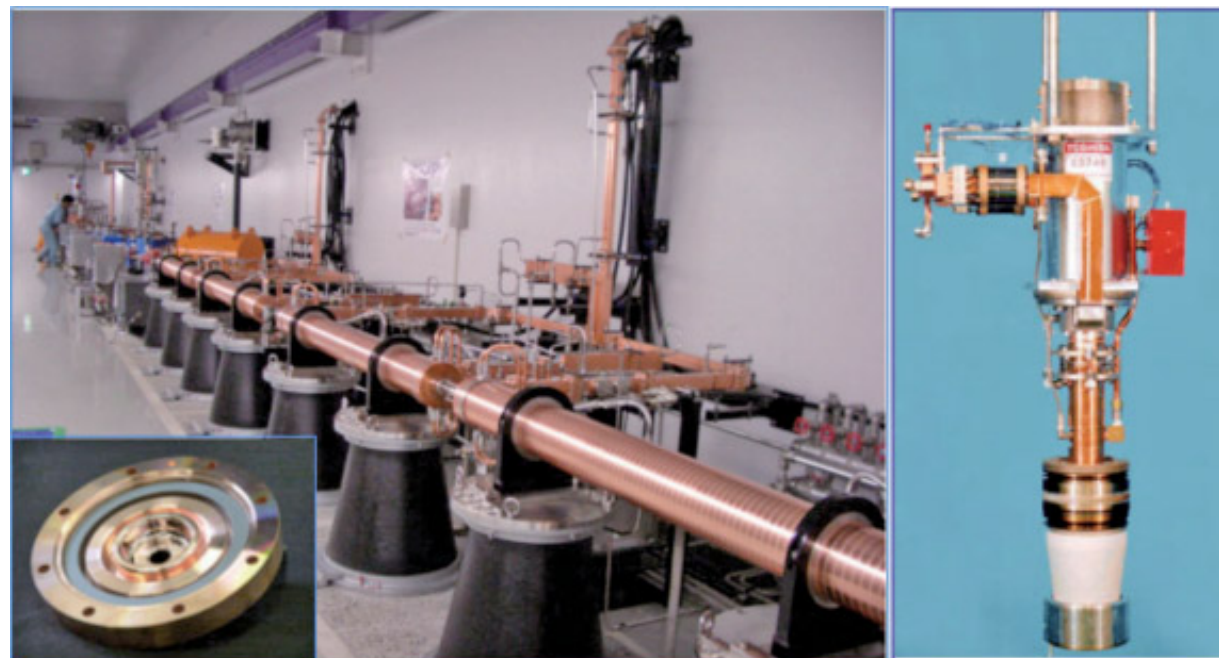


図2 ●SCSS 試験加速器に設置されたCバンド加速器とCバンドクライストロン

された。SCSS プロジェクトの試験加速器 (XFEL プロトタイプ機) において、現在37 MV/mの加速運転が実現している。その他、高信頼性のCバンドクライストロン (増幅管)、高安定パルス電源、高周波信号の高精度制御技術など多くの国内メーカーがXFELを支えている。

3番目の低エミッタンス熱電子銃は、X線レーザーが安定に動作するために必須の技術である。もし電子ビームのエミッタンスが悪く電子の運動方向にばらつきがあると、発生するX線は自然放射にしかならず、FEL増幅によるレーザーとはならないため、電子銃はXFELにとって極めて重要な技術である。我々は、諸外国より優れた方式として、単結晶カソード表面から得られる熱電子を利用している。これを支える技術とは、ホウ化セリウム (CeB₆) の単結晶を、1500℃という高温に加熱するグラファイトヒーターにある。これは半導体シリコン製造に用いられる融解炉ヒーター向の高純度グラファイト技術を転用したものであり、不純物ガスの放出が少なく長寿命の電子銃が実現している (図3)。SCSS 試験加速器の電子銃において、初期ロットの単結晶カソ

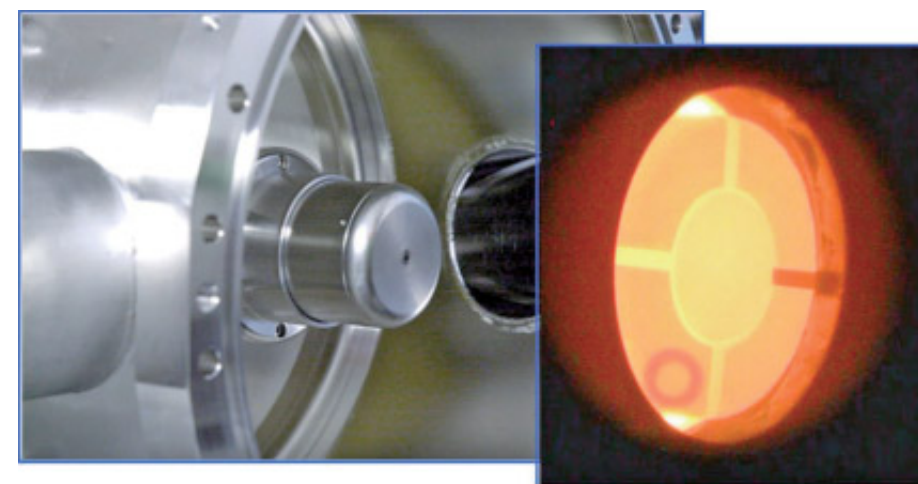


図3 ●低エミッタンス熱電子銃と、1500℃で運転中の単結晶カソード

ードは、寿命2万時間を記録した。その間のレーザー運転は極めて安定であり、カソード交換の直前まで安定にビームを供給し続けた。

ここに述べた3つの国産技術を用いると、将来さらに小型のX線レーザーが実現できる可能性がある。例えば、アンジュレータの周期長を5 mmまで短くすると、波長2 Åを発生するために必要なエネルギーは約2 GeVとなり、主加速器の長さは60 m、アンジュレータの全長は40 m、実験室を含めた施設全長が150 m程度となり、正にコンパクトX線レーザーが実現する。これによってXFEL施設の普及が大いに加速されるものと期待でき、タンパク質の単分子イメージングを始めとして広く基礎科学の進歩に寄与するであろう。

人類未踏の光 X線レーザーを自在にあやつるための 最先端ビームラインテクノロジー

矢橋 牧名

(X線自由電子レーザー計画合同推進本部 利用グループ ビームライン建設チーム チームリーダー)

1. はじめに

X線自由電子レーザー (XFEL) 装置は、1000 億個以上の膨大な数の X 線光子を、10 兆分の 1 秒 (100 フェムト秒) 以下のごく僅かな時間内に生成するという、全く新しい光源である。この超高速フラッシュランプを物質に照らすことで、我々は、物質中の刻々と移りゆく原子の配置を静止フレームに切り取って観測することが初めて可能となる。さらに、これらの X 線光子の内訳をみると、お互いに区別がつかないほど性質が揃ったものが多数含まれている。この特性は、「コヒーレンス性が高い」と呼ばれ、極めて有用である。すなわち、従来のコヒーレントでない X 線光源は、原子配置の解析対象を「結晶」と呼ばれる特殊な状態に限定していたが、コヒーレントな XFEL はこの制約を解き放つ。例えば、生命の基本機能を担うが結晶状態にすることが極めて困難な「膜タンパク質」と呼ばれる生体物質の構造を解くことが可能となり、新薬創成につながると期待されている。

2. ビームラインの目的

ビームラインは、XFEL の発生源であるアンジュレータの下流から、ユーザーの実験装置までを繋ぐ装置である。光源棟内のフロントエンド、実験棟内の光学系、遮蔽ハッチ、制御システム等のサブシステムから構成される。主な目的は次の通りである。

- ① XFEL の加工：実験目的に応じて XFEL の性質を加工することで、XFEL の優れた特性を一層際立ったものにする。例えば、集光ミラーにより、XFEL ビームの空間領域を小さく絞り、

光子密度を飛躍的に高めることが可能となる。また、分光器を用いて、特定の狭い波長成分のみが抽出される。特に、XFEL の光学素子としては、非常に高い形状精度・完全性が求められる。また、強力な XFEL により損傷を受けないような工夫が凝らされる。

- ② XFEL の診断：XFEL は 1 秒間に 60 回の繰り返しのパルスとして生成されるが、各パルス毎に少しずつ特性が異なっている。強度、波長、到達時間等のビーム特性をパルス毎に診断し、データベースに記録するために、特性診断システムの開発が進められている。また、強力な XFEL を安定して得るためには電子ビーム・アンジュレータを極めて精密に調整する必要があるが、この際にも診断システムが重要な役割を果たす。
- ③ 制御・データ処理システム：各機器の制御とともに、XFEL 実験により得られる膨大なデータを処理するために必要となるシステム開発・整備が行われる。
- ④ 放射線防護：放射線防護のために、遮蔽ハッチが設置され、安全システムが構築される。

3. スケジュール

ビームライン系の機器は、平成 20 年度から 22 年度の 3 年間で整備される予定である。現在、機器設計がほぼ終了し、発注作業が進められている。引き続き、機器製作が行われ、22 年度中に光源棟・実験棟にインストールされる。調整運転を経た後、平成 23 年秋から供用運転が開始される予定である。



図 ● ビームラインの鳥瞰図

プロトタイプ自由電子レーザーの ビームライン整備と共同利用の開始

永園 充

(X線自由電子レーザー計画合同推進本部 利用グループ SCSS 試験加速器利用チームリーダー)

SCSS 試験加速器は、X線自由電子レーザー (XFEL) 加速器の動作原理を検証するために建設されたプロトタイプ機である。このプロトタイプ機には、FEL で用いる3つの先進的なキーテクノロジー、(1) 低エミッタンスの「500 kV 熱電子銃」、(2) 高加速勾配の「Cバンド加速器」、(3) 磁場周期長の短い「真空封止アンジュレータ」が使用され、2005年度に完成した。2006年6月にレーザー出力を確認、その後レーザー発振に向けて、機器の改良と調整の精密化、加速器の安定化を進めてきた結果として、2007年9月にレーザーパワーの飽和を達成した。この飽和達成は、「Nature Photonics」に論文として掲載され^[1]、また同誌面上でエディター側のトピックスとして取り上げられ^[2]、さらに「Nature」においても紹介された^[3]。

プロトタイプ自由電子レーザーの利用研究は、XFEL 装置が完成した後、速やかに利用実験を立ち上げるため、および極端紫外領域の新規な研究分野の開拓を目的として進められている。その利用研究を行うために、2006年度に新しい建屋「EUVレーザー実験棟」が建設され、2007年度には加速器収納部から実験棟へ光を導くための輸送ビームラインを建設した(図1)。

実験棟内のビームラインは、上流部に共通基盤機器(光ビームプロファイルモニター、光量調整用アッテネーター、透過型光強度モニター、透過型光位置モニター、分岐チャンバー)、下流部にユーザー利用実験を行うための4つのブランチを整備する(図2)。4つのブランチは、非集光が1ブランチ、汎用集光(集光径:数10 μm)が2ブランチ、究極集

光(集光径:数 μm)が1ブランチとして整備する予定である。また、実験棟内には、共用レーザーシステムとユーザー持ち込みレーザーを置けるスペースを設けている。

2007年10月から試験的利用研究が、XFEL 利用推進課題の研究グループ(研究代表者 東京大学 山内薫教授)の協力を得て開始された。利用期間中(延べ数週間)は、大きなトラブルもなく安定にビーム供給を行うことができ、本格的な利用実験に向けて運転実績を積むことができた。さらに、その実験からプロトタイプ自由電子レーザー利用研究の最初の成果も得られている^[4]。

2008年1月から2月にかけて、プロトタイプ自由電子レーザーの利用実験の第1回目(2008年度A期)の課題公募が行われ、XFEL 利用推進研究課題の研究グループから4課題、一般応募の研究グループからも1課題が採択され、2008年度から共同利用の本格利用が開始された。今後も公募課題を実施していき、XFEL 利用研究のための実験システムの開発整備やプロトタイプ自由電子レーザーによって実現する新規サイエンスの可能性を探っていく。

- [1] nature photonics 2, 555-559 (2008)
- [2] nature photonics 2, 522-524 (2008)
- [3] nature 455, 522-524 (2008)
- [4] Appl. Phys. Lett. 92, 154103 (2008)

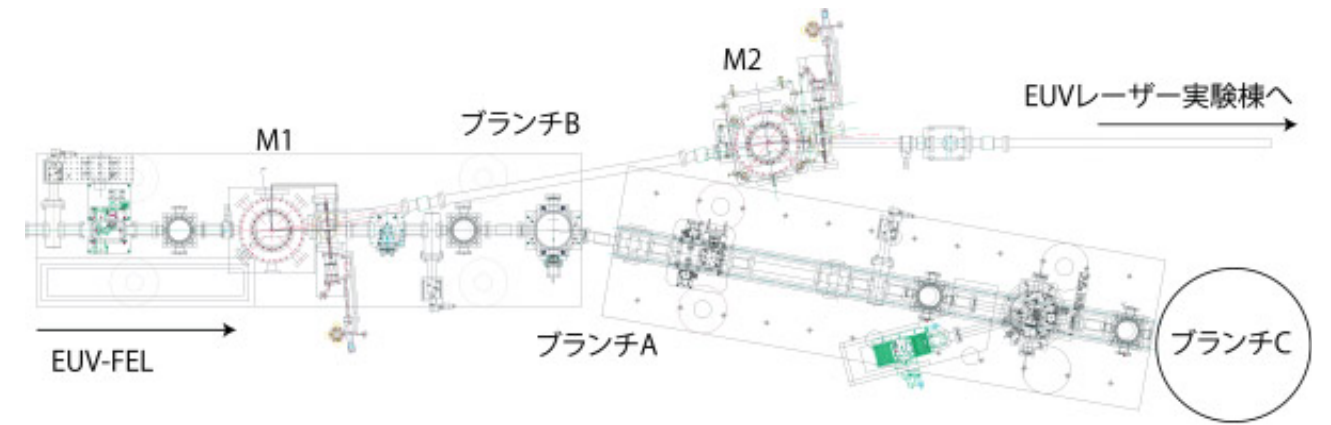


図1 ● 収納部内ビームライン

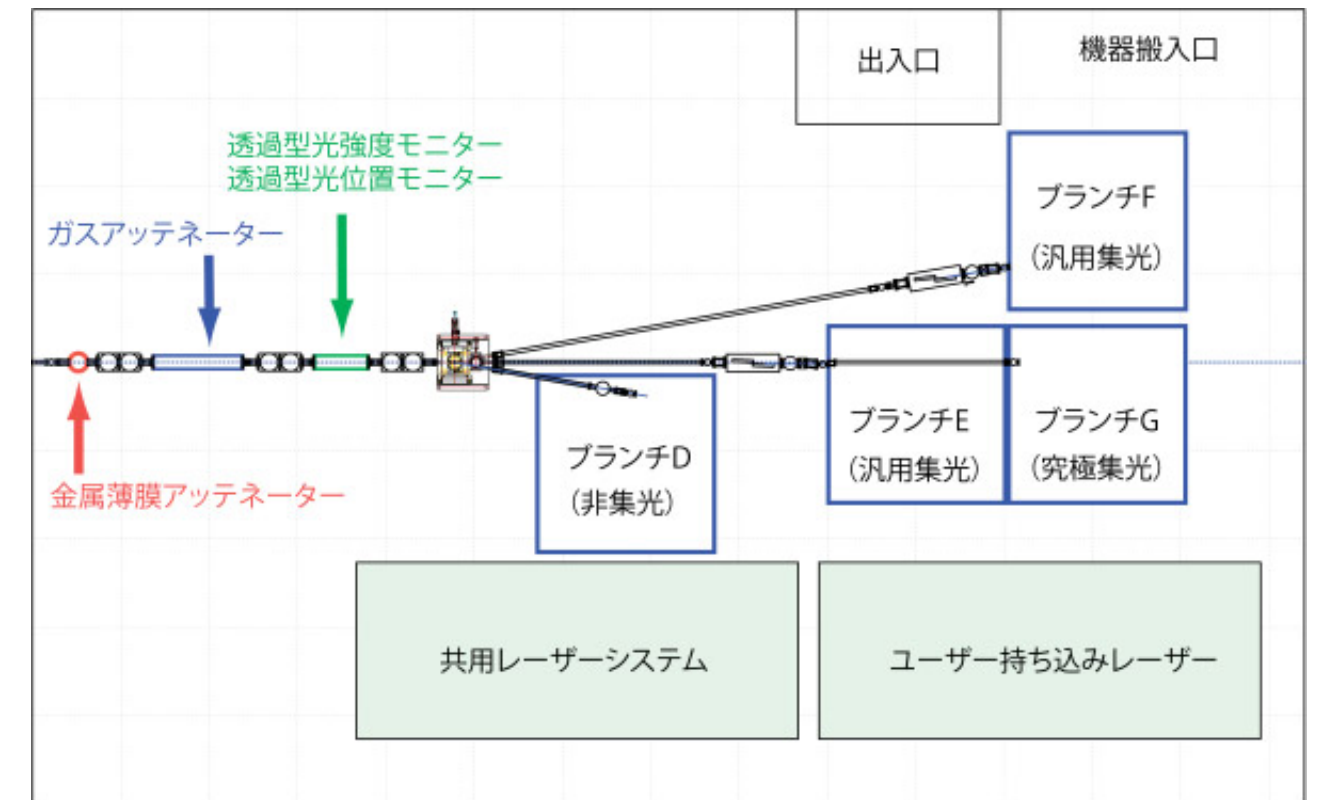


図2 ● EUVレーザー棟内ビームライン

第3部 日本のX線自由電子レーザーの利用戦略

<X線自由電子レーザー利用推進協議会について>

- X線自由電子レーザー利用推進協議会の活動と今後の利用推進研究課題の進め方 …22
太田 俊明
(X線自由電子レーザー利用推進協議会PD、立命館大学総合理工学研究機構 SRセンター長)

<各課題の状況について>

- フェムト秒時間分解顕微鏡の構築とMEM電子分布解析の高度化 …24
守友 浩 (筑波大学)
- ガス吸着ダイナミクス研究のための時間分解X線回折データ測定技術の研究開発 …26
—1千兆分の1秒(フェムト秒)の瞬間におけるナノ気孔分子をみる—
北川 進 (京都大学)
- 癌細胞の転写関連タンパク質の網羅的マップ構築と臨床応用 …28
照井 康仁 (財団法人癌研究会 癌化学療法センター臨床部)
- FEL高分解能光電子イメージング装置の開発 …30
鈴木 俊法 (理化学研究所)
- フェムト秒精度でのタイミング信号伝達・計測技術開発 …32
玉作 賢治 (理化学研究所)
- XFEL光による分子・クラスターの構造とダイナミクス …34
山内 薫 (東京大学)
- K・Bミラー光学系によるXFELナノ集光システムの開発 …36
山内 和人 (大阪大学)
- コヒーレント散乱による材料科学現象可視化基盤技術の研究開発 …38
—XFELシングルパルスX線回折顕微鏡法実現のための基盤技術開発—
松原 英一郎 (京都大学)
- 高エネルギー密度物性を利用したX線光学研究 …40
米田 仁紀 (電気通信大学 レーザー新世代研究センター)
- 極小デバイス磁化学動解析のための回折スペックル計測技術の開発 …42
角田 匡清 (東北大学)
- 生体単粒子解析用クライオ試料固定照射装置の開発 …44
中迫 雅由 (慶應義塾大学)
- FEL励起反応追跡のための電子・イオン運動量多重計測 …46
上田 潔 (東北大学)
- 超短パルスX線を用いた超高密度状態と相転移ダイナミクスの研究 …48
中村 一隆 (東京工業大学)
- 蛋白質単粒子解析用液体・分子ビーム生成装置の開発 …50
中嶋 敦 (慶應義塾大学)
- 非線形X線ラマン分光法の開拓 …52
初井 宇記 (理化学研究所)
- FEL多元分光を用いたナノ構造体の電荷移動ダイナミクス …54
八尾 誠 (京都大学)
- 広範な生体試料に対応したターゲット・デリバリーシステムの開発 …56
岩本 裕之 (高輝度光科学研究センター)
- 生体分子の立体構造決定手法の開発に向けた理論基盤の構築 …58
郷 信広 (日本原子力研究開発機構)

<産業界からの期待>

- X線自由電子レーザーがもたらす新技術開発と産業への貢献 …60
丹羽 紘一 (株式会社富士通研究所 顧問、神奈川工科大学 特別研究員)

X線自由電子レーザー利用推進協議会の活動と今後の利用推進研究課題の進め方

太田 俊明 (X線自由電子レーザー利用推進協議会 PD、立命館大学総合理工学研究機構 SRセンター長)

X線自由電子レーザー利用推進協議会の活動

高い指向性と単色性を持ち、位相が揃った高出力のレーザーをX線領域にまで広げようとする試みは光科学技術に携わる者の長年来の夢でした。1970年代から始まった理論と実験両面の研究によって、自由電子レーザー (FEL : Free Electron Laser) 技術によりその実現の見通しが立ってきました。米国のスタンフォードでは国家プロジェクト、ドイツのハンブルグでは欧州国際共同プロジェクトとして超大型のXFEL (X-ray FEL) 建設計画が先行して始まっているところですが、

これらを追いかけて、我が国では理研のグループが日本独自のアイデアによって大幅に小型化し、コ

ストを低減化したユニークなXFEL計画を提案しました。これは我が国が集中的に資源を投入して進めべき第3期科学技術基本計画の5つの国家基幹技術の一つとして、2006年より建設が始まり、2010年度の完成を目指して着々と進行しています。この計画は、極めて高い輝度 (SPring-8 の10億倍)、極めて短いパルス性 (SPring-8 の1,000分の1) を持ち、100%位相が揃った、最短波長0.06ナノメートルのX線を創り出そうとするものです。

人類が未だ手にしたことのないこの光源は、オンダストロームの空間分解能とフェムト秒の時間分解能で物質を照らす新しい光です。結晶化が困難な膜タンパク質1分子での原子レベルの構造解析や化学反応の超高速動態・変化を計測・分析を可能にするポテンシャルをもっています。したがって、ライフサイエンスやナノテクノロジー・材料分野をはじめとする幅広い研究分野への貢献、基礎研究から国民の生活向上に役立つ応用研究・製品開発まで革新的な成果の創出が期待されています。

