

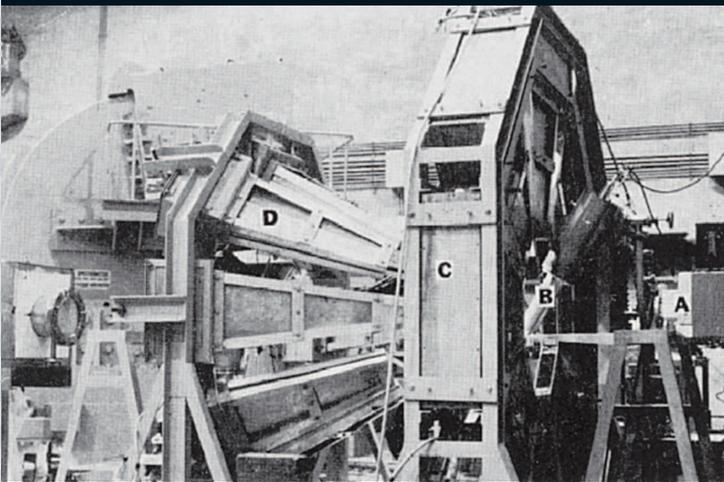
- 系外惑星の多様性と遍在性
- 小特集「X線・粒子線構造解析」

NO.

9

2015 | VOL. 70

B U T S U R I
日本物理学会誌



優雅なる夢の彼方に

森川 雅博 (会誌編集委員長)

湯島天神の梅の実がほどよく熟してきた。この隣にあるビルの4階で朝10時、月例の物理学会誌編集会議が始まる。今年2046年は学会設立100周年なのでその記念企画が話し合われている。70周年の時に特集したらしい“物理未解決の謎70”が30年を経て結局どうなったのか整理してみたいものだ。「記念企画の表紙とグラビア、何かいいアイデアはありませんか？」委員長が皆に意見を求める。——物理と同様、会誌も昔と違ってずいぶん進化した。最新号のグラビアはNGC4258 蛸足銀河、 10^{8-18} Hzまでのフルカラー、水メーザー観測が進んでその超巨大ブラックホールの成因が最近わかったらしい。会誌は、ファッション雑誌にも引けを取らない斬新なデザインで、書店にも並んでいる。そう、物理は一般社会に浸透して、多忙な看護師さんや国会の議員さんでさえ会誌を手にとって読んでくれている。これは、社会の人々と価値を共有できるところまで深い物理を求めて編集委員会で長年議論を重ねてきた成果だ。

「それから、「最新研究のエッセンス」の欄なんですけど……」——最先端の技術開発を行っている企業研究所の図書室では、プロの技術者達が会誌を毎号チェックしている。また視野を広げることで解けない問題の解決を図りたい研究者は会誌を癒しとして楽しんでいる。そして優秀な学部3年生はセンスある物理の問題を求めて会誌を研究案内書として熟読している。さらには、高校の先生や意欲的な高校生が、図書室で広く会誌を読んでくれている。これもまた、際限なく細分化していく物理分野を階層的につなぎ、基礎物理の再構成を求めて、編集委員会で長年議論を重ねてきた成果なのだ。

「えっと、次、「イル・カプリッチョ」の欄なんですけど……」——読者層が広がっただけではなく物理ファンの層が広

がったのも良かった。京都洛北の鞍馬温泉では、旅行者たちが「単にH₂Oなんですけどねー。」「なんで氷は浮くんではないですか？」などと、水の不思議を話し合っている。裏の露天風呂では別のグループが「生物に量子論は関係ないではないですか?」、「いや、宇宙構造だって量子ゆらぎが作ったんだから生物だってそうに決まってる」、なんて真剣に話し合っている。書店では『アインシュタインの一般相対論は間違っていた』とか『アインシュタインは間違っていたは間違っていた』とかいう本がよく売れているようだ。宇宙は訳の分からないものからできていると誤認させている時空とは何か、という素朴な問題をみんながそれぞれ愉しげに議論し合っている。

