

新放射光源施設における高圧ビームライン提案書

2014 年 9 月

日本高圧力学会 研究・作業グループ
「コヒーレント放射光を利用した新しい高圧力科学」

巻頭言「日本高圧力学会と放射光」

日本高圧力学会は、高圧力の発生からその利用までを対象とする広範囲な分野の研究者および企業の方々が会員として参加する学術組織です。物理、化学、地球科学、生命科学などの基礎科学から、材料科学、機械工学、食品化学などのあらゆる分野に広がり、先端技術の開発の一翼を担っています。圧力は物質の状態決定には必須の物理量ですが、これを実験上の極限まで高めていくと未知のフロンティア領域となります。この高圧力のフロンティア領域での物質研究は、超伝導や磁性、誘電性、金属―絶縁体転移など、高圧力下で誘起される新奇物性が次々と明らかにされることで、計算機技術の進歩による理論的研究の進展とも相まって、大きく進展してきました。また、液体や非晶質の研究も重要な領域になりつつあります。高温高压領域では地球深部における物質の挙動の解明に大きく貢献し、また超硬材料を始めとする広範な物質・材料の開発研究にも貢献しています。

高圧下では様々な測定が行われていますが、電子物性、磁性、光物性などの圧力効果の正確な理解には結晶構造解析データに基づく電子構造計算が必要となっており、地球科学では高温高压下の結晶構造解析や構造計算が地球深部の理解に重要な位置を占めています。また、高压合成による新物質開発、溶液反応や生命科学の高压分野におきましても、高压下の構造解析が重要な役割を果たしています。静的な高压発生装置として最も高い圧力を発生できるダイヤモンドアンビルセルと X 線回折との親和性はよく、放射光利用が開始される以前より、高压 X 線回折実験が行われていました。放射光の出現は、X 線強度、単色性、ビームの平行性などの向上により、高压 X 線回折実験に飛躍的な進歩をもたらしました。Photon Factory では、大型プレス装置による高温高压 X 線回折実験が、世界に先駆けて開始された実績もあります。大型プレスの放射光利用は地球深部の物質科学や材料合成の分野で威力を発揮し、日本発の技術として海外でも利用されています。

日本高圧力学会は 1959 年に始まる高压討論会の参加メンバーを母体として 1989 年に組織されました。学会の会員数は約 600 名前後で毎年推移しており、それほど大きな規模ではありませんが、お互いの顔が見え、会話のできる雰囲気があります。元来、高压研究者の横のつながりは強く、放射光利用開始より培われたコミュニティの輪が研究の進展に大きな役割を果たしており、世界の中で日本が優位性を保っている大きな要因となっています。学会活動の一つとして研究・作業グループの活動があり、重要な課題について学会として積極的にサポートしています。2012 年からは「コヒーレント放射光を利用した新しい高圧力科学」が採択され、次世代放射光施設を利用することで新しく展開される高圧力科学について議論を行い、先端性と汎用性をもつ高压ビームラインの提案を行うという活動が進められています。日本が高圧力科学の分野でも世界をリードする立場を維持していくためには、新放射光源施設における高压ビームラインの設置が必要不可欠です。新光源施設の建設準備を進めておられる皆様方には、ご高配を賜りますようお願い申し上げます。

日本高圧力学会・会長
高橋博樹

目次

1. はじめに	1
2. サイエンスの展開	2
物質科学	2
地球科学	10
材料科学	15
3. ビームライン技術の動向	22
挿入光源	22
光学系	25
高圧装置	31
ダイヤモンドアンビルセル(DAC)	31
大容量プレス(LVP)	34
検出器	38
4. ビームラインの提案	44
DAC ビームライン	44
LVP ビームライン	45
共通設備と運営	46
5. おわりに	47
 参考資料	
世界の放射光施設	51
PF, SPring-8 の高圧関連課題	55
高圧ビームラインポテンシャルユーザーリスト	58
WG メンバーリスト	62
WG 活動実績	65
 本提案書 執筆分担者・協力者一覧	 71

1. はじめに

電子シンクロトロン放射光の利用は、現代科学の各分野の発展に大きく貢献してきた。1970 年代以降、専用の蓄積リングを持つ放射光源施設(第二世代)が世界各地に誕生し、1990 年代以降には、低エミッタンス電子ビームからのアンジュレーター放射の利用を主とした高輝度放射光源施設(第三世代)の建設が進んだ。これらの光源施設では、放射光を連続光として利用した研究が行われてきた。現在では、高ピーク輝度のパルス光を発振する X 線自由電子レーザー施設も稼働している。初期の多くの第三世代施設が電子エネルギーの高い大型施設であったのに対し、近年では、それらに比べて電子エネルギーの低い中型施設の建設が世界各地で進められている。放射光のコヒーレントフラックスの向上や低エネルギー側の高輝度化が可能なことに加え、アンジュレーター技術の進歩により高輝度硬 X 線の利用も可能になってきたことが、比較的低いコストで建設と運営の可能な中型施設の計画を後押ししている。日本においても、日本放射光学会により提出された「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」が日本学術会議マスタープラン 2014 の重点大型研究計画に採択され、喫緊の課題としての中型高輝度光源の建設とその先に続くべき次世代回折限界光源計画へ向けた R&D の必要性は、学界の共通認識となっている。

高圧下において、物質は常圧下での常識からは想像できないような特異な挙動を示す。高圧力科学とは、そうした高圧下における物質の振る舞いを様々な興味から研究する学問分野である。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 年代以降に飛躍的な発展を遂げた。日本の高圧力科学の先人達は、世界に先駆けて Photon Factory に MAX80 (Multi Anvil X-ray system designed in 1980)を導入し、また、その後に続く研究者達は、光源の高輝度化とともに高圧技術の高度化を進めて最先端の研究成果を挙げ、世界の放射光高圧力科学を牽引し続けている。現在、PF と SPring-8 では、極めて広範な分野の研究が、極めて多様な実験手法により展開されている。この間、三十余年の年月を経て形成された研究者コミュニティは、日本の放射光高圧力科学が世界に対して優位性を保つことのできている理由の一つとなっている。しかしながら、諸外国において新光源施設の建設が進み、高圧実験の可能な多数のビームラインが整備される中、日本が取り残されていくなれば、日本の優位性は失われることになりかねない。高圧力科学コミュニティとしても新光源施設の建設を強く希望するとともに、そこでの展開に向けた検討と準備を進めることが急務である。

本提案書では、第二章において、放射光高圧力科学の重要性と必要性に関する自己点検と新しいサイエンスの展開について、第三章において、高圧力科学の推進に適したビームライン技術について議論し、第四章において、それらを踏まえた新光源施設における高圧ビームラインの概念提案を行う。近い将来、日本においても新光源施設の建設計画が予算化され、本提案書に基づき、高圧ビームラインの詳細設計が行われることを期待したい。

2. サイエンスの展開

2.1 物質科学

2.1.1 課題

物質科学の重要な目標の一つは、物質の構造と性質の間の関係を理解すること、すなわち物質の性質を原子レベル、ナノスケール、ミクロンスケールの構造から説明することである。計算機技術の進歩に伴い、物質の性質や構造をその物質を構成する原子の情報だけから導く理論的手法の開発も大きな目標となってきた。圧力は物質の密度、ひいては原子間距離や結晶構造などを変化させる手段であり、物質の構造と性質の関係を調べる上で温度とならんで非常に重要なパラメータである。このため高圧下における実験および理論的研究は、相互に連携しあいながら、物質科学の豊かな領域を切り拓いてきた。

実験的研究においては、放射光 X 線が決定的ともいえる役割を果たした。多くの物質において高圧下の構造を常圧に回収できないため、高圧下での「その場観察」が必須となる。一方、より高い圧力の発生のために、試料は数十ミクロンといったサイズまで小さくなっており、高輝度の X 線が不可欠となるのである。

近年の高圧技術と放射光技術の発展により「みえなかったものがみえるようになった」ことで、従来の常識を覆す結果が得られている。高圧極限で物質は高対称に単純化し、そこに物質の普遍性が追求できると考えられてきたが、それが否定され始めている。つまり、低対称な高密度構造が超高圧下で多く観測され始め、単体二原子分子結晶の固体ヨウ素では圧力誘起分子解離の前に、いわば分子性と原子性の構造間を揺らぐ状態ともいえる非整合な変調構造が発見された[1]。さらに、緩慢で連続的な変化しか起こらないと思われてきた液体においても比較的急激な構造変化やさらには一次相転移までもが発見された。いまだ高圧下には未知の多様な構造と物性の存在が期待されている。一方、理論研究手法の高精度化も著しく、実験事実の再現に留まらず、その構造や物性の予測が実験に先んじて行われ、実験がそれを実証することも多くなってきた。このように高圧下の物質研究は、実験と理論の両方において新しいステージに移行したと感じられる。

一方、高圧下の研究に特有な問題も顕在化してきた。実験室で物性測定を行い新現象が発見され、その結晶構造を解明することで、現象を理解する研究過程を考える。このような新現象発見初期の段階で二測定を結ぶのはその「圧力値」のみである。それぞれ高精度化されてきた両測定であるがゆえに、「圧力値」で結ぶだけでは説明できないことが多くなっている。また逆に新構造が発見され、その物性を明らかにする過程においても同様である。様々な物性測定を構造測定と同時に「同時性」も求められることが多い。

今後の高圧下の物質科学の課題として、先鋭化と複合化、そして技術の普及を考えたい。「みえなかったものがみえるようになった」をより先鋭化すること、「同時性」を実現させる複合化、そして興味ある物質を持つ研究者が気軽に高圧実験をできる環境づくりである。

2.1.2 現状

■固体物性

100 GPa を超える超高压下の研究領域には、基礎科学的な興味である高密度物質の物性の追求がある。なかでも水素は最もシンプルかつ最も宇宙に多く存在する元素であり、圧力印加による金属化と高温超伝導体化が予想されている[2]。必要な圧力は 400 GPa 以上とされ、「聖杯」と呼ばれて長く高压研究者の研究ターゲットとなっている(図 1)。近年では室温下で 270 GPa 以上に半導体的な伝導を示す高压相が発見され[3]、その周辺の新構造の存在も明らかにされようとしている。固体金属相はすぐ近くに迫っているという感もある。事実、欧米の研究グループは、電気抵抗などの同時測定には至っていないものの、低温超高压下の放射光構造解析を始めている[4]。超高压発生とその下での構造および伝導特性の研究は急務と考えられる。これには強力な X 線をミクロンオーダーの極微細な領域にフォーカスする必要がある。

金属水素化物には、超高压下で金属水素に似た電子状態を生成できる可能性[5]が考えられるほか、水素の吸蔵による物性変化を利用した機能性材料の創出にも大きな期待がある。また水素発電に供することのできる有効な水素コンテナとなるべき物質開発も、高压下の水素化物の研究による展開が期待される課題である。X 線による水素の散乱は小さく、母物質の構造を通した吸蔵形態の解析に限られるが、むしろその吸蔵過程と物性変化過程の観察・比較は強力な解析手法となっている。

水素にならんで基礎的な研究対象にアルカリ金属を始めとする単体金属がある。自由電子模型で物性が記述出来るとされたアルカリ金属では、超高压下でその結晶構造の対称性を低下させ、さらに絶縁化することが次々と発見され[6,7]、金属の高密度下の形態に新たな物性研究領域があることが示された。また、二価の金属カルシウムにおいて 217 GPa の超高压下で元素における最高温度 29 K の超伝導転移が観測された[8]。この高温超伝導を達成するホストゲスト構造と呼ばれる低対称で特殊な結晶構造は高温超伝導性に関連して興味深い[9]。

強相間電子系物質群の研究、特に量子臨界状態の研究は近年の多くの物性物理研究者のテーマであり、圧力の印加による結晶構造変化をパラメータとした物性変化が重要な研究指針を与えている。水と油のごとく考えられていた磁性と超伝導の連携・協奏は、近年、強相間電子系超伝導体において一般的な性質と考えられるに至っている。銅酸化物超伝導体以来、初めて 50 K を超えた鉄系超伝導体は、強磁性元素である鉄がその中心元素であり、転移温度を構造パラメータのチューニングにより追求する研究が精力的に行われている[10,11]。

結晶構造とリンクする磁気構造を圧力によって変化させ、それにより磁性と誘電性の交差相関を生み出す電気磁気効果は、新たな省電力デバイス材料の創成法として期待されている。また、空間反転対称性を持たない磁気構造によりスピン軌道相互作用や交換相互作用を通じて結晶構造の対称性を低下させることで誘電性を示す物質探索も盛んに行われている。これらには、静水圧性ばかりではなく軸性の圧力を積極的に用いた、コントロールされた構造(磁性)制御が求められる。

特徴的な局所構造に由来する際立った物性の発現により、グラフェンやカーボンナノチューブ、層状物質が注目されている。平均構造ではなく、表面構造を始め、界面や吸着、インターカレーシ

ョンなど端部の局所的な構造解析が求められる。トポロジカル絶縁体・超伝導体も表面状態すなわち不純物や欠陥状態による有限サイズの効果が高精密な構造物性研究の対象であるといえる。磁性研究においては、放射光を磁性のプローブとして用いる測定も超高压条件まで可能となっており、170 GPa までの Co の XMCD 実験[12]や 252 GPa までの鉄のメスバウアー実験[13]が報告されている。

このように広範な固体物性の研究領域における今後の課題は、超高压という先鋭技術の一層の推進と、多重環境の生成とその環境下での同時計測といえるであろう。物質内の原子間距離を直接的に操作し、結晶構造を変化させる高压実験は常に物質研究に欠かせないツールである。電気抵抗との同時測定をめざした研究の例を図 2 に示す。

■液体・非晶質

液体・非晶質の研究も高压下の物質研究の重要な領域になりつつある。1980 年代後半より辻らは大容量プレス(LVP)と放射光 X 線を組み合わせた高温高压下での液体の構造研究を開始し、アルカリ金属のような単純な構造を持つ液体では原子間距離が均一に縮む等方的な圧縮がおきるのに対し、共有結合を作る元素では、配位数の増加が密度増加の原因となる場合があること、その場合、最近接原子間距離は等方的な圧縮から期待されるほど縮まず、逆に伸びる場合もあること、さらには、圧力領域によって局所構造の変化の様子が異なる場合があることなどが見出された[14,15]。これら元素液体の研究は、液体リンでの液体-液体相転移の発見につながった(図 3)。液体リンでは、加圧あるいは減圧による X 線回折パターンの急激な変化の観測に加え、ラジオグラフィによる二相共存の直接観察、X 線吸収法による密度測定など、放射光を用いた複数の手法が一次相転移の確認に使われた[16,17]。

LVP と放射光の組み合わせは、水のような軽元素からなる系でも有用であり、17 GPa, 850 K までの融解曲線直上での測定が行われている[18]。常圧の水では、分子間に働く水素結合によって液体の状態でも氷に似た 4 配位の局所構造が存在している。融解曲線直上では、約 4 GPa までは最近接分子間距離はほとんど変化せず、配位数が増大すること、4 GPa で球状分子を詰めたような単純な構造になった後は、配位数はほとんど変化せず、最近接分子間距離が減少することが明らかになった。一方、並行して行われた分子動力学シミュレーションでは、氷に似た秩序の消失には、圧力よりは温度の効果が重要であることを示す結果が得られた[19]。このシミュレーション結果は X 線回折実験でも確認され、高温高压下の水の局所構造の変化についての理解が進みつつある。

LVP を用いた液体・非晶質研究には複数の研究者が参入し、構造変化と粘性の変化を結びつける研究[20]、共有結合とイオン性が共存する液体[21]、分子性液体[22]、SnI₄ における液体中の相転移の探索[23]、高分子[24]あるいは水溶液の研究などが行われている。また、回折だけでなく EXAFS を用いたゲルマン酸塩ガラスや熔融塩の研究も進められている[25]。ダイヤモンドアンビルセル(DAC)を用いた実験ではより高压までの測定が可能であり、シリカガラスでは 50 GPa までの密度測定、100 GPa までの回折実験が行われている[26,27]。この研究から、常圧での SiO₄ の

四面体が酸素を共有しながら三次元的につながった構造から、 SiO_6 の八面体が基本となる構造へ変化する様子が明らかにされた(図 4)。温度圧力領域の拡大, 研究対象の拡大で, 今後も様々な新しい現象が見出されると思われる。

2.1.3 展望

今後の高圧下の物質科学の課題として述べた, 先鋭化と複合化, そして技術の普及の具体的な例を示す。

先鋭化: 微細化, ナノビーム, 測定感度,

微細構造, 高速現象, 時分割測定,

軽元素, 準結晶, 化学反応, 流体,

放射光を利用した手法の拡大, コヒーレント X 線の利用

複合化: 電気伝導, 磁気測定, 比熱, ラマン, ブリルアン, 赤外,

低温, 高温, 磁場, 反応場, 酸アルカリ,

超伝導, 機能性材料(分子磁性, 熱電材料, 高強度材料),

水素化物

普及化: 高圧発生技術の標準化, 標準的なパーツの量産,

放射光施設における利用支援の充実,

解析ソフトウェアの整備, 教育や実習の機会の充実

液体・非晶質の分野で例を考えよう。先鋭化としては, ①温度圧力領域の拡張, ②温度・圧力の精密な制御と測定データの精度向上による温度圧力相図上の詳細な構造・密度データ収集, ③手法の拡張の三つの方向が考えられる。これらによって, 新たな液体-液体相転移の確認, 液体-液体相転移にかかわる第二臨界点の存在の証明, 水の構造研究の低温高圧への展開と水の液体-液体相転移の実証といった液体研究のブレークスルーが期待される。手法の拡張としては XAFS(XANES)による高温高圧液体の電子状態解析, 半導体-金属転移の解明, 高圧下での高分解能非弾性散乱手法の開発による液体の音速や振動状態密度の測定などが挙げられるが, これらは液体の構造変化のメカニズムの解明に役立つと期待される。音速や電気抵抗, 光学的性質などの物性の同時測定も重要な課題である。一方, 高圧技術の普及によって, 分子間あるいはイオン間に複数の相互作用が働くより複雑な系, すなわち各種の溶液, 分子性液体, 高分子液体, イオン性液体等の研究がこれらの液体の研究の参入によって進めば, 複数の相互作用の競合に起因した新現象の発見が期待される。

一方, 次世代光源で利用可能となるナノビームやコヒーレント X 線も高圧下における新たな物性研究を開拓するものであろう。超高圧下の微小な試料体積では良好な粉末回折を得ることが難しく

なるが、ナノビームを用いた微小結晶一つ一つの単結晶構造解析といったことも考えられる。また、物質の性質は、結晶構造だけで決まるわけではなく、構造のゆらぎや不均一性、欠陥やドメイン、結晶粒といった、ナノからミクロンのレベルの構造も影響する。近年の高性能材料の開発においては、これらを積極的に利用して性能を上げることが試みられている。高圧下でも、ナノビームを用いた顕微鏡的手法によって、ドメインの観察や、元素、価数あるいは応力の分布などを知ることができる可能性がある。またコヒーレント X 線の利用によって、物性発現にかかわるナノからサブミクロンのドメイン構造の解析も可能になるかもしれない。これらも新しい研究の展開を期待させるものである。

参考文献

- [1] K. Takemura, K. Sato, H. Fujihisa, M. Onoda: Modulated structure of solid iodine during its molecular dissociation under high pressure, *Nature*, **423**, 971 (2003).
- [2] C.F. Richardson, N.W. Ashcroft: High temperature superconductivity in metallic hydrogen: Electron-electron enhancements, *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 118 (1997).
- [3] M.I. Eremets, I.A. Troyan: Conductive dense hydrogen, *Nature Mater.*, **10**, 927 (2011).
- [4] R.T. Howie, C.L. Guillaume, T. Scheler, A.F. Goncharov, E. Gregoryanz: Mixed molecular and atomic phase of dense hydrogen, *Phys. Rev. Lett.*, **108**, 125501 (2012).
- [5] N.W. Ashcroft: Hydrogen dominant metallic alloys: High temperature superconductors?, *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 187002 (2004).
- [6] T. Matsuoka, K. Shimizu: Direct observation of a pressure-induced metal-to-semiconductor transition in lithium, *Nature*, **458**, 186 (2009).
- [7] Y. Ma *et al.*: Transparent dense sodium, *Nature*, **458**, 182 (2009).
- [8] M. Sakata, Y. Nakamoto, K. Shimizu, T. Matsuoka, Y. Ohishi: Superconducting state of Ca-VII below a critical temperature of 29 K at a pressure of 216 GPa, *Phys. Rev. B*, **83**, 220512(R) (2011).
- [9] H. Fujihisa *et al.*: Ca-VII: A chain ordered host-guest structure of calcium above 210 GPa, *Phys. Rev. Lett.*, **110**, 235501 (2013).
- [10] H. Takahashi, K. Igawa, K. Arii, Y. Kamihara, M. Hirano, H. Hosono: Superconductivity at 43 K in an iron-based layered compound $\text{LaO}_{1-x}\text{F}_x\text{FeAs}$, *Nature*, **453**, 376 (2008).
- [11] L. Sun *et al.*: Re-emerging superconductivity at 48 kelvin in iron chalcogenides, *Nature*, **483**, 67 (2012).
- [12] N. Ishimatsu *et al.*: Paramagnetism with anomalously large magnetic susceptibility in β (fcc)-cobalt probed by x-ray magnetic circular dichroism up to 170 GPa, *Phys. Rev. B*, **83**, 180409(R) (2011).
- [13] T. Mitsui *et al.*: Ultrahigh-pressure measurement in the multimegabar range by energy-domain synchrotron radiation ^{57}Fe -Mössbauer spectroscopy using focused x-rays, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **16**,

L382 (2007).