このような期待に応え、諸外国との熾烈な競争の中、多数の先端的研究成果を早期に創出していくためには、本装置の完成直後から本格的な研究を開始できる環境を整

備しておくことが必要です。レーザー研究者、放射光研究者、さらには、生命科学、物質科学に携わる研究者の叡智を結集し、本装置の開発と併行して利用研究 (XFELを利用した研究) を行うための技術開発、想定される様々な問題点の解決を戦略的に図ることは極めて重要なことと考えられます。

このため、2006年2月、文部科学省に外部有識者からなる「X線自由電子レーザー

利用推進協議会」が設置され、

- (1) 利用推進方針及び利用推進計画の策定・見直し
- (2) 利用推進研究課題に関する公募要領の決定及び実施課題の選定
- (3) 実施課題の進捗状況の把握と評価
- (4) シンポジウムの開催

といった取り組みを通じて利用技術の開発を進めてきました。

協議会の下には、利用推進方針策定プロジェクトチームと利用推進研究課題選考・評価プロジェクトチームが設置され、前者においては利用推進研究 (利用研究を実施する際に想定される様々な問題点の解決に向けた研究開発) の方針・計画を定め、後者においてはこの方針・計画のもとに、利用推進研究課題を採択し、利用推進研究を強力に進めているところです。

また、今年8月の科学技術・学術審議会によるXFEL計画中間評価報告書の提言を踏まえ、XFELのもつ大きなポテンシャルを最大限活かすべく、新たな研究分野の開拓や長期的な展望に立った研究を遂行していくための検討も開始しています。

今後の利用推進研究課題の進め方

利用推進研究課題の進め方については、科学技

XFEL利用推進研究課題における研究開発実施課題

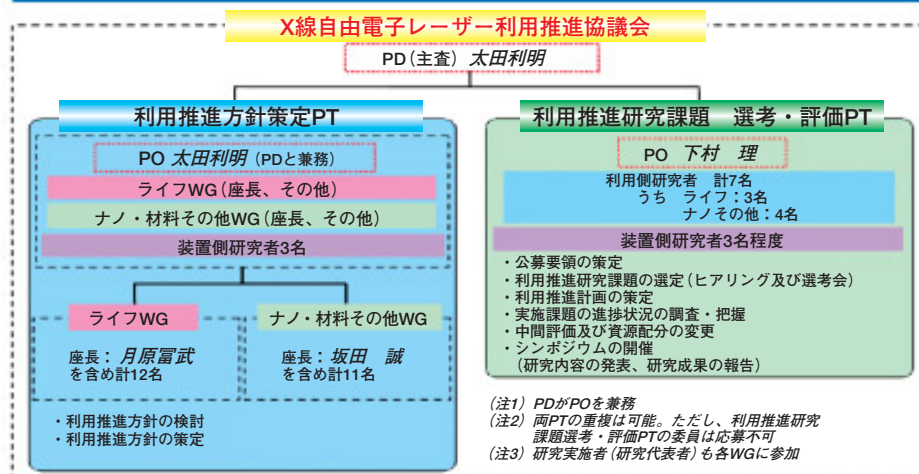
採択年度	分野	研究課題名	研究代表者 (中核機関)	平成20年度分担機関
18年度	ナノ	フェムト秒時間分解顕微鏡の構築とMEM電子分布解析の高度化	守友 浩 (筑波大学)	理化学研究所
18年度	ナノ	時間分解X線回折によるガス吸着ダイナミクスの解明	北川 進 (京都大学)	島根大学、理化学研究所
18年度	ライフ	癌細胞の転写関連タンパク質の網羅的マップ構築と臨床応用	照井 康仁 (癌研究会)	なし
18年度	基盤	FEL高分解能光電子イメージング装置の開発	鈴木 俊法 (理化学研究所)	なし
18年度	基盤	フェムト秒精度タイミング信号伝達・計測技術開発	玉作 賢治 (理化学研究所)	なし
18年度	ナノ	XFEL光による分子・クラスターの構造とダイナミクス	山内 薫 (東京大学)	高エネルギー加速器研究機構、慶應義塾大学、日本原子力研究開発機構、理化学研究所、NTT物性科学基礎研究所
18年度	基盤	K・Bミラー光学系によるXFELナノ集光システムの開発	山内 和人 (大阪大学)	理化学研究所
18年度	基盤	コヒーレント散乱による材料科学現象可視化のための基盤技術開発	松原 英一郎 (京都大学)	理化学研究所
18年度	基盤	高エネルギー密度物性を利用したX線光学研究	米田 仁紀 (電気通信大学)	京都大学、大阪大学、宇都宮大学
18年度	ナノ	極小デバイス磁気挙動解析のための回折スペクトル計測技術の開発	角田 匡清 (東北大学)	高輝度光科学研究センター、富士通株式会社
19年度	ライフ	生体単粒子解析用クライオ試料固定照射装置の開発	中迫 雅由 (慶應義塾大学)	大阪大学、理化学研究所
19年度	ナノ	FEL励起反応追跡のための電子・イオン運動量多重計測	上田 潔 (東北大学)	産業技術総合研究所
19年度	ナノ	超短パルスX線を用いた超高密度状態と相転移ダイナミクスの研究	中村 一隆 (東京工業大学)	なし
19年度	ライフ	蛋白質単粒子解析用液体・分子ビーム生成装置の開発	中嶋 敦 (慶應義塾大学)	東京大学、理化学研究所
19年度	基盤	非線形X線ラマン分光法の開拓	初井 宇記 (理化学研究所)	なし
19年度	ナノ	FEL多元分光を用いたナノ構造体の電荷移動ダイナミクス	八尾 誠 (京都大学)	なし
19年度	ライフ	広範な生体試料に対応したターゲット・デリバリーシステムの開発	岩本 裕之 (高輝度光科学研究センター)	順天堂大学
19年度	その他	生体分子の立体構造決定手法の開発に向けた理論基盤の構築	郷 信広 (日本原子力研究開発機構)	京都大学

術・学術審議会や総合科学技術会議による事前評価等も踏まえ、XFEL完成後直ちに本格的な利用研究を実施し、革新的な成果を多数創出できるよう、要素技術開発期 (前期：2006～2008年度) と統合システム開発期 (後期：2009～2010年度) に分けて、利用推進研究を計画的に進めてきました。これまでの前期3年では、XFELを利用したナノテクノロジー、ライフサイエンス分野における計測・分析等に資する共通基盤技術開発と個別研究開発を18課題実施してきました。今年度中に、これらの研究課題について中間評価を行い、課題の絞り込みを行います。XFELの特長を生かした利用研究であるか、インパクトのある成果の創出が見込まれるか、早期に実現すべき研究課題であるか、研究の進捗状況や創出される成果の見込みを十分に検討した上で、課題毎に継続・廃止・統合等を行う予定です。そして、来年度から始まる後期2年では、共通基盤技術と個別技術を統合し、実際に利用研究を実施するための解析・計測システムを製作する計画です。

次項からご紹介する利用推進研究課題は、人類社会の未来を開拓する基盤技術です。光科学技術関係者のみならず他分野の皆様におかれましても、この機会に未知の光源、X線レーザーに関心を持って頂き、その新しい利用に関わって頂ければ幸いです。

X線自由電子レーザー利用推進協議会

装置開発と並行して、具体的成果の見込まれる研究テーマを絞り込み、また、利用推進研究課題として利用研究を実施する際に想定される問題点の解決を図るなど、戦略的に利用研究を推進するための体制の構築



フェムト秒時間分解顕微鏡の構築と MEM 電子分布解析の高度化

研究代表者 守友 浩 (筑波大学)
共同研究者 田中 義人 (理化学研究所)
 加藤 礼三 (理化学研究所)
 高田 昌樹 (理化学研究所)

1. 研究実施の背景・目的

理化学研究所が開発する XFEL がフェムト秒時間分解能と mm オーダーの高い空間分解能を有することを活用すれば、物質系に与えた擾乱が系の格子構造・電子分布にどのように影響を与えるかを、空間・時間領域で決定することが可能になる。本開発研究の目的は、この研究分野を推進するための周辺技術開発・物質探索を行うことである。具体的には、以下の三つの目標を定めている。

【目標1】 時間・空間に依存した物性をモニターするフェムト秒時間分解顕微鏡 (TRM) をその空間・時間制御技術を開発する。この物性モニター技術は、XFEL の高度利用だけでなく、第三世代 X 線光源の高度利用においても必須の周辺技術である。

【目標2】 第三世代 X 線光源で成功を取めている MEM 電子分布解析を、XFEL 光源に対応できるよう高度化する。特に、MEM 電子分布から有用な電荷情報を引き出すために静電ポテンシャル法を開発し、その有用性を実証する。

【目標3】 顕著な光応答性のある物質探索を行い、その基礎物性データを収集する。

2. 研究内容

守友と田中が、フェムト秒時間分解顕微鏡の開発を担当する。フェムト秒時間分解顕微鏡は光源部・鏡筒部・画像部から構成される。この顕微鏡の主な仕様は a) 小さな励起光スポットサイズ (数 μm)、b) 長い作動距離 (10 mm 程度)、c) 励起光スポットを含む空間のイメージング (分解能数 μm)、d) 鏡筒部

分の小型・軽量化、e) 鏡筒部分の可動性、である。顕微鏡試作機を作製し、その基本性能の評価・改善を行う。その後、その性能を落さずに、鏡筒部の小型・軽量化を行う。さらに、その空間・時間制御技術を開発する。これにより試料の時間・空間に依存した物性を監視しながら、時間・空間構造ダイナミクスの研究が可能となる。

加藤と高田が、MEM 電子分布解析の高度化を行う。特に、電子分布密度から静電ポテンシャルを計算する方法を開発する。さらに、静電ポテンシャル法を強相関化合物に適用し、その有用性を実証する。これらの手法の開発により、電子分布および静電ポテンシャル分布の時間・空間発展を実験的に決定することが可能になり、光誘起現象の解明に大きな貢献が期待される。

さらに、守友は、顕著な光応答性のある物質探索を行う。特に、サブピコ秒程度の時間スケールで顕著な応答性を示す強相関化合物を探索し、その基礎物性データを収集する。

3. 期待される成果

本研究により、「時間・空間に依存した物性モニター手法」「高度化された MEM 電子分布解析手法」という技術面での進展が期待される。これらは、光記録等の光誘起現象の機構解明とその材料開発を飛躍的に進展させる技術である。さらに、サブピコ秒程度の時間スケールで顕著な応答性を示す強相関化合物の探索を行うことにより、XFEL 完成の初期段階で世界に先駆けて成果を挙げる事が期待される。

4. 平成20年度の研究概要

顕微鏡試作機の性能評価に基づき、小型軽量鏡筒の設計・作製を行った。図1は小型軽量鏡筒の全体像である。800 nm のフェムト秒レーザーを導入することにより、イメージ光の発生、イメージ光の光学遅延、イメージ光による拡大試料像の作成、を行うことが可能である。画像記録に関しては、Lock-in 方式と A/D 変換方式を比較し、測定速度・精度ともに優れた後者の方式を選定した。La_{0.6}Sr_{0.4}MnO₃ で性能試験を行ったところ、空間分解能 3 μm 、時間分解能 100 fs を得た。

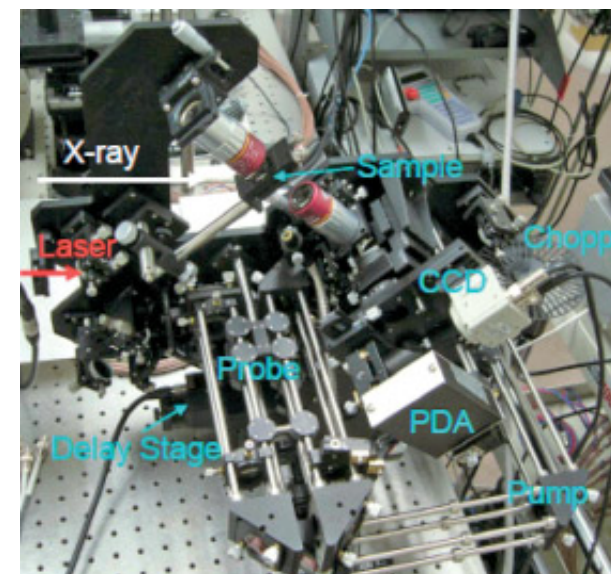


図1 ●小型軽量鏡筒

上記小型軽量鏡筒の時間制御を行うため、放射光 X 線とフェムト秒レーザーとのタイミング制御装置を製作した。図2は、放射光 X 線パルスの基準信号のパルス数と位相差を利用した高精度遅延器であ

る。これにより、蓄積リング放射光施設用には 2 ps のタイミング精度で、自由電子レーザー用にはサブピコ秒の精度で、放射光 X 線パルスとフェムト秒レーザーの遅延時間を自在に設定できるようになる。SPring-8 蓄積リング BL19LXU において放射光用に高周波遅延器を導入し、システム開発を行い、GaAs 半導体の高速格子応答について実証実験を行った。



図2 ●高精度遅延器

顕著な光応答性のある物質として、光誘起相転移を示すプルシャンブルー型シアノ錯体を選択した。信頼性の高いデータを得るために良質薄膜の作成条件を確立した。フェムト秒時間分解分光を行ったところ、800 nm の光励起により電荷移動状態が生成し、数 ns の寿命を持つことが明らかになってきた。

5. 成果の社会還元

本開発研究により、光記録等の光誘起現象の機構解明とその材料開発が飛躍的に進展すると期待される。特に、MEM 電子分布の時間発展を調べることにより、光によるミクロな電子励起からマクロな構造変化へのプロセスが明らかになり、現在の電子デバイスを超えて高速、大容量デバイスの実現に大きく寄与する。

ガス吸着ダイナミクス研究のための時間分解 X線回折データ測定技術の研究開発 — 1千兆分の1秒 (フェムト秒) の瞬間におけるナノ気孔分子をみる —

研究代表者 北川 進 (京都大学)

共同研究者 大場 正昭 (京都大学)

田中 義人 (理化学研究所)

小林 達生 (岡山大学)

田中 宏志 (島根大学)

高田 昌樹 (理化学研究所)

黒岩 芳弘 (広島大学)

久保田 佳基 (大阪府立大学)

1. 研究実施の背景・目的

多孔性材料はさまざまな場所や目的に用いられる非常に重要な機能性物質群である。これらは、石油工業における分離材料、水道水の浄化・脱臭剤として使用されており、もはや多孔性材料なしに現代の生活は成り立たないといっても過言ではない。これまで、多孔性材料の研究は、ゼオライトなどの無機固体や、活性炭をはじめとする炭素材料を対象としたものであった。従来の細孔物質は、それぞれに優れた吸蔵、分離、触媒活性といった細孔機能を有しているが、微細な細孔の制御が困難であるため、特定の物質を高選択的に吸蔵する細孔材料、複数の機能を共存させた高機能かつ多機能な細孔材料などは実現できていない。

多孔性金属錯体は、極めて規則性の高いナノサイズの細孔を持つ結晶物質であり、ガスの分離や精製、貯蔵への応用が期待されている新しい材料である。この物質を構成する金属と有機分子をうまく選ぶことにより、様々な大きさ、形、機能を持つ細孔構造

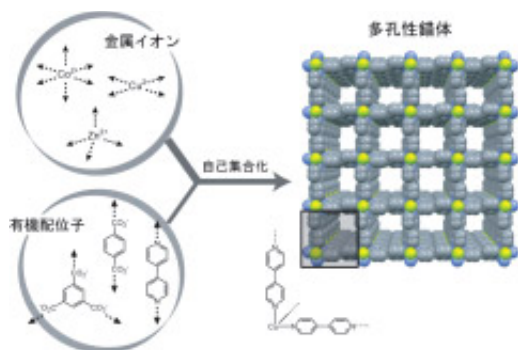


図1 ● 多孔性金属錯体

を簡便に作る事が可能であり、近年、この物質群の研究は目覚ましい発展を遂げている。この物質の合理的設計・合成において、吸着されたガス分子および錯体骨格の構造情報は必要不可欠なものである。私たちの研究グループは、SPring-8の高輝度放射光と新しい電子密度イメージング法を用いた結晶構造研究を行い、酸素や水素、アセチレンなどのガス分子がナノ細孔内で整列構造をとりながら吸着されていることを明らかにしてきた。そして、これまでの研究により、ガス分子に応じて柔軟に骨格構造を変化させ分子を取り込む機構が大変重要であるとの認識に至った。しかしながら、私たちの研究も含めて、これまでは主として飽和吸着状態についての研究が行われ、ガス分子の導入から飽和吸着に至るまでの過程についての構造情報は全く明らかにされていなかった。この導入過程の構造情報を詳細に得ることで、高い機能を有する画期的な多孔性材料の創出につながる。

本研究では、ガス導入から飽和吸着に至るまでの、ガス分子の挙動、そして、ガス分子の大きさ、形、細孔との相互作用に応じた骨格構造の変化を、超高輝度XFEL光源を用いた時間分解回折実験により明らかにすることを目的とする。

2. 研究内容

吸着現象の時間スケールはガス分子と細孔との相互作用によって異なり、多くの場合、それは不可逆過程である。可逆過程に近い物理吸着の場合でも温度や圧力に対する応答は光や電場などに比べると遥かに遅い。したがって、吸着過程を連続的に観測す

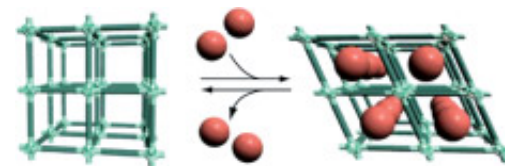


図2 ● 分子吸着に応じた柔軟な構造変化

るには、数ナノから数ミリ秒オーダーの時間分解能で回折データその場測定を行う必要がある。このような極短時間のデータ測定においては、XFELのような超高輝度光源が必要となる。

本研究では、X線回折データのストロボ撮影により、数ナノから数ミリ秒程度の時間分解能でのガス吸着その場測定技術の開発を行う。また、電子密度分布と静電ポテンシャルを求める技術や、得られた結果を可視化し、吸着分子とナノ細孔との相互作用の理解を支援するソフトウェアの開発も行う。

3. 期待される成果

本研究で開発する時間分解X線回折データ測定装置により吸着過程全体を通しての構造変化を明らかにすることができる。特にXFELの極めて短いパルス幅を活かしたストロボ撮影は、**1千兆分の1秒 (フェムト秒) の瞬間の像の観測**を可能にする。すなわち、ある時間の間の平均のぼやけた像ではなく、はっきりした像として、吸着過程の構造変化を観測することができるかと期待される。

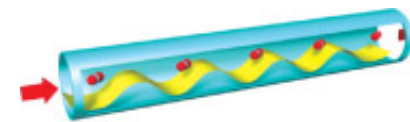


図3 ● 細孔チャンネルを通過するガス分子

4. 平成20年度の研究概要

SPring-8の理研ビームラインBL19LXUにて時間分解回折データ測定装置を組み上げて試験実験を行った。標準試料を用いて、ビームストッパーの位置調整、CCDカメラの読み出し条件の検討、カメラ長の導出、回転シャッターの動作調整などの基本調整を行った後、多孔性金属錯体試料によりガス吸脱着過程の回折データ測定を試みた。試料部に一定圧力のガスを導入し、降温して試料にガスを吸着させた。その後、昇温しながら回転シャッターを同期させ、ガスが放出される過程の時間分解データを測定

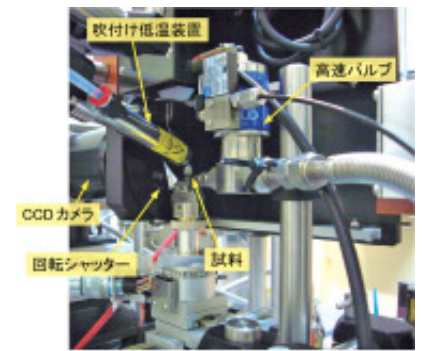


図4 ● 本課題で製作した時間分解回折データ測定装置

した。その結果、ガスの放出に伴う回折ピーク的位置の変化を観測した。この測定では温度・圧力の変化と回転シャッターとの同期が重要であり、測定したい状態を得るために試行錯誤的に条件を探している。現在、高速バルブによるタイミング制御にも取り組みながら、一方で本実験のターゲットとなる新規多孔性金属錯体試料の探索を進めている。

5. 成果の社会還元

ガス分子がナノ細孔によってどのように認識され、取り込まれていくのかを連続的に観測して可視化することは、ガス分子とナノ細孔との相互作用の理解につながり、また、ガスの貯蔵や分離を始めとする機能を有する多孔性金属錯体の合理的な設計・合成に指針を与える。さらに、ガス分子整列による新規物性の発現、それを利用した新規機能性ナノ空間の創製にも発展が期待される。ガス分子は現代社会の様々な課題に広く関わっており、エネルギー(アセチレン、メタン、水素など)、環境(二酸化炭素、低分子イオウおよび窒素酸化物など)、生体(酸素、一酸化窒素など)などを始めとする様々な分野での問題解決に貢献する重要な知見を得ることができると期待される。

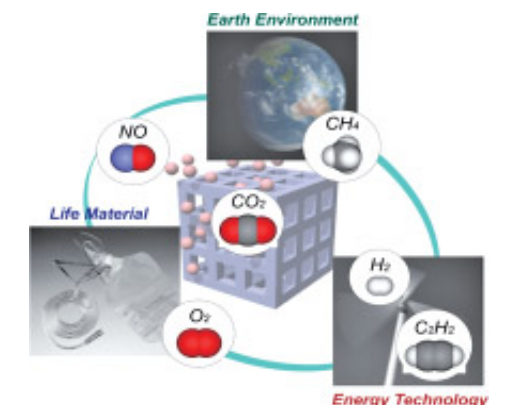


図5 ● 重要な小分子気体

癌細胞の転写関連タンパク質の網羅的マップ構築と臨床応用

研究代表者 照井 康仁 (財団法人癌研究会 癌化学療法センター臨床部)
共同研究者 三嶋 雄二、松阪 諭、谷山 顕子、國吉 良子、坂尻 さくら (財団法人癌研究会 癌化学療法センター臨床部)
 (株) オリンパス オリンパスイメージングラボ

1. 研究実施の背景・目的

悪性腫瘍における転写関連タンパク質の動態を網羅的に把握するために、各種転写関連タンパク質に結合するDNA、RNAおよびペプチドを含めたタンパク質を細胞内に存在しない金属元素分子と有機的に標識する技術を確認する。最終目標として、共焦点レーザー顕微鏡と比較検討し、固定細胞や生細胞における転写関連タンパク質の発現動態および構造変化をX線自由レーザーで解析し、悪性腫瘍の診断や耐性機序の解明に役立てる。