「えっと次は、物理教育とのコラボ企画ですが……」——会誌は教育面においても貢献した。昔よくあった、正しい知識の集大成としての理科、とか、ばねと振り子の単振動な物理、という色けのない、“正しく”説明するだけの物理を強調するのはやめた。子供たちが自分達の好きな実験を自分流に試行していく、という探求型の教育を拡大させたのである。同時に物理業界全体がおおらかになって、人々が議論しているのを温かく見守ったのだ。例えば太陽も地球も磁石になっている、という話を聞いた子供たちが「地球は磁石の力で公転しているんだ」、とかいう珍妙な仮説を出してきても、「じゃ、検証してみな」、という自由で寛容な態度で優しく接するのである。すると、子供たちは自分がやりたいことが何なのかをよく考え、発案することを躊躇しなくなった。彼らは真実と間違いの間に多くの段階があることを理解し、自分の推論を検証してどんどん修正・発展させていく楽しみを知ったのである。

編集委員会で先ほどから委員が活発

な記事提案の議論が続いていると、ジリジリジリと電話が鳴る。なんか変な音だけど編集委員会へのお弁当配達連絡電話である。物理の広い分野の専門家がたくさん集まっているので、昼食をとりながら自由な議論の時間になったりする。

「ファッション誌 Topcharm から「今月のガリレオ」で取材申し込みが来てまして……」——物理学会は社会にも大きく貢献している。昔は、背広を着てるのにバックパック、といういでたちの物理屋がたくさんいて、学会会場周辺の街で異様な雰囲気をもしていた。また“左が赤で右が緑”の靴下の先進性を主張する会誌編集委員長がいたりして、「物理やってる人は変だ」と社会から後ろ指を指されていた。しかし今や物理学会員はファッションリーダー的存在で、そのような万能バックパックやクリスマス靴下はビジネスの世界に広く浸透して、街で普通に目にするようになった。最大効率と自主的対称性の破れを信条とする物理屋のセンスの良さが社会に認められ尊敬を集めている。昔は、物理屋と話すとき「頭が凝る」と言われたものだ。またビッグバン・セオリー(米CBS-TV)では、物理学者が変なのは日本に限らなかった。

とある委員の携帯電話が鳴る：ジリジリジリ。センスのない着信音だと内心笑っていると、ジリジリジリ——ほかの委員のスマホも鳴りだす。ジリジリジリ、ジリジリジリ——目が覚めた。大きなベルのついた目覚まし時計が鳴っていた。今日は2015年5月23日(土)、本当の編集会議があったことを思い出し駅へ急ぐ一夢の彼方に優雅な物理と物理学会が広がっていた幸せを感じながら、湯島天神前を駆け抜けると見上げた青空に梅の実が色づき始めていた。

(2015年6月8日原稿受付)

巻頭言 Preface

優雅なる夢の彼方に

The Cherry after Three Decades

森川雅博 …… 669

Masahiro Morikawa

現代物理のキーワード Trends

系外惑星の多様性と遍在性

Diversity and Ubiquity of Exoplanets

井田 茂 …… 672

Shigeru Ida

小特集「X線・粒子線構造解析」 One Hundred Years of X-ray and Particle Diffraction

はじめに

Preface

674

寺田寅彦の「X線と結晶」からX線自由電子レーザーへ

An Alley from 'X-rays and Crystals' by Torahiko Terada to an X-ray Free-Electron Laser, 'SACLA'

石川哲也 …… 675

Tetsuya Ishikawa

我が国における反射高速電子回折の発展と全反射陽電子回折への展開

Development of the Reflection High-Energy Electron Diffraction in Japan and Evolution to the Total Reflection High-Energy Positron Diffraction

一宮彪彦 …… 683

Ayahiko Ichimiya

JRR2からJ-PARCへの50年の歩み(日本の中性子散乱研究の歴史)

Road to J-PARC from JRR2 (50 years' history for neutron scattering research activity in Japan)

遠藤康夫 …… 694

Yasuo Endoh

我が国における生体分子・粒子の構造解析—過去・現在そして未来の展望

X-ray Structure Analyses of Biological Molecules and Particles in Japan—A Brief History and Future Prospect—

中迫雅由, 山本雅貴 …… 702

Masayoshi Nakasako and Masaki Yamamoto

最近の研究から Researches

トポロジカル絶縁体薄膜の構造物性

Structural and Physical Properties of Topological Insulator Films

白澤徹郎, 高橋敏男 …… 713

Tetsuroh Shirasawa and Toshio Takahashi



話題—身近な現象の物理—(マガンの群れの集団動力学)