- [14] K. Tsuji, K. Yaoita, M. Imai, O. Shimomura, T. Kikegawa: Measurements of x-ray diffraction for liquid metals under high pressure, *Rev. Sci. Instrum.*, **60**, 2425 (1989).
- [15] N. Funamori, K. Tsuji: Structural transformation of liquid tellurium at high pressures and temperatures, *Phys. Rev. B*, **65**, 014105 (2001).
- [16] Y. Katayama, T. Mizutani, W. Utsumi, O. Shimomura, M. Yamakata, K. Funakoshi: A first-order liquid-liquid phase transition in phosphorus, *Nature*, **403**, 170 (2000).
- [17] Y. Katayama, Y. Inamura, T. Mizutani, M. Yamakata, W. Utsumi, O. Shimomura: Macroscopic separation of dense fluid phase and liquid phase of phosphorus, *Science*, **306**, 848 (2004).
- [18] Y. Katayama *et al.*: Structure of liquid water under high pressure up to 17 GPa, *Phys. Rev. B*, **81**, 014109 (2010).
- [19] T. Ikeda, Y. Katayama, H. Saitoh, K. Aoki: Communications: High-temperature water under pressure, *J. Chem. Phys.*, **132**, 121102 (2010).
- [20] V.V. Brazhkin, M. Kanzaki, K. Funakoshi, Y. Katayama: Viscosity behavior spanning four orders of magnitude in As-S melts under high pressure, *Phys. Rev. Lett.*, **102**, 115901 (2009).
- [21] T. Hattori, K. Tsuji, Y. Miyata, T. Sugahara, F. Shimojo: Pressure-induced structural change of liquid InAs and the systematics of liquid III-V compounds, *Phys. Rev. B*, **76**, 144206 (2007).
- [22] S. Yamamoto, Y. Ishibashi, Y. Inamura, Y. Katayama, T. Mishina, J. Nakahara: Pressure dependence of local structure in liquid carbon disulfide, *J. Chem. Phys.*, **124**, 144511 (2006).
- [23] K. Fuchizaki, N. Hamaya, T. Hase, Y. Katayama: Communication: Probable scenario of the liquid-liquid phase transition of SnI₄, *J. Chem. Phys.*, **135**, 091101 (2011).
- [24] A. Chiba *et al.*: Pressure-induced structural change of intermediate-range order in poly(4-methyl-1-pentene) melt, *Phys. Rev. E*, **85**, 021807 (2012).
- [25] O. Ohtaka, H. Arima, H. Fukui, W. Utsumi, Y. Katayama, A. Yoshiasa: Pressure-induced sharp coordination change in liquid germanate, *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 155506 (2004).
- [26] T. Sato, N. Funamori: Sixfold-coordinated amorphous polymorph of SiO₂ under high pressure, *Phys. Rev. Lett.*, **101**, 255502 (2008).
- [27] T. Sato, N. Funamori: High-pressure structural transformation of SiO₂ glass up to 100 GPa, *Phys. Rev. B*, **82**, 184102 (2010).

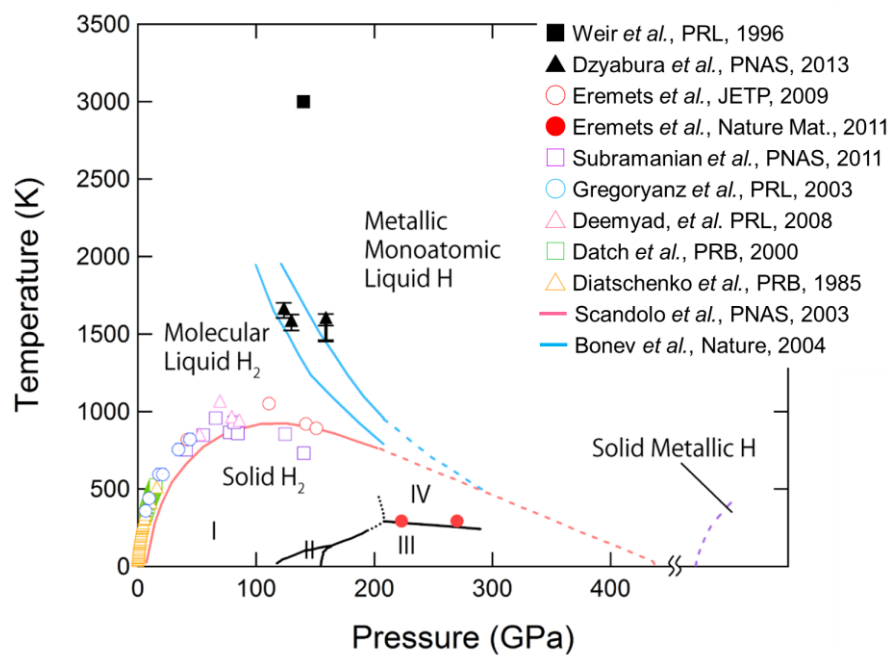


図1 水素の温度圧力相図。

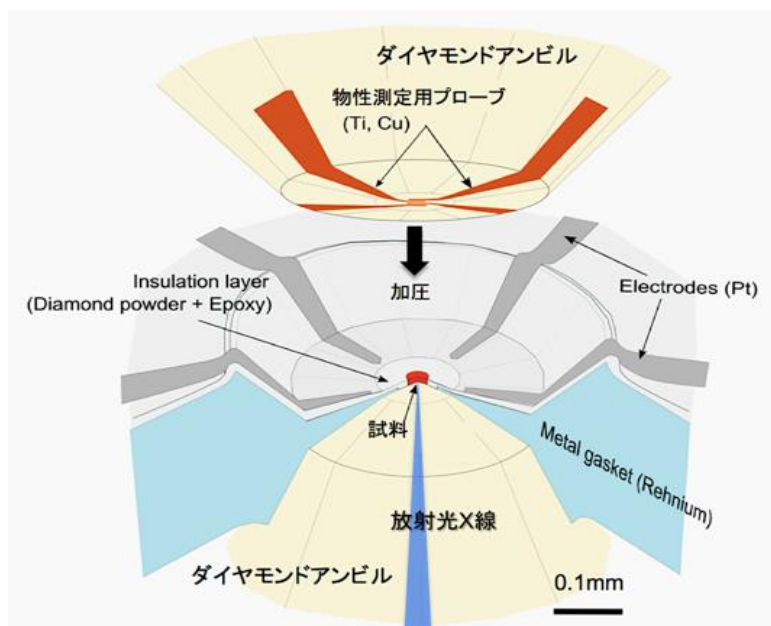


図2 超高圧力下精密物性測定プラットフォーム。ダイヤモンドの先端で物性測定と放射光による精密構造解析を同時に実現させる。

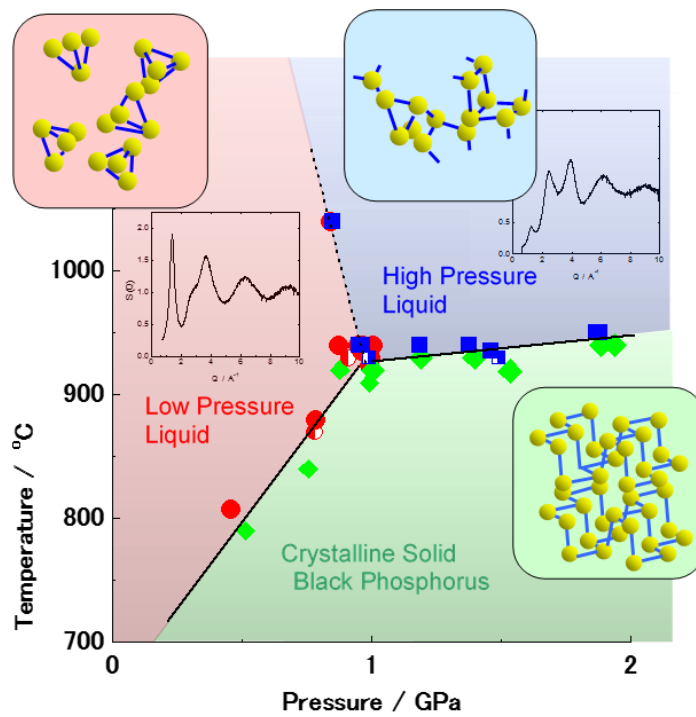


図3 リンの温度圧力相図。P₄分子からなる状態とそれが壊れた状態の二つの液体状態に加え、それらが共存の様子が観測された。

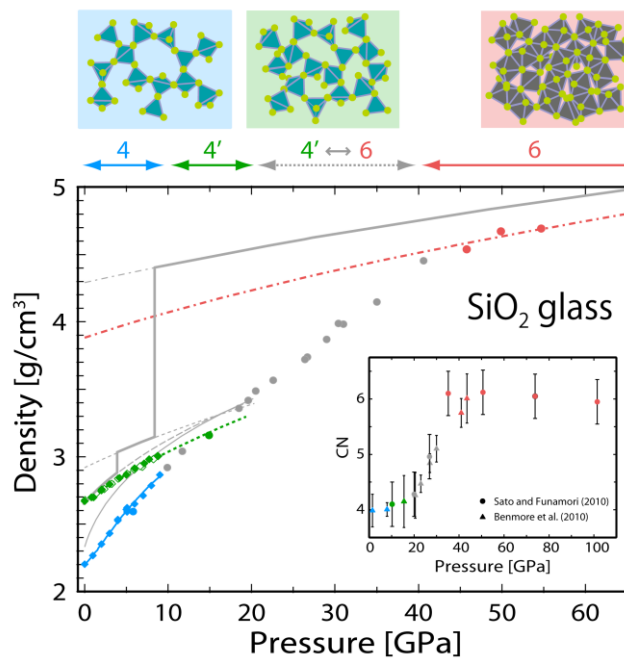


図4 SiO₂ ガラスの密度の圧力変化と Si 原子周囲の酸素の配位数の圧力変化。

2.2 地球科学

2.2.1 課題

放射光施設の充実と性能の向上に刺激され、放射光 X 線を使った高圧実験はめざましく進歩してきた。高圧実験は地球深部における物質の挙動を直接的に解明することができるほぼ唯一の手段であり、相転移や物性の研究を通じて、地震学的観測とともに固体地球科学分野の進展に大きな貢献を果たしてきた。高圧実験技術の開発ならびに地球深部科学の進展に日本の高圧地球科学研究者が世界を先導してきたことは特筆に値する。時代の変遷とともに放射光施設で到達可能な実験条件は地球のより深部へと進んでいった(図1)。我が国における放射光利用による高圧地球科学のマイルストーンとしては、例えば、下部マントル条件下におけるペロブスカイト相の直接観察[1]、D''層におけるポストペロブスカイト相の発見[2]、内核条件下における鉄の直接観察[3]などが挙げられ、現在では、地球中心部に相当する温度圧力での実験が可能となっている。

放射光施設における高温高圧実験は、試料体積が対照的であるダイヤモンドアンビルセル(DAC)と大容量プレス(LVP)を、特徴に応じて使い分けることで進展してきており、それぞれ独立のビームラインが建設・運営されている。今後も、DACとLVPのそれぞれで温度圧力条件のさらなる向上が進むと予想されるが、それに加え、放射光の特長を活かした新たな複合測定を行うことで地球内部科学にブレークスルーがもたらされるものと期待される。

2.2.2 現状

DACを用いた実験では、試料が極小なために、以前は状態観察が困難であった。しかし現在では、高輝度 X 線の利用により、試料サイズは大きな問題ではなくなりつつある。既に地球中心の条件を超える温度圧力条件下で、DACを用いた静的圧縮実験が行われ、主に X 線回折測定に基づいて重要な状態図(相転移)が次々と明らかにされつつある(図2)[3,4]。また放射光を利用した様々な分光法により、シリケート中の鉄イオンのスピン状態の研究[5]や地球深部物質の音速の測定[6]なども実施されるようになってきた。

マントルのダイナミクス、さらには地球誕生以来のマントルの進化を理解するには、そのレオロジー(変形や流動の仕方)を知る必要がある。上部マントルを構成する鉱物のレオロジーは LVP を用いた放射光 X 線回折やラジオグラフィといった手法により調べられている[7,8]。また、D-DIA 装置を用いたアナログ物質を対象とした実験で、沈み込むスラブにおけるポストスピネル転移のレオロジーを解明する試みも進められている[9]。高温高圧条件におけるその場観察によって、マントル鉱物の変形挙動が明らかにされつつある。

高圧下における液体の性質を理解することも地球科学において極めて重要である。しかしながら、高圧下における液体の物性測定は固体よりもはるかに難しい。外核(液体コア)は地球質量の三割を占めるにも関わらず、その化学組成は謎のままである。コアに含まれる軽元素の種類と量は、コアの形成プロセスを強く反映しており、地球の原材料物質、さらには揮発性元素が地球へ運ばれたタイミングなど、地球の成り立ちを紐解くのに極めて重要な情報である。外核中の軽元素に制

限を与えることを目的として、高温高压下での Fe_3C 液体の密度が LVP を用いた X 線吸収イメージングによって測定されるなど、現在、鉄合金液体の圧縮挙動に軽元素がもたらす影響が明らかになりつつある[10]。超音波音速測定法による高温高压下における Fe-S 系液体の弾性波速度の測定の試みも LVP を用いて開始されている[11]。今後、圧力領域の拡大により、地球の外核の議論にも適用可能なデータが得られるようになれば、外核の化学組成の理解がさらに進むであろう。一方、5 GPa 以下の圧力条件においても、LVP を用いた放射光 X 線イメージングによって、沈み込むスラブ中のメルトや流体の形成の様子を直接観察することにより、沈み込み帯のマグマティズムに関する重要な研究成果が得られている[12]。

上述した極限的な超高压条件での測定や先鋭的な複合測定だけでなく、放射光X線を用いたコンベンショナルな相境界測定や構造解析も、今後、その重要性をさらに増していくに違いない。例えば、最近発見された高压含水ケイ酸塩 (Phase H) の安定領域が LVP を用いた放射光X線回折によって明らかにされ、水がマントル最下部までもたらされる可能性があることが示された[13]。

2.2.3 展望

高压地球科学が目指すサイエンスとして、固体(マントルや内核)のレオロジーおよび液体(外核や最下部マントルの一部)の密度と音速の解明が真っ先に挙げられるであろう。現在でも、マントルの対流様式、その結果としての上部マントルと下部マントルの化学組成の違いの有無といった地球内部の大局的な構造でさえ活発な議論の対象となっている。現状、マントルの粘性には 5 桁もの不確定性があり、マントルの流れを深部に至るまで理解できているとはいえない。内核については、奇妙な地震学的観測(例えば、西半球と東半球で異方性の大きさが全く違う)を説明するモデルがいくつか提案されているが、内核の粘性に至っては 10 桁もの不確定性があり、モデルの妥当性を検証するのは極めて困難である。コアの温度や熱伝導率の推定は化学組成に大きく依存する。この問題は 60 年以上に渡って議論されて続けており、固体地球科学における最難問といっても過言ではない。最終的に、液体鉄合金の密度と音速を外核条件下で測定し、地震学的観測データとの直接比較を行うまで、この問題は解決しないであろう。

地震波の超低速度層の観測から、マントルの底にシリケイトの液体(メルト)が存在する可能性が指摘されている。地球全体をシステムとして考えるにあたり、境界層の理解が重要であるのはいうまでもない。コアとマントルの境界は地球内部の最大の境界である。ここでのメルトの振る舞い次第で、地球表層に見られるような複雑な地質構造がコアの直上に発達する可能性もある。下部マントル中の最大の地震波速度異常である大規模な横波の低速度領域 (LLSVP) の成因にもメルトが大きな役割を果たしている可能性がある。シリケイトメルトの化学的進化(状態図)と密度を決定し、その振る舞いを理解することは、コア・マントルの境界域の理解に大きく役立つであろう。

レーザー加熱式 DAC は超高压高温の実験を可能にしたが、同種の実験では試料中の温度不均質が大きく、しばしば、異なるグループによる実験結果の不一致が報告される。したがって、抵抗加熱式 DAC を用いた高温の発生や、LVP による超高压の発生に向けた努力も重要である。一方、高温高压下にある試料のイメージング、それも化学組成の情報の入った 3 次元のイメージング技

術は、高圧地球科学に大きな進展をもたらすに違いない。放射光実験は高温高圧下その場観察を可能にしたという点で革命的であった。それをさらに進めて 3 次元観察を可能にすることにより、実験の精度や再現性が格段に向上する。レーザー加熱式 DAC のような試料中に温度の不均質がある実験には特に有用である。大きな不一致が指摘されている融解温度の精密決定にも 3 次元イメージングは大きな役割を果たすに違いない。加えて、X 線の透過率と試料サイズから液体の密度を求めることも可能である。新光源施設の建設によって可能になる低エミッタンスナノビームの活用により、これまで不可能であった高精細な 3 次元イメージングの実現が期待される。

地球深部物質の研究には上述のような鉱物物性や化学組成に加えて、スピン状態や酸化還元状態に関する情報も必要不可欠となる。これらの情報の取得には 10 keV 以下の X 線を用いる分光測定が不可欠で、地球深部物質関係ではシリケート中の鉄イオンのスピン転移の観察がなされている。新光源施設の建設により、このエネルギー領域の輝度が格段に向上すれば、高温高圧下におけるより良質な分光測定を行うことが可能になるであろう。また、高圧地球科学での利用実績のない新しい測定手法の導入も今後の課題となるであろう。例えば、粒子ダイナミクスの解析に利用されている X 線光子相関法(XCPS)をマグマのダイナミクスに応用するなどの可能性が挙げられる。

高温高圧下での高精細 3 次元イメージングと種々の物性測定・分光測定とを組み合わせることによって、これまで我が国の研究者らが先導してきた地球内部・惑星内部物質の研究のさらなる進展が期待される。地球・惑星科学のさらなる発展のためには、中型高輝度光源および次世代回折限界光源の実現と利用が不可欠である。

参考文献

- [1] N. Funamori, T. Yagi, W. Utsumi, T. Kondo, T. Uchida, M. Funamori: Thermoelastic properties of MgSiO_3 perovskite determined by in situ x ray observations up to 30 GPa and 2000 K, *J. Geophys. Res.*, **101**, 8257 (1996).
- [2] M. Murakami, K. Hirose, K. Kawamura, N. Sata, Y. Ohishi: Post-perovskite phase transition in MgSiO_3 , *Science*, **304**, 855 (2004).
- [3] S. Tateno, K. Hirose, Y. Ohishi, Y. Tatsumi: The structure of iron in Earth's inner core, *Science*, **330**, 359 (2010).
- [4] K. Hirose: High-pressure, high-temperature x-ray diffraction measurements and the discovery of post-perovskite phase transition, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **82**, 021010 (2013).
- [5] K. Fujino *et al.*: Spin transition of ferric iron in Al-bearing Mg-perovskite up to 200 GPa and its implication for the lower mantle, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **317-318**, 407 (2012).
- [6] Y. Shibazaki *et al.*: Sound velocity measurements in dhcp-FeH up to 70 GPa with inelastic x-ray scattering: Implications for the composition of the Earth's core, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **313-314**, 79 (2012).
- [7] Y. Nishihara *et al.*: Rheology of fine-grained forsterite aggregate at deep upper mantle conditions,

- J. Geophys. Res., **119**, 253 (2014).
- [8] J. Yamamoto *et al.*: In situ strength measurements on natural upper-mantle minerals, Phys. Chem. Mineral., **35**, 249 (2008).
- [9] N. Doi *et al.*: Creep behavior during the eutectoid transformation of albite: Implications for the slab deformation in the lower mantle, Earth Planet. Sci. Lett., **388**, 92 (2014).
- [10] H. Terasaki *et al.*: Density measurement of Fe₃C liquid using x-ray absorption image up to 10 GPa and effect of light elements on compressibility of liquid iron, J. Geophys. Res., **115**, B06207 (2010).
- [11] K. Nishida *et al.*: Sound velocity measurements in liquid Fe-S at high pressure: Implications for Earth's and lunar cores, Earth Planet. Sci. Lett., **362**, 182 (2013).
- [12] T. Kawamoto, M. Kanzaki, K. Mibe, K.N. Matsukage, S. Ono: Separation of supercritical slab-fluids to form aqueous fluid and melt components in subduction zone magmatism, Proc. Natl. Acad. Sci. USA, **109**, 18695 (2012).
- [13] M. Nishi *et al.*: Stability of hydrous silicate at high pressures and water transport to the deep lower mantle, Nature Geosci., **7**, 224 (2014).