2. 研究内容

1. 金属結合型プローブの開発に関する研究

細胞内の特定の分子(受容体、シグナル伝達分子、転写因子など)の挙動を高解像度で解析することを目的として、通常細胞内に存在しない金属元素を用いて特定の分子を標識する方法を開発する。

2. 金属結合型プローブを用いた標的分子標識法の開発

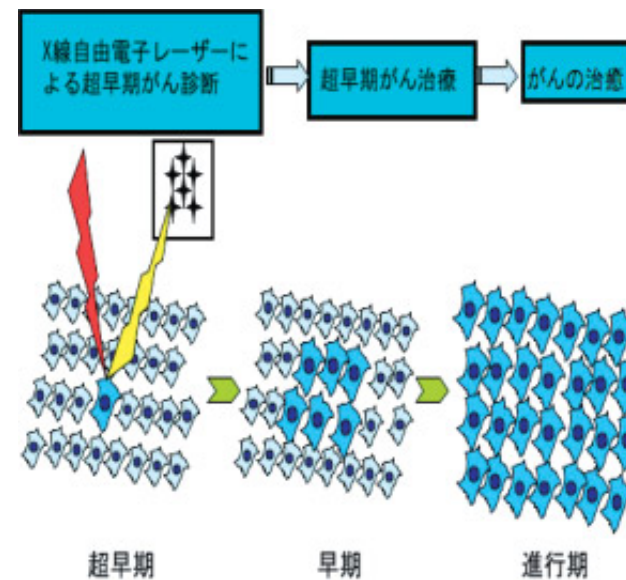
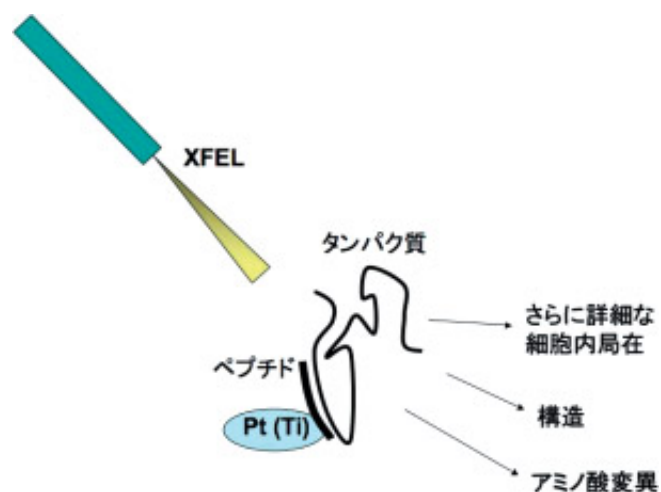
癌の転移機序を解明するためには、細胞運動の調節機構と血管新生機構の解明が重要であり、生体内でのこれらの現象を解明するために、*in vitro* で生体内に近い環境を作製し、X線自由電子レーザーを用いて経時的に高解像度ビデオ撮影できる実験系を確認する。

3. 転写因子関連タンパク質の層別化とプローブ作製

共焦点レーザー蛍光顕微鏡では分子の局在変化や発現変化は観察できるが転写因子の活性化や不活性化の変化は判別できない。各種転写因子関連タンパク質を転写段階的に層別化し、結合DNAやペプチドを金属元素で標識してその動向を解析する。

3. 期待される成果

現在の癌研究は癌細胞のマスに依るところが大きく、抗癌剤耐性などの観点からは最小単位である細



胞個々の内部情報収集が望まれている。各種癌細胞における特異性と増殖は、特異的転写関連タンパク質の発現増強と活性化、局在に追うところが大きく、転写因子関連タンパク質の分子標的薬剤の臨床応用が進んでいる。癌細胞内の転写関連タンパク質の動態を網羅的に把握することは悪性腫瘍の診断や個別治療の新しい分野の開拓に繋がる。

4. 平成20年度の研究概要

(1) 金属結合型プローブタグベクターの開発

金属結合型プローブの作成による細胞内の特定のタンパク質の標識を行うことにより、抗がん剤投与時の特定の分子の細胞内での挙動をXFELを用いて評価する技術開発が最終的な目標である。この目標に向け、細胞内の特定の分子(受容体、シグナル伝達分子、転写因子など)の挙動を高解像度で解析するための手段として、通常細胞内に存在しない金属元素を用いて特定の分子を標識する方法と蛍光標識する方法を同時に開発することが必要であり、平成18、19年度にセットアップした、大腸菌ペプチドライブラリーの金属プレートを用いたスクリーニングシステムを稼働させる。

(2) 金属結合型プローブを用いた標的分子標識法の開発

平成18年度に引き続き、癌転移に関与するシグ

ナル伝達タンパク質と結合する金属元素融合タンパク質プローブをスクリーニングにより同定し、同時に蛍光標識することで、共焦点レーザー走査顕微鏡により金属結合型ペプチドの生細胞内局在を詳細に検討し、癌転移の機序の解明の基本設計を行う。

(3) 転写因子関連タンパク質結合DNA、RNA、タンパク質の金属分子標識法と細胞内結合の確認法の開発

平成18、19年度に行った癌の転写に関する遺伝子のクローニングに引き続き、そのタンパク質に結合する特異的ペプチド探索のため、網羅的に大腸菌ペプチドライブラリーのスクリーニングを実施する。一分子蛍光分析システムによるスクリーニングを用いて転写因子名札付けの技術を開発し、ペプチドの基本的性能を評価する。

5. 成果の社会還元

本研究は癌の超早期がんの診断、超早期がんの治療、薬剤耐性化などの癌診療において新しい分野が開拓できることで国民に還元できる。また、タンパク質検出法や構造解析法では新しいアプローチの方法として期待できる。

FEL 高分解能光電子イメージング装置の開発

研究代表者 鈴木 俊法 (理化学研究所)

共同研究者 堀尾 琢哉、小城 吉寛、藤 貴夫、西澤 潔 (理化学研究所)

1. 研究実施の背景・目的

分子は負の電荷を持つ電子と正の電荷を持つ原子核から構成される。電子は原子核より数千倍軽いいため、分子内で高速に運動して原子核に力を及ぼし、分子構造(原子核の位置)を変化させる。電子の運動状態変化が化学反応の起源である。その変化をリアルタイムに捉えれば、化学反応機構が解明できる。アインシュタインは、物質に光を照射した際に、電子が特定の運動エネルギーで放出される現象(光電効果)を発見した。光電効果を利用して、分子内の

電子を真空中に放出させて電子運動を解析する方法が光電子分光である。

FELは非常に輝度の高い短波長光源であり、その光パルスの時間幅も1兆分の1秒以下である。したがって、分子(例えば生体分子)から瞬間的に電子を放出させる目的で非常に有効である。可視・紫外レーザーとFELを組み合わせ、光化学反応を可視あるいは紫外域のレーザー光によって起こさせ、FELで追跡する時間分解光電子分光によって、光化学反応機構を明らかにすることができる。真空中に孤立した分子を光イオン化すると、3次元空間のあらゆる方向に電子が放出される。これら放出電子の3次元分布を2次元画像として観測するのが光電子イメージングである。

2. 研究内容

FEL光源は、光パルス1個当たりの光子数が大きい、パルスの数は1秒間に60個と少ない(通常のレーザーに比べると1-2桁低い周波数である)。我々は、FELの能力を最大限引き出すためにも、パルス一個毎に得られる信号(電子)をもれなく観測するイメージング装置を開発した。特に今回努力したのは、イメージング分解能がデジタルCCDカメラのピクセル数で制約される困難を克服する超解像処理を採用し、イメージング分解能を極限まで高めた点である。超解像処理は、種々のアルゴリズムか

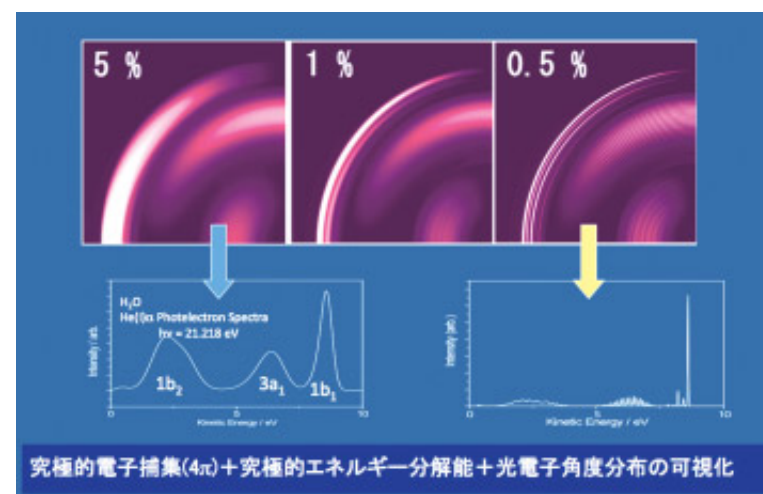


図1 ●水分子をエネルギー21 eVの真空紫外光でイオン化した場合のシミュレーション 光電子イメージの一部(全画面の1/4)を、実験装置の分解能5,1,0.5%の場合について示した。5%と0.5%の場合について、これらの画像から抽出される光電子エネルギー分布をスペクトルとして下に示した。5%の分解能では水の3つの電子軌道から電子が放出された場合の分布が分かれてみただけだが、0.5%では分子振動による構造が明確に分離される

ら最適なアルゴリズムを選択し、これを電子回路(FPGA)に実装して行った。電子エネルギー分解能によってデータが異なる様子を、図1にシミュレーションで示す。これは21 eVの真空紫外光で水(H₂O)分子を光イオン化した場合である。エネルギー分解能が5%では、水の3つの電子軌道からの分布が分かれるだけである分解能が0.5%になると、これら3つの分布が細かな構造から成り立っていることが分かる。この構造は、分子振動によるものである。本研究では、分解能0.1%を実現する。図1のシミュレーションは、安定な水分子を対象としたものだが、実際の時間分解実験では可視・紫外光で励起された分子から放出される、時々刻々と変化する光電子のイメージを撮像する。

さらに、我々は光電子検出器の開発のみならず、光電子イメージングの対象となる化学種を資料として真空中に導入する方法論の開発も行った。気体に関しては、超音速分子線、液体に関しては、液滴噴霧法と液体層流法の二つを開発した。

3. 期待される成果

化学反応機構を電子運動レベルで詳細に解明する。現在、実験室レベルで行われている最先端の時間分解分光においても、レーザー波長が長いことから励起電子軌道からの電子放出しか実現されていない。FELを用いれば、化学反応が起こる際に、分子内の複数の軌道でどのような変化が同時に起こっているかを追跡することができる。このような実験は世界的にも前例がない。

4. 平成20年度の研究概要

平成18、19年度前半に精査した超解像処理のアルゴリズムに基づき、平成19年度に開発したリアルタイム演算回路(FPGA)を試験し、イメージング分解能として0.1%が達成されていることを確認した。さらに、実験室において21 eVの真空紫外光を照射した実験を行い、散乱光による真空チャンバーからの雑音を削減して、光電子イメージを得ることに成功した。図2にKrクラスターをイオン化して得られた光電子イメージを示す。この装置を第2期に、FEL試験用加速器(SCSS)において、時間分解光電子イメージング実験に利用する。

検出器の開発と並行して進められてきた液滴ならびに液体層流を用いた試料導入法の開発研究では、

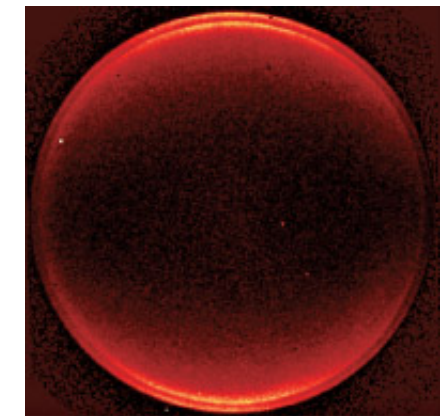


図2 ●21 eVの真空紫外光でKrクラスターを光イオン化した際の光電子イメージ 二つの輪は、光イオン化して生成するKr⁺の二つのスピン軌道状態の分裂が現れたものである

流体力学的な噴霧によって生成された液滴の分析を赤外分光によって行った。その結果、トレハロースなどの糖水溶液においては、直径数十から百ナノメートル程度のアモルファス固体が生成できることが確認された。また、層流に関しては、Spring-8のBL17において軟X線を照射し、液体層流から発生する光電子スペクトルを観測すると共に、アミノ基NH₂のプロトン化による内殻電子のエネルギーシフトなどを明瞭に観測することに成功した。これらは、XFELによる液体の研究に道を拓くものである。

5. 成果の社会還元

電子状態や分子構造の変化を伴う化学反応をリアルタイムに捉える最先端の研究は、その結果の明快さにおいて、理科を学ぶ子供達にすら明快な、分子や化学反応の正確な概念を提供する。例えば、FEL光電子イメージングによって観測される、美しい電子分布の輪は、分子内に束縛された電子が離散的なエネルギーを持つ量子力学の原理を直接反映したものであり、それが高速に変化する様子は分子構造変化を明らかに示すものである。真空紫外光や軟X線領域の光は、光電効果によって分子内の電子を瞬間的に放出させるという目的においては最も有効であり、現時点ではFELが他の光源を遙かに凌ぐ出力を誇る。したがって、FELを用いた時間分解光電子イメージングは、FELが計画された性能を發揮する限り、極めて有望である。また、欧州や米国もFEL建設に鎬を削っている状況であるが、時間分解分光は、我が国が優位性や独創性を發揮できる可能性の高い分野である。

フェムト秒精度での タイミング信号伝達・計測技術開発

研究代表者 玉作 賢治 (理化学研究所)
共同研究者 大竹 雄次 (理化学研究所)
 武者 満 (電気通信大学)
 今井 一宏 (株式会社 光コム)

1. 研究実施の背景・目的

建設中のX線自由電子レーザー施設では、現在の1000分の1となる100フェムト秒(1フェムト秒=1千兆分の1秒)以下の時間幅を持つ高輝度X線が利用可能となる。つまりこれまでの1000倍も高速な現象を捉えることが可能となる。現在すでにこの特性を活用した様々な新奇利用研究が提案されている。一例を挙げると、X線レーザーに同期させた別のフェムト秒赤外レーザーによって物質を刺激し、その後の状態変化をフェムト秒の時間領域で解明するなどである。

これらの研究の実現のためには、当然ながらフェムト秒の精度でタイミングを制御・計測することが必須となる。そのための共通基盤技術として(1)X線レーザーがやってくるタイミングを正確に知らせる「フェムト秒精度信号伝達」技術を開発する。しかし実際には同期させるべき赤外レーザー自身が十分な時間精度を持っていない。そこで(2)X線レーザーと外部赤外レーザーとの照射タイミングを正確に決定する「フェムト秒精度タイミング測定」技術も同時に開発する。

2. 研究内容

フェムト秒精度信号伝達装置は、全長800mに及ぶ光によるタイミング信号伝達システムである。この中でタイミング信号(加速器の基準信号)は光に変換されて利用者まで光ファイバーによって伝送される。ところが何もしないと光信号の到着時刻が時々刻々変化して、伝送されたタイミングは不正確

になってしまう。これは温度変化や振動により光ファイバーの長さが変化してしまうためである。そこでその変化量を監視して、常に逆の変化を与えることによって全長を一定に保つようにする。こうしてタイミング信号は、フェムト秒の精度を持って800m離れた利用者に届けられる。

フェムト秒精度タイミング測定装置は、X線自由電子レーザーとフェムト秒赤外レーザーとの照射タイミングを非破壊で測定する。まず2つが常に時間的に重なる程度に赤外レーザーのパルス幅を広げる。ここにX線レーザーの元となる電子ビームの時間的な位置の“しるし”を付ける。この“しるし”は素早く刻印する必要があるため、電気光学効果による偏光面の回転を利用する。フェムト秒の時間を直接測定することは出来ないため、時間的な位置情報を空間情報に変換して、外部赤外レーザーパルスと電子ビームの間の相対的な時間差を求める。こうして決定された2つのレーザーのタイミングは数値化されて利用者に提供される。

3. 期待される成果

本研究開発により、外的要因によるタイミング信号の時間的な変動が完全に抑えられる。この結果、長期間に渡って信頼性の高いタイミング信号を利用出来るようになる。また外部赤外レーザー自身の持つ時間揺らぎは、タイミング測定系によりその量を随時モニターしデータ処理時に補正することが可能となる。これらによってX線自由電子レーザーの持つフェムト秒領域の超短パルス性を最大限に利用出来るようになる。

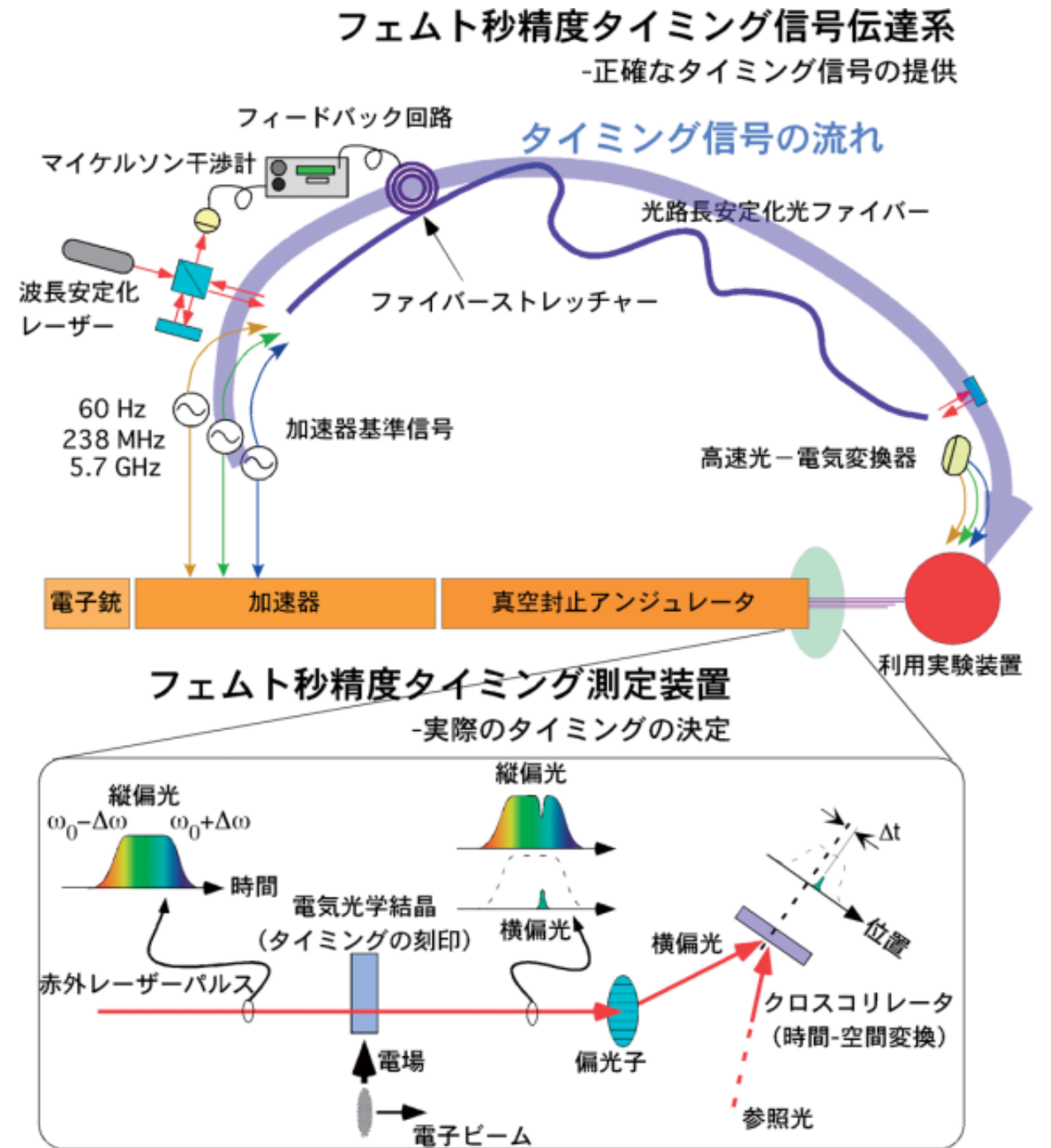
4. 平成20年度の研究概要

前年度までに開発した各構成装置を組み合わせ、X線自由電子レーザーのプロトタイプ加速器にてフェムト秒精度信号伝達装置を構築し、実環境での性能評価を行っている。特に真空紫外自由電子レーザー光と伝送した信号とのタイミングを測定し、測定限界(2ピコ秒)以下の精度が出ていることを確認した。

またプロトタイプ加速器にフェムト秒精度タイミング測定装置を設置して、フェムト秒赤外レーザーのタイミング測定の試験を行っている。

5. 成果の社会還元

フェムト秒精度タイミング伝達・計測装置は、現在提案されている様々な研究テーマ-外部レーザーポンプ-X線レーザープローブ計測、フェムト秒領域磁気スイッチング計測、熱プロセス下での高時間分解能その場観察、時分割光電子分光測定-での活用が期待される。これによって本研究成果は、例えば国民生活に役立つ機能性材料の開発を促進するなど、間接的に社会に貢献できると期待される。



XFEL 光による分子・クラスターの構造とダイナミクス

研究代表者 山内 薫 (東京大学)
共同研究者 柳下 明 (高エネルギー加速器研究機構) 神成 文彦 (慶應義塾大学)
 山川 考一 (日本原子力研究開発機構) 緑川 克美 (理化学研究所)
 中野 秀俊 (NTT 物性科学基礎研究所)

1. 研究実施の背景・目的

理化学研究所が開発するXFELが高輝度であることを活用し、以下の目標を目指し、日本の持つ先端光科学・技術を基盤として、先端基礎学術分野において世界をリードすることを目指している。

【目標1】 XFEL光と超短パルスレーザー光源との精密な同期技術を確立し、軟エックス線領域のコヒーレント高次高調波によってXFEL光のシード化の実現を目指す。

【目標2】 シード化された軟エックス線FEL光とレーザー光源との時間分解測定によって、

軟X線領域における強光子場下での分子およびクラスターの光応答ダイナミクスをイオンおよび電子計測によって追跡する。

【目標3】 硬X線領域のXFEL光とレーザー光源とのポンププローブ計測により、X線回折像の変化から、分子およびクラスターの幾何学的構造の変化を実時間計測する。

【目標4】 近赤外域から真空紫外領域の広い波長域において、デザインされた先端レーザー光源を開発し、分子制御及び反応制御を行い、その過程を高強度極端紫外～軟X線FEL光源によるイオン化、または、硬X線による回折測定によって追跡する。