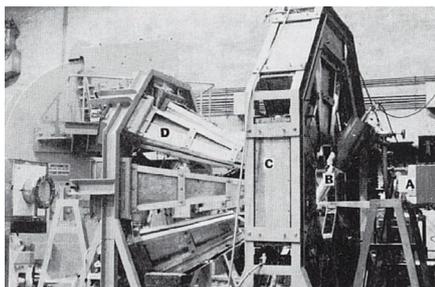
写真は、餌場から一斉に飛び立ち、編隊を形成しつつあるマガン。こうした飛び立ちの直前には、首を立てて、仲間同士でテイクオフのタイミング調整を図る様子 (preflight signaling) が観察される。空中では、良く知られたV字型の隊形など、大小の群れを形成しながら移動する。マガンの群れは物理の視点からみて、どのように捉えられるであろうか。詳細は本号に掲載されている早川美徳氏の「話題」欄の記事を参照のこと。



小特集「X線・粒子線構造解析」(寺田寅彦の「X線と結晶」からX線自由電子レーザーへ)

理化学研究所資料室に保管されていた西川正治によるX線回折写真乾板。一つ一つがメモの書かれたパラフィン紙で包まれ、木箱に入った状態で保管されていた。手前に取り出した4枚は、左から1913年8月13日撮影の絹糸からのX線散乱、8月12日撮影の竹からのX線散乱、8月6日撮影の麻からのX線散乱、8月13日撮影の鯨髭からのX線散乱を記録したものであり、西川がこれらの繊維状物質に原子の周期的構造を予想していたことを推測させる。またこれらが、ラウエの結晶によるX線回折発見(1912年)の翌年には既に撮影されていたことは興味深い。

話題—身近な現象の物理—	マガンの群れの集団動力学	早川美徳 ……	718
JPSJの最近の注目論文から	5月の編集委員会より	上田和夫 ……	722
新著紹介			724
掲示板	■人事公募 ■学術的会合 ■その他		726
行事予定			731
会告	■2016年の論文誌等購読の変更手続きのお願い ■2016年会費について手続きのお願い：正会員のうち大学院学生の会費減額および学生会員(学部学生)の資格継続 ■2015年8月1日付新入会者		734
本会関係欧文誌目次			736



表紙の説明

東北大学理学部原子核理学研究施設(核理研)に据え付けられた粉末中性子回折計の写真。木村一治等が1960年代後半に建設したが、中性子散乱研究者達はこの装置の偉容と形状から当時ソ連が宇宙に投入した飛行船に準えて木村スプートニックと呼んだ。この回折装置はBに置かれた粉末(多結晶)試料からの散乱中性子をC、Dのデバイシェラー環の円周状に並べられた中性子検出器で飛行時間(TOF)分析に依って回折像を撮る。パルス中性子による回折計の原型であり、木村スプートニックはJ-PARCのsuperHRPDが出現するまでは計数効率、分解能とも世界第一線の性能を誇った。(詳細は本号に掲載されている「小特集」の遠藤康夫氏の記事を参照のこと。)

系外惑星の多様性と遍在性

Keyword: 系外惑星

1. 系外惑星の発見

太陽以外の恒星を巡る惑星を「系外惑星」と呼ぶ。ここで「系」は太陽系を意味する。1940年代から系外惑星探しが始まったが、1995年まで何も発見されなかった。

系外惑星を中心星から空間分解することは難しく、それらの光度差は非常に大きいので、中心星を観測することで系外惑星を検出する「間接法」が主になっている（ただし、現在では軌道半径が大きいガス惑星については、直接検出が可能になってきている）。当初は、惑星がまわることで恒星が共通重心のまわりを首振り運動することを天球上での精密位置観測（アストロメトリ法）により検出しようとしたが、大気の揺らぎや長期間観測の系統誤差を克服することはできなかった。1980年代には中心星の首振り運動による中心星光のドップラー遷移を分光観測する（具体的にはスペクトルの吸収線の位置のずれを観測する）視線速度法が一般的になり、木星クラスの惑星の検出は可能になった。しかし、それでも発見できなかった。

ところが、それが嘘のように、1995年に初の系外惑星が発見されるや否や発見が加速していき、その後の20年間で発見数は2,000個に迫り、候補天体まで入れると5,000個を超えている。このような大転換が起きた原因は、観測精度は足りていたが、系外惑星系の多くが太陽系とは異なる多様な姿で検出し損なっていたこと、1995年までは（当然）人員も予算も望遠鏡時間も極めて限られていたことである。

2. 多様な系外惑星系

太陽系では、中心星に近い方から小型岩石惑星（水星、金星、地球、火星）、巨大ガス惑星（木星、土星）、中型氷惑星（天王星、海王星）の順に円軌道で並んでいる。太陽からの木星と土星の距離は5.2 AU、9.6 AUである（AUは太陽と地球の平均距離を表す）。