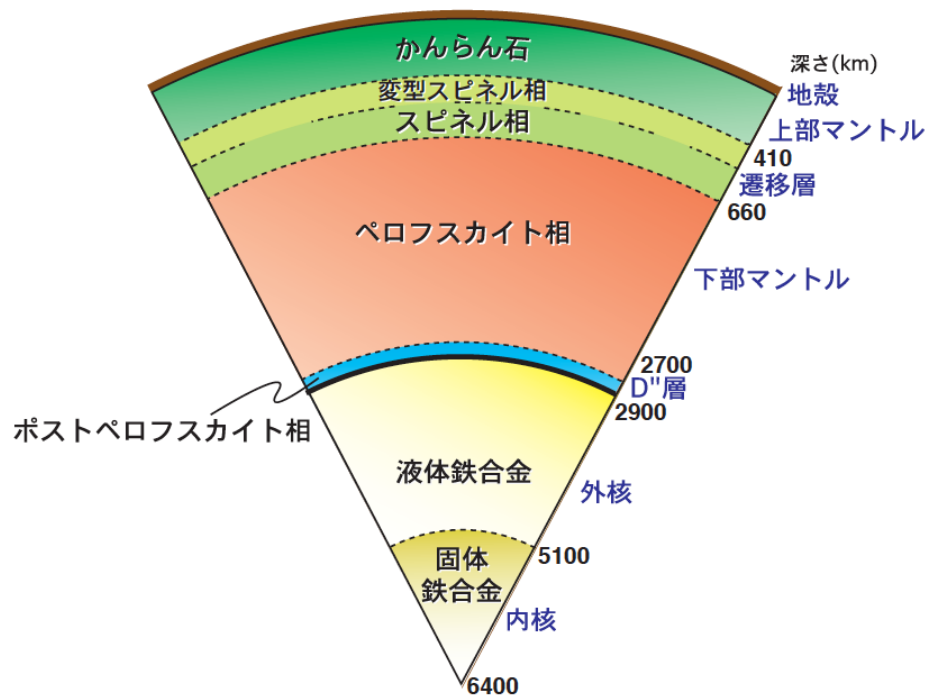


図1 マントルの層構造と主要鉱物の変化。点線は地震波伝搬速度の不連続面である。

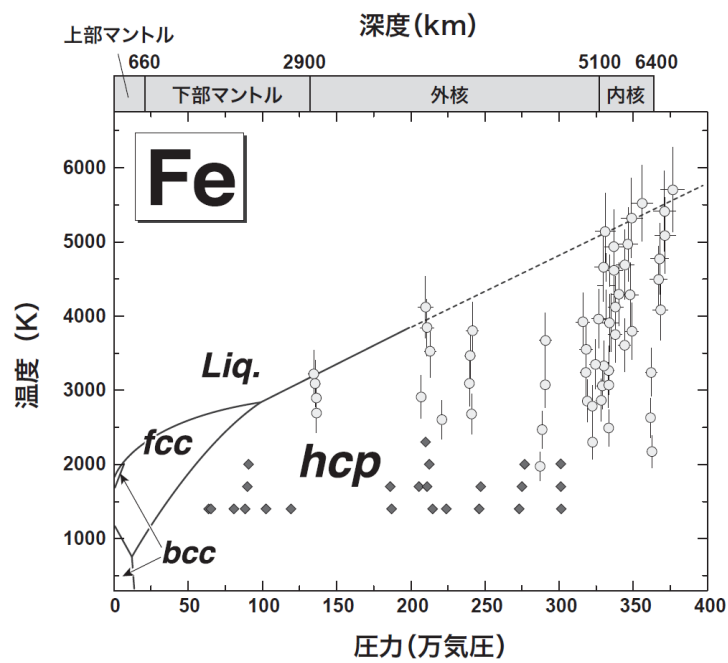


図2 地球内部の温度圧力条件における鉄の状態図。

2.3 材料科学

2.3.1 課題

次世代材料の開発に向けた材料合成研究において、温度・組成の制御とともに、最も基本的かつ重要なファクターである圧力場を利用することは極めて有用である。

材料合成プロセスとして、高压合成環境の重要性が位置づけられたのは、地球内部の高压環境で生成したダイヤモンドを工業的に量産することを可能とした、1950年代のアメリカ GE 社の成功に遡ることができるであろう。ダイヤモンドは最高の硬度を持つ重要な工業材料であり、これに次ぐ硬度を持つ立方晶窒化ホウ素(cBN)とともに、高压合成法により量産化がなされている。今日の高压合成技術の進展は、これら超硬材料合成技術の高度化がその背景にあるといえよう。

放射光との組み合わせで高压下でのダイヤモンドや cBN の生成過程をその場観察する試みの歴史は古く、高压下 X 線回折研究の黎明期に、Photon Factory の MAX80 を用いて開始されている[1]。PF では工業的なダイヤモンドの製造工程となる金属溶媒によるダイヤモンドの生成過程[2]や、各種原料からの高压相転移によるダイヤモンド[3]や cBN[4,5]の生成機構など、重要な知見が得られた。

これらの高硬質材料に偏りがちであった超高压下における材料合成技術を、広範な物質・材料系に展開し、新たな機能発現を目指すことは、諸外国に先駆けた新材料開発ひいては新たな産業分野の形成をなす上で重要であろう。この際に鍵となるのは、先端的な高压合成手法の活用とともに、放射光による高压下その場観察技術を材料開発研究に広く展開することである。

2.3.2 現状

PF の MAX80 から始まった高温高压条件下の放射光 X 線回折実験は、地球内部状態の実験的観察にとどまらず、材料科学にとっても非常に有用なツールとなっている。放射光を用いて高压下の構造変化や化学反応、電子状態変化をその場観察できるようになったことで、これら観察手法自体の開発研究から、今日では次のフェーズとして、獲得した情報を材料開発あるいは試料合成手法の開発に応用する段階に進んできた。第三世代の放射光源である SPring-8 では、地球内部でのダイヤモンドの生成環境を模した成長機構の解明(図1, C-H-O 流体によるダイヤモンド生成)[6]が進められてきた。材料研究の立場では、これらダイヤモンド、cBN の生成機構、相転換挙動の基礎的な理解が重要であり、研究成果の着実な蓄積がなされてきた。これより先は、それぞれの産業用途に応じた高機能化(高品位焼結体、ドーピングによる機能発現、量産コストの低減や省エネルギー化)への貢献が重要な課題となる。

ダイヤモンド以外の材料開発研究においても、高压下でのその場観察手法は有力な武器であり、窒化ガリウムや窒化インジウムの高圧下での安定相の観測など[7]、近年その進展がめざましい III-V 化合物半導体結晶成長の基礎となりうる有益な知見が得られている。また、銅酸化物高温超伝導体などの酸化物の高圧下の生成・融解・再結晶化をその場観察し、その情報に基づいてミリメートルサイズの単結晶を育成する、という研究も展開されている(図2)[8]。

水素吸蔵合金への期待からは、水素吸蔵・放出過程の解明や新しい金属水素化物の探索が盛んに進められている。水素は多くの金属に対して容易に固溶し、その濃度が増加すると格子間サイトを秩序的に占有して水素化物を形成することが知られている。X 線で水素を直接見ることは難しいが、そのことを逆手に取り、金属副格子の寄与のみが回折パターンに現れるとして、高压下での相同定が行われる。町田らはダイヤモンドアンビルセル (DAC) を用いた高压下の放射光 X 線回折実験により、 LaH_2 が 10 GPa 以上の高压下では LaH と LaH_3 に相分離することを見いだした[9]。さらに中性子回折で、この LaH が、希土類金属水素化物ではこれまで報告のなかった NaCl 型構造を持つことを確認した。一方、齋藤らは $\text{NaBH}_4 + \text{Ca}(\text{OH})_2$ を水素発生源として、高温高压下の反応過程を大容量プレス (LVP) を用いた放射光 X 線回折でその場観察し、 LiNiH_3 、 LaCuH_x 、 Li_4FeH_6 と、新しい化合物を次々と生み出している[10,11,12]。

負の熱膨張率を持つ物質は、半導体デバイス製造等の精密・微細加工において、あるいは精密光学機器において、温度変化を補償する材料として重要な研究対象となっている。東らは高压下の放射光 X 線回折・中性子回折と、放射光 X 線吸収実験により、特徴的な $\text{Bi}^{3+}_{0.5}\text{Bi}^{5+}_{0.5}\text{Ni}^{2+}\text{O}_3$ の価数状態を持つペロブスカイト BiNiO_3 が、3.5 GPa 以上の高压下では Bi^{5+} と Ni^{2+} の間で電荷移動を生じ、 $\text{Bi}^{3+}\text{Ni}^{3+}\text{O}_3$ の高压相へと転移すること、Ni の価数が 2+ から 3+ へ増加することに伴い Ni-O ボンドが収縮するため、約 3% の不連続な体積収縮を起こすことを見出した。Bi を一部 La で置換した $\text{Bi}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{NiO}_3$ では、常圧下の昇温で、同様の電荷移動転移が起こるようになる (図 3) [13]。不連続な一次転移であるが、体積の大きな低温相と小さな高温相が互いの分率を変えながら共存するため、平均体積が連続的に減少し、負の熱膨張が観測される。焼結体の長さ変化で実測された 320 K から 400 K の間の線熱膨張係数は $-82 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ であり、既存材料の約 3 倍である。これは、高压下における X 線その場観察による構造解析を基礎として、物質の特性を材料の機能として抽出し、常圧下での応用に展開した成功例であり、新しい材料開発における高压下 X 線回折実験の有用性を明示している。

一方、材料科学としての展開は、ともすれば大学を始めとする公的研究機関の工学・材料科学分野における研究者による基礎的なアプローチを主体として進められてきたのが現状であり、産業の担い手である企業研究者による放射光と組み合わせた高压下 X 線回折実験の利用実績は多くない。これは、現状の放射光施設における高压実験が、装置の特性を理解した上での専門的な知識・技術を必要としていることに起因するところが大きいものと思われる。先端的な高压実験技術の材料開発研究としてのさらなる展開には、実験装置の利用・指導を含めた運用形式の工夫が必要と考えられる。

2.3.3 展望

上記のような、高压下の相転移を化学置換によって常圧下で実現する、という物質設計は、その場観察実験が可能であるからこそその手法であり、今後、他の機能性材料開発にも応用されると期待できる。

ダイヤモンドや cBN は初期の黒鉛状構造が高压下で高密度相に相転換し、これが常圧下に回収され、その比類ない特性(硬度)ゆえに超硬材料として産業利用がなされている。一方、報告されている数多くの高密度相は、圧力の開放過程において初期の低密度相、あるいは他の準安定相に転換する。すなわち、常圧下に回収した試料が高压下の結晶構造をとどめているとは限らない。産業化をにらんだ材料研究において、高压下で安定な結晶構造を常圧下でも安定化する手法が確立できれば、新たな機能発現の土俵が大きく拡張されることとなる。高压準安定相の安定化は上述した例のように固溶体の形成等が有用であるが、その基礎となる高压下のその場観察研究が極めて重要になる。

放射光によるその場観察技術を高压材料研究に適用するメリットは、新たな結晶構造による機能探索とともに、高压下の反応過程(結晶成長、焼結挙動、相転換機構)の直接観測が可能になるところにある。冒頭に述べた高压下材料研究の代表格であるダイヤモンド単結晶への機能付与、焼結体の特性向上は引き続き重要な課題であり、今後も精力的な展開がなされるであろう。これに加えて、超臨界状態の解析・制御や反応性流体・フラックスの状態観測は、高品位結晶・新高密度相探索に有用であり、そこで得られる材料は、新規超硬質材料、触媒、半導体材料を始めとする多様な材料分野において、新たなブレークスルーを提供するものと期待される。

超高压下における物質・材料合成研究において見出された新物質・材料を直ちに産業化に結びつけるためには、合成条件を吟味することで製造プロセスへの負担や製造コストを抑制することが重要である。こうした要因から、高压プロセスにより工業製品として量産される材料は、前記のダイヤモンドと cBN に限られてきたのが現状である。しかし、これらの生産効率(高压合成技術)は今日までに大幅に成熟し、このプロセスを他の材料に適用することで、所謂キラーアプリケーションとしてその製造コストに見合う新たな価値の創出が期待できる段階となってきた。

同時に、超高压下のその場観察技術を広範な材料科学の分野に展開した際の波及効果は、新物質・材料研究におけるブレークスルーの提供にある。優れた特性・機能を有する新物質・材料を高压合成し、その特性を広く共有することにより、当該物質の合成研究が加速し、適当な製造条件のもとで産業化につながると期待される。現在の気相合成ダイヤモンド研究は正に地球内部の高温高压下で合成されたダイヤモンドの優れた特性を薄膜状に発現したものであり、格好の事例といえる。

現状の高压下 X 線その場観察実験における技術的課題としては、高温高压実験は LVP を用いてルーチン的に行えるのに対し、低温実験には DAC を用いる必要があり、一つの試料の測定に数日のビームタイムを要することが挙げられる。これに対して、中性子回折では、高温から低温までシームレスな実験が可能となっている。放射光 X 線でも LVP を用いた低温実験環境が整備されることが望ましい。

さらに、実際に当該技術を利用する立場からは、研究現場における技術指導・支援体制の一層の拡充が求められる。これまで述べてきたとおり、高压は物質・材料科学において組成・温度と同等に重要なパラメータであり、優れた機能を有する物質探索、材料化研究における基礎となる。こ

の研究環境を広く材料科学全般の研究者に提供・開放することは、これまでともすれば高压研究者集団に限定されがちであった新規機能物質探索とその材料化研究を一層加速させるであろう。そこで、新光源施設の運用において、材料科学分野の視点から強く望まれるのは、高压研究分野とは縁の薄い研究者(含、企業研究者)が当該研究技術を有効に活用できる体制の一層の充実であろう。このためにビームラインサイエンティスト等の人員体制、実際の実験部材作製等のための実験設備の整備が必要となろう。

国内外に高压研究設備の共同利用施設は整備されているが、放射光施設での利用環境の一層の充実には大きな意義がある。多彩な分野の研究者が集う放射光共同利用施設では多様なシナジー効果が期待でき、広範な材料科学分野におけるブレークスルーをもたらす場として期待できる。

参考文献

- [1] S. Yamaoka, O. Shimomura, T. Yagi, S. Akimoto: Direct observation of the conversion reaction from graphite to diamond, in *Solid State Physics Under Pressure: Recent Advances With Anvil Devices*, ed. S. Minomura (KTK Scientific Publishers, Tokyo / D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, Boston, London, 1985), pp. 369-374.
- [2] W. Utsumi *et al.*: In situ x-ray diffraction of graphite-diamond transformation using various catalysts under high pressures and high temperatures, *J. Phys.: Condens. Matter*, **16**, S1017 (2004).
- [3] T. Yagi, W. Utsumi, M. Yamakata, T. Kikegawa, O. Shimomura: High-pressure in situ x-ray-diffraction study of the phase transformation from graphite to hexagonal diamond at room temperature, *Phys. Rev. B*, **46**, 6031 (1992).
- [4] O. Shimomura, W. Utsumi, T. Taniguchi, T. Kikegawa, T. Nagashima: A new high pressure and high temperature apparatus with sintered diamond anvils for synchrotron radiation use, in *High-Pressure Research: Application to Earth and Planetary Sciences*, eds. Y. Shono, M.H. Manghnani (Terra Scientific Publishing Company, Tokyo / American Geophysical Union, Washington D.C., 1992), pp. 3-11.
- [5] T. Taniguchi, T. Sato, W. Utsumi, T. Kikegawa, O. Shimomura: Effect of nonhydrostaticity on the pressure induced phase transformation of rhombohedral boron nitride, *Appl. Phys. Lett.*, **70**, 2392 (1997).
- [6] T. Okada, W. Utsumi, H. Kaneko, V. Turkevich, N. Hamaya, O. Shimomura: Kinetics of the graphite-diamond transformation in aqueous fluid determined by in-situ x-ray diffractions at high pressures and temperatures, *Phys. Chem. Mineral.*, **31**, 261 (2004).
- [7] W. Utsumi, H. Saitoh, H. Kaneko, T. Watanuki, K. Aoki, O. Shimomura: Congruent melting of gallium nitride at 6 GPa and its application to single-crystal growth, *Nature Mater.*, **2**, 735 (2003).
- [8] 東正樹, 齊藤高志, 山田幾也, 島川祐一, 高野幹夫: 放射光 X 線その場観察に基づく高压相遷移金属酸化物の単結晶育成, *放射光*, **19**, 304 (2006).
- [9] A. Machida *et al.*: Formation of NaCl-type monodeuteride LaD by the disproportionation

- reaction of LaD_2 , Phys. Rev. Lett., **108**, 205501 (2012).
- [10] R. Sato *et al.*: Formation process of perovskite-type hydride LiNiH_3 : In situ synchrotron radiation x-ray diffraction study, Appl. Phys. Lett., **102**, 091901 (2013).
- [11] H. Saitoh *et al.*: Synthesis and formation process of Al_2CuH_x : A new class of interstitial aluminum-based alloy hydride, APL Mater., **1**, 032113 (2013).
- [12] H. Saitoh *et al.*: Li_4FeH_6 : Iron-containing complex hydride with high gravimetric hydrogen density, APL Mater., **2**, 076103 (2014).
- [13] M. Azuma *et al.*: Colossal negative thermal expansion in BiNiO_3 induced by intermetallic charge transfer, Nature Commun., **2**, 347 (2011).

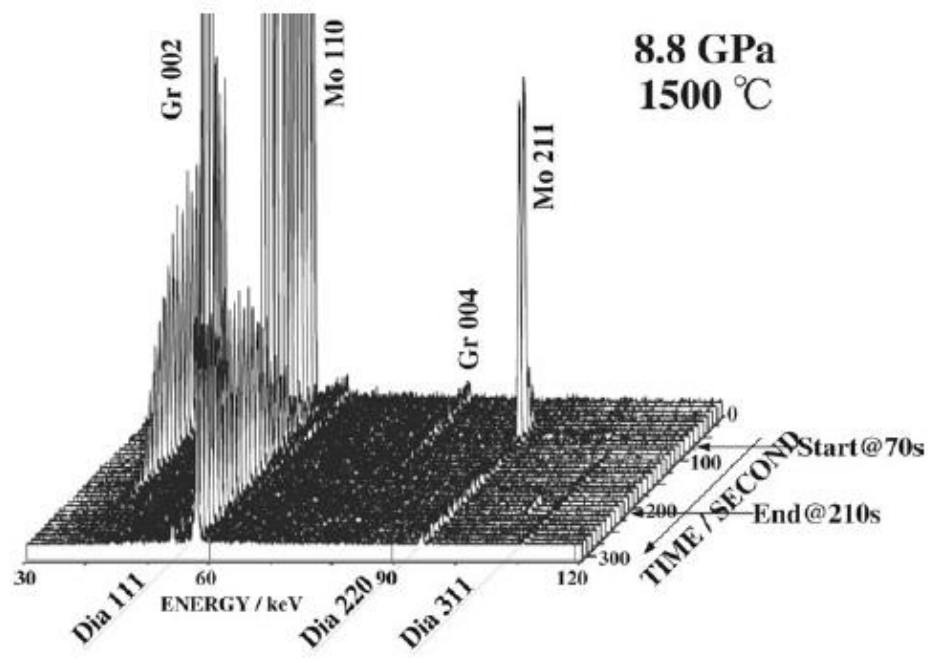


図1 高圧下 C-O-H 流体相からのダイヤモンド生成における X 線回折パターンの変化。



図2 4 GPa で育成されたミリメートルサイズの $\text{Ca}_{2-x}\text{Na}_x\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ 単結晶。

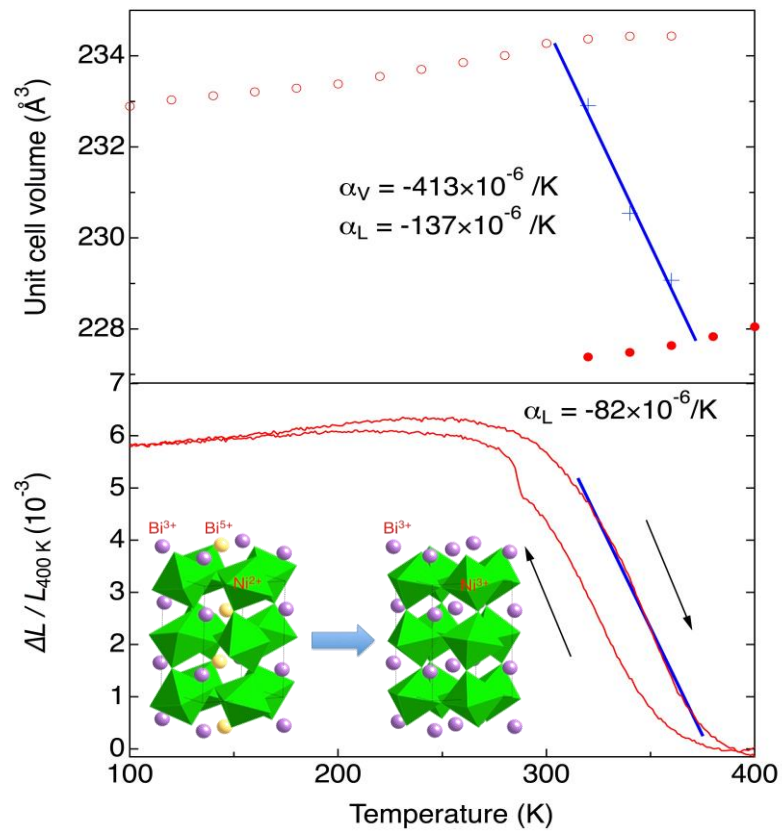


図3 $\text{Bi}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{NiO}_3$ の負の熱膨張。

3. ビームライン技術の動向

3.1 挿入光源

3.1.1 背景

挿入光源 (Insertion Device) は、周期的な磁場を発生することで電子ビームを蛇行させ放射光を取り出すために蓄積リングの偏向磁石間の直線部に挿入する装置として誕生した。放射光科学における歴史は古く、日本に最初の放射光施設 Photon Factory が建設されるよりも早くアンジュレーター放射の成功が報告されている[1]。一方、その後の発展への日本の研究者の寄与は大きく、特に PF で開発され、SPring-8 で改良された真空封止型アンジュレーター (磁石列を真空チャンバー内に設置) は、今日の最先端の放射光源における標準的な挿入光源として位置付けられる[2,3]。X 線自由電子レーザーでも、真空封止型アンジュレーターが利用されている。表 1 に、挿入光源に関する年表をまとめた。

挿入光源の理解には偏向定数 K と呼ばれる無次元数が欠かせない。 K 値は磁場の振幅 B_0 と周期長 λ_u に比例し、 $K \sim 1.2$ でアンジュレーター放射の基本波長 λ_1 の放射効率が最大になる。 $K \gg 1$ の場合には、放射光は連続的な波長分布を持つようになりウィグラー放射と呼ばれる。 K 値とアンジュレーター軸上の λ_1 は次式のように表される。

$$K = \frac{eB_0\lambda_u}{2\pi mc} \quad (1)$$

$$\lambda_1 = \frac{\lambda_u}{2\gamma^2} \left(1 + \frac{K^2}{2} \right) \quad (2)$$

ローレンツ因子 γ は電子エネルギーにほぼ比例する。したがって、 λ_1 は電子エネルギーの自乗に反比例する。同様に、次式で表される偏向磁石やウィグラー放射の臨界波長 λ_c も電子エネルギーの自乗に反比例する。

$$\lambda_c = \frac{4\pi\rho}{3\gamma^3} = \frac{4\pi mc}{3\gamma^2 eB_0} \quad (3)$$

ρ は電子軌道の曲率半径である。高エネルギー X 線を利用する場合に、電子エネルギーの高い施設が有利となる理由がここにある。

電子エネルギーを固定と考えた場合、短波長の光を取り出すには、式(2)より、周期長を短くすれば良いことになる。しかし、 $K \ll 1$ では十分な放射効率が得られないため、周期長を短くするとともに磁場強度を大きくすることで $K \sim 1$ を保つ必要がある。前述の真空封止型は、挿入光源の磁石列間のギャップを小さくし、それにより磁場強度を大きくすることを可能にしたものである。

3.1.2 現状

現在までに数多くの特長ある挿入光源が開発されてきた。SPring-8 の場合、X 線領域の挿入光源は、ウィグラーなど一部を除き、現在までに、ほぼ全て真空封止型になっている。最新の短周期

アンジュレーターの周期長は 19 mm であり、建設当初の 32 mm に比べて飛躍的な短周期化が実現している。以下に、挿入光源の例とその特長を述べる。高圧関連ビームラインの場合、世界的にみても、水平偏光アンジュレーター、もしくはウィグラーが採用されている。偏向磁石のビームラインも少なくない[4]。

標準型: 上下の永久磁石をハルバック型に配置した水平偏光アンジュレーター。

垂直型: 上下の磁石列をさらに左右二列にわけ四列とすることで水平方向に磁場を発生させる垂直偏光アンジュレーター。

ハイブリッド型: 永久磁石の一部に飽和磁束密度の高い材質を用いることで磁場強度を強め、周期長をより短くした水平偏光アンジュレーター。

ヘリカル: 上下各三列の磁石列により螺旋状の磁場を発生させる円偏光アンジュレーター。アンジュレーター軸上では基本波のみであるので光学系の熱負荷を軽減できる。磁石の配列により左右の円偏光を取り出せる。