2. 研究内容

XFEL光と超短パルスレーザー光との同期技術を確立し、プロトタイプXFEL機(軟X線FEL)を、コヒーレント高次高調波によってシード化するという基盤技術開発を行う。さらに、そのシード光源を用いて、軟X線領域の強光子場と分子およびクラスターの相互作用の解明を行う。そして、ポンプ・プローブ計測により、実時間でのダイナミクス計測を行うとともに、超短パルスレーザー光をデザインし、ダイナミクスの制御を行う。また、実機XFEL光と超短パルスレーザー光との同期実験によって、X線回折の実時間計測を行い、分子やクラスターの幾何学的構造の変化を実時間で追跡する。

3. 期待される成果

時間コヒーレンスを持つ極短波長領域高輝度光源の開発によって、XFELとレーザー光による実時間

計測のための研究基盤が整備され、極短波長領域強光子場における原子・分子・クラスターのダイナミクスや、分子やクラスターの幾何学的構造の超高速過程が解明されると期待される。

4. 平成20年度の研究概要

本プロジェクトでは、プロトタイプXFEL機による高強度の軟X線FEL光を用いた分子のイオン化実験を行い、軟X線領域の強光子場による分子の非線形光学過程を観測することに初めて成功し、2008年4月に*Appl. Phys. Lett.* 誌に発表した^[1]。その成果は、播磨におけるXFEL光の利用研究としての初めての学術的成果として、*Journal of Synchrotron Radiation* 誌(2008年9月号)にも紹介された^[2](図1)。

現在、軟エックス線領域のコヒーレント高次高調波によるXFEL光のシード化の実現を目指し、そのための第一歩として、高輝度フェムト秒レーザーとFEL光との同期システムの構築を、理研播磨研の協力の下で進めている。図2のシステムを構築し、レーザー発振器(79.3 MHz)とXFELのマスター発振器(238 MHz)を同期させ、タイミングジッターを2 psにまで減少させた。すでに、反応追跡のためのポンプ・プローブ実験に使える状況にあるが、より高精度の実時間計測やシード化のためには、ジッターを更に減少させることが必要である。そのため、実験室環境の整備およびレーザー光源の安定化に向けた改善を進めている。

また、同期実験に用いる超短パルスレーザーシステムについては、波形整形や超広帯域OPAなどの先端レーザー光源技術を導入する他、分子ダイナミクスの解明に向けた光電子・イオン運動量画像計測

装置を導入する。

これらの研究プロジェクトについては、いずれも、山内グループ、柳下グループ、神成グループ、山川グループ、緑川グループ、中野グループが緊密な連携体制の下に推進しているものである。

5. 成果の社会還元

欧州では、XFELのプロジェクトが盛んに進められており、FLASHでは、超短パルスレーザーによるシード化を目指して、加速器科学分野の研究者・技術者がレーザー科学分野の研究者・技術者と協力体制のもと、フロンティア研究に向かって努力を積み重ねている。残念ながら、シード化については、日本の研究チームは後手に回る可能性が極めて大きくなってきた。今こそ、加速器科学とレーザー科学の分野の研究者がより積極的に連携し、研究基盤をさらに充実させること、そして、播磨のXFEL施設を最大限活用し、知のフロンティアを開拓することが必要である。これこそ社会への還元である。

文献：

- [1] "Dissociative two-photon ionization of N₂ in XUV by intense self-amplified spontaneous emission free electron laser light" : T. Sato, T. Okino, K. Yamanouchi, A. Yagishita, F. Kannari, K. Yamakawa, K. Midorikawa, H. Nakano, M. Yabashi, M. Nagasono, T. Ishikawa, *Appl. Phys. Lett.* 92, 154103 (2008) .
- [2] "Two-photon and three-photon ionization process of N₂ by using intense XUV light" : T. Sato, T. Okino, K. Yamanouchi, A. Yagishita, F. Kannari, K. Yamakawa, K. Midorikawa, H. Nakano, M. Yabashi, M. Nagasono, T. Ishikawa, *Journal of Synchrotron Radiation* 15, Part 5, facility information pages (September, 2008) .

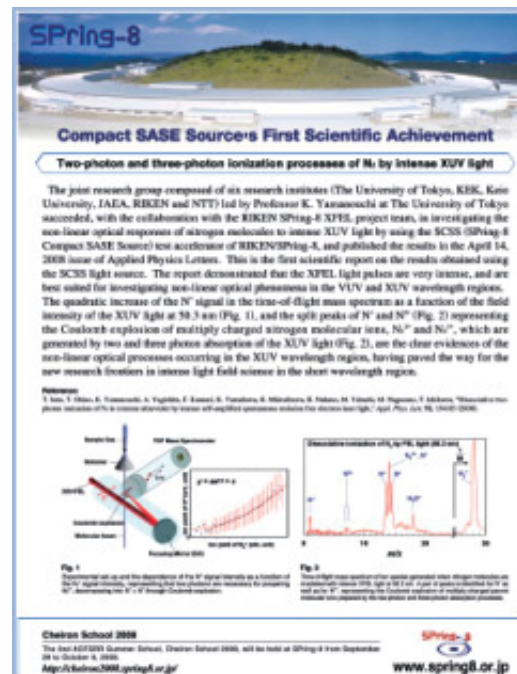


図1 ● プロトタイプXFEL機を用いて得られた初めての応用研究の成果^[1,2]

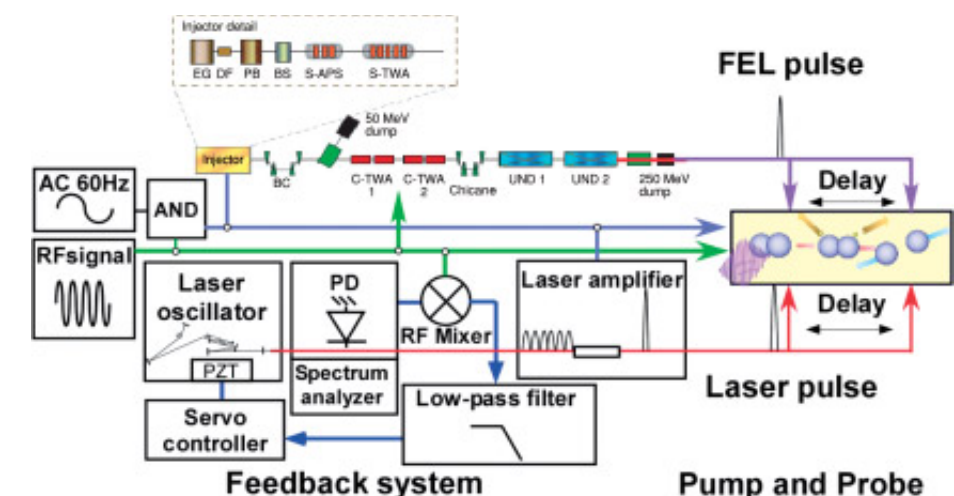


図2 ● XFEL-超短パルスレーザー周波数同期システム

K・Bミラー光学系によるXFEL ナノ集光システムの開発

研究代表者 山内 和人 (大阪大学)
共同研究者 大森 整 (理化学研究所)
 三村 秀和 (大阪大学)

1. 研究実施の背景・目的

そのままでも超高輝度であるX線自由電子レーザー(XFEL)をさらに100 nm以下まで集光することができれば、これまで誰も手にしたことがないような極めて高い光子密度のX線を得ることができるようになる。XFELを用いるすべての研究で分解能、感度を飛躍的に向上させることが可能となる。現在、様々な光学素子によって、放射光を100 nm以下まで集光することが実現できている。しかし、SPRING-8に比べピーク輝度が10の8乗倍とされているXFELでは、集光素子がXFELを吸収することで瞬時的な蒸発が起これ、集光素子の損傷は避けられない。このため、透過型の集光素子ではなく、全反射ミラーを用いたK・B(Kirkpatrick Baez)光学系がXFEL集光のために唯一の方法であると考えられる。本研究ではXFELを50 nmレベルで集光可能な

K・Bミラー光学システムの実現を目指している。

2. 研究内容

超高輝度X線に対して、ミラーの損傷を避けるために、ミラーによるX線の吸収をできる限り小さくする必要がある。そのために本研究ではミラーの材質として吸収の少ない軽元素(シリコンなど)を採用している。その反面、大きな入射角ではX線を反射させることができず、集光径を現状の放射光用ミラーと同等レベルで維持するためにはミラー長を長くすることが必要である。

本研究では超高精度な400 mm長尺集光ミラーと200 mm長尺集光ミラーを作製することで、XFELを50 nmレベルまで集光可能な集光システムの開発を目指している。これまで世界中で開発されてきたサブ100 nm集光が可能なK・B光学系の集光ミラーでは、そのミラー長さは最大でも大阪大学で作製された100 mm程度である。本光学系では、長さ400 mmのミラー全面にわたって4 nm(P-V)以下の形状精度が必要であり、このような大面積かつ高精度なミラーを作製するためには、新たな加工、計測技術を確立する必要がある。

XFELを集光可能な大型集光ミラー作製のために、以下に挙げる超精密加工技術と超精密計測技術を組み

合わせることで、大型であるにもかかわらずスペckルフリーの集光ミラーの開発を行う。①Electrolytic In-process Dressing (ELID)研削：理化学研究所にて大森らが担当。基板インゴットから形状精度10 nmレベルまで加工、②Elastic Emission Machining (EEM)：大阪大学にて山内らが担当。ELID研削後の表面を1 nmレベルで形状修正、③傾斜角決定型ステッチング法(RADSI)：大阪大学にて山内らが担当。1 × 10⁻⁷ radの精度で形状計測。

また、集光されたXFELを長時間安定して利用するためには、大型集光ミラーの入射角を常に最適値で維持することができる新しい入射角制御技術が必要である。そのために集光ミラー自体に入射角の変化に対応して干渉縞が変化するフレネルミラーを組み込んだ複合集光ミラーの開発も同時に行う。

また、集光されたXFELを長時間安定して利用するためには、大型集光ミラーの入射角を常に最適値で維持することができる新しい入射角制御技術が必要である。そのために集光ミラー自体に入射角の変化に対応して干渉縞が変化するフレネルミラーを組み込んだ複合集光ミラーの開発も同時に行う。

3. 期待される成果

XFELの集光技術は極微弱シグナルを扱う研究に必要な不可欠な技術である。例えば、一つのタンパク質だけからその構造を決定することが可能な一分子構造解析では、1タンパク質からの微弱散乱X線を検出する必要があるが、XFELを用いたとしてもX線強度が十分ではない。本研究のK・B光学システムを用いることで、一分子構造解析が実現可能であり、これによって膜タンパク質などこれまで構造を決定することができていなかった重要なタンパク質の構造を決定することができ、医学、創薬研究に大いに貢献できる。

4. 平成20年度の研究概要

本年度は真空対応K・B光学システムの開発を進め、11月にシステムの動作確認と真空中でのナノビーム成形をSPRING-8のBL29XULで確認した。また、長時間の姿勢安定化のために開発を進めているフレネルミラーによる入射角安定化技術のための最初の実験を行った。本システムによって明瞭な干渉縞を得ることができ、入射ビームを基準にミラーの姿勢を必要精度でモニターすることに成功した。

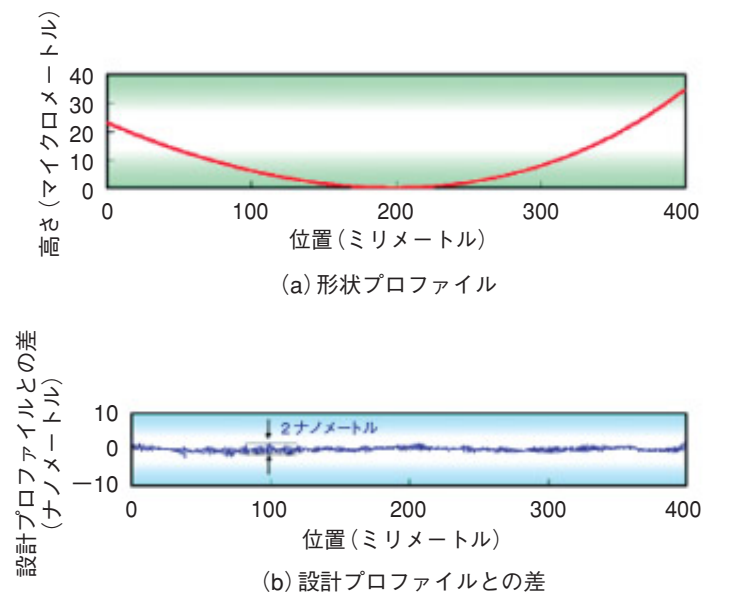


図2 ● 作製した鏡の形状と形状誤差プロファイル ELID研削法とEEM加工法の連携により作製された大型集光ミラーの形状プロファイルと形状誤差。原子レベルの世界最高の精度で表面を完成させている

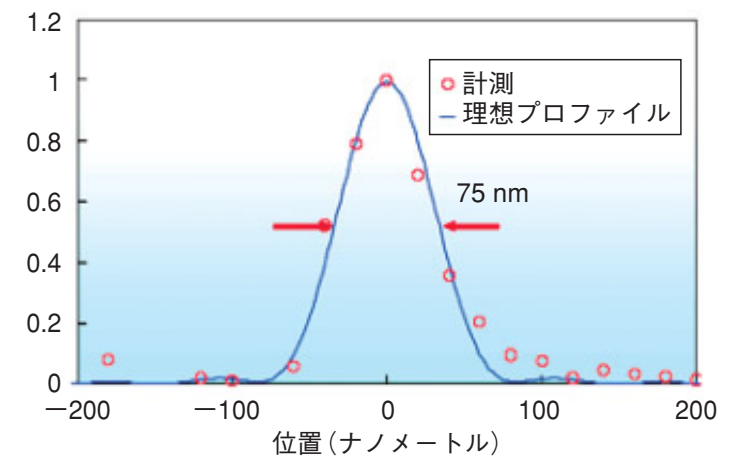


図3 ● 作製した集光鏡により集められたX線の強度プロファイル(X線の波長0.8オングストローム) 青が理論的に予測される強度プロファイル、○が計測結果。理想的な集光が実現されていることがわかる

5. 成果の社会還元

XFELの応用研究では医学、生物、材料などのすべての分野において革新的な研究成果が期待されている。X線集光技術はこれら応用研究を縁の下から支えるものであり、すべての研究分野への波及効果が大きい。また、XFEL用ミラー作製のために研究される超精密加工・計測技術は、高精度加工が要求されるすべての工業分野に応用可能である。

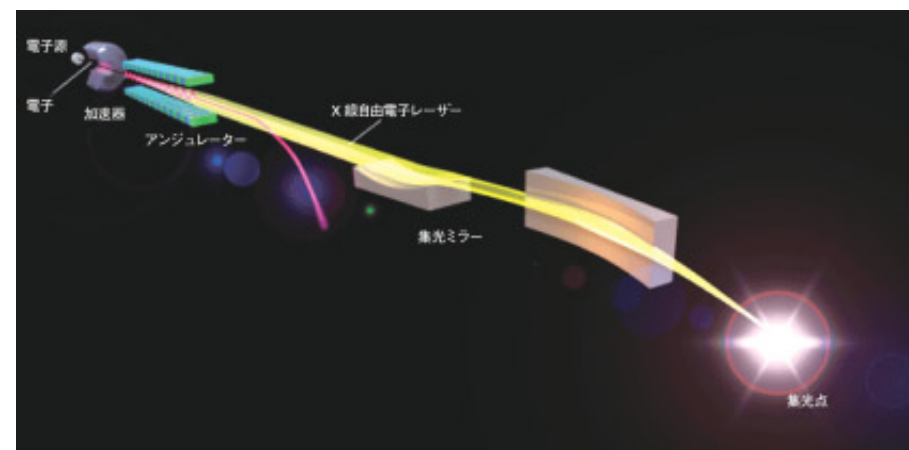


図1 ● K・Bミラー光学系によるXFEL集光の概念図 (a) 形状プロファイル

コヒーレント散乱による材料科学現象可視化 基盤技術の研究開発 —XFEL シングルパルス X線回折顕微鏡法実現のための基盤技術開発—

研究代表者 松原 英一郎 (京都大学)
共同研究者 西野 吉則 (理化学研究所播磨研究所)
 香村 芳樹 (理化学研究所播磨研究所)
 高橋 幸生 (大阪大学)

1. 研究実施の背景・目的

コヒーレント散乱イメージング法 (X線回折顕微鏡法) は、X線の透過能とコヒーレント回折の高い干渉性を利用して、ミクロンメートルスケール (100万分の1メートル) の大きさの物質内部を、10ナノメートルオーダー (1億分の1メートル) の分解能で見ることができる新しい物質評価法である。この方法は、図1に示すように、既存の電子線を使った透過電子顕微鏡法などでは観察が困難なより厚い試料に適用できる他、他の手法では観察できないひずみの分布を観察できる可能性があるなど、既存材料評

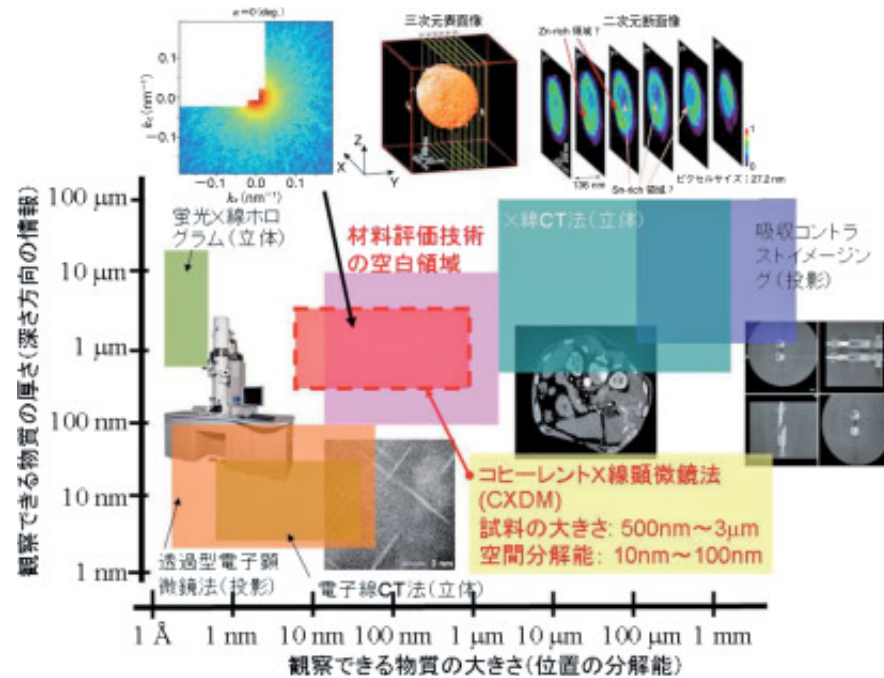


図1 ● X線回折顕微鏡技術と他の物質評価技術の比較 (Y.Takahashi et al., Appl. Phys. Lett. 184105 (2007))

価技術の弱点を補完できる新しい評価技術である。本研究では、このX線回折顕微鏡法を高コヒーレントで高強度なパルス性のX線自由電子レーザーと組み合わせ、X線自由電子レーザーの単一パルスでコヒーレント散乱イメージングを観察できる技術の確立を目指している。

2. 研究内容

1. シングルショットコヒーレント散乱イメージング測定装置の試作

X線自由電子レーザーのシングルパルスを使ったコヒーレント散乱測定技術を確立するために、プロトタイプ真空紫外自由電子レーザー (VUV FEL) を用いてシングルパルスコヒーレント散乱イメージング実験を行うための装置の試作を行っている。

(1) 透過・反射両方コヒーレント散乱カメラの試作

試料からの透過コヒーレント散乱測定と、反射コヒーレント散乱測定の両方を行えるカメラの試作を行っている。この装置の特徴は、図2に示すようにチャンバー全体を入射X線に対して最大30°まで傾けることができるように設計されている。

(2) 超高真空に対応できる試

料交換装置

本装置はビームラインに直結して使用するため、試料交換が超高真空仕様に対応する必要がある。そのためロードロックチャンバーを介して試料交換を行えるように設計し製作した。

(3) 加熱試料ホルダー

試料加熱(最大約500°C)のためのヒーターと、試料に電場を加えるための電極を組み込めるように設計した試料ホルダーを製作している。

2. コヒーレント散乱イメージング用新しい解析法の開発

コヒーレント散乱から物質の透過像を再構築するためには、オーバーサンプリングデータを使った反復位相回復法が用いられる。この方法の高速化などの取り組みに加えて、新しい解析方法の研究も行っている。

(1) タイコグラフ法を使った解析法の確立

X線回折顕微鏡の現状での問題の1つは、測定対象となる試料サイズが1ミクロンメートル以下でなければならぬ点である。しかしこの試料サイズや形状に対する制約は、測定対象を広げていく上での障害となっている。そこで、試料の大きさや形状にとらわれない測定方法と解析方法を開発するために、タイコグラフ法 (J.M. Rodenburg et al., PRL, 98, 034801 (2007)) を使った解析方法の開発に現在取り組んでいる。

(2) 限られたコヒーレント散乱情報から試料の高分解能像を結像させるための新しい位相回復法「超解像法」の開発

入射強度の問題から十分な統計精度が得られず高分解能の結像が得られない場合、MEMなどの方法を使って、測定強度プロファイルを補完し、解析するプログラムの開発に取り組んでいる。