1980年代に林忠四郎が率いた京都大学チームは太陽系形成の標準モデルとなる「京都モデル」を構築した。¹⁾現在の惑星の固体成分を動径方向にならして、太陽組成を仮定して（水素・ヘリウムガスは一定時間経つと散逸したとする）、太陽系を生んだ円盤を推定し、その円盤内で多数の固体小天体（微惑星）群の合体成長を考え、惑星質量が地球の約10倍を超えたら、円盤の水素・ヘリウムガスが惑星に流れ込むとした。このモデルに従うと、軌道半径が大きいほど集められる微惑星領域が増え、3 AU以遠では水も凝縮するので、木星・土星領域では惑星にガスが流れ込む。それより外側の天王星・海王星領域では成長が遅いので、

先に円盤ガスが散逸して、氷惑星として残る。このように、太陽系の惑星の並びは説明されたと思われた。

1995年までは太陽系という1サンプルしかなく、その姿の合理的説明もあったので、必然的に太陽系の姿を基準にして系外惑星探しが行われていた。

だが、1995年に初の系外惑星として発見されたのは、中心星の至近距離（0.05 AU）を数日で周回する巨大ガス惑星「ホット・ジュピター」であり、その後も彗星のような偏心した楕円軌道をえがく巨大ガス惑星「エキセントリック・ジュピター」が視線速度法によって続々と発見された。

2009年に打ち上げられたケプラー宇宙望遠鏡は、惑星による中心星の食を観測するトランジット法を用いて、地球サイズに迫る小さい惑星まで検出し、多くの恒星で、中心星近く（0.1 AU 近辺）に地球サイズの数倍程度の「スーパーアース」が何個も編隊で並んでいることを発見した。

さらには連星系での惑星、中心星の自転方向とは逆向きに公転している惑星、軌道半径が100 AUというような中心星から離れた惑星など、多様な惑星系が次々と発見された。

視線速度法やトランジット法では、中心星に近い惑星、質量や物理半径が大きい惑星の検出にバイアスがかかっている。観測精度が上がるにつれて、太陽系の木星や土星と似たような質量、軌道半径の惑星も数多く発見されるようになって、太陽系は必ずしも特殊な惑星系ではないようだ。しかし、惑星系は非常に多様だということは確かである。

3. 系外惑星の存在確率

惑星系は多様であり、かつ存在確率は極めて高い。太陽型恒星（F、G、K型矮星）に対して、巨大ガス惑星が存在する確率は10~20%程度と推定されている。ホット・ジュピターは1%程度で、実は少数派であることがわかった。スーパーアースについては観測精度の問題で、まだ中心星に近いものしか検出できないが、その制限のもとでも存在確率は数十%を超えると推定されている。この精度で太陽系を観測すると、木星がぎりぎり検出できるかどうかというところで、地球型惑星は全く検出できない。つまり、実際には太陽型星のほとんどが惑星系を有していると想像される。

質量が小さいM型矮星は銀河系では太陽型星よりも数が多いが、太陽型星に比べて巨大ガス惑星の存在確率は小さいものの、スーパーアースはむしろ多いようである。質量が大きいA型矮星やB型矮星では観測が難しいが、巨大ガス惑星の存在確率は高いようである。

このように、惑星の存在は非常に普遍的であり、恒星が

形成されるときに副産物として必然的に形成されるものがあることが示唆される。

4. 系外惑星の形成理論モデル

古典的な標準モデルでは、ホット・ジュピターやエキセントリック・ジュピター、および中心星に近い領域に編隊を組むスーパー・アースを説明することはできない。古典的標準モデルに抜けていた物理プロセス(たとえば、ガス円盤と惑星との重力相互作用による惑星軌道の変化や惑星同士の重力相互作用による惑星軌道の不安定化など)をモデルに加えて、解決しようとする試みがなされてきたが、^{2,3)}系外惑星の分布を十分に説明するには至っていない。

また、系外惑星系を考えた後で、太陽系を眺め直してみると、なぜ水星軌道の内側には何も無いのか、なぜ小惑星帯には惑星がないのか、天王星や海王星の形成など、太陽系も古典的標準モデルでは説明しきれないことが認識されてきている。そのため、「微惑星」の集積で惑星ができたのではなく、10センチメートル程度の塵の塊(ペブル)の集積で惑星が形成された可能性や円盤ガスの自己重力不安定による惑星形成の可能性といった、惑星形成理論の根本的な見直しも議論されるようになってきている。^{2,3)}