8 の字: ヘリカルと類似の上下各三列の磁石列を持つが 8 の字状の磁場を発生させるアンジュレーター。ヘリカルに類似の低熱負荷の特長を持ち、次数により垂直と水平の直線偏光が交互に取り出せる。

テーパー可変: 上下の磁石列の間隔(ギャップ)にテーパーを付けて、それを可変とすることで、バンド幅を調整することが可能なアンジュレーター。

ウィグラー: 白色光を取り出すために K 値を大きくとった挿入光源。アンジュレーターに比べ輝度では劣るものの高エネルギー X 線のフラックス密度では勝る。コヒーレンスはない。

3.1.3 展望

高圧科学における放射光の利用は、これまで X 線回折を中心に発展してきた。高圧装置内の試料の測定を行うため、それらの実験では 20~30 keV 程度以上が望ましいとされてきた。今後は、新光源で期待される低エミッタンスの電子ビームを有効に利用した研究も進めていくべきであろう。5 keV 程度であってもダイヤモンドアンビルセル(DAC)の実験には十分に利用可能である。低エミッタンスの恩恵を受けるためには、挿入光源はアンジュレーターであることが不可欠である。集光性の良さを活かした各種分光やコヒーレントフракションが大きいことを活かした各種イメージングと回折を併用することで飛躍的な進展が見込まれる。X 線領域であるので、移相子で偏光の制御が可能なことから、基本的には、広いエネルギーをカバーする標準的なアンジュレーターが適切であろう。高速測定に有利な準単色光($\Delta E/E \sim 0.1$)の利用も考慮してテーパー可変が良いかもしれない。大容量プレス(LVP)の実験には、より高いエネルギー領域(20~150 keV)のフラックス密度が重要であるため、ウィグラーが適切と思われる。電子ビームの低エミッタンス化に有効なダンピングウィグラーが良いかもしれない。

挿入光源の高度化のための開発的な研究は現在も大いに進められている。例えば、磁石については、当初、超伝導コイルであったのが、永久磁石が主流となり、そして永久磁石を冷却して磁場強度を大きくしている[5]。現在では、高温超伝導バルク磁石の利用のための試験的な研究も

行われている。本グループの研究会で招待講演をされた山本樹氏 (PF) によるバルク磁石への周期的着磁は極短周期化へ向けた試験的な研究に位置付けられる。同様に招待講演をされた佐々木茂美氏 (HiSOR) は、高次光の放射のない準周期アンジュレーターの開発を進められている。挿入光源が大型化する原因となる磁場吸引力について各種の補正を加えることで挿入光源のコンパクト化を目指した研究も行われている。新光源施設において、高圧ビームラインを建設する際には、高圧科学の研究に適した、そして、その時点での技術の粋を集めた挿入光源を希望したい。

表1 挿入光源の歴史

年	事項
1976	アンジュレーター放射の実証 (Ref. [1])
1983	アンジュレーター・ウィグラー (PF)
1987	マルチポールウィグラー (PF)
1988	円偏光アンジュレーター・ウィグラー (PF-AR: 世界初)
1990	真空封止アンジュレーター (PF-AR: 世界初, Ref. [2]) → SPring-8 で改良され世界標準に (Ref. [3])
2011	X 線自由電子レーザー (SACLA)

参考文献

- [1] L.R. Elias, W.M. Fairbank, J.M.J. Madey, H.A. Schwettman, T.I. Smith: Observation of stimulated emission of radiation by relativistic electrons in a spatially periodic transverse magnetic field, *Phys. Rev. Lett.*, **36**, 717 (1976).
- [2] S. Yamamoto *et al.*: Construction of an invacuum type undulators for production of undulator x-rays in the 5-25 keV region, *Rev. Sci. Instrum.*, **63**, 400 (1992).
- [3] T. Hara, T. Tanaka, T. Tanabe, X.-M. Maréchal, S. Okada, H. Kitamura: In-vacuum undulator of SPring-8, *J. Synch. Rad.*, **5**, 403 (1998).
- [4] 本提案書参考資料: 世界の放射光施設.
- [5] T. Hara *et al.*: Cryogenic permanent magnet undulators, *Phys. Rev. ST Accel. Beams*, **7**, 050702 (2004).

3.2 光学系

3.2.1 背景

放射光ビームラインにおける光学系は、偏向電磁石あるいは挿入光源からの光の必要なエネルギーを取り出す分光器と、その下流に配置されるビームを集光するための集光素子を基本として、他の種々の測定に必要な光学素子から構成される。特に高圧実験においては、試料サイズが小さいという制約のために、スリット・コリメータあるいは集光光学素子を用いて X 線を整形することが不可欠である。

新光源施設では、低エミッタンスの「高品質」X 線が提供されることになる。低エミッタンス化により、まず期待されるのは集光が容易になることであり、試料サイズの小さい高圧下の測定には好都合である。汎用化の期待されるサブマイクロビーム・ナノビームは、試料サイズよりも十分に小さいため、試料室内の圧力や温度、あるいは組成が一樣でない状況でのピンポイント測定に威力を発揮すると期待される。短時間測定が可能になれば、X 線を掃引する走査法による試料の 1 次元・2 次元マッピングも実現するであろう。また、低エミッタンスの光は、イメージングも容易にすると期待される。投影型イメージングによる大容量プレス(LVP)、および結像型イメージングによるダイヤモンドアンビルセル(DAC)の試料室の全体像の把握は、様々な測定の基礎となるであろう。以下に、分光器や集光素子などの現状をまとめ、新光源施設における高圧ビームラインの光学系についての展望を述べる。

3.2.2 現状

高圧実験では、高圧セルによる吸収が避けられないため、硬 X 線領域の光を用いる必要があり、目的によって 5~100 keV 超の広いエネルギー範囲が利用されている。最も基本的な回折測定では、吸収の問題に加え、限られた開口角からなるべく高い Q 領域までの情報を得るために、高エネルギーの X 線が好まれる。DAC の実験では、通常は 20~30 keV、液体やガラスの測定など高 Q 領域の情報が必要な場合にはより高いエネルギー(例えば 100 keV[1])の X 線が利用される。LVP の実験のように開口角が極めて限られる場合には、白色光によるエネルギー分散型の回折法が用いられ、20~150 keV の X 線が利用される。イメージング・吸収分光・非弾性散乱等では、測定条件(吸収端エネルギー等)と吸収の問題の両方を考慮してエネルギーが選択される。

日本の高圧(専用)ビームラインで実際に用いられている分光器と集光素子について簡単に述べておく。本提案書の参考資料には世界の高圧ビームラインの分光器と集光素子の情報も掲載されている[2]。PF および PF-AR における高圧ビームラインには全て Si(111) 二結晶分光器が備え付けられており、LVP 実験で白色を望む場合は分光器を外して用いられる。AR-NE1A はメスバウワー分光との共用ビームラインであり、高分解能分光器も備えられている。AR-NE7A では分光結晶をモザイク結晶に近づけることによって $\Delta E/E = 10^{-3}$ 程度とし、フラックスを稼いでいる。SPring-8 の BL10XU では Si(111) が用いられ、BL14B1 では必要なエネルギー分解能によって Si(111)、Si(311)、Si(511) が、BL22XU ではエネルギー領域によって調整機構の異なる二種類の Si(111) 分

光器が使い分けられている。BL10XU には、メスバウワー分光用の高分解能分光器も導入されている。BL04B1 は初期には白色専用ビームラインであったが、現在は Si(111) 分光器が導入されている。なお、高圧専用ではないが、BL04B2 では湾曲結晶により分光かつ集光され、Si(111) で 37.8 keV, Si(220) で 61.7 keV の高エネルギー X 線が得られる。集光素子には、PF の BL18C では白金コートの K-B ミラー、AR-NE1A では多層膜の K-B ミラーが、SPring-8 の BL10XU や BL22XU では屈折レンズが用いられている。各素子の詳細について以下に述べる。

■分光器

・二結晶分光器

分光器のうち最もよく用いられるのは、二つの結晶を平行に配置する二結晶分光器である。エネルギーを変更しても X 線の位置が変わらないように調整できるため、様々なエネルギーでの利用が望まれる場合に適している。また、第二結晶の傾きを微調整することで高調波の除去が可能になるなどの利点もある[3]。Si(111) の二結晶分光器ならば、 $\Delta E/E \sim 10^{-4}$ のエネルギー分解能で、3 keV から数十 keV の X 線が得られる。より高い分解能が必要な場合にも、熱負荷の観点から通常の二結晶分光器の下流側に、より大きな指数の格子面を用いた高分解能分光器を配置するのが普通である。光源からのビームを直接受ける第一結晶の熱負荷対策は非常に重要である。SPring-8 のアンジュレーターのように高い熱負荷がある場合には、液体窒素冷却あるいは inclined 配置のピンポスト水冷といった最新の冷却機構が必要とされる。特に、数 keV の低エネルギーの X 線ではブラッグ角が大きく X 線の照射面積が狭くなるため液体窒素冷却が望ましい。高エネルギー X 線を中心に考えるのであればシリコンより格子定数の小さいダイヤモンドの二結晶分光器も候補となる。ダイヤモンドは熱伝導性が良いため、アンジュレーター光源であっても間接冷却(水冷)が可能で冷却機構が簡便になり、さらにランニングコストを低く抑えられるという利点がある。しかし、光の波面を乱さないといった「高品質」な光を維持する観点では、ダイヤモンドに比べて結晶性が格段に良いシリコンを使用すべきであろう。さらに、精密な振動対策や冷却温度制御を施した冷却機構も検討する必要があるかもしれない。

・二結晶分光器以外の分光素子

用途によっては、 $\Delta E/E = 10^{-1} \sim 10^{-3}$ の準単色光で十分なこともある。そのような場合、 $\Delta E/E \sim 10^{-4}$ 以上の二結晶分光器を用いるのではフラックスをあえて小さくして実験しているのに等しい。準単色光は、透過・位相イメージングのほか、非晶質(液体・ガラス)の回折や小角散乱など、エネルギー分解能があまり必要とされない測定や時間分解観察にも有用である。準単色光は多層膜ミラーやモザイク性の高い分光結晶などによって得られる。例えば、AR-NE14W では、X 線パルスをチョッパーにより千分の一程度に間引いた上で、パルスセクターによって励起レーザーと同期させ、多層膜ミラーにより $\Delta E/E = 1 \sim 5\%$ 程度に分光した光を用いることで、液体やガラスのレーザー励起衝撃圧縮下その場 X 線回折測定を実施している[4]。また、アンジュレーターの準単色光を分光器なしで利用することも考えられる。アンジュレーターの準単色光は、SPring-8 で $\Delta E/E \sim 10^{-2}$ 程度

(但し低エネルギー側に裾を引く)であり、例えばBL40XUはこれを活かす思想で設計されている。

白色(準単色)光源から出射した光を1枚の湾曲結晶(polychromator)を用いてプリズムのように分光し、位置敏感型の検出器を用いることで、X線吸収スペクトルを短時間で測定する手法も注目に値する[5]。ESRFのID24やSoleilのODEといったフランスのX線吸収ビームラインでは、テーパー付アンジュレーターと湾曲結晶によるエネルギー分解型の光学系とDACの組み合わせによる高圧下の測定も実現されている[6]。ESRFのID24では、湾曲結晶で分光された光は試料位置で5 μm 角に集光され、 $\Delta E/E = 5\sim 15\%$ の範囲を一度に測定することができる。また、非弾性散乱測定では、試料から散乱された光を、注目する相互作用に応じて meV $\sim$ eV の分解能で分光する必要がある。散乱が非常に弱いので、なるべく広い角度からのシグナルを集めるべく、シリコン分光結晶を円柱状に湾曲させる・円柱状に加工して曲げる(ヨハンソン型)・賽の目状に切り目を入れるなどしてローランド円上に配置する光学系が採用されている[7]。

■移相子

光学素子によるX線の偏光制御についても簡単に触れておく[8]。円偏光を利用すれば磁気秩序やらせん構造の有無を検出でき、直線偏光では吸収・散乱強度の変化から結晶の異方性についての情報が得られるので、偏光制御の利用価値は高い。一般的な挿入光源から得られるX線は水平方向に直線偏光しており、これを垂直偏光や円偏光に変換するためには透過型の移相子が用いられる。移相子は、回折に伴う複屈折現象を利用して二つの偏光成分(s 偏光と p 偏光)の間の位相差を調整する光学素子で、水平偏光を、円・楕円・垂直偏光へ変換することができる。透過型であるためX線の光路が素子の前後で変化せず、大きなスペースを必要とせず、簡便に精度の高い偏光制御のできる使いやすい素子である。開発当初は結晶性が良いシリコンやゲルマニウムの単結晶が用いられたが、最近では人工ダイヤモンド単結晶が高いX線透過率と偏光の変換効率を両立させた移相子として利用されており、厚みが異なるダイヤモンド移相子を複数用意することで6~16 keVの比較的広いエネルギー領域がカバーできる。これより低いエネルギー領域では短周期の多層膜あるいはベリリウム等の軽金属の結晶を用い、高いエネルギー領域ではゲルマニウム単結晶などが利用される。

■集光素子

・反射型:K-B ミラー[9]

K-B ミラーは二つの1次元集光ミラーを水平方向と鉛直方向に直列に並べた集光素子である。一方が縦集光ミラー、もう一方が横集光ミラーになる。個々のミラーは、子午線方向に円筒状または楕円筒状に湾曲している。子午線方向の湾曲は曲率半径が大きく、数 km 程度になる場合がある。焦点距離と光源から集光素子までの距離の比で光源のサイズが縮小されるので、焦点距離を短く、光源から集光素子までの距離を長くすることで集光後のビームを小さくできる。実例としてSPring-8のBL39XUのK-Bミラーを挙げる[10]。ここでは光源から47 mの位置にK-Bミラーが設置され、焦点距離は46 cmに設定されている。この時、7.7 keVにおいて、280 μm (v) $\times$ 410 μm

(h)の光源サイズが、実測値で $6\text{ }\mu\text{m(v)} \times 8\text{ }\mu\text{m(h)}$ に集光されている。この程度に X 線を絞っても 3×10^{12} photons/sec の強度が維持されており、高圧下の実験には極めて有効である。

K-B ミラーの長所としては、数十 cm の焦点距離があるため、ステージや冷凍機等のアクセサリを設置する十分なスペースが確保できること、高調波除去の low-pass フィルターとしても機能すること、X 線のエネルギーを変えても焦点距離が変わらない(色収差がない)ことなどが挙げられる。色収差がないことは、吸収分光法のようなエネルギーを頻繁に変える実験にとっては大きな長所である。一方、ミラーの短所は高エネルギーの X 線では臨界角が小さい点にある。例えば、白金コートのミラーでは 25 keV 以上で臨界角が 3 mrad 以下になる。このため、高エネルギー X 線の集光では、屈折レンズが有利となる。ただし、ミラーの使用も技術的に不可能ではなく、SPring-8 の BL37XU では、37 keV という高エネルギー領域において、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 程度のマイクロビームの成功例があることを付記しておく[11]。このミラーが、我々が理想に掲げている、広いエネルギー領域において色収差のないマイクロビームの実現が可能な素子かもしれない。

・透過型: 屈折レンズとフレネルゾーンプレート(FZP) [12]

屈折レンズは X 線が物質を透過する際に僅かに屈折することを利用した集光素子である。透過光を利用するために低エネルギーの X 線には向かないが、樹脂やグラッシーカーボンなどの軽元素を素材とすることで比較的低いエネルギーにも対応できる(> 5 keV)。集光サイズはエネルギーによるが、SPring-8 の BL10XU では、30 keV の $100\text{ }\mu\text{m(v)} \times 100\text{ }\mu\text{m(h)}$ の光を $7\text{ }\mu\text{m(v)} \times 10\text{ }\mu\text{m(h)}$ に集光している。また、 $\phi 10\text{ }\mu\text{m}$ ピンホール(集光前)の利用により $\phi 2\text{ }\mu\text{m}$ 程度への集光も実現されている[13]。なお、現在のレンズの回折限界光での計算値は 400 nm 程度である。一方、FZP は X 線の回折を利用した素子で、吸収の問題は少ないものの、高エネルギー X 線になるほど厚い格子(ゾーン)が必要となるので、高度な微細加工技術が要求される。数十 nm 程度の集光には、10 keV 程度以下で用いられることが多い(集光サイズは最外輪帯幅で決まるため、高エネルギーでも集光サイズが大きくてよければ利用可能であろう)。主に使うエネルギーが 10 keV 以下であれば FZP、それ以上であれば屈折レンズが適するといえよう。

屈折レンズも FZP も、波長によって焦点距離が変わるので、色収差の問題は避けられない。分光実験への適用であれば K-B ミラーが適するであろう。ただし、試料ステージを集光位置とうまく同期させることができれば、屈折レンズや FZP も分光実験に適用可能かもしれない。さらに、K-B ミラーと異なり、屈折レンズや FZP には、素子を抜き差ししても光軸が変わらないという利点がある。例えば、全体像の観察と局所部の測定を同時に行うというような、頻繁にビームサイズを大きく切り替えたい要望がある場合には、屈折レンズや FZP の方が利用しやすいであろう。

結像型イメージングは、走査型イメージングに比べ結像素子が必要となる点で難易度が高いが、一度に(比較的)広い範囲の観察が可能であり、3 次元 CT や時間分解観察にも応用できる。結像素子としては、現在は FZP が主流である(屈折レンズの利用も可能であるが、報告は少ない)。結像型イメージングで視野サイズを変化させるには、結像素子だけでなく、照明となる X 線のサイズをも変える必要がある。SPring-8 の BL47XU においては、コンデンサプレート(CP)と呼ばれる同心

円状の等間隔回折格子を用いた擬似的なケーラー照明が利用されている[14]。この光学系では、試料を焦点位置から少しずらした条件であれば屈折コントラスト像も得られる。適切な CP と FZP の組を切り替えるようなシステムができれば、様々な視野サイズでの観察が可能となるであろう。

3.2.3 展望

新光源施設から提供される低エミッタンスで「高品質」な X 線を十分活かすためには、光学系は「高品質」な X 線を維持し効率的に取り出せるものでなくてはならない。高圧実験に理想的な光学系の要件として以下の 4 点が挙げられる。

- ① 数 keV から数十 keV の X 線を連続的に取り出せること。
- ② エネルギー分解能の切り替えが可能なこと ($\Delta E/E = 10^{-4} \sim 10^{-1}$)。
- ③ コヒーレント性を失わずに実験ハッチまで X 線を導入できること。
- ④ nm~mm 範囲のビームサイズ可変機構を備えること。

①は施設の電子ビームのエネルギーがある程度高ければ問題ないであろう。②については、原理的には可能であるが、ビームライン全体としての光学素子の熱負荷対策の相違などから現状では容易でない。③については、光源のエミッタンスが小さくなれば、各光学素子の微細加工の精度が支配的になる。微細加工・計測技術は年々向上しており、例えば、本グループのシンポジウムで招待講演をされた山内和人氏(大阪大学)のグループにより、硬 X 線のサブ 10 nm の集光[15]が実現されている。④についても、集光径可変の(数十 nm から μm オーダー)集光光学系[16]が開発されており、将来的には実現可能かもしれない。②③④のいずれの実現も、今後の技術革新に期待したい。

現状で実現可能な高圧ビームラインに適した光学系は、適切な熱負荷対策を施した Si(111)あるいは Si(220)の二結晶分光器を共通とし、分光実験には X 線ミラー、X 線回折実験には屈折レンズ、イメージングには集光素子なし(投影型)あるいは FZP(結像型)と、目的に応じて集光素子を切り替えて用いるというものであろう。今後の高圧実験の方向性の一つとして、複合同時測定が考えられるが、集光素子の変更が煩雑で面倒であれば、一般ユーザーの利用は困難になる。集光素子の簡便な切り替えシステムの構築が不可欠であろう。また、大阪大学では、色収差のないサブ 100 nm の集光(結像)を目指した Advanced K-B ミラー光学系の開発[17]などが進められており、数年先には、技術革新によって一つの素子で複数の種類の測定が可能となるかもしれない。今後も最新技術の動向を注視する必要がある。

参考文献

- [1] C.J. Benmore *et al.*: Structural and topological changes in silica glass at pressure, Phys. Rev. B, **81**, 054105 (2010).
- [2] 本提案書参考資料: 世界の放射光施設.
- [3] 山崎裕史, 後藤俊治: 光のエネルギーを切り出す(X 線編), 放射光, **19**, 106 (2006).
- [4] K. Ichiyanagi *et al.*: 100 ps time-resolved solution scattering utilizing a wide-bandwidth x-ray

- beam from multilayer optics, *J. Synch. Rad.*, **16**, 391 (2009).
- [5] T. Matsushita, R.P. Phizackerley: A fast x-ray absorption spectrometer for use with synchrotron radiation, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **20**, 2223 (1981).
 - [6] G. Aquilanti, O. Mathon, S. Pascarelli: Achievements in high-pressure science at the high-brilliance energy-dispersive x-ray absorption spectrometer of ESRF, ID24, *J. Synch. Rad.*, **16**, 699 (2009).
 - [7] 平岡望: X 線ラマン散乱:現状と展望, 高圧力の科学と技術, **23**, 252 (2013).
 - [8] 鈴木基寛, 広野等子: 光の偏光を制御する, 放射光, **19**, 444 (2006).
 - [9] 宇留賀朋哉, 野村昌治: 光の形を整形する(反射鏡編), 放射光, **19**, 248 (2006).
 - [10] H. Yumoto *et al.*: Design optimization of highly accurate elliptical mirrors for hard-x-ray micro focusing probes at SPring-8, *Proc. SPIE*, **7448**, 74480Z (2009).
 - [11] <http://www.spring8.or.jp/wkg/BL37XU/solution/lang/SOL-0000001572>
 - [12] 高野秀和, 香村芳樹: 放射光ビームライン光学技術入門, 大橋治彦, 平野馨一編著(日本放射光学会, 東京, 2008), 第9章, pp. 206-232.
 - [13] 大石泰生ら: サブミクロン X 線ビーム形成と超高压 X 線回折, 第54回高压討論会講演要旨集, 1D09, p. 61 (2013).
 - [14] 上杉健太郎, 竹内晃久, 鈴木芳生: 高分解能放射光 X 線マイクロモグラフィ, X 線結像光学ニューズレター, **26**, 1 (2007).
 - [15] H. Mimura *et al.*: Breaking the 10 nm barrier in hard-x-ray focusing, *Nature Phys.*, **6**, 122 (2010).
 - [16] 松山智至, 山内和人, 岡田浩巳: 集光径可変なX線集光システム, 公開特許公報(A), 特開 2014-13169.
 - [17] 松山智至: 色収差のない結像型 X 線顕微鏡の開発, X 線結像光学ニューズレター, **38**, 1 (2013).