真空紫外自由電子レーザービームライン取付用

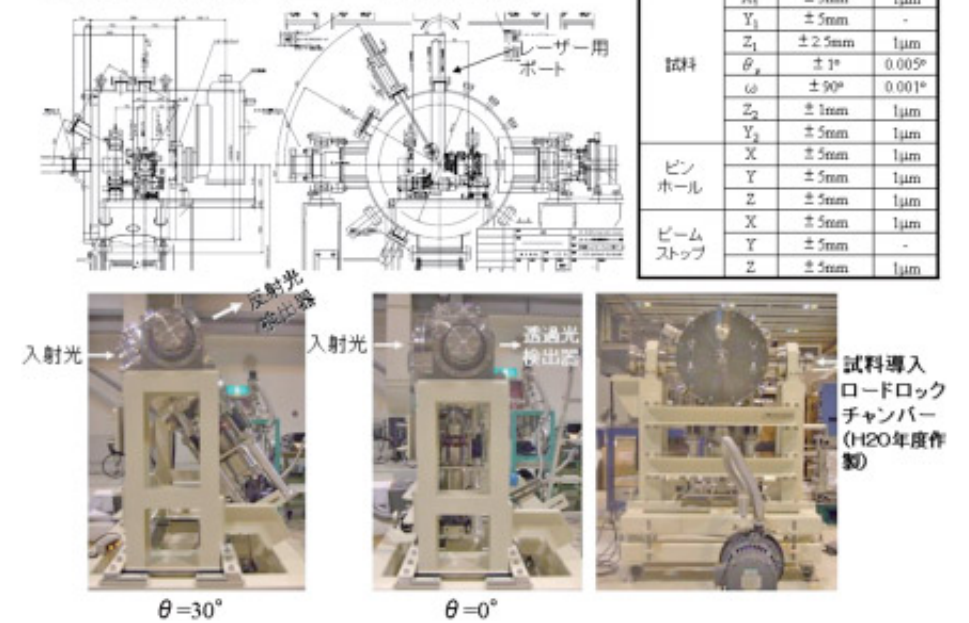


図2 ● プロトタイプ真空紫外自由電子レーザー (VUV FEL) シングルパルスコヒーレント散乱イメージング実験用透過・反射型コヒーレント散乱試作装置

3. 期待される成果

X線自由電子レーザーを使ったX線回折法は、1ミクロンメートル程度の大きさの物質内部を、シャッター速度100フェムト秒以下で、10ナノメートルの分解能のX線写真を連写する物質評価技術である。このような透過顕微鏡カメラ技術の開発は、生体や有機・無機物質の内部で進行する組織の時間変化を連続撮影し、可視化する技術として期待される。もしこのようなX線写真が撮れるようになれば、生体や物質の内部で起こっている組織現象の理解が飛躍的に進展すると考えられる。これに加えて本技術の重要な特徴は、回折現象を利用しているため、物質内部の組織変化に伴う微量なひずみの変化の大きさやその広がりを直接撮影することができる可能性がある点である。このようなマクロな物質中のひずみの広がりを直接観察する方法は、他にはないと考えられる。したがって、X線自由電子レーザーコヒーレント散乱測定技術、すなわち高分解能、高速X線カメラ技術の開発によって、すべてのマクロな物質中のナノ組織変化やそれに伴う局所ひずみ変化に伴う物理・化学現象の理解を飛躍的に進展させることができる基盤技術となると期待される。

高エネルギー密度物性を利用したX線光学研究

研究代表者 米田 仁紀 (電気通信大学 レーザー新世代研究センター)
共同研究者 近藤 公伯 (JAEA)
 兒玉 了祐 (大阪大学)
 湯上 登 (宇都宮大学)
 北村 光 (京都大学)

1. 研究実施の背景・目的

高強度、超短パルスX線のレーザーを固体物質に照射すると、従来までの紫外～可視～赤外のレーザーの様に最外殻電子が励起されるのではなく、内殻励起が主に引き起こされる。X線自由電子レーザーでは、これまでのレーザーと違い、媒質の共鳴準位を使わないため、本質的に波長可変であり、人類は、初めて内殻の強い共鳴エネルギー準位を励起できる。keVのエネルギーを持つ光子では、2つある原子核に最も近い最内殻の1s軌道の電子をイオン化させることが可能であり、その空孔は原子内に大きなエネルギー準位の再編成を行わせることになる。一般に、このような内殻励起が起きると、Auger電子、特性X線などの緩和過程が起き、さらに、固体密度では、イオン化による非中性化によりクーロン

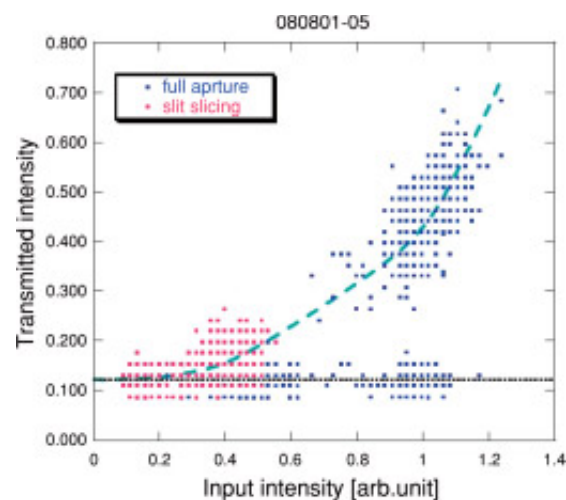


図1 ● EUV-FELでのSnのN殻エッジを利用した可飽和吸収特性の測定

爆発が起きることが予測されている。この研究では、この緩和前の固体が内殻励起され、なおかつ固体としての中距離秩序を保っている状態を利用して、ブラッグピークなどを利用した新しいX線光学を行うものである。

鍵となるのは、その遷移状態の物性を理論的予測可能にし、特に、K殻のエッジによくチューニングされたX線を使うことで励起された電子の緩和、余剰な加熱過程を制御し、さらに、伝動帯を保った状態で内殻からイオン化された電子をその中に置くことで、電荷中性を見掛け上崩さない、もしくは励起子分子のような構造をとらせることで、一般に言われているクーロン爆発を低減させる方法をとることである。

このような遷移過程が起きれば、前述したように大きくエネルギー準位が変化することで、K殻エッジでさえシフトをさせることが可能になり、X線領域でもっとも大きな“屈折率”変化を起こさせることが可能になる。これらを利用して、その応用としては、X線の吸収を時間的に制御させ、可飽和吸収を用いたパルスの短縮から束縛—自由遷移を用いた利得発生、原子一つ一つに吸収、利得を割り振る新しいフォトンクスなどが考えられる。特に、現在計画されているX線自由電子レーザーは、エネルギー広がりが少なく (10^{-4})、数keV光子エネルギーを持ち、100 fs以下の高輝度光源であり、従来のインコヒーレントX線と比較すれば格段の差があるが、理想的なレーザー光源としては、まだ多くの高精度化できる可能性を有している。keVのX線では、その振動周期は1 as (10^{-18} s)を切っており、100 fsのパ

ルス幅内に 10^5 もの振動が残っている。すなわち光としては原理面には短くなる余地を多大に残しており、単純な可飽和吸収現象を使っただけでも1/10程度のパルス幅が得られることが予測されている。このように、この計画では内殻のあいた固体、いわゆるホロー原子固体を利用して、能動素子を開発していくことを目的としており、世界でも類を見ない独創的なアイデアを実証しようとしている。

2. 研究内容

本研究では、以下の3つのサブテーマを設定し理論、実験の双方からホロー原子固体の理解をしようとしている。

- 1) 高強度X線内殻イオン化固体状態でのエネルギー緩和過程の研究
- 2) 内殻イオン化されたホロー原子固体を利用した新しい光学素子の開発
- 3) 内殻イオン化電離面の進行状態の予測および軸上進行波励起利得レーザーの最適化

3. 期待される成果

この研究プロジェクトでは、新しい物質状態の科学という学術的な成果を得るだけでなく、さらにXFELへの応用として、新しいX線光学を生み出そうとしている。この新しい素子が機能すれば、100 fs台のXFELを10 fsへ減少させたり、遷移過程を使ってパルス幅の測定などにも寄与できる。固体内にX線の伝搬路をつけるという意味では、モードクリーナーとしての働きも考えられている。

4. 平成20年度の研究概要

本研究は、XFELでの実験において必要な超短パルス広帯域プローブ光源の開発と、XFEL照射時の物質状態を記述する物理モデル構築、さらにその定量性を検証するための深紫外レーザーやVUVレーザーを用いた相互作用実験からなる。今年度は、特にSCSS試験器を用いたEUVレーザーの相互作用実験を開始した。実験では51 nmのVUV領域の光を使い、SnのN殻のNVエッジ直上を照射する実験を行った。Snの最外殻はO殻 ($5s^2 5p^2$)であり、1つ内殻にある電子を励起したことになる。照射スポット径は $8 \times 20 \mu\text{m}$ 程度であり、エネルギー、パルス幅を $1 \mu\text{J}$ が100 fsと仮定すると 10^{13} W/cm^2 程度になっている。これによる透過率の照射依存性を表したもの

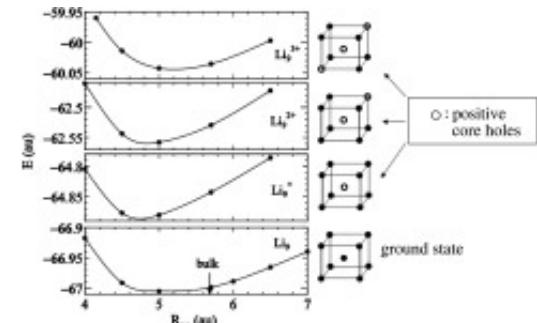


図2 ● Li_9 クラスタでのイオン化にともなうポテンシャルエネルギーの変化 3個のイオン化になっているにも関わらず、結合型のポテンシャルエネルギー形状になっている

が図1のようになった。明らかな非線形性を示しており、この波長領域で固体のバンド構造を活かした初めての可飽和吸収実験が行うことになったと考えている。

理論的な試行としては、もっとも低元素でモデル化、実験への制約が少ないLi固体を使ったクラスタ状態の計算が行えるようになってきた。図2は正方格子にLi原子を8個配置し、その重心位置の中心にLi原子を入れた Li_9 クラスタでのイオン化状態を変化させた場合の最近接原子間距離を関数としたポテンシャルエネルギーである。よく知られているようにアルカリ金属ではdimerなどの分子が構成できるが、Li原子が9個程度のクラスタになると3個のイオン化が起きている状態でもポテンシャルエネルギーは結合状態を示し、クラスタを保っていることがわかってきている。このよう伝動帯を維持した固体でのクーロン爆発制御が可能な一例として、本研究の重要な指針を与える結果となっている。

5. 成果の社会還元

この研究では、比較的簡単にXFELの短パルス化が行えるため、他分野の動的構造変化観測などに大きく寄与することができる。さらに、この研究で開発される物理モデルは、天文現象における高輻射下での物質状態と共通の物理が有るので、高温高密度天体の物理研究に対し、実験により裏打ちされたモデルを部分的に提供することができる。また、このような高エネルギー密度状態は、高いフラックスの光子、粒子ビームを制御することが可能だ。これらは、現在のレーザーや高出力粒子ビーム等の桁違いのダウンサイジングができる素子を構成する素材を提供することにもつながると思われる。

極小デバイス磁化挙動解析のための 回折スペックル計測技術の開発

研究代表者 角田 匡清 (東北大学)
共同研究者 中村 哲也 (高輝度光科学研究センター)
 鈴木 基寛 (高輝度光科学研究センター)
 淡路 直樹 (富士通)

1. 研究実施の背景・目的

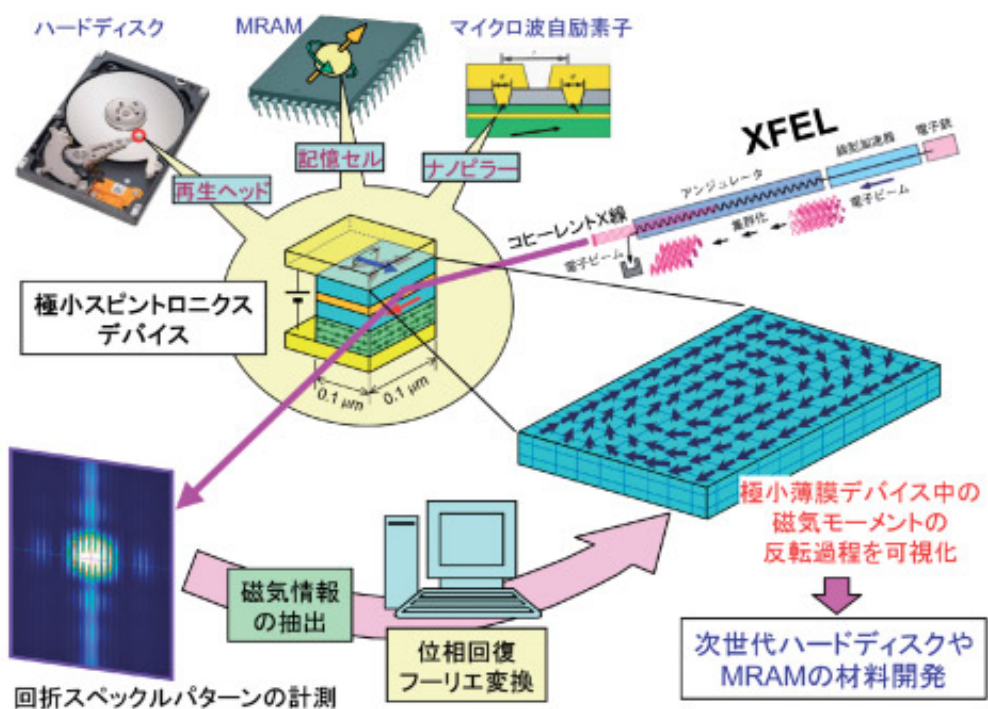
電子が持つ二つの性質(スピンと電荷)の相互作用を制御することで、新しいデバイス機能が生まれる。この新しい機能をスピントロニクスと呼び、すでにハードディスク装置(HDD)の再生ヘッドや磁気ランダムアクセスメモリー(MRAM)として応用されている。また、伝導電子と局在磁気モーメント間でのスピン角運動量の保存(スピントランスファートルク)など、従来の磁性材料では観測されなかった物理現象を積極的に利用した新しいデバイス

(スピン注入書き込み型磁気メモリー、マイクロ波自励素子など)の開発も進められている。スピントロニクスが対象とするのは、100 nm 以下の極小サイズの磁性多層膜素子である。このため、複雑な積層構造内に存在する特定の磁性層の磁化過程を直接的に観測する手法を確立することが、次世代デバイスの研究開発に不可欠となっている。

2. 研究内容

本推進研究では、X線自由電子レーザーのコヒーレント性を利用した回折スペックル中の磁気的信号

回折磁気スペックル計測による極小デバイスの磁化挙動解析



計測により、次世代スピントロニクスデバイスの開発に不可欠な、微小磁性体の磁化ベクトル分布の静的・動的磁化挙動解析を可能にするための技術開発を行う。具体的には、磁場、温度、デバイス駆動電流などの外場条件を変化させたそれぞれの場合について、金属磁性多層膜中の所望の層からの回折線に現れるスペックル回折パターンから磁化ベクトル分布を導出する。本目的を達成するため、スペックル現象を高精度に計測するための装置の試作と、得られた回折スペックルパターンの解析手法の確立を行う。

3. 期待される成果

本推進研究によって、特定の磁性層内の磁化分布解析が可能になると、スピントランスファートルクを始めとする新たな物理現象の理解が進み、次世代スピントロニクスデバイスの特性向上のための、材料・プロセス指針を明確にすることができる。透過電子顕微鏡などによる従来の破壊的評価方法と比較して、この解析手法を用いれば、試料の非破壊計測が可能となるため、電流通電など駆動状態ではじめて生じる現象が観察可能となる。

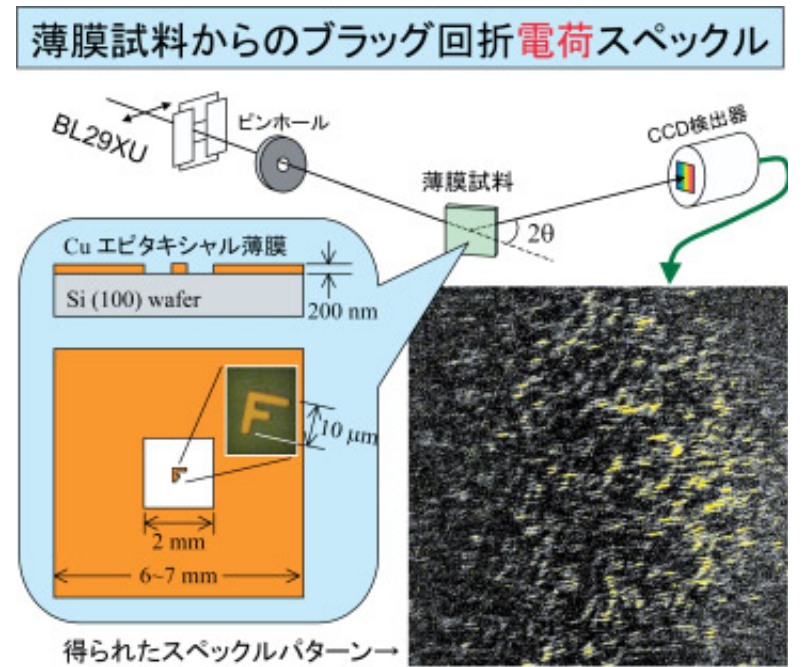
4. 平成20年度の研究概要

① 回折スペックル計測チャンバーの試作

平成19年度までに実機開発した真空対応多軸回折計システムの高度化を目指し、(1) CCD 検出器アーム駆動の高精度・高信頼化、(2) 高分解能X線冷却 CCD システムの開発・評価を実施している。CCD 検出器アームの従来の駆動方式を維持したまま、回転動作の安定化と角度読み取り精度を向上させた。また、現状で既製品として存在しない、真空内にシンチレーターを設置するタイプの新しい高分解能(〜2μm) X線冷却 CCD システムの検討と部材評価を行っている。

② 回折・散乱スペックルの計測

平成19年度に達成したバルク試料(NiO単結晶)からの回折電荷スペックルの測定に引き続き、平成20年度は、バルク試料(Gd鉄ガーネット単結晶薄膜)からの回折磁気スペックルの観測、ならびに一辺5〜10μm程度の大きさにパターンニングした薄



膜試料からの回折電荷スペックルの観測実験を行った。最終目標の「微小試料」と「磁気効果検出」を同時に達成することはXFELを用いてはじめて可能になると予測しており、放射光を用いる本準備研究では「微小試料」と「磁気効果検出」を独立させた技術開発を段階をおって進めている。

③ 回折・散乱シミュレーション技術の開発

スペックルならびにホログラフィーパターンの位相回復計算技術の開発を行い、実測データの解析に適用した。実際に「FEL」文字列孔試料からの軟X線干渉実験で取得したスペックルデータを再構成し、実空間での文字列イメージを得ることに成功した。

④ 高品質スピントロニクス薄膜デバイスに関する研究

高効率のスピントルクトランスファー効果を有する薄膜デバイスの材料開発を行った。また、リソグラフィ+イオンミリング法ならびにFIB法による薄膜試料の微細加工法を開発し、回折電荷スペックル計測ならびに透過磁気スペックル計測に用いる薄膜試料を作製した。

5. 成果の社会還元

通常の磁気計測手法では見ることでできない、100 nm程度の極めて小さな薄膜デバイス中の磁化ベクトルの反転過程や歳差運動過程を可視化する技術を開発することで、次世代HDDや大容量MRAMなどの磁気ストレージデバイスの開発に寄与する。

生体単粒子解析用クライオ試料固定照射装置の開発

研究代表者 中迫 雅由 (慶應義塾大学)
共同研究者 難波 啓一 (大阪大学) 山本 雅貴 (理化学研究所) 西野 吉則 (理化学研究所)

白濱 圭也 (慶應義塾大学) 前島 一博 (理化学研究所)

1. 研究実施の背景・目的

生物体は、10ミクロン程度の細胞によって構成され、細胞が個体生命を維持する働きを担っている。個々の細胞には、ミトコンドリアのようなミクロンサイズの内部構造体が存在し、その中では、細胞活動の素過程を担う蛋白質などの生体分子が集積され、高度な連携を保っている。近年、発光タンパク質標識などの利用で、特定タンパク質の細胞内動態の光学顕微鏡観察が可能に、また、放射光X線などを用いて、結晶化されたタンパク質分子の姿を高解像度で可視化できるようになってきた。しかし、細胞生命活動は、多数の生体分子が集合体を構成し、離合集散することで成り立っており、現状の実験方法だけでは、その現場をとらえることは難しい。本研究課題では、X線自由電子レーザー (XFEL) を用いた細胞、内部構造体や生体分子集合体のイメージングを可能とする“生体単粒子解析用クライオ試料固定照射装置” (図1) を開発している。

2. 研究内容

本研究課題では、高干渉性XFELを用いた細胞、内部構造体や生体分子集合体のイメージングに向けた装置を設計・製作している。この装置は、試料にXFELパルスを照射するための機械要素群、低温下調製試料を機械要素に送り込むローダー、試料を8K前後の低温に保つ液体He冷却装置、装置全体をXFELビーム位置へ高精度設置可能な定盤などで構成される。これら装置要素の設計を行い、平成19年度後半から製作を行っているところである。また、

生体試料の高干渉性X線イメージング実験や、実機測定を想定したシミュレーションを実施し、XFEL完成後、速やかに実験・解析が可能となるように準備を整えているところである。

3. 期待される成果

生命誕生以来、生物細胞は、高度なナノマシンの集積体をその中に創造してきた。生物細胞には、まだまだ人類が踏み込めていない未知の領域が多数存在し、細胞内構造体などはその典型例である。製作中の照射装置を用いれば、原理的に結晶化が不可能な細胞内構造体の観察が可能となるであろう。高い解像度で観察できれば、生命現象の理解をさらに一歩進めることができる可能性が高い。

4. 平成20年度の研究概要

平成20年度は、照射装置の機械要素群と冷却装置を製作後、性能評価を行っているところである。また、ローダーと定盤を設計し、製作中である。実験・解析の面では、ヒト細胞の染色体について高干渉性X線イメージング実験や、実機実験を想定したシミュレーションを実施し、実験で得られる干渉性X線散乱パターンから、試料物体の三次元像再構成する手順を精査しているところである。

5. 成果の社会還元

XFELと本研究課題で製作中の装置を用いて、細胞やその構造体を高い分解能で観察できれば、生物学の視野を大きく広げるだけでなく、将来のナノテクノロジーの模範を細胞中から多数見出すことがで