惑星形成理論は今大きく変動している最中である。しかし、その理論を較正すべき観測データもたくさんあり、惑星形成のパーツをなす物理過程についての知識はかなり蓄積されているので、太陽系も系外惑星系も統一的に説明する理論の構築は夢のまた夢というわけではなく、手が届くところにあると考えられる。

5. 内部構造、大気

視線速度法は惑星質量を測定し、トランジット法は惑星断面積を測定する。両方の方法で観測できている惑星は多数あり、結果として、それらの惑星の密度が推定できている。惑星をつくる成分の代表的なものには、鉄、岩石、水、水素・ヘリウムガスの4つがあり、この順で密度が低くなっていくので、密度から惑星の組成をある程度推定することができる。

その結果わかったことは、おおまかに言って、地球の数十倍以上の質量を持っているものは木星や土星のように水素・ヘリウムガス、それより小さいものは天王星や海王星のように氷、地球質量の数倍以下のものは地球のように岩石を主成分としているということである。ただし、密度の幅は非常に大きく、土星程度の質量があっても主成分がガスではなく固体に見える密度のものもある一方で、常識では考えられないほど密度が低いガス惑星もある。また、中心星に近い高温領域のスーパーアースが氷を主成分にしている

というのも考えにくいので、岩石の惑星に分厚い水素・ヘリウム大気がある可能性も検討されているが、謎は多い。

系外惑星の大気組成も観測から推定されている。惑星からだけのスペクトルを取り出すことができれば、大気組成はわかる。だが、現状の望遠鏡では中心星と惑星を分離することができない。しかし、食を起こす惑星(トランジット観測できる惑星)の場合、惑星が食を起こしている間、中心星の光の一部は惑星大気を通過してきており、惑星が食を起こしていないときとのスペクトルの差から、その惑星の大気組成が推定できる。惑星大気のモデルと観測データを組み合わせる必要があるため、複雑になるが、現在、精力的に大気組成の観測が進められている。

6. ハビタブル惑星

中心星からの距離がほどよく、惑星表面温度が高すぎず低すぎずで液体の海が存在可能な軌道範囲を「ハビタブル・ゾーン」と呼ぶ。太陽型星ではハビタブル・ゾーンは1AU付近に位置し、その場所でのスーパーアースや地球質量程度の惑星の検出は、軌道半径が小さい惑星の検出が得意な視線速度法やトランジット法での検出はまだ難しいが、今後観測が加速しそうな重力マイクロレンズ法ではまさにそのエリアの惑星に感度があるので、期待したい。

2020年代の超大口径望遠鏡(30~40メートル)を使えば、ハビタブル・ゾーンの地球型惑星を中心星から分離できて、大気成分がわかるかもしれない。地球大気の酸素のほとんどは光合成生物が吐き出したものであるが、そのような非平衡大気組成は生命存在の証拠だという考えがある。つまり、スペクトルの酸素やオゾンの吸収線から系外生命存在を同定できるかもしれないのである。他にも、地球植物が赤外線を強く反射しているのは光合成の一般的性質という考えもあり、そうならば、植物という高等生物の存在も調べられるかもしれない。現在、生命存在のサインの検出について、様々な観測方法が議論されている。現在の地球生命は、微生物も動物も植物も共通祖先から枝分かれした単一の生命であることがわかっている。たった1つのサンプルで考える難しさは、系外惑星系の例で我々は身にしてみている。地球外生命に関する統計的データが得られることで初めて、我々は生命の起源に迫れるようになるかもしれない。

参考文献

- 1) C. Hayashi, N. Nakazawa and Y. Nakagawa: in *Protostars and Planets II* (Univ. Arizona Press, 1985) 1100.
- 2) 井田 茂:『系外惑星』(東京大学出版会, 2007).
- 3) 井田 茂, 中本泰史:『惑星形成の物理』(共立出版, 2015).