3.3 高圧装置

3.3.1 ダイヤモンドアンビルセル(DAC)

3.3.1.1 背景

ダイヤモンドアンビルセル(DAC)は、一般に、対向する二つの単結晶ダイヤモンド製のアンビルの間にガスケットとその中に封入された試料を挟み込み、圧縮することで試料に高圧力を印加する装置であり、以下の特長を持つ。

- ・装置が小型で圧力発生が容易である。
- ・可視光を含めた幅広い波長の電磁波に対して透明である。
- ・圧力測定がルビー蛍光法などにより手軽かつ正確に行える。

これらの特長は様々な測定手法への適用を可能にし、放射光施設のみならず多くの研究室において、高密度環境下に置かれた物質の物理的・化学的・生化学的な性質について、様々な研究に活用されている。ダイヤモンドが透明であることは、ラマン散乱、ブリルアン散乱、赤外反射・吸収・透過、メスバウアー分光、そして X 線の回折・吸収・非弾性散乱等、光を用いた各種測定を可能にする。さらに赤外レーザー光の導入により地球深部の高温高圧環境の再現をも可能にすることから[1]、地球・惑星内部の研究には欠くことの出来ないツールである。また、そのコンパクトさから種々の冷却システムへの装着が可能で、超伝導や磁気転移を始めとする物性研究にも広く利用されている。DAC が用いられる典型的な圧力領域は 0~300 GPa、試料サイズは 10^{-3} ~ 10^{-6} mm³ である。

放射光施設での利用について振り返ると、第二世代施設において DAC を用いた X 線回折測定や X 線吸収測定が盛んに行われるようになり、その後、第三世代施設では輝度の増強によってアンビルやガスケットに囲まれた微小な試料についても X 線非弾性散乱実験が可能となり、幅広い研究分野で利用されるに至っている。コンパクトであることは、例えば放射光施設の各ビームラインへ持ち込んで、そこにある測定装置に大幅な変更を加えることなく実験を遂行することを可能し、ユーザーの幅をさらに拡大することにも貢献している。

最近の DAC 技術の新展開として、最高到達圧力の大幅な更新とナノ多結晶ダイヤモンド(NPD)の利用が特筆される。前者については、従来型のダイヤモンドアンビル上に小型の第二段ダイヤモンドアンビルを形成し、これを対にして圧力発生を行うもので、600 GPa を発生したことが報告された[2]。後者は X 線吸収測定におけるもので、単結晶ダイヤモンド製のアンビルで問題となるブラッグ反射による鋭いピーク(グリッジ)を吸収スペクトル上に生じさせないことから、XAFS や XMCD の測定において NPD 製のアンビルの利用が有効であることが示された[3]。piezo素子を備えて加減圧を繰り返すダイナミック DAC も開発されている[4]。

3.3.1.2 現状

現在の放射光施設における DAC の利用状況を、「高圧力+高温」「高圧力+低温」に大別して紹介する。温度にかかわらず、DAC の宿命として試料サイズが極めて小さくなる。微小試料に対し

て望む位置に X 線を照射して、加熱や圧力測定を行うために、DAC には高精度の位置調整機構が備えられる。また、圧力の質(静水圧性の良さ、もしくは非静水圧性の程度)についても十分な配慮が必要であり、必要に応じてガス圧力媒体が利用できるよう、SPring-8 やアメリカの APS 等には高圧ガス封入装置が整備されている。

■「高圧力+高温」

高温高圧環境下では、地球・惑星内部物質の結晶構造や各物質の融解曲線を求める研究[5,6]や物質を反応させて新奇物質の合成を試みる研究[7]などが行われている。また、高温を試料のアニールに利用する場合もある。多くの場合、Nd:YAG, Nd:YLF, 炭酸ガスなどの高出力赤外レーザーから発振する連続光を、アンビルを通して試料部に集光照射することで加熱を行う。現在、SPring-8 の BL10XU では両面レーザー加熱(二つのアンビルの両方を通して試料にレーザー光を照射する)によって約 5700 K までの温度が達成されている[1,8]。アンビル周囲もしくは DAC 本体にヒーターを装着して加熱を行う、抵抗加熱が行われることもある。高温実験では多くの場合 DAC は冷却機構を備えたホルダによって支持される。加熱用レーザーと放射温度計の光学系は光学定盤上に配置されてハッチ内に設置される。高温高圧下その場測定ができることが重要であり、SPring-8 の BL10XU や APS の 13-ID-D では X 線ビーム光路上に、高エネルギー X 線に対してほぼ透明なグラッシーカーボン製のミラーを挿入して、加熱レーザーと X 線ビームの照射位置が重なるように調整されている[1,9]。微小な試料に対してレーザー光を望む位置に照射し、そして正確な温度測定を可能にするために、加熱・温度測定用の光学系には様々な工夫が施されている。レーザー光の照射位置はハッチ外の遠隔制御により微調整され(例えば SPring-8/BL10XU), また温度測定では、色収差に注意を払って反射対物鏡が利用される場合もある(例えば ESRF/ID27)。実験ハッチ内の床面積と容積の制約から、各光学系の配置に工夫が必要な場合もある(中二階を作って空間内に縦方向に重ねる等[9])。最近の動向としては、コンパクトで可搬性のあるレーザー加熱システムが開発されている[10]。これは DAC ホルダ、加熱レーザーとその集光光学系、温度測定用の分光器とその光学系を小型プラットフォーム(床面積 0.3 m × 0.3 m)上に搭載し、ビームライン間を移動して使えるようにしたものである。

■「高圧力+低温」

低温高圧環境下では、結晶構造変化や磁気転移、価数転移などの現象が X 線回折や吸収、非弾性散乱測定等の手法を用いて研究されている。低温環境の生成にはクライオスタットと、その重量を支えられる架台が必要となる(小型軽量のクライオスタットや液体寒剤吹き付け式の冷却機構ではその限りではない)。実験効率の観点からメンブレンその他による圧力調整機構を持ち、光学窓を備えてルビー蛍光法などによる圧力測定が可能なクライオスタットが多い。クライオスタットは閉サイクル式(GM もしくはパルスチューブ式)冷凍機と組み合わせられる場合、DAC 保持部の振動を抑える工夫が必要である。X 線回折の場合、試料部が数 μm でも振動すると X 線がガスケットにあたり、試料とガスケットの回折線が重なることがあるためである。冷凍機の振動部と DAC 保持部

を切り離し、弛ませた金属製のワイヤもしくはヘリウムガスで冷却部と DAC の熱交換を行うことで、振動を試料部に伝えずに冷却を行う例がある。前者の場合は SPring-8 の BL10XU での実測値で $5\text{ }\mu\text{m}$ 以下の試料部の振動幅、後者の場合は PF の BL-18C での実測値で $3\text{ }\mu\text{m}$ 以下の試料部の振動幅となる。液体ヘリウムフロー式クライオスタットが利用される例も多い。この方式は基本的には無振動である。DAC と合わせてコンパクトに設計することで、マグネットと組み合わせた利用が可能である(例えば SPring-8/BL39XU)。これにより、XAFS や XMCD の測定に用いられている[11]。閉サイクル式冷凍機を利用した場合で試料部を 6 K 程度、液体ヘリウムフロー式では 4 K 程度が一般的に見られる最低到達温度となっている。閉サイクル式冷凍機は取り扱いが簡便であるものの、本体が数 kg~十数 kg と重いため、高耐荷重の架台が必要となり、システム全体として大型になる。液体ヘリウムフロー式の場合、液体ヘリウムが高価であることに加え、取り扱いに若干の訓練が必要なことが課題として挙げられる。

3.3.1.3 展望

温度範囲を拡大することは新しいサイエンスの開拓に欠かせない要素である。パルスレーザーの採用はより高温を実現する一つのアイディアであろう。現在までに 12000 K の到達が報告されている[12]。極短時間での温度発生となるが、それゆえに化学反応性の高い試料や、ガasketやアンビル中への拡散が著しい試料の高温下の物性を研究するには有利となることも期待される[13]。低温については閉サイクル式冷凍機の最低温度(4 K)を下回る温度で容易に実験ができるシステムの構築が最優先の課題であろう。閉サイクル式冷凍機にジュールトムソン(JT)弁を持つヘリウム循環系を組み合わせることで、約 1.5 K まで到達できる。低温であるほど X 線照射時の試料温度の上昇が問題になるので、目的とするサイエンスを踏まえた判断が必要になるが、断熱消磁冷却システムを組み合わせれば mK オーダーの温度の生成も可能である。

最近の傾向として複数物性の同時測定が行われるようになってきている。新光源施設では、より多くの分光測定が展開されるようになると予想されるが、この際に X 線回折測定により試料の結晶構造の情報を得られれば、より効率良く信頼性の高い実験を行うことが可能となる。このためには、分光測定やイメージングと X 線回折測定で、それぞれが必要とする X 線のエネルギーや分解能を素早く簡単に変更できる X 線光学系と、複数の測定装置が混在する中でも精度の高い測定を可能にする省スペースで高分解能の検出器を複合的に備えたビームライン構成が求められる。また、標準的な温度圧力条件で実験を行うための標準セットアップと高温・低温の極限 R&D 用のセットアップを目的に応じて使い分けられるようにすることも重要であろう。これら複数の測定装置やセットアップをハッチ内に集約するためには、15 m(ビーム方向) × 5 m(W) × 5 m(H)程度の広い実験ハッチが望ましい。

3.3.2 大容量プレス(LVP)

3.3.2.1 背景

大容量プレス (Large Volume Press)は、一般に、超硬合金でできたアンビルで圧力容器(高压セル)を加圧する装置である。グラファイト、ホウ素添加ダイヤモンド、TiB₂ セラミックなどでできたヒーターを内部に組み込むと、2500 K 程度までの加熱ができる。アンビルの駆動には主に油圧プレス機が使われ、プレス荷重を変えることで試料にかかる圧力を増減できる。発生圧力の上限は、加圧方式やアンビル先端の形状に依存する。放射光施設で用いられる LVP の場合、試料容積は、発生圧力にもよるが、1 mm³から1 cm³程度であり、DAC と較べて大容量であることが特長である。このため、十分なシグナルを得るために大容量の試料を必要とする場合、試料内を均一な温度にしたい場合、液体を高温高压で長時間保持したい場合などに有効である。超硬合金アンビルでは、およそ 40 GPa が限界であるが、アンビル材に焼結ダイヤモンドを用いることで発生圧力を伸ばすことができる。近年、岡山大学のグループにより 100 GPa を超える圧力が達成された。

放射光施設における LVP は、PF に導入された MAX80 が最初である。MAX80 は PF でファーストビームが出た 1982 年に設置され、翌 1983 年 2 月から本格的に稼働を開始した。その後 PF には MAX90 が導入され、PF では 2 台の LVP を用いて様々な先駆的研究が行われた。MAX90 は 2000 年に MAX-III へ更新された。ここまでの経緯は MAX80 のプロジェクトにおいて中心的な役割を担った下村理氏によるレビュー[14,15]に詳しく述べられている。MAX80 を契機として放射光施設に LVP、殊に日本生まれの DIA 型 LVP を導入する動きはアメリカの NSLS およびドイツの DESY で相次いだ[14]。これは、DIA 型 LVP ではサイドアンビルの隙間を利用して、X 線回折や X 線イメージングを行うことが可能なためである。1997 年からは第三世代放射光施設である SPring-8 においても、LVP を用いた実験が開始された[14,16]。BL04B1 に設置された SPEED-1500 および SPEED-Mk.II は、最大荷重 1500 トンの大型装置で、超硬アンビルや焼結ダイヤモンドアンビルを組み込んだ Kawai 式で主に使用されている。他に、BL14B1 と BL22XU には 180 トンの DIA 型 LVP が設置されている。

3.3.2.2 現状

PF の BL-14C2 に設置された MAX-III は、施設のビームライン統廃合によって、2009 年に PF-AR の NE7A ステーションへ移設された。現在、日本の放射光施設において常設されている LVP は、PF-AR の二つのステーションに合計 2 台、SPring-8 の三つのステーションに合計 4 台ある[17]。ただし、BL14B1 と BL22XU は JAEA のステーションであり、一般ユーザーへの解放は一部に限られている。加えて、J-PARC の中性子実験施設(MLF)にも LVP が設置され、量子ビームを用いた極限環境下での地球・惑星科学および物質科学に LVP は不可欠の装置となっている。

一般に高压発生装置は試料の静水圧性を重視して設計されるが、近年では多重アンビルの一部あるいは全てを独立に駆動させて非静水圧下での実験を行うための装置が幾つか導入されている[18]。PF-AR の NE7A ステーションに備えられている装置を例に解説すると、これは DIA 型の

ガイドブロックをベースにしており、試料は立方体の圧力媒体に組み込まれる。上下のアンビルを独立に駆動させることが可能になっているため、高圧下で変形実験を行うことができる。この装置を用いて地球内部の鉱物のレオロジーの研究が行われている。変形実験用ガイドブロックは、MAX-III プレスに組み込んで用いるが、変形実験以外の時には従来のガイドブロックと入れ替えられる。

3.3.2.3 展望

かつて MAX90 は可動式の架台に搭載され、PF において BL-13B2 と BL-14C の二つのステーション間を行き来していた。しかしながら、大型装置を丸ごと移動して調整し、実験後に撤去することは時間の浪費に加えて測定器の精度にも悪影響を与えた。現在、日本の量子ビーム施設には合計 7 台の LVP があるが、MAX90 での反省からいずれもステーションに常設されている。一方、ステーション常設ということは、使用できるビーム特性が限られてしまうため、新たな実験手法の開拓には限界があった。

日本のみならず、海外でも LVP を用いた高圧科学は盛んに行われるようになったが、専用ステーションの建設が難しい、あるいは様々な測定器のあるステーションに積極的な展開を図るなどの理由により、小型の装置が用いられる傾向にある。その代表的な高圧装置は、トロイダル型の小型対向アンビル、所謂 Paris-Edinburgh (P-E) 装置であろう[19]。P-E 装置は対向アンビルであるため、加圧軸と垂直な面が広く開いており、X 線 CT や液体の回折実験に都合が良い。日本においても J-PARC の MLF や SPring-8 の BL14B1 および BL20XU などにおいて、P-E 装置およびその類似装置を持ち込んで実験が行われている。また、実験室での低温実験用に開発された小型のキュービックアンビル装置が、J-PARC の MLF など中性子実験でも使用されている[20]。物質科学や材料科学では幅広い温度範囲、特に低温での物性に関心が高い。また惑星科学でも、氷衛星内部などの研究が今後進展すると考えられる。このため、冷凍機に組み込むことのできる小型装置は新放射光源を含め今後の量子ビーム施設で利用が進むと考えられる。

新光源施設では、複数台のプレスを利用可能にすべきであろう。1 台は Kawai 式あるいは MA6-6 式[21,22]のアンビルを使用する大型プレス、もう 1 台は変形実験および R&D を目的としたプレスが良い。上記のように、変形実験とその他の実験ではプレスに組み込むガイドブロックが異なっており、実験毎に交換するのは貴重なビームタイムの浪費につながる。このため、2 台用意することは重要である。また、複数あることにより、通常の実験の場合は高圧セルをセットするだけで即座に実験を開始できるため、効率的な運用が可能となる。加えて、高圧セル・測定・解析方法を標準化すれば、新規ユーザーの参入も容易になるであろう。R&D 用プレスについては、小型のマルチアンビル装置や冷凍機などを搭載可能な設計にすることにより、X 線 CT や低温実験など従来の装置では不可能な実験や新しい測定技術の開発も行うことができる。これら 2 台のプレスおよび測定装置を設置するためには、15 m(ビーム方向) × 5 m(W) × 5 m(H) 程度の広い実験ハッチが望ましい。

参考文献

- [1] Y. Ohishi, N. Hirao, N. Sata, K. Hirose, M. Takata: Highly intense monochromatic x-ray diffraction facility for high-pressure research at SPring-8, High Press. Res., **28**, 163 (2008).
- [2] L. Dubrovinsky, N. Dubrovinskaia, V.B. Prakapenka, A.M. Abakumov: Implementation of micro-ball nanodiamond anvils for high-pressure studies above 6 Mbar, Nature Commun., **3**, 1163 (2012).
- [3] N. Ishimatsu *et al.*: Glitch-free x-ray absorption spectrum under high pressure obtained using nanopolycrystalline diamond anvils, J. Synch. Rad., **19**, 768 (2012).
- [4] W.J. Evans, C.S. Yoo, G.W. Lee, H. Cynn, M.J. Lipp, K. Visbeck: Dynamic diamond anvil cell (dDAC): A novel device for studying the dynamic-pressure properties of materials, Rev. Sci. Instrum., **78**, 073904 (2007).
- [5] M. Murakami, K. Hirose, K. Kawamura, N. Sata, Y. Ohishi: Post-perovskite phase transition in MgSiO_3 , Science, **304**, 855 (2004).
- [6] E. Gregoryanz, O. Degtyareva, M. Somayazulu, R.J. Hemley, H.K. Mao: Melting of dense sodium, Phys. Rev. Lett., **94**, 185502 (2005).
- [7] E. Gregoryanz *et al.*: Synthesis and characterization of a binary noble metal nitride, Nature Mater., **3**, 294 (2004).
- [8] S. Tateno, K. Hirose, Y. Ohishi, Y. Tatsumi: The structure of iron in Earth's inner core, Science, **330**, 359 (2010).
- [9] G. Shen, V.B. Prakapenka, P.J. Eng, M.L. Rivers, S.R. Sutton: Facilities for high-pressure research with the diamond anvil cell at GSECARS, J. Synch. Rad., **12**, 642 (2005).
- [10] H. Fukui *et al.*: A compact system for generating extreme pressures and temperatures: An application of laser-heated diamond anvil cell to inelastic x-ray scattering, Rev. Sci. Instrum., **84**, 113902 (2013).
- [11] N. Kawamura, N. Ishimatsu, H. Maruyama: X-ray magnetic spectroscopy at high pressure: Performance of SPring-8 BL39XU, J. Synch. Rad., **16**, 730 (2009).
- [12] A.F. Goncharov *et al.*: Laser heating in diamond anvil cells: Developments in pulsed and continuous techniques, J. Synch. Rad., **16**, 769 (2009).
- [13] S. Deemyad, I.F. Silvera: Melting line of hydrogen at high pressures, Phys. Rev. Lett., **100**, 155701 (2008).
- [14] 下村理: 放射光とマルチアンビル型高圧装置, 高圧力の科学と技術, **14**, 320 (2004).
- [15] 下村理: MAX80 事始め, 高圧力の科学と技術, **15**, 100 (2005).
- [16] 舟越賢一: SPring-8 放射光と川井式高圧装置による最近の高圧研究, 高圧力の科学と技術, **16**, 37 (2006).
- [17] 本提案書参考資料: 世界の放射光施設.
- [18] R. Shiraishi *et al.*: Deformation cubic anvil press and stress and strain measurements using

- monochromatic x-rays at high pressure and high temperature, High Press. Res., **31**, 399 (2011).
- [19] J.M. Besson, R.J. Nelmes, G. Hamel, J.S. Loveday, G. Weill, S. Hull: Neutron powder diffraction above 10 GPa, Physica B, **180-181**, 907 (1992).
- [20] 上床美也ら: 超低温用超小型キュービックアンビル圧力発生装置の開発, 高圧力の科学と技術, **18**, 230 (2008).
- [21] 西山宜正, Y. Wang: MA6-6 の着想に至った経緯と改良の歴史, PF 研究会「放射光高圧研究における実験技術の新展開 II—マルチアンビル型高圧装置を中心に—」, 今井基晴, 亀卦川卓美編著(KEK, 茨城, 2011), pp. 1-4.
- [22] 山田明寛, 井上徹: 6-6 型加圧方式を用いた高圧 X 線回折実験, PF 研究会「放射光高圧研究における実験技術の新展開 II—マルチアンビル型高圧装置を中心に—」, 今井基晴, 亀卦川卓美編著(KEK, 茨城, 2011), pp. 5-10.