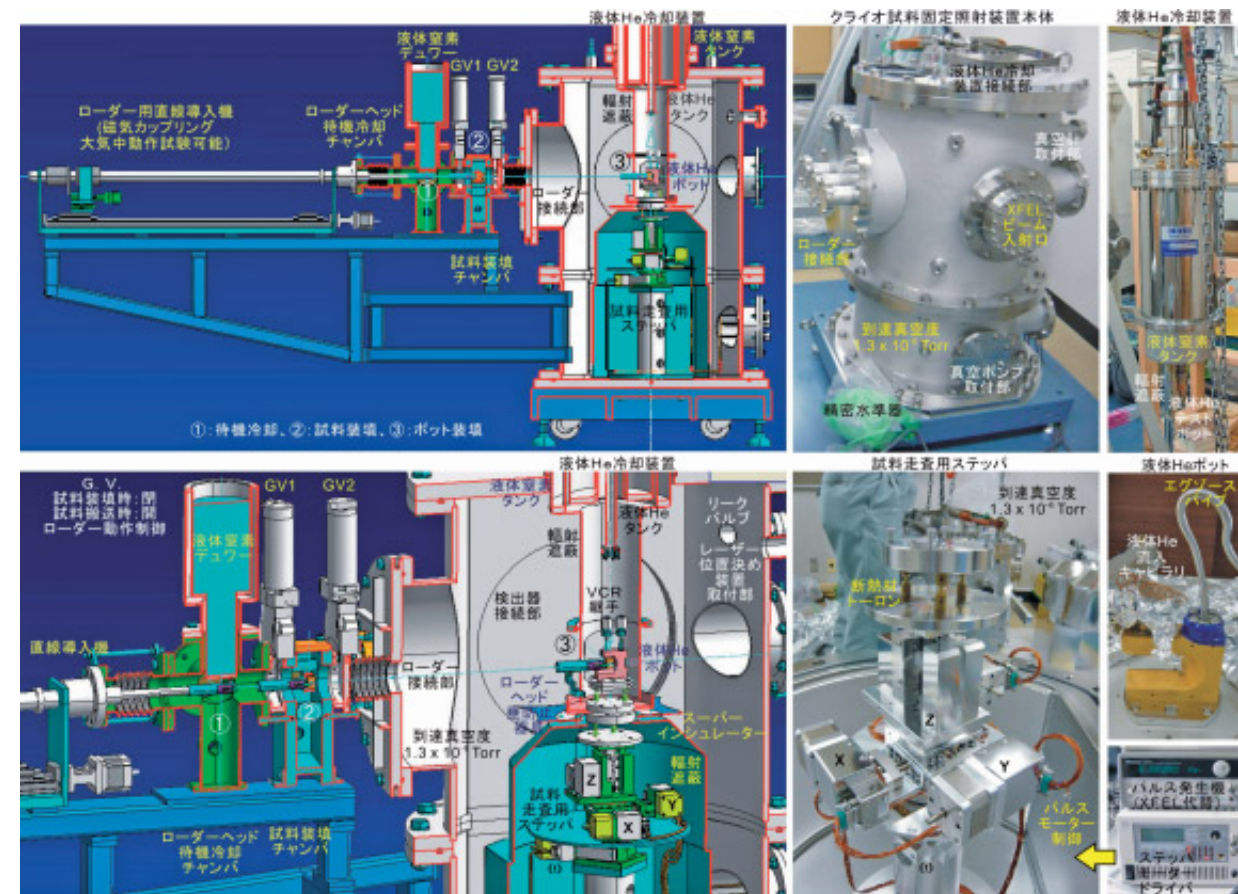


図1 ●クライオ試料固定照射装置の完成予想図 (左) と性能評価中の構成機器 (右)

きるであろう。生物体の中にまだ隠された構造の詳細を明らかにすることは、基礎科学の進展のみならず、社会還元を可能とする新たなナノテクノロジー創生につながるものと期待される。

FEL 励起反応追跡のための 電子・イオン運動量多重計測

研究代表者 上田 潔 (東北大学)
共同研究者 Georg Prümper (東北大学)
齊藤 則生 (産業技術総合研究所)

1. 研究実施の背景・目的

1個の原子に極短波長超短パルス大出力自由電子レーザー (FEL) を照射すると複数の電子が同時に励起・イオン化される。1個のクラスター粒子に FEL を照射すると複数の原子が同時に励起・イオン化される。このようなコヒーレント多重励起の理論的な予測はあっても、これまでは光源がなかったため、ほとんど観測されていない。また、このようにして生成した特異な励起状態の反応と緩和のダイナミクスの研究はほとんど前人未到の領域である。FEL によって、われわれは原子・分子・クラスターのコヒーレント多重励起とその後の反応と緩和のダイナミクスを研究するチャンスを得ることになる。

本研究開発では、FEL による原子・分子・クラスターのコヒーレントな励起と続いて起こる反応・緩和のダイナミクスを研究するための新たな電子・イオン運動量多重計測装置を開発することを目的とする。

2. 研究内容

原子・分子・クラスターに FEL パルスを照射すると多重イオン化により多数の電子とイオンが生じる。本研究開発では FEL のシングルショットで生成する複数の電子とさまざまなイオンのエネルギー分布と放出方向角度分布、つまり運動量分布をすべて同時に測定できる装置 (図1) を開発する。本装置では、荷電粒子の検出に3層ディレーライン型2次元検出器を用いる。検出器による荷電粒子の検出時間

と検出位置をもとめるために、各々のディレーラインからの信号 (アナログ波形) をデジタル化してコンピュータに取り込む。コンピュータ上でアナログ波形信号を解析することによって、個々の荷電粒子の検出時間と検出位置を算出し、これをもとに個々の荷電粒子の運動量をもとめる。本手法により、これまで不可能とされてきた不感時間がゼロで検出粒子数の制限のない運動量計測が実現できる。さらに、本装置を極紫外 FEL を光源とする実験に用いて原子・分子・クラスターのコヒーレント多重励起とその後の反応・緩和のダイナミクスを研究するとともに X 線 FEL を用いた実験に備える。

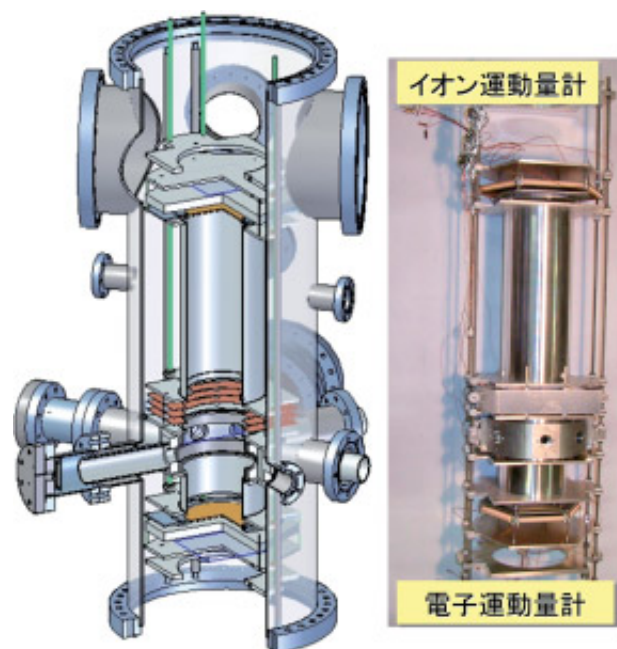


図1 ● 電子・イオン運動量多重計測装置

3. 期待される成果

本研究で新たな電子・イオン運動量多重計測装置を開発すると、サイズを選別した金属クラスター・水素結合クラスター・ナノ粒子、電子スプレー法で気化した DNA ベース・生体分子やその水和クラスター等々をターゲットとした FEL コヒーレント励起・イオン化と反応・緩和ダイナミクスの研究が可能となる。

4. 平成20年度の研究概要

東北大学で開発した電子・イオン運動量多重計測システムと産業技術総合研究所で開発したアナログ波形信号のデジタルシステムおよび波形信号の解析ソフトウェアを結合して電子・イオン運動量多重計測装置を構築した。フェムト秒レーザーを用いて装置の動作確認を行った後、極紫外 FEL を用いて予備実験を行い、不感時間が実質的にゼロで、FEL シングルショットで生成される100個以上のイオンの運動量を計測できることを実証した。

本装置を用いた希ガスクラスター (Ar_n , Kr_n , Xe_n) の多重イオン化実験では、解離生成する原子イオン (Ar^+ , Kr^+ , Xe^+) の運動エネルギーがクラスターサイズあるいは FEL パワーの増加とともに増加することを見出した (図2a)。イオンの運動エネルギーの増加は、クラスターサイズあるいは FEL パワーの増加とともに、クラスター単粒子がより多くの光子を吸収し、より多価の親クラスターイオンとなってクーロン爆発することによる。電荷が Z である親クラスターイオン Ar_n^{Z+} , Kr_n^{Z+} , Xe_n^{Z+} から生成する原子イオンの運動エネルギー分布を古典的な分子動力学計算によりもとめて実験結果を再現する電荷 Z を見積もる (図2b) と、クラスターサイズ、FEL パワーの増

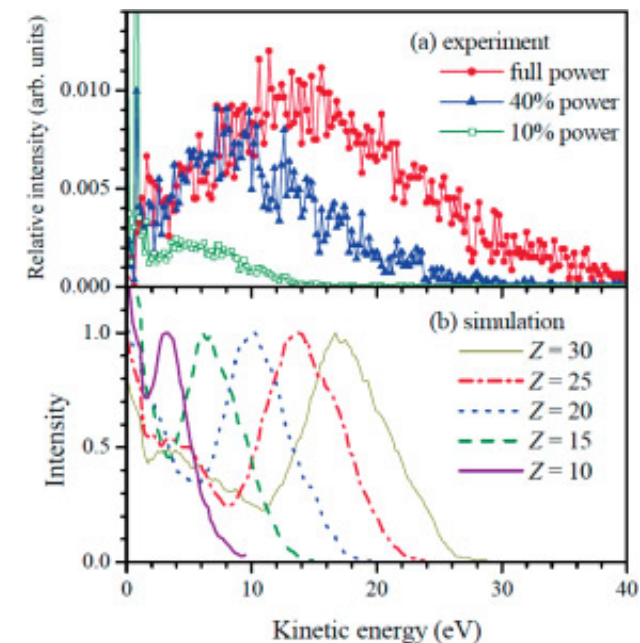


図2 ● (a) Xe_n ($\langle n \rangle \sim 150$) から生成した Xe^+ 運動エネルギー分布の FEL パワー依存性; (b) Xe_{150}^{Z+} のクーロン爆発の分子動力学計算により得られる Xe^+ 運動エネルギー分布

加とともに電荷 Z は吸収光子数よりも小さくなり、いわゆるクラスターの光イオン化のフラストレーションが起こることが確認された。 $10^{11} \sim 10^{12} \text{ W/cm}^2$ の FEL パワー密度ではプラズマ過熱の効果は観測されなかった。

5. 成果の社会還元

X 線 FEL を用いたナノ単粒子や生体単分子のシングルショットイメージングの実現はマテリアルサイエンスやライフサイエンスの発展に大きく寄与する。本研究は、このようなイメージングデータの解析に必要な情報を供給することにより、マテリアルサイエンスやライフサイエンスの発展に寄与し、成果を社会的に還元しようとするものである。

超短パルスX線を用いた超高密度状態と相転移ダイナミクスの研究

研究代表者 中村 一隆 (東京工業大学)

1. 研究実施の背景・目的

超高压力下における高密度物質の状態の研究は、広い密度状態にわたる物質の熱力学的状態計測といった純粋な基礎科学的興味以外にも、新物質創成や地球内部の状態を知るといった地球科学・惑星科学的な観点からも重要な課題である。また熱力学的な外部条件の変化によっておきる相転移過程は、非平衡現象でありその理解のためには、原子・分子レベルでの動的構造変化を調べる必要がある。レーザーを用いた衝撃圧縮法は、極短時間内で高圧力・高密度状態を作り出す方法で、超高速時間分解の構造解析法(X線回折など)を組み合わせることで、超高压力状態の物質の様子やその形成ダイナミクスを計

測することが可能となる。しかしながら、衝撃圧縮状態の圧力保持時間は短く、また破壊的現象であるために、超短パルスかつ高光子密度のX線自由電子レーザーを用いた測定が必要不可欠となる。本研究では、X線自由電子レーザー完成後、フェムト秒時間分解X線回折研究を行うための基盤技術、とくにパルス同期計測技術の開発することを目的としている。

2. 研究内容

レーザー衝撃圧縮で発生する超高压力・超高密度状態の構造解析とその転移ダイナミクスの研究を行うための準備研究として、高強度フェムト秒レーザーを用いたレーザープラズマX線による超短パルス

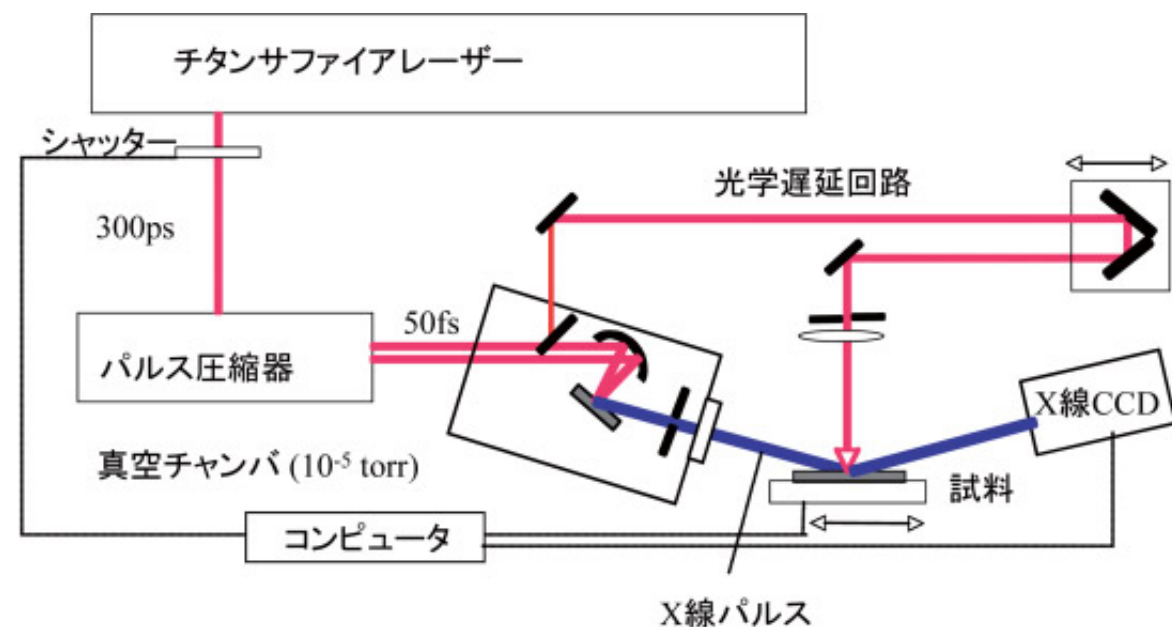


図1 ●レーザープラズマを用いた時間分解X線回折装置概念図

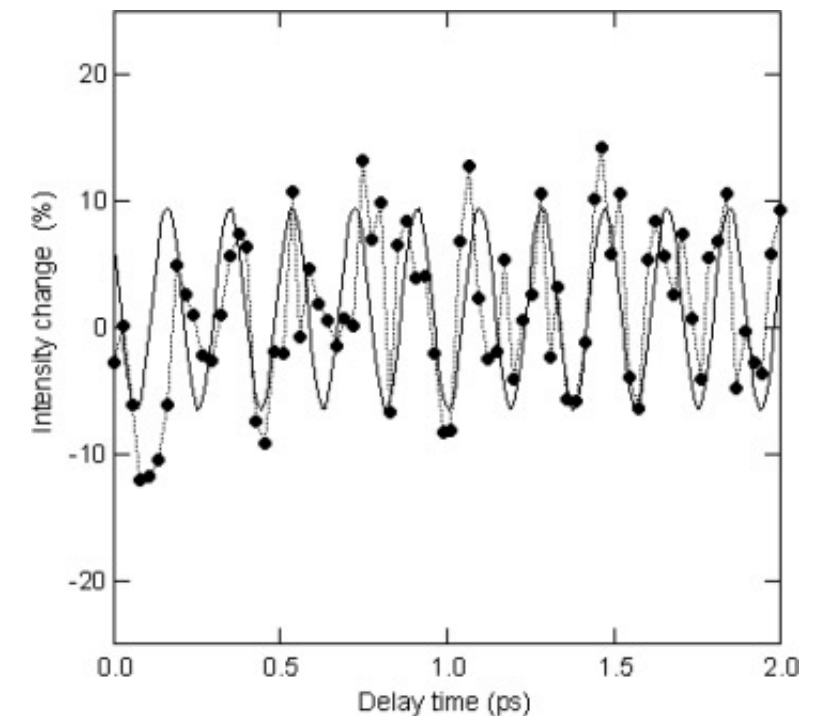


図2 ●フェムト秒時間分解X線回折により測定したCdTeのコヒーレントフォノン振動

X線を用いたフェムト秒時間分解X線回折測定を行う。超短パルスレーザー光と超短パルスX線との同期計測の基盤技術として、フェムト秒レーザーで固体表面を励起することでコヒーレント格子振動(コヒーレントフォノン)を発生させ、この振動をクロックとして用いることで、格子振動の周期時間(数10から数100フェムト秒)の精度で、フェムト秒レーザー光と超短パルスX線との同期精度の計測を時間分解X線回折測定によって行う。

3. 期待される成果

100フェムト秒オーダーでのフェムト秒時間分解X線回折計測が行えるようになり、動的に変化する物質の過渡構造の解析が可能となることが期待される。また、コヒーレントフォノンをクロックとして用いることで、格子振動の周期時間(数10から数100フェムト秒)の精度で、フェムト秒レーザー光と超短パルスX線との同期精度の計測が可能になると期待される。

4. 平成20年度の研究概要

高強度フェムト秒レーザー光を真空中で銅ターゲットに集光照射することで疑似単色の超短パルスX線を発生し、ポンププローブ法を用いて光励起半導体単結晶(CdTe (111))の時間分解X線回折測定を行った。図1に計測装置の概念図を示す。結

晶の格子振動の振動周期よりも十分短いレーザー光パルスを固体表面に集光照射することで、コヒーレントフォノンと呼ばれる位相の揃った原子集団運動を励起することが出来る。通常コヒーレントフォノンはフェムト秒時間分解の過渡反射率測定や過渡透過率測定によって計測されるが、この方法では原子の変位量を求めることが出来ない。本研究では、フェムト秒時間分解X線回折によりコヒーレントフォノンを計測することにより、200フェムト秒の周期で振動するCdTeの光学コヒーレントフォノンの振動を検出し、原子変位が約3ピコメートルであることを明らかにした(図2)。CdTeを試料としてXFELからのX線を用いてコヒーレントフォノン振動をX線回折により計測することで、外部レーザー光とX線パルスとの同期を振動周期の半分である100フェムト秒の精度で計測することができると期待される。

5. 成果の社会還元

これまで計測することが出来なかった物質の内部における原子の運動が実験的に観測できるようになり、物質創成過程を原子レベルで直接測定することができ、新物質創成のための新しい指針を得る事ができるようになる。また、物質の破壊過程の計測もでき、衝撃に強い新素材開発のための強力な解析法となる。

蛋白質単粒子解析用液体・分子ビーム生成装置の開発

研究代表者 中嶋 敦 (慶應義塾大学)
共同研究者 真船 文隆 (東京大学)
 堂前 直 (理化学研究所)
 国島 直樹 (")
 内藤 久志 (")

1. 研究実施の背景・目的

X線自由電子レーザー（以下、XFEL）のバイオサイエンス分野利用では、膜蛋白質のようにX線結晶構造解析が極めて困難な蛋白質やその集合体の立体構造を、結晶化を経ることなしにオングストローム分解能で可視化する単粒子立体構造解析に大きな期待が寄せられている。数十ナノメートルサイズ蛋白質分子の単粒子立体構造解析は、XFEL パルスビームを試料粒子に照射して、粒子の三次元再構成スペクトル散乱パターンから像回復を行う。また、蛋白質分子はXFEL パルス照射によって多数のスペクトル散乱パターンを短時間で取得するには、XFEL パルスに同期して試料分子を照射野へ確実に導入する必要がある。本研究課題では、上記実験を可能とする“蛋白質単粒子解析用液体・分子ビーム生成装置”として、試料粒子を飛翔させてFEL パルスと衝突さ

せる装置を開発し、プロトタイプFELにおいてXFEL 利用想定実験を通じて問題点を精査しながら、実機利用に繋げることを目的としている。

2. 研究内容

本研究では、“蛋白質単粒子解析用液体・分子ビーム生成装置”を開発し、XFEL の60 Hzパルスに対応できる高効率な蛋白質分子の単粒子構造解析実験の実現を目指す。この装置は、クラスター科学で発展してきた液体ビーム作成技術や質量分析の試料作成技術を基盤とし、蛋白質水溶液試料を微細な液体ビーム加工や、レーザー蒸発法による分子ビーム作成する技術の高度化によって、XFEL パルスに同期した分子の照射位置導入を可能とする。装置開発では、試料粒子を非破壊かつ単粒子として飛翔させる装置（試料粒子飛翔型照射装置）を、飛行時間型高感度質量分析法と超高压ガスパルス噴出技術に液

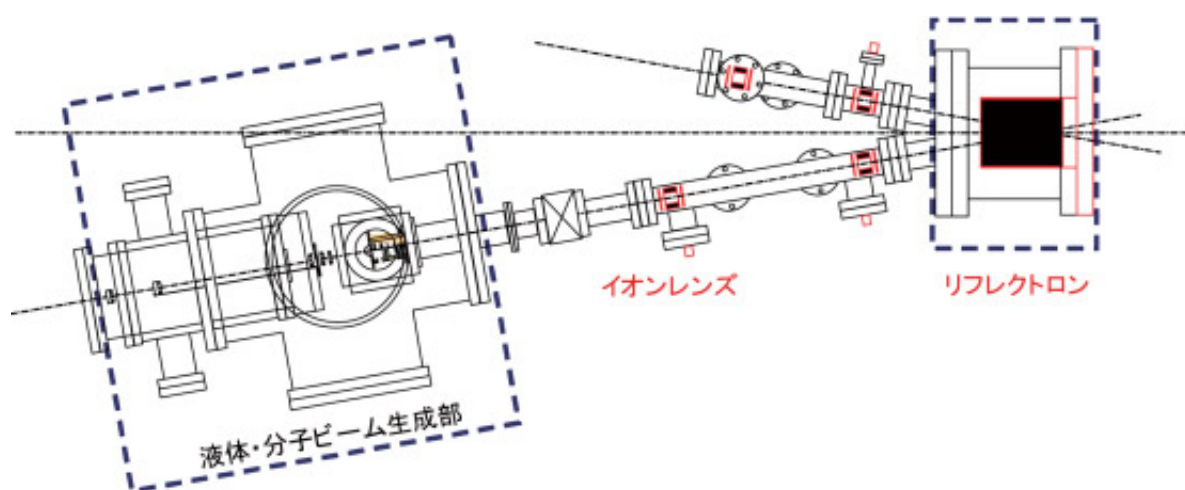


図1 ●レーザー照射によるイオン生成と電場リフレクトロンを備えた質量分析装置図

体ビーム技術を組み合わせて開発する。

3. 期待される成果

結晶構造解析が困難または原理的に不可能な蛋白質分子やその集合体のXFEL 単粒子構造解析は、EU や米国XFEL 計画においても主要テーマとして取り上げられている。難しいとされる蛋白質分子の液体・分子ビーム作成方法についても、その検討が進められている。我国のXFEL ではパルス間隔が60 Hzであり、単粒子解析に要求されるスペクトル散乱パターン数を鑑みた場合、高い歩留まりで試料にXFEL ビームを照射する必要があり、XFEL 実機に特化した装置の開発が不可欠であると考えられる。本課題で開発する“液体・分子ビーム生成装置”は、研究代表者らが独自に開発した世界先端実験技術を展開・高度化することから、諸外国にも波及する測定技術を提案することにつながると期待される。