井田 茂(東京工業大学地球生命研究所)

(2015年6月20日原稿受付)

はじめに

ラウエが1912年に硫化亜鉛結晶でX線回折現象を発見し、ブラッグ親子がX線回折の法則を見出して以来、X線や粒子線の回折を用いた原子レベルの構造解析手法は大きく発展を続けてきた。近年になって透過電子顕微鏡や走査トンネル顕微鏡など実空間での原子観察手法が発達するまでは、原子オーダーで物質構造を調べる手法は回折法だけしかなく、物性研究には無くてはならないツールであり続けている。現在でも無機結晶からDNAやたんぱく質など分子量の非常に大きい生体関連物質まで、様々な分野で広く用いられている。また、パルス光源の発達によって時間分解測定が可能になり、物質構造の高速なダイナミクスが調べられるようになってきた。さらにシンクロトロン放射光や自由電子レーザーなどによる光源の強度やコヒーレンスの向上、イメージングプレートなどの検出器、解析手法とそれを支えるコンピュータの進歩により、位相情報を回復することで、非結晶構造も決定できるようになりつつある。それらの研究成果は、ノーベル賞の歴史をみても物理学賞だけでなく、化学賞や生理学賞などで多数の受賞対象となっている。

日本では、寺田寅彦が早くも1913年にX線回折の実験を報告しているのをはじめ、西川正治によるスピネル族結晶の構造解析(1915)や、菊池像(1928)で知られる菊池正士ら西川門下生を中心として、この分野で早い時期から多くの研究が行われてきた。

昨年は1914年のラウエのノーベル賞から100年ということで世界結晶年とされた。そして今年には1915年のブラッグ親子のノーベル賞から100年にあたる。そこで本号ではX線・粒子線回折による構造解析についての小特集を企画し、分野としてX線回折、中性子線回折、反射高速電子回折(RHEED)および全反射陽電子回折(RHEPD)、生体物質の構造解析を取り上げた。最新の手法についての解説に加えて、我が国における各分野の研究の進展を振り返り、さらに構造解析のこれからを展望するような特集になればと考えている。

1. 『寺田寅彦の「X線と結晶」からX線自由電子レーザーへ』
2. 『我が国における反射高速電子回折の発展と全反射陽電子回折への展開』
3. 『JRR2からJ-PARCへの50年の歩み(日本の中性子散乱研究の歴史)』
4. 『我が国における生体分子・粒子の構造解析—過去・現在そして未来の展望』

最初の記事では、ラウエによる回折現象の発見に始まる世界でのX線回折の歩み、そして寺田寅彦、西川正治とその弟子たちによって行われた我が国における研究の流れが文献に基づいて述べられ、さらにその後の放射光からX線自由電子レーザーへの光源の発展が概観されている。記事2は1920年代に西川と菊池によってRHEEDの実験が行われていたという話に始まり、日本におけるRHEEDの様々な発展と、20年ほど前に執筆者が提案した非常に表面敏感なRHEPDによる表面研究について解説している。記事3では、1940年代の胎動期からJRR2原子炉の稼働を経てJ-PARC/MLFが稼働する現在の成熟期に至る日本の中性子散乱の歴史が、理論家久保亮五のアドバイスやISISとの交流などのエピソードを交えて詳しく描写される。そして記事4では、現在、X線構造解析の重要な一分野となっている生体物質の研究について、生体特有の問題を解説し、計測技術の発展を軸に我が国での研究の歴史を述べている。

執筆していただいたのはどなたも各分野を牽引してこられた方々であり、研究の中心にいないならば分からない実感と体験に基づいて書かれていて、発展の経緯を肌で感じられる記事になっていると思う。先人たちが様々な困難をどのように解決してきたかを知ることが、読者の皆様の研究・仕事においてなんらかのヒントにつながれば幸いである。最後に、ご多忙中記事の執筆をお引き受けいただいた執筆者の方々、お骨折りいただいた関係各位に深く感謝申し上げます。

(2015年7月8日原稿受付, 文責: 会誌編集委員会)

寺田寅彦の「X線と結晶」からX線自由電子レーザーへ

石川 哲也 (理化学研究所放射光科学総合研究センター)

X線結晶構造解析の開始から100年を記念して2014年は世界結晶年とされた。その分野建設の初期の段階に寺田寅彦が参画しており、その弟子西川正治は空間群の考察の導入によって、系統的な構造解析法を作り上げた。それは留学先のアメリカにもたらされ、アメリカにおける回折結晶学の発展にも寄与している。西川によって礎が築かれた日本の回折結晶学は、創立間もない理化学研究所・西川研究室で仁田勇、菊池正士ら多数の優秀な弟子たちによって発展した。菊池が始めた電子線回折は、動力学的回折現象への関心を喚起し、後に半導体工業の進展による完全に近い半導体単結晶技術の発展とともにX線領域での動力学的回折理論・実験の隆盛に結び付いた。これらの研究の進展には、常に強力なX線源への希求が伴っており、それが回転対陰極X線源、放射光実験施設、X線自由電子レーザーに繋がっている。