3.4 検出器

3.4.1 背景

高圧力・高温あるいは高圧力・低温といった極限条件を再現する実験では、試料は極めて小さい容積に限定される。例えば、大容量プレス(LVP)を用いた実験でも典型的な試料容積は $1\sim 10^3\text{ mm}^3$ 程度であり、ダイヤモンドアンビルセル(DAC)を用いた実験では僅か $10^{-3}\sim 10^{-6}\text{ mm}^3$ 程度となる。また、試料付近には加圧用超硬合金素材のほか、加熱用ヒーターや冷凍機、断熱材などが配置されるため、常圧での実験に比べてレイアウトの自由度が非常に限定される。このように、高圧実験では微小な試料によって散乱された微弱な光を、限られた光学経路で検出せざるを得ない。そのため、封入管球や回転対陰極を X 線源として用いた初期の高圧 X 線回折実験では、一つの試料の測定に数日の時間を要していた。放射光 X 線の利用が始まった 1980 年代以降では、この状況は一変し、僅か数分から数秒で高圧下その場観察を行うことが可能となった。例えば、超高温条件では試料の長時間加熱が困難な場合が多いため、放射光利用による実験時間の短縮のメリットは極めて大きい。また、その場観察によって、常圧にはクエンチできない結晶相の解析が可能となり、高圧下の物質の振る舞いに対する理解が一挙に深まった。

これまで、高圧実験で最も頻繁に行われてきた放射光 X 線利用の方法は、X 線回折法である。この手法で得られる情報は、結晶構造や密度、圧縮率、各相の安定領域や相転移のカイネティクスなど多岐にわたっており、高圧物性の研究に不可欠なものとなっている。また、イメージング手法も積極的に利用されており、高速カメラを用いた X 線ラジオグラフィーやトモグラフィー(CT)法によって、変形量解析や粘性測定が行われている。最近では、X 線非弾性散乱、X 線発光分光あるいは核共鳴散乱分光など、これまで常圧試料に対してのみ行われてきた手法が高圧実験にも応用されるようになってきた。高圧力条件下での物性研究は、高輝度の放射光 X 線と最も親和性の高い分野の一つであり、放射光利用の重要性はますます増している。

このような高圧下の放射光実験において、検出器に求められる性質・条件は必ずしもユニークではないが、大局的には①高感度・高ダイナミックレンジ・低雑音、②高空間分解能、③高エネルギー分解能、④高時間分解能、⑤小型軽量、といった点が重要である。全ての項目は、他の研究分野でも要求されるスペックであるが、高圧実験特有の状況を述べる。①の項目は、試料容積の限られる高圧実験において、微小な散乱体積から得られる微弱な信号を、数え落とすことなく、低雑音で取得するために必須の条件である。②は、角度分散回折実験やイメージングで利用する 2 次元検出器に求められるものであり、僅かな密度変化や微細組織の解析に必要なスペックとなる。③は、回折および各種分光実験などで使用するエネルギー分散型検出器に対するものであり、例えばエネルギー弁別によるバックグラウンドの軽減など、微弱な信号に対する精度の高い物性測定時に要求される。④は、例えば相転移のカイネティクスや落球法による粘性測定といったダイナミックな現象の解析時に必須となる。⑤は実験レイアウトの制限によるものであり、他の装置との干渉を回避し、僅かな隙間に検出器を配置する場合に要求される。

高圧実験には多様な現象を捉えるために多彩なレイアウトが存在し、一つの検出器でそれら全

てをカバーすることは不可能である。また、既存手法の高度化を図る一方で、新光源の特長を活かした新手法の導入を検討する必要がある。以下に、検出器や手法の観点から、現在の高圧実験の状況および新光源施設における新手法の導入に向けた展望を述べる。

3.4.2 現状

検出器の役割は観測される光の強度やエネルギーに関する情報を信号として出力することである。検出器は信号出力の方法により積分型と計数型に大別される。積分型検出器では数え落としがないことが利点であり、光の強度測定に適している。現状での代表的な積分型 2 次元検出器としては、イメージングプレート(IP)や CCD, CMOS フラットパネルなどが挙げられ、回折パターンやイメージの記録に用いられる。IP は数 10 cm 四方の大きな検出面積と最大 20 bit ($\sim 10^6$ counts) の広いダイナミックレンジが特長であり、耐久性も高いことから広く利用されている。しかし、画像の読取りに数分を要するため、データ的高速収集には向かない。CCD は、後述する計数型 2 次元検出器を含めて、最も高い空間分解能を持つ。レンズカップリング方式を用いた CCD の分解能はおよそ $6\sim 20\ \mu\text{m}$ であり、高分解能イメージングへの応用に適した検出器といえる。一方、計数型検出器は、不感時間があるものの、読取速度が速い、電気ノイズがない、エネルギー弁別が可能、原理的にダイナミックレンジに制限がない、デジタルデータのため高速処理が可能という利点があり、種類も豊富である。0 次元・1 次元の代表的な検出器としては、光子計数型ではアバランシェフォトダイオード(APD)やシンチレーションカウンター(SC)が挙げられる。APD は 10^7 cps を超える高い計数率とサブナノ秒時間分解能を持つ性能から、高強度 X 線のモニタリングに用いられている。エネルギー弁別が可能な計数型としては、半導体検出器(SSD)が広く利用されており、100%に近い検出効率や $10^3\sim 10^6$ cps に及ぶ高計数率、適用エネルギー範囲の広さが利点である。中でも高純度ゲルマニウム検出器は、シリコンやカドミウムテルルに比べて、高エネルギー領域で優れたエネルギー分解能を持つ。2 次元検出器では、超高感度・高画質の X 線 HARP-FEA があり、CCD に迫る高い空間分解能とアバランシェ増幅を利用した高計数率を実現している。さらに最近では、素子を多次元に配置したピクセルアレイ検出器が開発されており、実用機としてスイスの PSI が開発した、1 次元型 MYTHEN や 2 次元型 PILATUS が普及し始めている。両検出器は高い空間分解能に加えて、ミリ秒オーダーの高い時間分解能を有することが特長で、時分割測定にも適した検出器といえる。

国内外の放射光施設において、高圧実験が可能な拠点(建設中も含む)は 30 か所以上存在する[1]。これらの施設の状況を手法の点から整理する。まず、放射光と DAC を組み合わせた実験は、弾性散乱(回折)、非弾性散乱(電子・フォノン励起、核共鳴散乱)、分光(吸収・発光)、イメージングなどが行われている。国内において、DAC 実験用ビームラインは SPring-8 に三か所(BL04B2, 10XU, 22XU)と PF に二か所(BL-18C, AR-NE1A)あり、各ビームラインは基本的に回折実験用の仕様となっている。検出器には IP や CCD が整備され、それぞれ回折パターンの精密解析や迅速なデータ収集用として用いられている。また、DAC は小型で持ち運びが容易なため、上記のビームライン以外でも回折法に限らない様々な測定が行われている。SPring-8 での測定実

績を挙げると、核共鳴散乱 (BL09XU, 11XU), 発光分光 (BL12XU), 非弾性散乱 (BL35XU), XAFS および XMCD 測定 (BL39XU) などが行われている。国外にも DAC ビームラインは数多く存在する。特にアメリカの APS の HPCAT が運営する三つの DAC 専用ビームラインでは、回折実験だけでなく、非弾性散乱や核共鳴散乱, X 線吸収・発光分光など複数の手法を取り入れている。検出器は各実験手法にあわせて, IP や CCD のほか, Ge-SSD や APD, PILATUS が導入されている。LVP が設置されたビームラインでは, 弾性散乱(回折), X 線吸収分光, イメージングが主に行われている。国内の LVP 実験用ビームラインは, SPring-8 に三か所 (BL04B1, 14B1, 22XU) と PF に二か所 (AR-NE5C, AR-NE7A) ある。LVP ビームラインは, BL22XU を除き, 偏向電磁石からの白色 X 線を光源とするために白色光と単色光の両方が利用できる。白色光では SSD を用いたエネルギー分散 X 線回折や CCD による X 線ラジオグラフィーの観測が行われており, 単色光では IP や CCD を利用した角度分散 X 線回折や X 線 CT が行われている。LVP は日本で発達した圧力発生装置ということもあり, 国外で設置されているビームラインは多くはない。APS の GSECARS はその一拠点であり, DAC と LVP 共用ビームラインとして運営されている。このビームラインでは IP, CCD, Ge-SSD など汎用的な検出器のほか PILATUS や SDD (Silicon drift detector) が導入されているが, LVP を用いた実験では CCD や Ge-SSD を用いて X 線マイクロ CT や回折実験が行われている。

以上のように, 現在の高圧実験ビームラインでは主に回折実験をベースとした設備環境が整っているが, 最近では非弾性散乱, 分光, イメージングといった手法を組み合わせた同時複合測定も大きなトレンドとなっている。また, 汎用性の高い IP と CCD, SSD といった検出器が広く普及しているが, 欧米ではこれらに続く検出器として PILATUS の導入が急速に進んでおり, 日本の現状と大きく異なる点といえる。

3.4.3 展望

現在, 広く用いられている SSD の半導体材料には, シリコンやゲルマニウムが用いられる。高エネルギー X 線を発生する放射光施設では, 主にゲルマニウム半導体検出器が採用されており, 高圧研究においては回折実験や特性 X 線分析で成果を上げてきた。ただし, 新光源の X 線は比較的低いエネルギーである可能性も高いため, 低エネルギー領域 (< 30 keV) に高い感度を示すシリコン半導体検出器の採用も考慮に入れる必要がある。商用化されているシリコン半導体検出器のエネルギー分解能 (例えば 5.9 keV の X 線に対して 125 eV) は, 既に統計的揺らぎによる理論限界に近いために, この点での改善の余地は小さい。ただし, シリコン半導体検出器は, 近年, 検出素子の大面積化や電極配置の最適化が進んでおり, 検出感度や最大計数率は大幅に向上している。例えば Oxford 社の SDD (Silicon drift detector) では検出面積 150 mm² が達成されており [2], 最大で 1 Mcps の高計数率測定が可能になっている。試料からの微弱な信号を, 周辺材料による雑音から分離して検出することによって, 高速・高精度な特性 X 線分析やエネルギー分散回折実験が可能となる。

また, 次世代のエネルギー分散検出器として, 超伝導現象を利用した装置開発も行われている。

STJ (Superconducting Tunnel Junction, 超伝導トンネル接合) 検出器では、光電効果によって発生した 2 次電子がクーパー対を破壊し、それに伴って発生する電子・正孔対をトンネル電流の増加分として取り出すことによって、X 線エネルギーを弁別する[3]。STJ 検出器は原理的には分解能 2.5 eV @ 5.9 keV を達成することができるとされており、現在、産総研と PF を中心に開発が進められている[4]。また、TES (Transition Edge Sensor, 超伝導遷移吸収端センサー) マイクロカロリメトリ検出器では、X 線吸収体の微小な温度上昇 (数 mK) を、超伝導転移温度付近での急速かつ急峻な抵抗変化に変換して測定する[5]。10 keV 以下のエネルギー領域では理論的に 1 eV 程度の分解能を持つとされ、現在では 4 eV 程度の分解能が達成されている。TES マイクロカロリメトリ検出器は、既に Star Cryoelectronics 社によって商用化されており、主に電子顕微鏡装置への導入が進んでいる[6]。これらの超伝導を利用した検出器はいずれも感度領域が 10 keV 以下であるため、現在の高圧実験で利用される半導体検出器の直接の代替にはならない。ただし、優れたエネルギー分解能を活かして、これまで大型の波長分散検出器を利用せざるを得なかった、X 線発光分光や X 線ラマン分光といった手法に応用できる可能性がある。

2 次元検出器としては、SOI-PIX (Silicon-on-Insulator Pixel Detector) や EIGER とよばれる高速・高空間分解能検出器が、次世代の高圧実験の検出器の候補として挙げられる。SOI-PIX は、2 種類のシリコン層を絶縁層を介して張り合わせたシリコン基板技術をベースに、高感度ピクセルセンサーと集積回路を 3 次元的に一体化させた検出器であり、単一光子の検出とエネルギー計測を同時に行うことが可能である[7]。この検出器は新学術領域研究 (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、代表 高エネ研・新井康夫, 2013 年より) で開発が進められており、本稿執筆時点で、ピクセルサイズ 30 μm 、画素数 4 Mpixel、エネルギー分解能 300 eV、読出速度 20 μs 程度のスペックを目指している。EIGER は前節で紹介した PILATUS の後継機として開発が進んでいる。PILATUS や EIGER に代表されるピクセルアレイ検出器は、X 線受光センサーと読出用集積回路を一体化させ、各ピクセルに独立したアナログ・デジタル混合回路系を搭載した検出器である。空間分解能はピクセルの大きさで決まっており、PILATUS では 172 μm である。EIGER はさらなる高空間分解能と高速化を目指して開発されており、空間分解能とフレームレートはそれぞれ 75 μm および 22 kHz まで向上し、さらに読出時間は 4 μs となっている[8]。これらの次世代 2 次元検出器の最大の特長は高速のデータ取得であり、時分割 X 線回折による相転移観察や高速ラジオグラフィ撮影といった、これまで測定の難しかったダイナミックな現象の解析に威力を発揮する。ただし、これらの検出器は空間分解能の点において従来の CCD カメラに劣るため、それを上回る数 μm オーダーの空間分解能と高速処理能力を併せ持つ検出器の開発を期待したい。また、検出器の高度化とともに、得られるデータ量は増加する一方である。そのため、大量のデータを処理するために、解析環境 (ソフトウェアなど) の整備も含めた検討が必要である。

現在、建設計画が進められている新光源からの光には、高輝度、高コヒーレント性、短パルス性といった特長がある。我々はこれらの特長を活かし、検出器の高度化とあわせて、新しい高圧力科学の展開を模索している。例えば、空間的コヒーレンスを利用した手法では、位相イメージングやスペックル分光 (X 線光子相関分光法 XCPS) が挙げられる[9]。コヒーレント X 線回折イメージング

(CDI)では、遠方で観測される回折パターンに位相回復計算を行うことで、レンズ光学系なしで試料の電子密度分布をイメージ化する[10]。高い空間分解能を持つ2次元検出器と組み合わせることで、既に10 nm以下の空間分解能が得られている。ただし、現状では測定時間に10時間以上を要している。高輝度化やコヒーレント性の向上によって、短時間・高精度のデータ取得が可能になることを期待したい。スペックル分光法は、コヒーレント光が不均一な系に入射した際に現れるスペックルを利用した手法である[11]。空間的な不均一性に限らず、時間変化する系でも有効であり、時分割測定と相関解析による構造ダイナミクスの研究や、拡散、相分離、相転移など対象は多岐にわたる。必要とされる検出器は時間・空間分解能の高い2次元検出器であり、高輝度のコヒーレント光と組み合わせることで、より短い時間揺らぎへの対応も期待される。また、短パルス性を利用した手法では、メスバウアー分光法や時分割X線回折法などへの応用が期待される。メスバウアー分光法では、APDのような高時間分解能の検出器と組み合わせることで、原子核励起状態の寿命が短い核種に対しても、共鳴散乱過程を観測することが可能となる[12]。時分割X線回折法では、高強度フェムト秒レーザーを物質に照射することによって物質内部に非平衡圧縮状態を生成し、その状態における構造変化をX線自由電子レーザーでその場観察するといった研究が既に始まっている[13]。このような超高速現象の観測では、ピクセルアレイ検出器のような高感度・低雑音で高速処理の可能な検出器が必要である。

以上のような新光源の特長を活かした実験手法は、主にDACを用いた高压実験にも応用できる可能性があるが、常圧・低压での実験と異なる状況を考慮する必要がある。高压実験では光路を真空にすることが不可能なため、例えば光のコヒーレント性を利用する実験の場合では、光路中のダイヤモンドアンビルや圧力媒体が光のコヒーレンスを乱すことが予想される。ただし、国外の第三世代放射光施設では、高压下の回折イメージング(ブラッグ)の例が既に報告されており[14]、コヒーレント性が大幅に向上する新光源での、回折イメージングの実現は十分に可能であると考えられる。また、新光源の高輝度化が高压力科学にもたらす恩恵も大きい。冒頭でも述べたように、高压実験特有の微小な試料では得られる信号が微弱であり、検出すべきシグナルがバックグラウンドに埋もれることが多い。例えば、高压下X線ラマン散乱実験[15]では、S/N比の高いスペクトルを得るために測定系や試料環境に様々な工夫がなされているものの、現状では吸収端近傍の測定に限られている。EXAFSのように微細な構造を抽出するには、S/N比のさらなる向上が求められている。今後、光源の高度化によってもたらされる高輝度ナノビームと、各々の実験手法に適した高性能な検出器を選択することによって、微小試料からもS/N比の高いデータが取得できるようになることが期待される。

参考文献

- [1] 本提案書参考資料: 世界の放射光施設.
- [2] <http://www.oxford-instruments.jp/products/nanoanalysis/eds/eds-for-sem/x-maxn>
- [3] 浮辺雅宏, 大久保雅隆, 北島義典: エネルギーを測る—II—極低温検出器(ジョセフソン接合)—, 放射光, **21**, 279 (2008).

- [4]志岐成友, 浮辺雅宏, 松林信行, 小池正記, 北島義典, 大久保雅隆: 超伝導検出器で可能になる微量軽元素の蛍光収量 X 線吸収分光, *PF NEWS*, **31**, 13 (2013).
- [5]原徹ら: マイクロカロリメータ EDS を搭載した分析電顕の開発ー現状と今後の展開ー, *顕微鏡*, **44**, 289 (2009).
- [6]http://www.starcryo.com/microcal_eds.htm
- [7]Y. Arai *et al.*: Developments of SOI monolithic pixel detectors, *Nucl. Inst. Met. Phys. Res. A*, **623**, 186 (2010).
- [8]I. Johnson *et al.*: Capturing dynamics with Eiger, a fast-framing x-ray detector, *J. Synch. Rad.*, **19**, 1001 (2012).
- [9]百生敦: 放射光ビームライン光学技術入門, 大橋治彦, 平野馨一編著(日本放射光学会, 東京, 2008), 第 11 章, pp.264-280.
- [10]高橋幸生: コヒーレント X 線回折イメージング, *高圧力の科学と技術*, **23**, 237 (2013).
- [11]大和田謙二: リラクサー強誘電体におけるコヒーレント X 線散乱実験の現状, *高圧力の科学と技術*, **23**, 245 (2013).
- [12]小林寿夫: 放射光を用いた高圧力下核共鳴散乱・メスバウアー分光ー現状と今後の展望ー, *高圧力の科学と技術*, **23**, 260 (2013).
- [13]T. Sano *et al.*: Ultrafast XFEL diffraction measurements of femtosecond laser-driven shock-compressed iron, *Bulletin of the American Physical Society, Series II*, **58**, T2.4, p. 166 (2013).
- [14]W. Yang, X. Huang, R. Harder, J.N. Clark, I.K. Robinson, H.K. Mao: Coherent diffraction imaging of nanoscale strain evolution in a single crystal under high pressure, *Nature Commun.*, **4**, 1680 (2013).
- [15]福井宏之, 平岡望: 超高圧下での X 線分光法:シリケートガラスに対する X 線ラマン散乱, *放射光*, **24**, 10 (2011).

4. ビームラインの提案

4.1 DAC ビームライン

第二章と第三章の議論に基づき、中型高輝度光源施設では、従来の回折に加え、各種の分光とイメージングを同時に実現する DAC ビームラインを提案する。

吸収分光や非弾性分光では、電子状態や磁気秩序の測定が中心となる。異なる時間スケールの現象を同時に捉えることでダイナミクスの理解につなげる。信号強度が十分な測定手法(例えば、XAFS)では、ナノビームを利用した走査型イメージングを行う。十分でない手法の場合は、結像型イメージングで選定した試料部位にナノビームを照射し、長時間露出により局所的な情報を得る。また、超高温や超低温、強磁場と組み合わせた多重極限環境の測定可能領域を拡大する。

できる限り多くの測定手法を同時あるいは短時間の切り替えで実行可能とすることを目指す。速やかな切り替えを可能にするため、各手法に必要な機器の小型モジュール化を図る。標準的な測定については自動化し、新規参入の敷居を下げる。一方で、パワーユーザーによる R&D を可能にするため、自由にセッティングすることのできる定盤を用意し、標準的なセッティングの搭載される定盤の退避と復旧を短時間で行えるようにする。柔軟な運用が可能のように、実験ハッチについては、十分に広い床面積と高さを確保する。

以上を実現するためには、現状では、テーパー可変の真空封止型水平偏光アンジュレーターを光源とするビームラインが適していると考えられる。あるいは熱負荷対策などの観点から、一つのビームラインでエネルギー幅を大きく変化させることが困難なようであれば、タンデムのアンジュレーター光源のアンジュレーター軸を僅かにずらし、二つの隣接する実験ハッチで、エネルギーとエネルギー幅の異なる X 線を同時に利用可能とすることが望ましい。いずれにせよ、回折の測定は必須であるので、電子エネルギーが低い光源であっても、最低限 15~20 keV 領域までの X 線を利用可能なことが必要である。試料位置における X 線サイズを可変(ナノミリ)とすることも重要である。

次世代回折限界光源施設では、DAC の実験でもコヒーレンスの利用が十分に可能になると期待される。CDI や XPCS などのコヒーレンス利用測定や走査型あるいは結像型の超高分解能イメージングが可能な DAC ビームラインで新しい高圧力科学を展開したい。

4.2 LVP ビームライン

第二章と第三章の議論に基づき、中型高輝度光源施設では、新規参入を促す標準プレスと開発的研究を目的とした R&D プレスを備え、複数台のプレスを利用可能にする LVP ビームラインを提案する。

標準プレスでは、高压セルの標準化、測定の実自動化および解析方法の標準化により、高压合成分野などからの新規参入の促進に重点をおいた温度圧力条件での測定に特化する。R&D プレスではパワーユーザーによる開発的な研究と各種の先端的な測定を実施する。常設の標準および R&D プレスに加え、小型プレスや DAC の持ち込みも可能とする。これらの運用には、十分に広い床面積と高さを持つ実験ハッチが必要である。

利用実績の高い回折と吸収イメージングについては、測定の高速化、分解能の向上など、高度化を図る。吸収分光や蛍光 X 線測定も標準的に実施可能なように整備する。また、マイクロビームを利用した走査型イメージングや各種高分解能測定を行う。

LVP ビームラインの実験は、DAC ビームラインに比べ、より高いエネルギーの X 線のフラックス密度が重要となる。したがって、真空封止型の水平偏光ウィグラーを光源とするビームラインが適していると考えられる。目的に応じて、白色光と単色光を切り替えて利用する。単色光については、必要に応じて集光し、マイクロビームを利用する。また、ビームラインのフロントエンドの上流位置にスリットを配置し、光源サイズを制限することで、必要に応じて、高分解能モードでの非走査イメージングを可能にする。

次世代回折限界光源施設では、コヒーレンスだけでなく、短パルス性も向上すると期待される。LVP の比較的大きな試料からは比較的強い信号強度が期待される。これを活かして、分光学的な手法でピコ秒の現象を捉えるなど新しい高圧力科学の方向性を打ち出したい。

4.3 共通設備と運営

新施設は、単に実験を行ってデータを得るだけの場ではなく、研究者間の交流の拠点であるべきである。DAC と LVP のビームラインを近接させ、試料準備用のラボを充実し、共通の控室を設けることを提案する。ビームタイムを中心に、複数の研究グループが同時に利用できると良い。施設留保ビームタイムなどの制度を利用して、DAC と LVP の相補利用の促進、研究グループ間の技術交流や新規参入の支援を行うことが望ましい。DAC でも LVP でも、放射光を必要としない測定も含めた複合的な測定が行われるようになると期待される。そのようなオフラインで利用可能な機器も全国の研究者に公開することを提案する。

高圧ビームラインで展開するサイエンスとしては、理学的な物質科学・地球科学・材料科学などの従来からの主要分野に加え、生命科学や工学的な分野にも広がりを持たせていく。参考資料にみられる PF と SPring-8 の高圧関連課題の研究分野の広がり、大きな成功につながる可能性を予感させる。より高度な測定の実施や新規参入の促進から、実験の自動化を進めるが、その一方で、学生教育(人材育成)の視点が抜け落ちないよう配慮する必要がある。