4. 平成20年度の研究概要

本研究では蛋白質試料溶液を液体ビーム、もしくは液滴として、噴出することにより、真空装置内に蛋白質単粒子をビームとする要素技術を開発してきた。液体ビームを用いる手法では、ガラスキャピラリーの内径を前年度までの20 μmから8 μmに細くすることに成功し、この手法は溶媒によるXFEL 光の干渉の低減や真空系への負荷の低減、さらには蛋白試料の少量化に寄与する。一方、単粒子構造解析に適用するためには、高い質量分解能で飛行時間型質量分析計を構築する必要がある。質量分解能の向上には、加速部設計の最適化による均一電場の形成と電場リフレクトロンを用いた運動エネルギー分散の補正が有効な方法である。前年度に加速部設計の最適化と評価を行った成果を踏まえて、今年度は、図1のような装置を用いて電場リフレクトロンによる飛行時間分析用加速部の性能評価を行った。イオン生成には、これまでの実績があるケイ素のレーザー蒸発を用いた。その結果、図2のような質量スペクトルを観測し、同軸方向への直線引き出しでも、150 cmの飛行距離で質量分解能 $m/\Delta m$ が1400以上

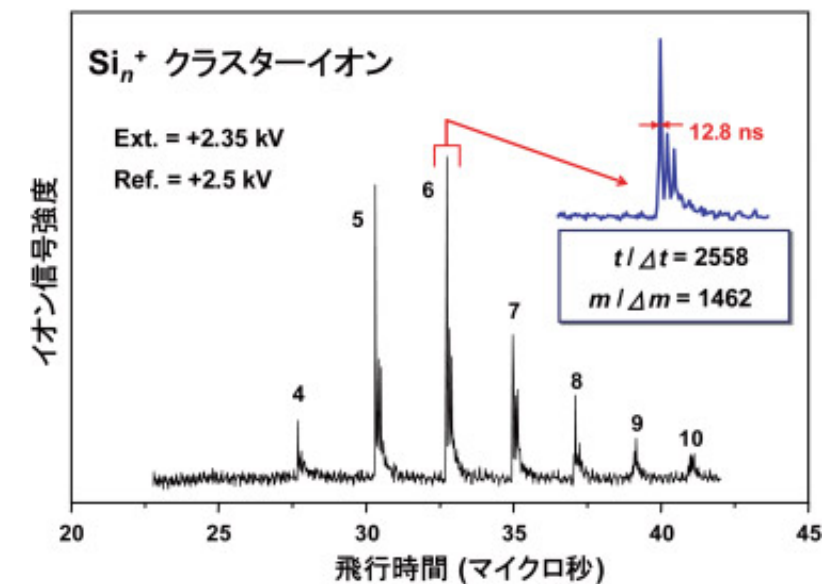


図2 ●レーザー蒸発で生成したケイ素クラスターの飛行時間型質量スペクトル

に達し、従来法の約2倍の質量分解能を有することを明らかにした。本研究で試作した加速部は、次年度の長距離飛行管での高質量分解能化に寄与するものと期待される。また、XFEL の装置開発に適合するモデルタンパク質系を構築するために、タンパク質ライブラリーとして現状持っていない膜タンパク質（アクアポリンZ）について、構造既知・安定で大量に調製できるモデル系の選定と調製を行った。XFEL 照射実験では、タンパク質以外の分子がスペクトルパターンに大きく影響を与えることがシミュレーションされているので、安定化剤、塩などを極力除くための方策を検討し、連続溶媒交換の手法を提案した。

5. 成果の社会還元

タンパク 3000プロジェクトが終了した現在においても、多くの病変に関わる生体膜結合性蛋白質の結晶構造解析が依然として困難な状況にある。治療薬の多くが細胞表面に露出した膜蛋白質をターゲットとしていることから、膜蛋白質の立体構造解析は国内創薬事業の発展にも不可欠である。本申請で開発する装置によって単粒子解析が現実のものとなれば、結晶化を経ない膜蛋白質の構造解析が進展し、創薬・医療分野への多大な波及が期待される。同時に、試料の取り扱いについて制限が多い蛋白質分子の液体・分子ビーム制御技術が確立されれば、物理化学分野でも期待されている非晶試料単粒子構造解析への転用にも波及すると期待される。

非線形 X線ラマン分光法の開拓

研究代表者 初井 宇記 (理化学研究所)

1. 研究実施の背景・目的

X線は、人間が目にする可視光と同じく電磁波の一種である。電磁波は、粒子としての性質と、波としての性質をもつ。粒子としてX線を眺めてみると、一つ一つのX線の粒子(光子と呼ばれる)は、それぞれがある波長をもつと考えることができる(図1)。このとき、それぞれのX線光子が持つ波長は通常変化しない。ところが、X線の光子を密に集めると、非線形光学現象と呼ばれる現象がおこり、それぞれの光子が持つ波長が変化する可能性がある。実は、可視光の領域ではレーザーが実用化されているため、このような現象を利用して様々な分析、加工がおこなわれている。しかしX線領域では、世界最高性能を誇る日本のSPring-8でもってしても十分にX

線光子を密に集められないため、このような現象を起こすのは至難の技である。これまで、非線形光学現象のなかで最も起こりやすいと考えられる実験についてSPring-8での実験成功が報告され、大きなニュースとなったのが現状といえる*。

一方、現在開発されているX線自由電子レーザーを用いると、このような状況は一変する可能性がある。なぜならば、世界最高性能のSPring-8よりも、少なくとも10桁以上も密にX線光子を集められると予想されているからである。X線自由電子レーザーを使えば、これまで非線形光学現象が発見できるかどうか、という状況を脱して、非線形光学現象を使って分析を行い、社会で問題となっている様々な問題にアプローチしていくことが可能になると期待できる。

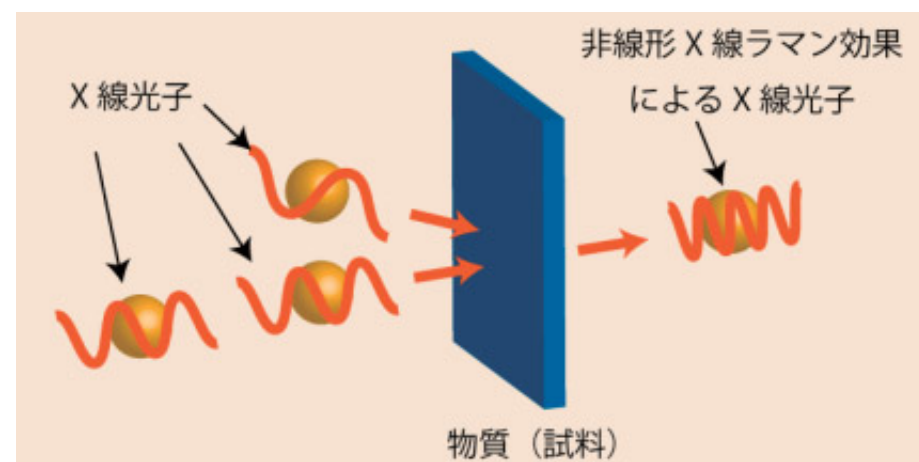


図1 ●非線形X線ラマン効果の概要 物質(試料)にX線自由電子レーザーのX線光子を高密度に照射すると同時に、波長のやや長いX線光子を照射すると、X線自由電子レーザーよりも波長の短いX線光子(コヒーレント・アンチストークス・ラマン散乱)が発生する

2. 研究内容

X線領域での非線形光学現象について、現在われわれが知っていることは極めて限られている。たとえば、どの程度X線光子を集めると非線形光学現象がおきるかといった基礎的な事柄についても、我々は知らないのである。そこでまず、非線形光学現象の中で非線形X線ラマン効果を選び、この効果を実際に検出するための技術的問題を解決し、

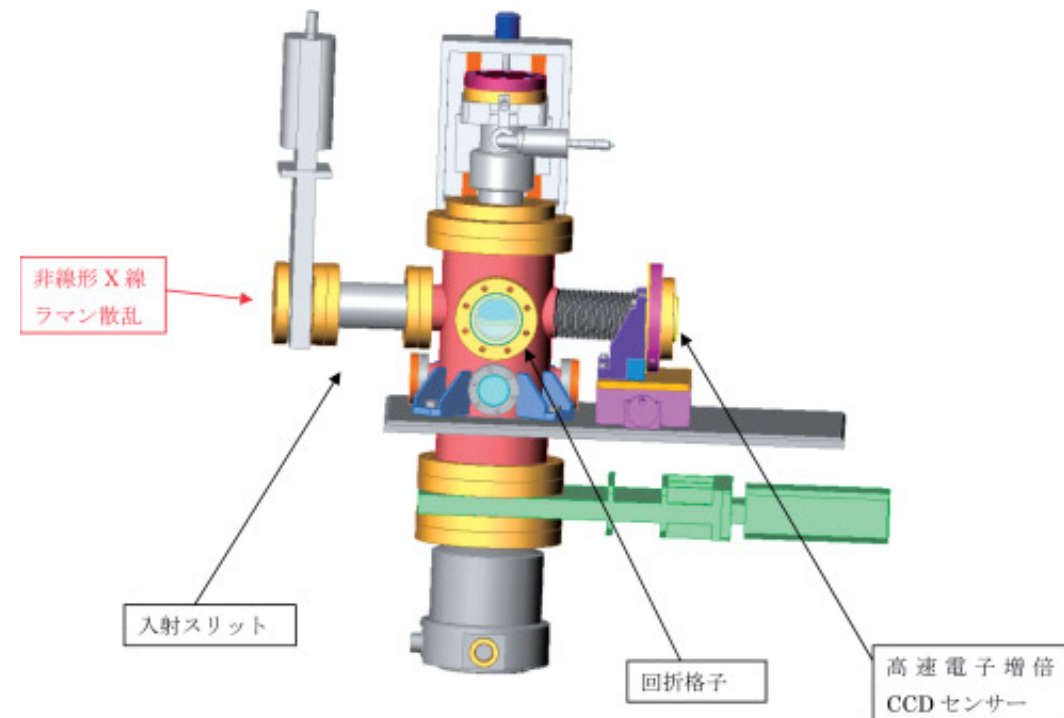


図2 ●非線形X線ラマン効果を高効率で計測するための分光器 発生したコヒーレント・アンチストークス・ラマン散乱の波長と放出された角度を同時に測定することが可能である

非線形X線ラマン効果を利用した非線形X線ラマン分光法を分析手法として利用するための科学・技術的基盤創生を目指す。

3. 期待される成果

原子間の結合を担う価電子は、物質の性質を決定づける重要な因子である。従って、化学反応のように原子と原子が離れたり結合したりする場合や、温度や光などによる刺激によって価電子が動かされた(励起された)時に機能を発揮する機能性材料において、価電子の動きを観測することは極めて重要である。非線形X線ラマン分光では、入射したX線レーザーの波長と波長が短くなった非線形X線ラマンX線の差が、この価電子の動き(励起)に関する情報を与える。

4. 平成20年度の研究概要

非線形X線ラマン効果はこれまで観測された例はなく、例えばどの程度の頻度で観測できるかなどの基礎的情報が欠落している。そこで、プロトタイプ機を利用して非線形X線ラマン効果の観測を実現し、非線形X線ラマン効果の基礎的な理解を目指している。平成20年度では、そのために必要な広帯域・高効率の分光器を開発し、非線形X線ラマン計測のための実験システムを構築した(図2)。

5. 成果の社会還元

非線形X線ラマンX線は、価電子の動きに関する情報を与える。X線自由電子レーザーがフェムト秒の極短パルスであることも利用すると、機能性材料のふるまいを、高速で追跡することが可能になると期待される。機能を担っている価電子は、物質が持つ多くの価電子のうちごく一部の特定の価電子である。従って、その価電子だけを選択して追跡することが必要となる。日本のX線自由電子レーザーは自由に波長を変化できる。この利点を利用すれば、元素や化学的な違いを選択して観察することができる。従って、観察したい価電子を選択し、その動きを追跡することによって、機能性物質の機能の本質に迫ることが可能になる。機能の本質を明らかにできれば、新しい物質設計の指針を得ることができ、望みの物質を設計することが可能になると期待される。

*) 例えば Kenji Tamasaku and Tetsuya Ishikawa, Phys. Rev. Lett. 98, 244801 (2007) Y. Yoda, T. Suzuki, X.-W. Zhang, K. Hirano, S. Kikuta, J Synchrotron Rad. (1998) . 5, 980.

FEL 多元分光を用いたナノ構造体の電荷移動ダイナミクス

研究代表者 八尾 誠 (京都大学)
共同研究者 永谷 清信 (京都大学)

1. 研究実施の背景・目的

平成20年度は、我が国の量子ビーム (X線、中性子線などの総称) 利用研究にとって記念すべき年であった。SPring-8 に、X線自由電子レーザー (XFEL) の先駆けとなる、極端紫外光の自由電子レーザー (EUV-FEL) が完成し、利用研究が開始されたからである。我々は、早速、東北大学の上田教授グループと協力して、希ガス・クラスターを対象とする研究に取り組んでいる。これまで、既存の放射光源を利用してクラスター研究を展開してきたが、自由電子レーザーは高輝度で位相が揃っているという著しい特色を有するため、全く未知の世界に入ったと言っても過言ではない。今後、XFEL を高度利用するためにも、EUV-FEL 利用実験を通して種々の経験を積み、実験技術開発に反映させなければならない。その一つが、試料ビームのパルス化であり、以下に詳細を述べる。

2. 研究内容

XFEL または EUV-FEL を利用する実験の基本的なスタイルは、微量の試料を真空中に噴射させ、それに X線または紫外線ビームを当て、その結果として生じる現象を調べることである。既存の放射光源からは、光パルスが「だらだらと」やって来るため、実効的には「連続光」と見なすことができ、このため試料となるクラスタービームも連続的に流せば良かった。しかし、FEL 光は超短パルスでかつ繰り返し周波数が10ヘルツ程度であるため、即ち「非常に強い光がたまにしかやって来ない」ために、クラスタービームを連続的に流すと大きな無駄になり、時として害にすらなる。具体的には、装置内の真空度が悪くなるために、例えば、X線吸収に伴って放出された光電子に関する貴重な情報が失われてしまう。このため我々は、クラスタービームをパルス化させ、FEL 光と同期させて出射する技術を開発した。

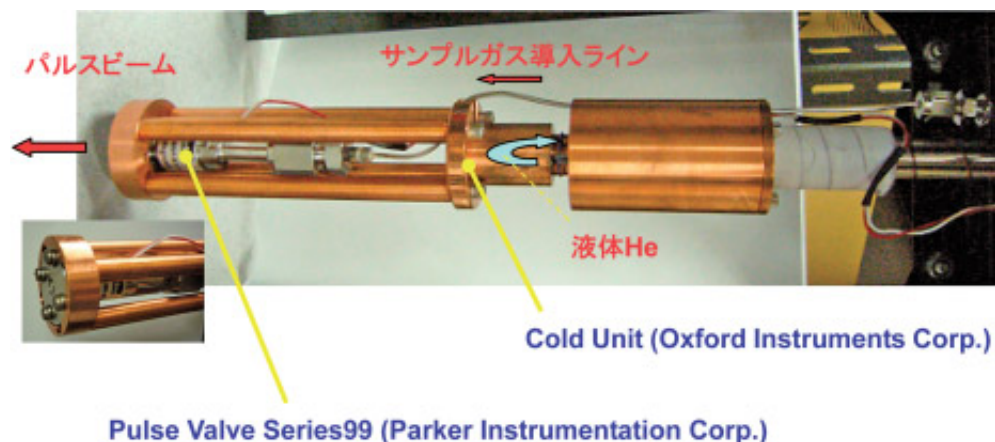


図1 ● パルス・クラスター源

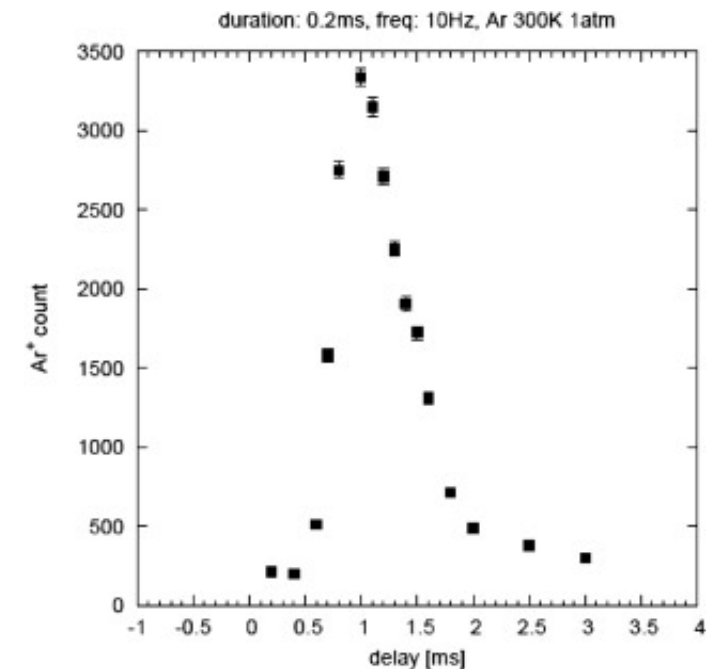


図2 ● パルス動作のチェック

3. 期待される成果

X線を吸収した物質において、「どのような電子素過程が起こるのか?」、更に「その影響により、物質がどのように破壊されていくのか?」が明らかになれば、例えば、タンパク質の構造解析を行なう際に、「どのようにすればタンパク質が壊れる前に測定ができるのか?」、更に「たとえ壊れても、壊れる前の情報をどのように回復させられるのか?」という問題を考える道筋が見えてくる。また、X線の著しい特徴である元素選択性 (即ち、X線波長を選ぶことにより、ある特定の元素のみにX線を吸収させること) を利用して、ナノ構造体の電気伝導特性を非接触 (即ち、電極を用いない方法) で、且つ原子レベルで測定することが可能になる。

4. 平成20年度の研究概要

[1] EUV-FEL 光を利用して、希ガス・クラスターの光吸収・脱励起過程の観測を行なった。連続クラスタービームを用いたため、電子分光は困難であったが、光イオンについては3次元

運動量を多数個のイオンについて同時に計測することができた。その結果、クラスター内で多数の原子が同時にイオン化すること、ある程度多価になると、それ以上のイオン化が抑制されること等を見出した。複数の国際会議で発表し、目下論文執筆中である。

[2] パルス・クラスター作製装置を設計・製作し (図1参照)、パルス動作のチェックや出射されるクラスターのパフォーマンス等について、準備実験を行なった (図2参照)。平成20年11月下旬に、EUV-FEL 光を利用してX線吸収実験を行なう。

5. 成果の社会還元

本研究は、XFEL 利用研究の基盤的技術や基礎的知見を与えるものであり、例えば結晶化困難なタンパク質の構造解析や、ナノ構造体の非接触電気伝導測定等を通して、バイオ関連あるいはナノ関連物質の創出などにつながる可能性があり、その波及効果は極めて大きい。

広範な生体試料に対応した ターゲット・デリバリーシステムの開発

研究代表者 岩本 裕之 (高輝度光科学研究センター)

共同研究者 村山 尚 (順天堂大学)

1. 研究実施の背景・目的

X線自由電子レーザー (XFEL) は第4世代放射光源といわれ、これまでのシンクロトロン蓄積リング型に比べるとピーク輝度が非常に高いこと、パルス幅が非常に短いこと、コヒーレンスが高いことなど、さまざまな特徴を持っている。これらの特徴は生命科学分野においても従来にない可能性を切り拓くものとして期待されている。重要なアプリケーションは、これまで構造決定が不可能だった微小な生体試料 (タンパク単分子や細胞小器官) の構造をX線回折法により決定することである。特にXFELは結晶化困難な膜タンパク分子の構造決定法の切り札として期待を集めている。

X線回折法で重要なのは、いうまでもなく試料に

確実にX線を当てることである。従来のX線回折実験では通常、試料もX線ビームも肉眼的なサイズであった。ところがXFEL実験の場合、最小の試料はタンパク単分子 (10ナノメートルオーダー) であり、ビームサイズも同程度まで絞られる。従ってビームを試料に当てるには従来とは比較にならない高精度が必要になるばかりでなく、試料の取扱そのものにも高度な技術が必要となる。X線を当てる標的 (ターゲット) を測定に適した状態に保ちつつ、いかにしてビーム位置に送り届けるか (デリバリー) —これが生命科学分野でのXFEL計画の成功の鍵を握る。この認識に立ち、XFEL実験に最適化された「ターゲット・デリバリーシステム」を開発するのが本研究課題の目的である。