1. はじめに

Laueの「結晶によるX線回折現象の発見」は、1914年のノーベル物理学賞となり、その翌年の1915年にはBragg父子が「X線による結晶構造解析に関する研究」によって、同じくノーベル物理学賞を受賞している。それから100周年となる2014年をユネスコは「世界結晶年」とし、国内外で様々な記念行事が行われている。1912年4月のLaue¹⁾の発見は当時の物理学界に大きな波紋を投げかけた。論文としての発表からほどない、1912年10月24日のNature誌にW. H. Braggは“X-rays and Crystals”というタイトルでレター²⁾を出し、回折斑点の方向が簡単な数学的規則に従っていることを指摘した。ここでは、それから1年余りのNature誌での関連報告を見ることによって、寺田寅彦(1874-1935)の「X線と結晶(X-rays and Crystals)」が報告された時代背景を探ってみたい。

同誌11月14日号には、結晶学者A. E. H. Tuttonによる“The Crystal Space-Lattice Revealed by Röntgen Rays”と題する記事³⁾がある。これは彼がその年の8月にミュンヘンを訪問したときに、ミュンヘン大学の鉱物学教授で当時の結晶学の第一人者だったvon Grothに見せられた、Laueの閃亜鉛鉱結晶からのX線回折写真を紹介し、当時の結晶学の知見から回折パターンが空間格子に関係していることを述べたものである。その中でBraggのレターには結晶学からの事実に基づく考察が欠けていることを指摘し、Braggにこの点を含めて再考することを促した。Braggは同誌11月28日号のレター⁴⁾で、10月24日号で与えた数学的規則は、結晶学のもっとも基本的事実のみ関係するとしうえで、息子W. L. BraggがCambridgeでの学会で、どのような結晶と写真乾板に配置に対しても回折斑点の出現場所を計算できる理論を発表し、それが彼の数学的規則を説明すると記載している。その方法では結晶学的事実が重要であると言っており、翌年出版された講演録に詳細が記されている。⁵⁾ 続く12月12日号には息子W. L. Braggのレター⁶⁾が出た。Laueの測定は、回折X線がX線入射結

晶表面とは異なる結晶表面から出てくる、いわゆるラウエ・ケースでの回折であったが、ここでは、回折X線が入射結晶表面で正反射される現象が報告されている。試料としてマイカの劈開面を用い、試料を湾曲することによってX線の線収束が可能なが述べられている。これは、現在の言葉でいえば、ブラッグ・ケースの回折であり、その最初の報告である。一週間後の12月19日号にはC. G. Barkla(1917年ノーベル物理学賞、特性X線の発見)がG. H. Martynとともに、“Reflection of Röntgen Radiation”と題するレター⁷⁾を出した。彼らは、同じくブラッグ・ケースでの回折を報告するとともに、ラウエ・ケースに比べて強度の強いブラッグ・ケースでの回折は、電離箱でも計測できるのではないかと指摘した。W. H. Braggはこれに答えて、1913年1月23日号のレター⁸⁾で、電離箱での計測を行ったことを述べ、結晶を回転したときの回折斑点の動きも電離箱で計測できたと述べている。1月30日号には、後に特性X線波長と原子番号との関係を示したMoseleyの式を導出したH. Moseleyと後に動力学的X線回折理論のDarwin曲線の式を導出したC. G. Darwinが連名で“The Reflection of the X-rays”と題するレター⁹⁾を出した。そこでは、電離過程を利用した検出から、X線に波動性と粒子性の両方を考えなければならないことを指摘している。それから暫く経った4月10日号にE. A. OwenとG. G. Blakeによる“X-Ray Spectra”と題するレター¹⁰⁾に続いて、T. Terada(寺田寅彦)のレター¹¹⁾が掲載されている。題目は“X-Rays and Crystals”であり、Braggの最初の報告と同じである。Owenらの結論は誤ってはいるが、結晶を回折格子として利用しX線分光を行う試みがすでに始まっていたことは興味深い。

T. TeradaはこのレターでLaueらの実験を追試する際に、回折斑点を通常の蛍光板で可視化したことを報告している。ホウ砂、ミョウバン、雲母、蛍石などを試料として実験を行った。結晶を回転して回折斑点が動くことを観察しているが、回転軸を適当にとると、静止している回折斑点があ