各ビームラインを 3 名程度のビームラインサイエンティストで担当することが望ましい。

5. おわりに

本提案書は、日本高圧力学会に 2012 年 1 月に設置された研究・作業グループ(WG)「コヒーレント放射光を利用した新しい高圧力科学」により、取りまとめられたものである。幅広い年齢層、幅広い分野の研究者が協力し、放射光高圧力科学の All-Japan 体制で、コミュニティを挙げての作業を行った。WG では、グループの名称の通り、コヒーレント放射光の利用を見据えた活動を、学会の主催する高圧討論会でのシンポジウムや WG 研究会における招待講演、学会誌特集号の依頼原稿など、高圧力科学を専門としない研究者の方々の多大なるご協力を得て進めてきた。そうした活動を通じ、多くを学び、強い刺激を受けた WG の研究者には、喫緊の課題とされる中型高輝度光源だけでなく、回折限界光源への期待も極めて高い。

今後の放射光高圧力科学においては、先鋭化と多様化の両方を推進する必要がある。多様化は、あらゆる面で必要であり、例えば、高圧力科学分野の放射光利用をしていない研究者あるいは放射光科学分野の高圧利用をしていない研究者の新規参入を容易にすることが重要である。短期的成果主義だけでは破綻を免れないので人材育成にも重点を置く必要がある。高圧容器内の試料の測定を行う必要から、これまでは高エネルギーの X 線の利用が中心であったが、5 keV 程度以上の X 線であれば十分に利用可能であり、エネルギー領域に応じた様々な用途がある。光源の電子ビームの特性に合わせた高圧ビームラインの設計が重要になる。特性に合わせることで多様性が生まれるとともに、先鋭性の強化にもつながる。

最後に、国際的な競争力を持ち人材育成の可能な設備と運営体制を持つ新光源施設の実現を強く希望して結びとしたい。そうした新光源施設は、日本の将来のために絶対に不可欠である。

新放射光源施設における高圧ビームライン提案書

参考資料

世界の放射光施設

世界各地で稼働中、建設中、あるいは計画中の放射光施設、また、それらの施設の高圧専用もしくは高圧と関連したビームラインの情報を調査した。海外の施設については、電子エネルギーが 2 GeV 以上で、自然エミッタンス(水平エミッタンス)が 50 nm・rad 以下の放射光専用施設を調査の対象とした。情報は、基本的に、各施設の Web ページより収集したものである。高圧ビームラインの備考欄には、標準的な粉末 X 線回折や X 線イメージング以外に可能な測定手法など、主な特徴を挙げている。

また、日本の高圧力科学研究者の海外の放射光施設の利用状況についてアンケート調査を行った。

世界の放射光施設

国名	施設名	利用開始 (year)	周長 (m)	エネルギー (GeV)	蓄積電流 (mA)	エミッタンス H(nm·rad) V(nm·rad)	時分割用運転モード	バンチ間隔 (ns)	バンチ電流 (mA)	バンチ長 (ps)	直線部
稼働中の施設											
日本	PF	1983	187	2.5	450	34.6 (0.346)	Hybrid	(156)	50	56	8.9m × 2, 5.4m × 3, 5.3m × 2, 1.5m × 4
	PF-AR	1987	377	6.5	60	293 (0.293)	1	1300	60	(55)	20m × 1, 5m × 4
	SPring-8	1997	1436	8	100	2.4 0.0048	D, E, F, G, H	83-1486	1-5	16-28	30m × 4, 7m × 40
韓国	PLS-II	2012	282	3	400	5.6				(20)	6.8m × 9, 3.7m × 12
中国	SSRF	2009	432	3.5	200-300	3.9 0.039				(14*)	12m × 4, 6.5m × 12
インド	INDUS-2	2005	172	2	300	37.2 3.72				(50)	4.5m × 5
イギリス	Diamond	2007	562	3	300	2.74 0.0274	156	12	0.87	(10*)	8m × 4, 5m × 18
イタリア	ELETTRA	1995	259	2/2.4	310/150	7/9.7 0.07/0.097	Hybrid	(22)	(5)	(19*)	6m × 11
スイス	SLS	2001	288	2.4	400	5.5	Hybrid	(90)	(4)	(85#)	11.5m × 3, 7m × 3, 4m × 6
スペイン	ALBA	2012	269	3	120	4.58				(21*)	8m × 4, 4.2m × 12, 3.1m × 8
ドイツ	ANKA	2002	110	2.5	200	50				(38*)	4.5m × 4, 1.5m × 2
	PETRA III	2009	2304	6	100	1 0.01	40	192	2.5	44	20m × 1, 5m × 3, 2m × 5
フランス	ESRF	1994	844	6	200	4 0.004	7/8+1, Hybrid, 16, 4 × 10	176-704	2-10	20-55	5m × 20, 6m × 7, 7m × 1
	SOLEIL	2007	354	2.75	400/430	3.9 0.039	Hybrid, 8, 1	148-1181	5-15	61-92#	12m × 4, 7m × 12, 3.8m × 8
アメリカ	APS	1996	1104	7	100	2.51	Standard, Hybrid	153-1549	4.25-16	34-50	5m × 35
	SPEAR3	2004	234	3	300-500	10 0.014				(17*)	2.3m × 9, 3.7m × 4, 1.5m × 2
カナダ	CLS	2005	171	2.9	250	22.7 0.102	1	(153)	(16)	(35)	5.5m × 9
オーストラリア	Australian Synchrotron	2007	216	3	200	10 0.1				(22-31*)	4.4m × 12
建設中、計画中の施設											
台湾	TPS	2015	518	3	500	1.6 0.016				(9.5*)	12m × 6, 7m × 18
ヨルダン	SESAME	2015	133	2.5	400	25 0.25				(39*)	4.4m × 6, 2.4m × 6
アメリカ	NSLS-II	2015	792	3	500	0.55 0.008				(10*)	9.3m × 15, 6.6m × 15
スウェーデン	MAX IV	2016	528	3	500	0.3 0.008				5	4.6m × 12
ブラジル	Sirius	2017	518	3	500	0.28 0.0028				8.8*	7m × 10, 6m × 10
アルメニア	CANDLE		216	3	350	8.4 0.084					4.8m × 12
イラン	ILSF		298	3	400	3.29 0.0329					7.9m × 3, 4m × 16, 2.8m × 9

Numbers in parentheses are from non-official sources.

*Natural bunch length, # FWHM (w/σ[#]: rms or 1σ)

高圧専用および高圧関連ビームライン

施設	BL	光源 ^a	エネルギー ^b	分光器 ^c	集光素子 ^d	高圧装置	備考
PF ¹	BL-18C	B	M(6-25)	Si(111)	KBM	DAC(cryo)	
	NE1A	W	M(7-50)	Si(111)	KBM	DAC(cryo, laser)	メスバウアー
PF-AR ²	NE5C	B	W(20-140) M(30-80)	Si(111)		LVP(MA500t)	
	NE7A	B	W(20-140) M(25-55)	Si(111)		LVP(MA700t)	変形, 弾性波, PE持込
	BL04B1	B	W(20-150) M(30-60)	Si(111)		LVP(MA1500t) LVP(MA1500t)	弾性波 揺動, 変形, 弾性波, 焼結ダイヤ
	BL04B2	B	M(37.8,113.3) M(61.7)	b-Si(111) b-Si(220)	CRL	DAC	XRD(非晶質), PDF
SPring-8 ³	BL10XU	U	M(14-62)	Si(111)# Si(220)#	CRL	DAC(cryo, laser)	メスバウアー, ラマン 電気抵抗, ブリルアン
	BL14B1	B	W(5-150) M(5-90)	Si(111), Si(311) Si(511)		LVP(MA180t)	XAFS
	BL22XU	U	M(3-70)	Si(111)#	CRL	LVP(MA180t) DAC(cryo)	XRD(単結晶)
Diamond	I15	W	W M(20-80)	Si(111)#	L-KBM S-KBM	DAC(cryo, laser) LVP(PE)*	XRD(単結晶)
ELETTRA	XPRESS*	W	M(8-35)			DAC	
SLS	MS- X04SA	U	M(5-38)	Si(111)#	V:col-M, M H:2nd-Si(111)	DAC	
ALBA	BL04- MSPD	W	M(8-50)	Si(111)#	V:col-M KBM	DAC	
PETRA III	P02.2	U	M(8.6-100)	Si(111) Si(311)	S-KBM CRL	DAC(cryo, laser) LVP(PE)*	Pink Beam XRD, XRD(単結晶) PDF, XRF
	P61.2*	W				LVP(MA)	
	ID06	U	M(15-80)	c-Si(111)#		LVP(MA2000t)	
ESRF	ID09A	U	M(28-35)	b-Si(111)	V:spherical M H:b-Si(111)	DAC(cryo, laser)	XRD(単結晶), ラマン
	ID27	W U × 2	W M(20-90)	c-Si(111)	KBM	LVP(PE) DAC(cryo, laser)	CT(吸収, 回折), 変形 XRD(単結晶), XRF, XRS
SOLEIL	Psiche	W	W(15-100) M(15-50)	Si(111), Si(311) multiple layer	V:M, H:2nd-Si(311) KBM	LVP(PE) DAC	CT, ラマン
	13-ID-C	U	M(4-75)	Si(111)# Si(311)#	L-KBM S-KBM	DAC	XRD(単結晶), XRF, XAFS, IXS
	13-ID-D	U	W M(4-75)	Si(111)# Si(311)#	L-KBM S-KBM	LVP(MA1000t) DAC(laser)	変形
	13-BM-C	B	M(15) M(29)	b-Si(111) b-Si(311)	V:L-M S-KBM	DAC	XRD(単結晶)
	13-BM-D	B	W(5-100) M(5-70)	Si(111)	V:L-M S-KBM	LVP(MA250t) DAC	CT, 変形 XRD(単結晶), XAFS, ブリルアン
APS	16-ID-B	U	M(27-36)	Si(220), Si(111) Si(311)	S-KBM	DAC(cryo, laser)	XRD(単結晶), ラマン
	16-ID-D	U	M(4.5-35)	Si(111)#	L-KBM S-KBM	DAC(cryo)	XRF, NRIXS, NFS, IXS R/XES, FY-XAS, XRS
	16-BM-B	B	W(5-120) M(5-70)	c-Si(111)	S-KBM	LVP(PE) DAC(cryo)	弾性波
	16-BM-D	B	M(6-70)	c-Si(111)	KBM	DAC(cryo)	XRD(単結晶), AXRS*, XAS*
	4DE2*	W	W(20-100) M			LVP(MA2000t) DAC	
NSLS-II*	TEC*	U	M(5-40)	Si(111)# Si(311)#	KBM	DAC(cryo, laser) Laser shock	SAXS, XRF, XAS, XES, XRS 磁場, 時分割
	FIS*	B	IR			DAC(cryo, laser) Gas Gun	

*:plan (a) B:bending magnet, W:wiggler, U:undulator, (b) W:white, M:monochromatic, Energy in keV, (c) b--bent, c--channel cut, #:Liq. N2 cooled (d) M:mirror, CRL:compound refractive lens, L--long, S--short, col--collimation, V:vertical, H:horizontal

¹BL-3A(DAC; XAS), BL-4C(DAC; six-circle), BL-6C(DAC; XAFS, RXMS, XMCD), BL-8A(DAC; XRD), BL-8B(DAC; XRD)

BL-10A(DAC; single crystal), BL-20B(DAC; topography)

²NW12A(DAC; protein), NW14A(laser shock)

³BL01B1(DAC; XAFS), BL02B2(DAC; XRD), BL08W(DAC; Compton), BL09XU(DAC; RIXS, NRIXS, Mössbauer)

BL11XU(DAC; Mössbauer), BL12XU (DAC; RIXS, NRIXS), BL20XU/B2 (PE; CT), BL35XU (DAC, PE; IXS)

BL37XU (DAC; XAFS, XRF), BL39XU (DAC; XMCD, XAFS, XRS), BL40B2 (DAC; SAXS), BL43IR (DAC; IR)

海外施設の利用状況

高圧関連のメーリングリストを利用し、アンケート調査(2014 年 6 月 24 日配信)を実施した。回答のあった 143 名中 57 名(40%)が海外の放射光施設の利用経験がある(今後利用予定がある)と回答した。以下、回答結果のまとめを示す。

利用した海外施設

海外の放射光施設	利用者数 (複数回答)
APS (USA)	27
ESRF (France)	20
NSLS (USA)	10
Diamond (UK)	3
PETRA III (Germany)	3
SOLEIL (France)	3
SRS (UK)	2
LURE (France)	1
SLS (Switzerland)	1
SSRL (USA)	1

海外施設を利用した理由

理由	人数
(a)	16
(b)	2
(c)	39

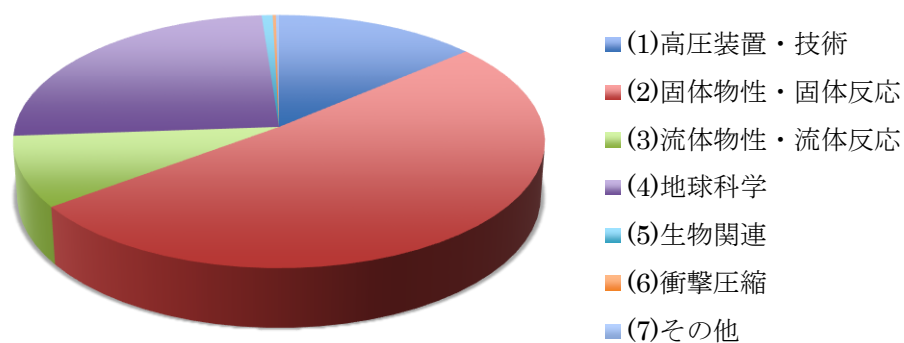
- (a) 日本の施設では実施不可能な実験であるため
- (b) 日本の施設でのビームタイム確保が難しいため
- (c) その他(共同研究のため、在外研究員や PD として滞在中に、など)

PF, SPring-8 の高圧関連課題

2008 年度以降に, PF と SPring-8 で実施された高圧に関連した 938 課題 (PF:2008 前期~2013 後期の 197 課題, SPring-8:2008A 期~2013A 期の 741 課題)について, (a) 研究分野, (b) 測定手法, (c) ~ (e) 利用グループの地域について調査した。分析結果を以下に示す。なお, PF の課題有効期間は二年, SPring-8 の課題有効期間は半年である。

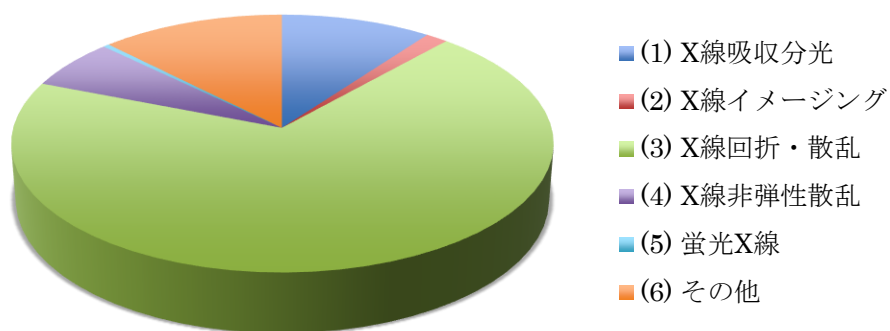
(a) 研究分野

研究分野	課題数	割合 (%)
(1) 高圧装置・技術	129	13.8
(2) 固体物性・固体反応	479	51.1
(3) 流体物性・流体反応	85	9.1
(4) 地球科学	234	24.9
(5) 生物関連	7	0.7
(6) 衝撃圧縮	2	0.2
(7) その他	2	0.2
計	938	100.0



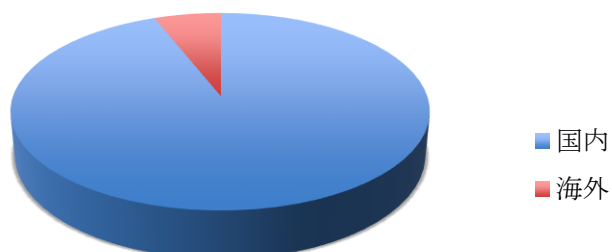
(b) 測定手法

測定手法	課題数	割合 (%)
(1) X線吸収分光	95	10.1
(2) X線イメージング	14	1.5
(3) X線回折・散乱	650	69.3
(4) X線非弾性散乱	59	6.3
(5) 蛍光X線	4	0.4
(6) その他	116	12.4
計	938	100.0



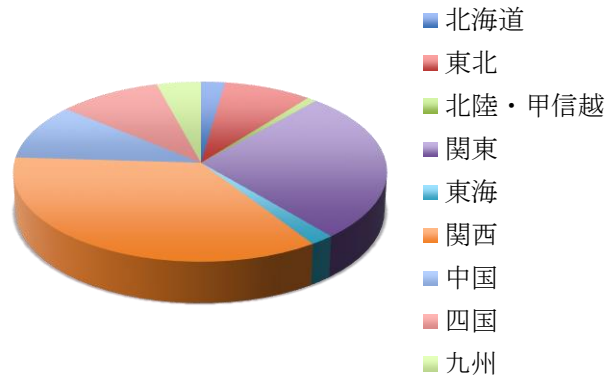
(c) 利用グループの日本と海外の割合

	課題数	割合 (%)
国内	882	94.0
海外	56	6.0
計	938	100.0



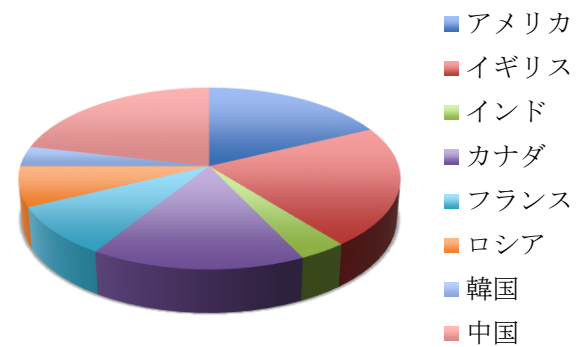
(d) 国内の利用グループの地区ごとの割合

地区	課題数	割合 (%)
北海道	20	2.3
東北	74	8.4
北陸・甲信越	8	0.9
関東	240	27.2
東海	17	1.9
関西	311	35.3
中国	89	10.1
四国	86	9.8
九州	37	4.2
計	882	100.0



(e) 海外の利用グループの国ごとの割合

国	課題数	割合 (%)
アメリカ	10	17.9
イギリス	12	21.4
インド	2	3.6
カナダ	9	16.1
フランス	5	8.9
ロシア	4	7.1
韓国	2	3.6
中国	12	21.4
計	56	100.0



高圧ビームラインポテンシャルユーザーリスト (PD 以上, 五十音順)

赤浜裕一	兵庫県立大学大学院物質理学研究科物質科学専攻
朝原友紀	東北大学大学院理学研究科地学専攻
東正樹	東京工業大学応用セラミックス研究所
阿藤敏行	東京工業大学応用セラミックス研究所
阿部洋	防衛大学校機能材料工学科
有馬寛	東北大学金属材料研究所
安東淳一	広島大学大学院理学研究科地球惑星システム学専攻
飯島祐樹	東北大学金属材料研究所
飯塚理子	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
伊賀文俊	茨城大学大学院理工学研究科理学専攻
池田修悟	兵庫県立大学大学院物質理学研究科物質科学専攻
石松直樹	広島大学大学院理学研究科物理科学専攻
稲熊宜之	学習院大学理学部化学科
乾雅祝	広島大学大学院総合科学研究科総合科学専攻
井上徹	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
今井基晴	物質・材料研究機構
入舩徹男	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
浦川啓	岡山大学大学院自然科学研究科地球科学専攻
榮永茉莉	大阪大学大学院基礎工学研究科附属極限科学センター
大石泰生	JASRI/高輝度光科学研究センター
大内智博	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
太田健二	東京工業大学大学院理工学研究科地球惑星科学専攻
大高理	大阪大学大学院理学研究科宇宙地球科学専攻
大谷栄治	東北大学大学院理学研究科地学専攻
大藤弘明	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
大村彩子	新潟大学研究推進機構超域学術院
大和田謙二	日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究センター
岡研吾	中央大学理工学部応用化学科
岡田卓	東京大学物性研究所
岡田宏成	東北学院大学工学部機械知能工学科
岡村英一	神戸大学大学院理学研究科物理学専攻
奥地拓生	岡山大学地球物質科学研究センター
尾崎典雅	大阪大学大学院工学研究科電気電子情報工学専攻
小澤春香	海洋研究開発機構
小野重明	海洋研究開発機構
加賀山朋子	大阪大学大学院基礎工学研究科附属極限科学センター
鍵裕之	東京大学大学院理学系研究科附属地殻化学実験施設
片山芳則	日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究センター
加藤工	九州大学大学院理学研究院地球惑星科学部門

鎌田誠司	東北大学大学院理学研究科地学専攻
神原陽一	慶應義塾大学理工学部物理情報工学科
川崎晋司	名古屋工業大学大学院工学研究科物質工学専攻
川添貴章	Bayerisches Geoinstitut, University of Bayreuth
川村幸裕	室蘭工業大学大学院工学研究科情報電子工学系専攻
川本竜彦	京都大学大学院理学研究科附属地球熱学研究施設
亀卦川卓美	高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所
木村正樹	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
興野純	筑波大学生命環境系地球進化科学専攻
國本健広	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
久保友明	九州大学大学院理学研究院地球惑星科学部門
久米徹二	岐阜大学大学院工学研究科機能材料工学専攻
栗林貴弘	東北大学大学院理学研究科地学専攻
桑山靖弘	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
河野義生	Geophysical Laboratory, Carnegie Institution of Washington
後藤弘匡	東京大学物性研究所
後藤優樹	徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部ライフシステム部門
小林寿夫	兵庫県立大学大学院物質理学研究科物質科学専攻
小松一生	東京大学大学院理学系研究科附属地殻化学実験施設
駒林鉄也	School of Geosciences, The University of Edinburgh
五味斎	Geophysical Laboratory, Carnegie Institution of Washington
米谷紀嗣	大阪市立大学大学院工学研究科化学生物系専攻
近藤忠	大阪大学大学院理学研究科宇宙地球科学専攻
齊藤高志	京都大学化学研究所
齋藤寛之	日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究センター
境毅	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
坂下真実	産業技術総合研究所
坂田雅文	大阪大学大学院基礎工学研究科附属極限科学センター
坂巻竜也	東北大学大学院理学研究科地学専攻
佐々木重雄	岐阜大学大学院工学研究科機能材料工学専攻
佐藤友子	広島大学大学院理学研究科地球惑星システム学専攻
佐野亜沙美	日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究センター
佐野智一	大阪大学大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻
篠崎彩子	東京大学大学院理学系研究科附属地殻化学実験施設
柴崎裕樹	東北大学学際科学フロンティア研究所
島川祐一	京都大学化学研究所
清水克哉	大阪大学大学院基礎工学研究科附属極限科学センター
白石令	東北大学大学院理学研究科地学専攻
新名良介	Bayerisches Geoinstitut, University of Bayreuth
鈴木昭夫	東北大学大学院理学研究科地学専攻
関根ちひろ	室蘭工業大学大学院工学研究科情報電子工学系専攻