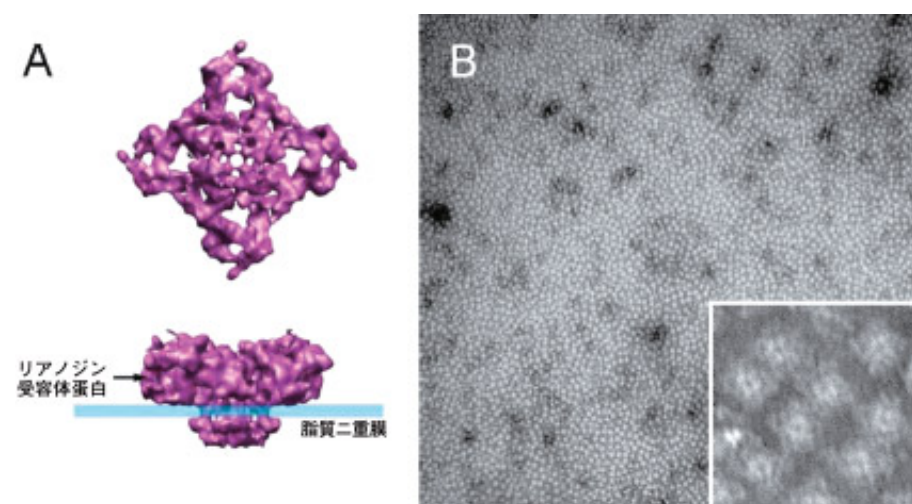


図1 ● コンテナ法の原理と実際 A: 膜蛋白 (リアノジン受容体) が本来埋め込まれている脂質二重膜をコンテナとして利用することにより、分子の方向性を揃える。B: コンテナ法で整列したリアノジン受容体の電子顕微鏡像。多数の分子が密集しているのが見える。拡大すると一つ一つは同じ方向を向いている (右下)

2. 研究内容

ターゲット・デリバリーシステムとして、欧米で提案されているのが分子ビーム法である。これは質量分析器の原理を応用して標的分子を飛ばし、分子がちょうどビーム位置に来たときにXFELパルスを照射するもので、標的を支える容器 (コンテナ) がいないことからコンテナレス法とも呼ばれる。この方法の欠点はタイミングの制御が難しいのと、分子の向きが揃わないことである。XFEL実験といえどもタンパク単分子からのX線散乱は微弱なので、構造決定のためには同じ向きの分子からの散乱だけを選んで多数加算する必要があるが、後者の問題はその障害になりうる。

それに対し、本研究課題で提案するのは従来どおり標的を容器に入れて支えるコンテナ法である。これによりタイミング制御の困難がなくなり、また標的の向きを正確に制御することもできる。本研究課題では特に膜タンパクを主要な標的に掲げている。膜タンパクを浮かべている脂質二重膜をコンテナとして利用することのほか、解析スループットの向上のため、更に多くの方法に基づくコンテナを検討している。

3. 期待される成果

後に記すように医薬品開発の上からも膜タンパクの構造決定は極めて重要である。本研究課題により開発しようとする技術が確立すれば、膜タンパク構造決定に関して日本が世界をリードする立場に立つことも夢ではない。

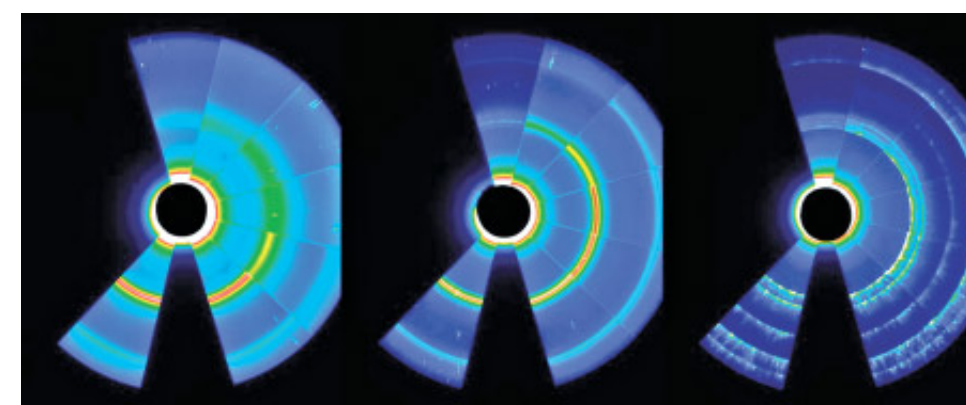


図3 ● 種々の水晶防止剤存在下で試料の凍結状態を評価した例 試料の深度により、構造を破壊する氷の結晶 (氷晶) が成長している様子が記録されている

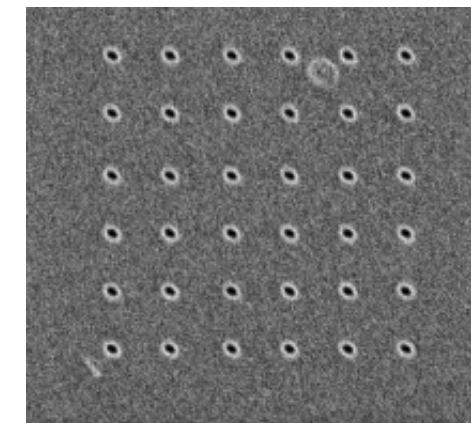


図2 ● 膜タンパク用コンテナの例 厚さ1μmの高分子膜 (ウルトラポリエステル) に、1μmごとに130nmの穴をあけた例。この大きさは、X線自由電子レーザービームの初期スペックと同等であり、タンパク単分子 (30nm) と比べても大きくない

4. 平成20年度の研究概要

膜タンパクをはじめXFEL用試料からの散乱は微弱なため、試料は凍結したうえ真空中に置いて、空気散乱を避けながら測定するのが基本である。20年度は氷の結晶の回折を測定することで試料の凍結状態を評価する方法を確立した。試料の位置や向きを高精度で決定するのに原子間力顕微鏡 (AFM) を利用する方法も開発している。またナノテクノロジーの技術を用い、膜タンパクに使用できる種々のコンテナも試作している。

5. 成果の社会還元

ヒトゲノムは30,000~40,000種類のタンパクをコードし、そのうちの約30%が膜タンパクといわれる。現在の医薬の約70%が膜タンパクを標的にしているといわれ、また膜タンパクが関係した遺伝疾患も非常に多い。ところが膜タンパクで構造決定がなされたのはわずか100種程度という。従って本研究課題の目指す技術によって膜タンパクの構造解析が進めば、医薬品の開発や遺伝疾患の治療に多大な貢献をもたらすであろう。

生体分子の立体構造決定手法の開発に向けた理論基盤の構築

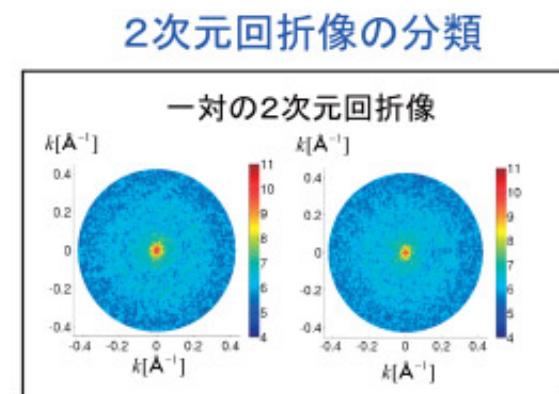
研究代表者 郷 信広 (日本原子力研究開発機構)
 共同研究者 岸本 泰明 (京都大学)

1. 研究実施の背景・目的

XFEL 光による生体関連の単分子あるいは生体分子複合体の単粒子を標的とした全く新しい方法による立体構造決定の可能性に大きな期待が寄せられている。これが可能となれば、現在おもな立体構造決定法である X線結晶解析において一番のボトルネックとなっている結晶化のステップを省くことがで

き、その意義は計り知れない。

本研究の第一の目的は、測定された散乱光強度データから立体構造を導き出す計算アルゴリズムを開発し、そのためのソフトを実装することである。標的が単分子あるいは単粒子であることを反映して、散乱光は極めて微弱であるため、強い量子雑音を含むデータを処理しなければならない。また、標的分子あるいは粒子が測定のための X線光によって測定

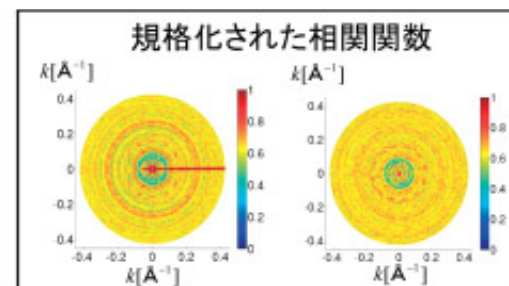


$$c_{fg}(k, \alpha) = \int_0^{2\pi} f(k, \theta + \alpha) g(k, \theta) d\theta$$

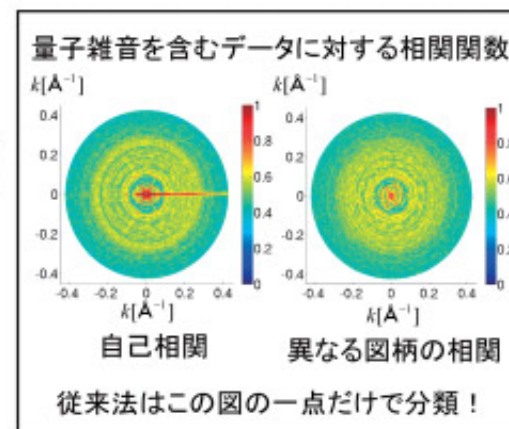
$$\bar{c}_{fg}(k, \alpha) = \frac{c_{fg}(k, \alpha)}{\sqrt{c_{ff}(k, \alpha=0) c_{gg}(k, \alpha=0)}}$$

k毎にk一定の円周上の回折強度値の規格化された相関関数を、第一の回折像の回転角αの関数として求める。

FFTで高速計算。



量子雑音のシミュレーション
 画素毎の観測光子数期待値をポアソン分布で整数値に置き換える。



従来法はこの図の一点だけで分類!

図1 ● 2次元散乱強度図の分類法、及び量子雑音を考慮した分類シミュレーションの結果 (シャペロン分子、入射強度 10^{22} [photons/pulse/mm²]) の場合)

中に崩壊してしまうという厄介な問題が存在する。本研究では、崩壊過程のシミュレーションを行うことにより、その立体構造計算への影響を調べる。それを通して、立体構造決定という目標達成に必要な装置および標的試料のパラメータ値を導くことができる。これが本研究の第二の目的である。

2. 研究内容

研究の内容は、次の3つに分けることができる。(A) 測定 X線光による標的試料の崩壊が無視できると仮定した場合に対して、散乱光強度データから立体構造を導き出すアルゴリズムを開発する。強い量子雑音にも関わらずそのアルゴリズムが実行可能であることを要請することにより、標的分子の大きさと達成すべき立体構造の分解能の関数として、測定に用いるべき入射 X線光強度の下限が定まる。(B) 測定に用いる X線光による標的試料の崩壊過程のシミュレーションを、様々な素過程に関する物理学の知見に基づき、いろいろな装置および試料パラメータ値に対して実行する。崩壊をある程度に抑えることを要請することにより、入射 X線光強度の上限が定まる。(C) 崩壊を伴いつつ測定される散乱光強度データから立体構造を導く上での具体的な問題を整理し、得られる立体構造の質を評価する。

3. 期待される成果

研究 (A) により、単分子立体構造解析において避けることのできない量子雑音の影響のみを考慮した絶対可能性の範囲が、試料と分解能の関数として表される入射光強度の下限值として同定される。その値が研究 (B) で得られる上限値よりも下にあれば、そのような装置および試料パラメータの実験が可能であり、立体構造に関する知見が得られる。それを可能にする計算ソフトのプロトタイプが、われわれの研究成果として整備される。装置は、運用開始後も改善が加えられていくであろうが、そのパラメータの改善に伴って、可能となる試料、分解能を示唆することができるだろう。

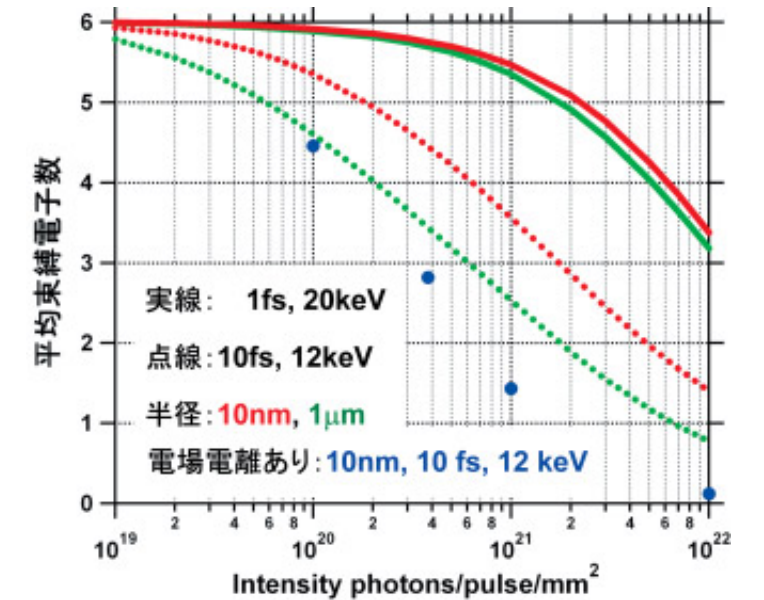


図2 ● 炭素クラスターの平均束縛電子数の X線数、波長、パルス幅、標的半径依存性 短波長・短パルス化により、損傷はより抑制される。標的自身の電場により自己崩壊する電場電離の重要性も解明した

4. 平成20年度の研究概要

研究 (A) における解析の最初の手順は、それぞれが未知でランダムな空間方位を持つ単分子試料からの多数の2次元散乱強度図を分類し、同一方位に対する強度図を平均して、量子雑音の影響の通減を図ることである。この分類の可能性が、上述の絶対可能性を規定している。平均して、質の向上を図った2次元散乱強度図は、次に相互に共通交点を探索することによって相互の配置を定め、多くの2次元散乱強度図に対してこの作業を実行することによって、3次元の散乱強度関数を構築する。20年度においては、これらの作業の詳細を世界に先駆けて明らかにした。研究 (B) においては、今まで考察されていなかった内核電離による原子散乱断面積変化や電離電場等の新しい物理素過程の影響もシミュレーションに取り入れ、それらが重要な影響を持つことを明らかにした。広い範囲の装置・試料パラメータに対して系統的にシミュレーションを実行し、望ましいパラメータ範囲に関する情報を得た。

5. 成果の社会還元

多くの医薬品の標的タンパク質分子は生体膜に埋め込まれて働く膜タンパク質分子で、その結晶化が極めて困難であることから、この全く新しい方法での立体構造決定の可能性への期待は大きい。

<産業界からの期待> X線自由電子レーザーがもたらす 新技術開発と産業への貢献

丹羽 紘一 (株式会社富士通研究所 顧問、神奈川工科大学 特別研究員)

技術開発の先端

昨今の技術革新は驚異的なスピードで進展し、企業は先端的な技術開発を余儀なくされる。たとえば、磁気ディスク装置 (HDD) の記録密度の向上は目覚しく、そのための超微細加工プロセス技術は急速に発展を遂げた。その一方で、ナノレベル膜の物性制御および物性解明は難しさを増し、信頼性などの問題解決に多くの時間を費やすようになった。この解明に SPring-8 の放射光利用は極めて効果的である。今後も放射光利用への期待は大きい。X線自由電子レーザーはこの SPring-8 の10億倍以上強く、しかも可干渉性の光をフェムト秒のパルスで得られることから、物質中における超高速の状態変化の観測が可能になる。現在、各社がしのぎを削って開発を進めている超微細化プロセスを含む新技術は、原子・電子の振る舞いを考慮しなければならないという基本的な問題に遭遇しており、その解決に威力を発揮することが期待される。

X線自由電子レーザーを必要とする 技術課題の例

HDDのTMR(トンネル磁気抵抗)磁気ヘッドでは、トンネル障壁層の電子散乱に影響する原子の乱れなど、より微細な構造の形成過程が自由電子レーザーによって解明され、理論値の半分程度に留まっているMR比*1を、理論的に予測されている1000%に近づけられると期待される。また、記録密度の向上に伴う磁気ヘッドの浮上量の低下は、潤滑剤の膜厚が潤滑剤分子よりも小さいことを要求するまでになっ

た。分子の設計とシミュレーションに依存している潤滑における分子の動きの状態を、その場観察できるようにになれば飛躍的にHDDの信頼性向上が期待できる(図1)。トランジスタの微細化は、ゲート絶縁膜を極めて薄くさせ、漏れ電流により消費電力を増大させる。この回避のために、SiO₂よりも誘電率が大きい材料をゲート絶縁膜に使用し、物理的に厚い膜で漏れ電流を抑制することが広く検討されているが、材料プロセス改善以上に物性追及が必要となっている。X線自由電子レーザーでは、X線の透過力を用いた「埋もれたナノ構造」の形状、分布、結晶性や応力などの、その場動的評価が可能になると考えられ、これら物性の追求に力を発揮すると期待される。有機金属錯体による有機合成など触媒は化学合成に不可欠である。しかしながら触媒界面での化学反応の多くは傍証からの推測に過ぎず、触媒を用いた化学製品の品質向上や新たな製品の創出には本質的な解明が囑望されている。たとえば光触媒である酸化チタンは水を分解し、水素を発生させるが、その様子はまだ観察されていない。フェムト秒レベルの早い速度で、酸化チタンと水分子の界面で化学反応が進むと考えられる。SPring-8のビームラインBL13XUを使って解析した結果、触媒表面の原子の脱離、再構成など多くの事象が解明されつつある。さらなる解明と産業応用のために、化学反応を分光学的な方法、回折学的な方法を駆使して機能と構造をその場観察できるX線自由電子レーザーに大きな期待が寄せられている。この他、エネルギーの揃った自由電子レーザー照射により、原子の複数の電子が同時に剥ぎ取られた結果現れる新物質や新現象

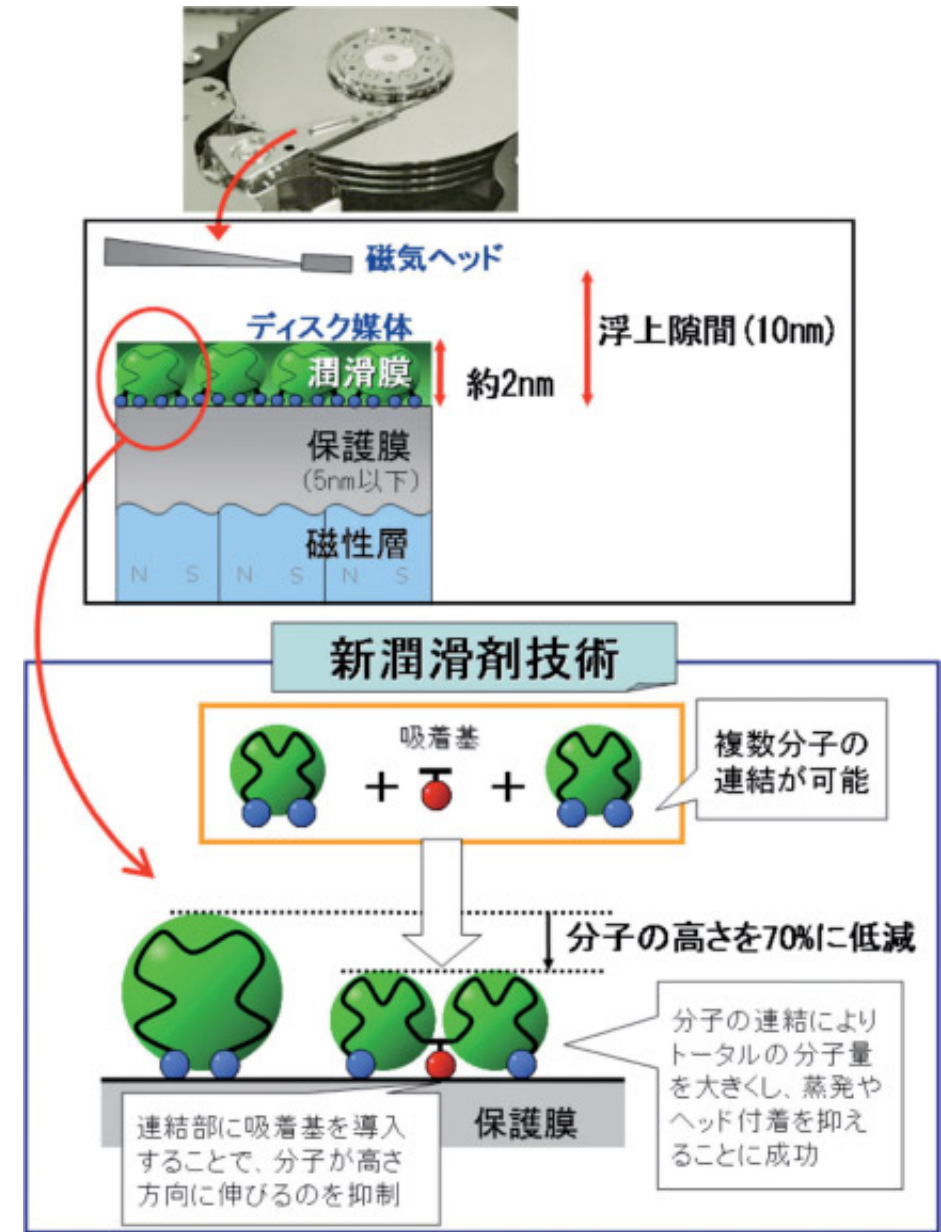


図1 ●高密度磁気ディスク装置 (HDD) の磁気ヘッドに使用する潤滑剤は分子の高さを現状の70%に圧縮することが要求される(富士通プレスリリース、2006年4月)。ヘッドが動作している状態での分子の動きがX線自由電子レーザーでその場観察できれば、HDDの特性安定性と信頼性を著しく向上させ、記録密度の向上を確実にする

の発見、それを利用した新デバイスの出現や新分析技術の出現などのブレークスルーが期待される。

利用推進研究への期待

X線自由電子レーザーの発振は平成22年度に予定されている。これに向けていち早くこの光を実用に供することが出来るよう、利用推進研究が実施され、必要とされる計測装置が準備されつつある。産業界の研究開発の現状からすれば、すぐにでも製品開発のためのツールとしてX線自由電子レーザーを活用すべき状況にある。スムーズにこれを可能にするためには、既に使用可能になっているプロトタイプ

機において企業が実施を試みることも他、平成21年度よりスタートする利用推進研究における統合システム開発期に、実施例題の一つとして、企業からのテーマを取り込むことも一案と考えられる。X線自由電子レーザーの利用に関する産業界への積極的な周知と大学と企業の強い連携を促進させることが望まれる。

*1 二つの強磁性電極の磁石の相対的な向きが平行なとき、および反平行なときの素子の電気抵抗をそれぞれR_p、R_aとすると、MR比は次のように求まる。MR比≡(R_a - R_p)/R_p × 100%