瀬戸雄介	神戸大学大学院理学研究科地球惑星科学専攻
高木成幸	東北大学金属材料研究所
高橋博樹	日本大学文理学部物理学科
財部健一	岡山理科大学理学部基礎理学科
竹下直	産業技術総合研究所
武田圭生	室蘭工業大学大学院工学研究科情報電子工学系専攻
竹村謙一	高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所
舘野繁彦	東京工業大学地球生命研究所
谷口尚	物質・材料研究機構
玉井伸岳	徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部ライフシステム部門
丹下慶範	JASRI/高輝度光科学研究センター
千葉文野	慶應義塾大学理工学部物理学科
辻野典秀	岡山大学地球物質科学研究センター
辻本吉廣	物質・材料研究機構
寺崎英紀	大阪大学大学院理学研究科宇宙地球科学専攻
富田崇弘	東京大学物性研究所
永井隆哉	北海道大学大学院理学研究院自然史科学部門
中島陽一	理化学研究所
中野智志	物質・材料研究機構
中本有紀	大阪大学大学院基礎工学研究科附属極限科学センター
中山敦子	新潟大学研究推進機構超域学術院
西真之	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
西田圭佑	東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻
西原遊	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
西山宣正	Deutsches Elektronen-Synchrotron
丹羽健	名古屋大学大学院工学研究科結晶材料工学専攻
野口直樹	広島大学大学院工学研究科応用化学専攻
野村龍一	東京工業大学地球生命研究所
長谷川正	名古屋大学大学院工学研究科結晶材料工学専攻
浜根大輔	東京大学物性研究所
浜谷望	お茶の水女子大学大学院人間文化創成科学研究科自然・応用科学系
肥後祐司	JASRI/高輝度光科学研究センター
平井寿子	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
平尾直久	JASRI/高輝度光科学研究センター
廣瀬敬	東京工業大学地球生命研究所
福井宏之	兵庫県立大学大学院物質理学研究科物質科学専攻
福岡宏	広島大学大学院工学研究院物質化学工学部門
藤久裕司	産業技術総合研究所
舟越賢一	CROSS 東海/総合科学研究機構東海事業センター
船守展正	東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻
町田晃彦	日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究センター

松石清人	筑波大学数理物質系物質工学域
松尾元彰	東北大学金属材料研究所
松岡岳洋	岐阜大学大学院工学研究科機能材料工学専攻
松木均	徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部ライフシステム部門
松下正史	愛媛大学大学院理工学研究科生産環境工学専攻
松林和幸	東京大学物性研究所
美藤正樹	九州工業大学大学院工学研究院基礎科学研究系
三宅厚志	東京大学物性研究所
宮原正明	広島大学大学院理学研究科地球惑星システム学専攻
村上元彦	東北大学大学院理学研究科地学専攻
森嘉久	岡山理科大学理学部基礎理学科
山崎大輔	岡山大学地球物質科学研究センター
山田明寛	滋賀県立大学工学部ガラス工学研究センター
山本隆文	京都大学大学院工学研究科物質エネルギー化学専攻
山脇浩	産業技術総合研究所
余珊	物質・材料研究機構
遊佐斉	物質・材料研究機構
吉田亨次	福岡大学理学部化学科
芳野極	岡山大学地球物質科学研究センター
吉村幸浩	防衛大学校応用化学科
米田明	岡山大学地球物質科学研究センター
綿貫徹	日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究センター

(以上 143 名)

※ 本リストは、高圧関連のメーリングリストを利用し、アンケート調査を行った結果に基づき作成された。

WG メンバーリスト（五十音順）

赤浜裕一	兵庫県立大学大学院物質理学研究科物質科学専攻
朝原友紀	東北大学大学院理学研究科地学専攻
東正樹	東京工業大学応用セラミックス研究所
有馬寛	東北大学金属材料研究所
安東淳一	広島大学大学院理学研究科地球惑星システム学専攻
飯高敏晃	理化学研究所
飯塚理子	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
池田修悟	兵庫県立大学大学院物質理学研究科物質科学専攻
石松直樹	広島大学大学院理学研究科物理科学専攻
今井基晴	物質・材料研究機構
入舩徹男	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
浦川啓	岡山大学大学院自然科学研究科地球科学専攻
大石泰生	JASRI/高輝度光科学研究センター
大高理	大阪大学大学院理学研究科宇宙地球科学専攻
大谷栄治	東北大学大学院理学研究科地学専攻
大藤弘明	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
大村彩子	新潟大学研究推進機構超域学術院
大和田謙二	日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究センター
岡田卓	東京大学物性研究所
岡村英一	神戸大学大学院理学研究科物理学専攻
奥地拓生	岡山大学地球物質科学研究センター
鍵裕之	東京大学大学院理学系研究科附属地殻化学実験施設
片山芳則	日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究センター
鎌田誠司	東北大学大学院理学研究科地学専攻
川村幸裕	室蘭工業大学大学院工学研究科情報電子工学系専攻
亀卦川卓美	高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所
木村佳文	同志社大学理工学部機能分子・生命化学科
草場啓治	名古屋大学大学院工学研究科結晶材料工学専攻
國本健広	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
久保友明	九州大学大学院理学研究院地球惑星科学部門
桑山靖弘	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
小林寿夫	兵庫県立大学大学院物質理学研究科物質科学専攻
小松一生	東京大学大学院理学系研究科附属地殻化学実験施設
近藤忠	大阪大学大学院理学研究科宇宙地球科学専攻
齋藤寛之	日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究センター
境毅	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
坂巻竜也	東北大学大学院理学研究科地学専攻
佐々木重雄	岐阜大学大学院工学研究科機能材料工学専攻
佐藤友子	広島大学大学院理学研究科地球惑星システム学専攻

佐野亜沙美	日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究センター
佐野智一	大阪大学大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻
柴崎裕樹	東北大学学際科学フロンティア研究所
清水克哉	大阪大学大学院基礎工学研究科附属極限科学センター
下村晋	京都産業大学理学部物理科学科
鈴木昭夫	東北大学大学院理学研究科地学専攻
関根ちひろ	室蘭工業大学大学院工学研究科情報電子工学系専攻
瀬戸雄介	神戸大学大学院理学研究科地球惑星科学専攻
寒川匡哉	岡山理科大学理学部基礎理学科
高橋豪	東北大学大学院理学研究科地学専攻
高橋博樹	日本大学文理学部物理学科
財部健一	岡山理科大学理学部基礎理学科
武田圭生	室蘭工業大学大学院工学研究科情報電子工学系専攻
竹村謙一	高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所
谷口尚	物質・材料研究機構
丹下慶範	JASRI/高輝度光科学研究センター
寺崎英紀	大阪大学大学院理学研究科宇宙地球科学専攻
富田崇弘	東京大学物性研究所
名嘉節	物質・材料研究機構
永井隆哉	北海道大学大学院理学研究院自然史科学部門
中野智志	物質・材料研究機構
中本有紀	大阪大学大学院基礎工学研究科附属極限科学センター
中山敦子	新潟大学研究推進機構超域学術院
西田圭佑	東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻
西原遊	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
野口直樹	広島大学大学院工学研究科応用化学専攻
浜根大輔	東京大学物性研究所
浜谷望	お茶の水女子大学大学院人間文化創成科学研究科自然・応用科学系
肥後祐司	JASRI/高輝度光科学研究センター
平井寿子	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
平尾直久	JASRI/高輝度光科学研究センター
廣瀬敬	東京工業大学地球生命研究所
福井宏之	兵庫県立大学大学院物質理学研究科物質科学専攻
福岡宏	広島大学大学院工学研究院物質化学工学部門
藤野清志	愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター
舟越賢一	CROSS 東海/総合科学研究機構東海事業センター
船守展正	東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻
町田晃彦	日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究センター
松岡岳洋	岐阜大学大学院工学研究科機能材料工学専攻
美藤正樹	九州工業大学大学院工学研究院基礎科学研究系
村上元彦	東北大学大学院理学研究科地学専攻

村上洋一	高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所
森嘉久	岡山理科大学理学部基礎理学科
八木健彦	東京大学大学院理学系研究科附属地殻化学実験施設
山崎大輔	岡山大学地球物質科学研究センター
山田明寛	滋賀県立大学工学部ガラス工学研究センター
山脇浩	産業技術総合研究所
遊佐斉	物質・材料研究機構
芳野極	岡山大学地球物質科学研究センター
若林大佑	東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻
綿貫徹	日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究センター

(以上 90 名)

WG 活動実績

第1回研究会

開催日：2012年6月9~10日

開催地：東京大学理学部1号館

世話人：船守展正(東京大学)

参加人数：29名

(1日目)

12:55-13:00 開会挨拶 船守展正

13:00-14:00 KEK-ERL 計画 村上洋一(KEK)

14:00-15:00 討論1：研究作業グループ活動計画 (司会：福井宏之)

座長 船守展正

15:15-16:45 招待講演 篠原佑也(東京大学大学院新領域研究科)

「コヒーレントX線を用いた時空間階層構造の解析」

17:00-18:30 討論2：研究作業グループ活動計画 (司会：船守展正)

懇親会 (司会：佐藤友子)

(2日目)

座長 西原遊

09:00-09:30 研究発表1：丹下慶範(愛媛大学)

「X線自由電子レーザー施設SACLAの紹介とある利用実験の現状」

09:30-10:00 研究発表2：久保友明(九州大学)

「高圧下における相転移と塑性流動の研究—スポットからスペックル?—」

座長 関根ちひろ

10:15-10:45 研究発表3：富田崇弘(日本大学)

「低温高圧下の鉄系超伝導体の結晶構造」

10:45-11:15 研究発表4：石松直樹(広島大学)

「SPing-8での高圧下XAS/XMCDの現状と展望」

11:30-13:00 討論3：研究作業グループ活動計画 (司会：船守展正)

13:00-13:05 閉会挨拶 竹村謙一

第2回研究会

開催日：2013年3月30~31日

開催地：広島大学学士会館

世話人：石松直樹, 佐藤友子(広島大学)

参加人数：31名

(1日目)

座長 佐藤友子

10:30-10:35 開会挨拶 石松直樹

10:35-11:50 招待講演 佐々木茂美(広島大学 HiSOR)

「準周期アンジュレータ(QPU)の原理と実際ー如何にして QPU は世に出たかー」

11:50-12:20 報告 1: 佐野智一(大阪大学)

「固体フェムト秒レーザー駆動衝撃圧縮およびそのダイナミクス解明の試み:SACLA におけるフェムト秒レーザーポンプ・XFEL プローブ XRD 計測実験の紹介」

座長 石松直樹

13:30-14:45 招待講演 野澤俊介(KEK-PF)

「大強度パルス放射光リング PF-AR における時間分解 X 線測定ーパルス硬 X 線を用いた構造・電子状態における超高速変化の追跡ー」

14:45-15:15 報告 2: 佐藤友子(広島大学)

「岩石の位相イメージング」

15:15-15:45 東北放射光関連の報告 船守展正(東京大学)・鈴木昭夫(東北大学)・石松直樹(広島大学)

座長 船守展正

16:00-16:30 BL 検討中間報告 1: DAC ビームライン 石松直樹(広島大学)

16:30-17:00 BL 検討中間報告 2: LVP ビームライン 鈴木昭夫(東北大学)

17:00-18:00 BL 仕様についての討論 (司会:船守展正)

懇親会 (司会:石松直樹)

(2日目)

座長 船守展正

09:30-10:00 報告 3: 大村彩子(新潟大学)

「高圧下における Bi 系合金の結晶構造解析と新光源への要望」

10:00-10:30 報告 4: 関根ちひろ(室蘭工業大学)

「材料開発分野における放射光利用実験の紹介と新光源に対する要望」

10:30-11:55 BL 仕様, その他についての総合討論 (司会:船守展正)

11:55-12:00 閉会挨拶 佐藤友子

第3回研究会

開催日: 2014 年 3 月 24~25 日

開催地: 仙台市戦災復興記念館

世話人: 鈴木昭夫(東北大学)

参加人数: 42 名

(1日目)

12:40-12:45 開会挨拶 鈴木昭夫

12:45-13:15 報告 1 挿入光源: 船守展正(東京大学)

座長 船守展正

13:30-14:45 招待講演 山本樹(KEK-PF)

「挿入光源の基礎と応用」

15:00-15:30 報告 2 世界の放射光施設: 西田圭佑(東京大学)

15:30-16:00 報告 3 光学系: 石松直樹(広島大学)・佐藤友子(広島大学)

16:00-17:00 挿入光源・光学系についての討論 (司会:肥後祐司)

座長 鈴木昭夫

17:15-18:30 招待講演 中村美千彦(東北大学大学院理学研究科)

「X線マイクロモグラフィーを利用した火山噴火機構の研究」

懇親会 (司会:鎌田誠司)

(2日目)

09:00-09:30 報告 4 高圧装置: 鈴木昭夫(東北大学)・松岡岳洋(岐阜大学)

09:30-10:00 報告 5 検出器: 瀬戸雄介(神戸大学)・大村彩子(新潟大学)

10:00-11:00 高圧装置・検出器についての討論 (司会:齋藤寛之)

11:15-12:30 BL仕様, その他についての総合討論 (司会:船守展正)

12:30-12:35 閉会挨拶 鈴木昭夫

臨時研究会

開催日: 2014年4月25~26日

開催地: 東京大学理学部1号館

参加人数: 20名

目的: 高圧ビームライン提案書の準備(執筆分担者・協力者・有志による意見交換)

東北放射光施設構想への要望書

提出日: 2013年2月22日

世話人: 大谷栄治(東北大学, 代表), 鈴木昭夫(東北大学), 石松直樹(広島大学),

船守展正(東京大学)

WGメンバーを中心とする103名の賛同を得て東北放射光施設構想に要望書を提出した。

第53回高圧討論会シンポジウム

「コヒーレント放射光を利用した新しい高圧力科学」

開催日: 2012年11月7~8日

開催地: 大阪大学会館

世話人: 石松直樹(広島大学), 近藤忠(大阪大学), 船守展正(東京大学)

09:00-10:40 座長 近藤忠

1B01 コヒーレント放射光を利用した新しい高圧力科学:期待と展望

○船守展正・石松直樹・近藤忠(東大理・広大理・阪大理)

1B02 ERL 計画の現状

(Invited) ○足立伸一(KEK PF)

1B03 放射光X線のナノ集光

(Invited) ○山内和人(阪大工)

1B04 コヒーレント放射光を利用した回折イメージング

(Invited) ○高橋幸生(阪大院工)

10:50-12:30 座長 福井宏之

1B05 回折格子を利用した高感度 X 線顕微鏡の現状と将来展望

(Invited) ○矢代航・百生敦(東北大多元研)

1B06 リラクスー強誘電体におけるコヒーレント X 線回折実験の現状

(Invited) ○大和田謙二(原子力機構)

1B07 次世代放射光源を用いた高圧下でのカイネティクス研究の模索

○久保友明(九州大理)

1B08 高圧下における非晶質 SiO_2 の小角 X 線散乱測定

○佐藤友子・船守展正・若林大佑・高田啓人(広大理・東大理)

09:00-10:40 座長 佐藤友子

2B01 X線自由電子レーザーSACLA

(Invited) ○石川哲也(理研播磨)

2B02 レーザーショック超高圧力とコヒーレント光源の融合

(Invited) ○尾崎典雅・佐野智一・関根利守・真下茂・佐野孝好・奥地拓生・犬伏雄一・木村友亮・宮西宏併・浦西宏幸・浅海雄人・Michel KOENIG・Gianluca GREGORI・Alessandra BENUZZI-MOUNAIX・坂和洋一・兒玉了祐・矢橋牧名・丹下慶範・土屋卓久・中塚和樹・近藤良彦・Tsung-Han YANG・喜田美佳(阪大院工・広大院理・熊大衝撃セ・阪大レーザー・岡大地球・理研XFEL・エコールポリテクニーク・オックスフォード大)

2B03 レーザー誘起超高圧状態における地球惑星内部物質のXFELその場観察実験

○丹下慶範・桑山靖弘・瀬戸雄介・佐野智一・尾崎典雅・松田朋己・浦西宏幸・中塚和樹・柏原亮太・犬伏雄一・佐藤堯洋・富樫格・登野健介・矢橋牧名(愛媛大地球深部研・神戸大院理・阪大院工・理研・JASRI)

2B04 高圧下XAS/XMCD測定の現状と新光源利用の展望

○石松直樹・河村直己・水牧仁一朗(広大院理・JASRI/Spring-8)

10:50-12:30 座長 石松直樹

2B05 X 線ラマン散乱:現状と展望

(Invited) ○平岡望(NSRRC, Taiwan)

2B06 放射光を用いた高圧力下核共鳴散乱・メスbauer分光

(Invited) ○小林寿夫(兵庫県大院物質理学)

2B07 MgSiO_3 ガラスの酸素 K 端 X 線ラマンスペクトルに対する EXAFS 的解析

○福井宏之・平岡望・神崎正美(兵庫県大院物質理学・NSRRC・岡山大地球研)

2B08 高温高压下における放射光を用いた複合測定

○近藤忠・寺崎英紀・亀卦川卓美・張小威・中尾裕則（阪大理・物構研）

※招待講演 30 分，一般講演 20 分

第54回高压討論会シンポジウム

「コヒーレント放射光を利用した新しい高压力科学Ⅱ：高輝度 3GeV 光源計画と高压力科学」

開催日：2013 年 11 月 14 日

開催地：朱鷺メッセ 新潟コンベンションセンター

世話人：大村彩子(新潟大学)，船守展正(東京大学)

09:00-10:40 座長 大村彩子

1D01 コヒーレント放射光を利用した新しい高压力科学Ⅱ：高輝度3GeV光源計画と高压力科学

○大村彩子・船守展正（新潟大超域・東大理）

1D02 マスタープラン：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

(Invited) ○水木純一郎（関西学院大理工学研究科）

1D03 3GeV高輝度東北放射光計画の概要

(Invited) ○濱広幸（東北大学電子光理学研究センター）

1D04 高輝度3GeV光源計画への高压科学コミュニティからの要望

○鈴木昭夫・船守展正・石松直樹・大谷栄治（東北大院理・東京大院理・広島大院理・東北大院理）

1D05 3GeV関係討論

10:50-12:30 座長 船守展正

1D06 渦巻くコヒーレントX線

○飯高敏晃（理研計算宇宙）

1D07 高压科学におけるコヒーレントX線回折イメージングの可能性

○福井宏之・浜根大輔・佐藤友子・船守展正（兵庫県立大院物質理学・東大物性研・広大院理・東大院理）

1D08 XFEL回折によるフェムト秒レーザー駆動衝撃圧縮下の固体の格子ダイナミクス計測

○佐野智一・松田朋己・廣瀬明夫・尾崎典雅・浦西宏幸・松岡健之・兒玉了祐・荒河一渡・佐野雄二・関根利守・佐藤友子・丹下慶範・富樫格・登野健介・犬伏雄一・佐藤堯洋・矢橋牧名・坂田修身（阪大院工・阪大光セ・島根大総理工・東芝・愛媛大地深セ・広大院理・JASRI・理研播磨・物材機構）

1D09 サブミクロンX線ビーム形成と超高压X線回折

○大石泰生・平尾直久・森嘉久・松岡岳洋・清水克哉・小澤春香・廣瀬敬（JASRI/SPring-8・岡山理大・岐阜大・阪大極限・東工大）

1D10 コヒーレントX線をあらためて考えてみる

○浜谷望（お茶大院理学）

※招待講演 30 分，一般講演 20 分

学会誌特集記事

特集 ―コヒーレント放射光を利用した新しい高圧研究に向けて―

高圧力の科学と技術 Vol. 23, No. 3 (2013)

世話人： 町田晃彦 (JAEA, 特集記事担当編集委員), 石松直樹 (広島大学), 近藤忠 (大阪大学), 船守展正 (東京大学)

特集にあたって

船守展正・石松直樹・近藤忠・町田晃彦

X 線自由電子レーザーSACLA

石川哲也

エネルギー回収リニアック(ERL)の光源性能とサイエンス

足立伸一

X 線自由電子レーザー集光技術の現状と将来

山内和人

回折格子を利用した高感度 X 線結像顕微鏡

矢代航・百生敦

コヒーレント回折イメージング

高橋幸生

リクサー誘電体におけるコヒーレント X 線散乱の現状

大和田謙二

X 線ラマン散乱:現状と展望

平岡望

放射光を用いた高圧力下核共鳴散乱・メスbauer分光法―現状と今後の展望―

小林寿夫

本提案書 執筆分担者・協力者一覧（五十音順）

編集

大高理(大阪大学) 船守展正(東京大学)

編集協力: 若林大佑(東京大学)

二章: サイエンスの展開

物質科学 片山芳則(JAEA) 清水克哉(大阪大学)

地球科学 鍵裕之(東京大学) 廣瀬敬(東京工業大学)

材料科学 東正樹(東京工業大学) 谷口尚(NIMS)

三章: ビームライン技術の動向

挿入光源 久保友明(九州大学) 船守展正(東京大学)

光学系 石松直樹(広島大学) 佐藤友子(広島大学)

高圧装置 鈴木昭夫(東北大学) 松岡岳洋(岐阜大学)

検出器 大村彩子(新潟大学) 瀬戸雄介(神戸大学)

三章協力: 浦川啓(岡山大学), 近藤忠(大阪大学), 齋藤寛之(JAEA),

肥後祐司(JASRI), 平尾直久(JASRI), 福井宏之(兵庫県立大学), 遊佐斉(NIMS),

綿貫徹(JAEA), PF・SPring-8 高圧ビームラインスタッフ

参考資料

世界の放射光施設

朝原友紀(東北大学) 西田圭佑(東京大学)

PF, SPring-8 の高圧関連課題

関根ちひろ(室蘭工業大学) 中野智志(NIMS)

参考資料協力: 大高理(大阪大学), 齋藤寛之(JAEA), 武田圭生(室蘭工業大学),

川村幸裕(室蘭工業大学), PF・SPring-8 高圧ビームラインスタッフ

問い合わせ先

113-0033 東京都文京区本郷 7-3-1

東京大学大学院理学系研究科 船守展正

E-mail: funamori@eps.s.u-tokyo.ac.jp