ると報告している。これは、現在風に言えば、「面内回転」の結果であるが、この観察は容易に仮想的な反射面の存在に結び付いたものと思われる。一週間後の4月17日号に、Maurice de Broglie (ド・ブロイ波で有名な Louis de Broglie の兄) が、“Reflection of X-Rays and X-Ray Fringes” と題するレター¹²⁾のなかで、回折斑点内で観察される縞模様を報告している。ラウエ回折斑点の内部構造を議論しているという意味で、最初の白色X線トポグラフと呼んでも良いかもしれない。5月1日号にT. Teradaは同じ“X-Rays and Crystals”と題したレター¹³⁾を出し、蛍光板での観察を進めた結果を報告している。結晶方位を変えた観察によって、晶帯や晶帯軸の概念に到達している。5月22日号には、Maurice de Broglieが、後にWinston Churchillの科学顧問となるF. A. Lindemannとともに“Reflection of X-Rays and Related Phenomena”と題するレター¹⁴⁾を出し、以前の観察の成因に関する議論を行っている。7月10日号で、W. H. BraggがロジウムターゲットのX線管のスペクトルを岩塩結晶で決めたというレター¹⁵⁾を出し、X線分光での大きな進展を示している。7月31日号にはBragg父子が“The Structure of the Diamond”と題するレター¹⁶⁾を出し、ダイヤモンドの構造を報告している。

明治になって近代科学が日本に導入されてから50年も経たない頃の、X線結晶学の草創期に、当時の科学の中心であったヨーロッパの研究者たちに伍して、寺田寅彦がその建設に参加していることは、我が国でのその後の関連分野の発展に大きな影響を与えた。寺田自身は、その後この分野に長く留まることはなかったが、大学院生の時に寺田の実験に魅了されてこの分野を手掛けた西川正治は、多くの俊才を育て、その末裔たちが我が国の関連分野を支えている。

2. 西川正治

西川正治(1884~1952)の事跡については我が国の回折結晶学の創始者として、西川先生記念会が編纂した『西川正治先生 人と業績』¹⁷⁾日本結晶学会が1988年に出版した『日本の結晶学—その歴史的展望—』¹⁸⁾1962年の日本結晶学会誌に掲載された三宅・岡による追憶談¹⁹⁾1996年の上田による随想²⁰⁾などに詳しいが、海外で出版されたX線回折やX線結晶学の教科書にも頻繁に紹介されている。^{21,22)} Laueらの論文¹⁾が日本に届いたのは、1912年の秋で、それに直ちに反応したのが、前節で見たように当時東大物理学科助教授の寺田寅彦だった。寺田自身は比較的早くこの関連の仕事から手を引いてしまったが、そのあとを引き継いで日本の回折結晶学の基礎を築いたのが、西川正治だった。寺田がX線の実験を行っていたころ、西川は大学院生で、木下季吉教授(1877-1935)の下で放射能の研究をしていた。西川が偶然のめぐり合わせで寺田が行っていたX線回折の実験を見る機会を得、それを契機に寺田の勧めによってX線回折の研究を開始した。半年

後には、繊維状、層状、粒状物質からの回折図形を撮影し、論文として発表した。²³⁾ 寺田と西川はその功績によって1917年に帝国学士院賞を受賞している。この論文までは、ある意味で寺田の仕事の続きであったが、その後、複雑なスピネル構造の解析に取り組んだ。それまでの構造決定は研究者の直感に頼るところが少なからずあったが、西川は空間群の応用によって、複雑な構造を系統的に解析する方法を確立した。²⁴⁾ これは、当時、自分たちが中心であったと考えていたヨーロッパの研究者たちをも驚愕させるものであったようだ。西川が、群論の教科書に辿りついたのは、寺田の示唆による。²⁰⁾ 西川は数学教室の図書室で、開かれた形跡のないA. Schönfliesの空間群の教科書²⁵⁾を手にし、それを元に構造解析の一般論を作り上げた。寺田がどこでこの群論を知ったかには諸説あるが、空間群論の大家Schönfliesのいたゲッティンゲンには名著『解析概論』で有名な高木貞治が留学しており、また寺田と高木は東京・千石で隣近所であったことなどから、寺田に群論の存在を教えたのは高木であろうという説がある。¹⁹⁾ 後に述べるR. W. G. Wyckoffは、このことに関して空間群論の確立した1890年代にドイツに留学していた日本人科学者から西川が教わったと書いている。²⁶⁾ これは1909年から1911年にベルリン大学に留学した寺田を指していると考えていたが、1898年から1901年にベルリン大学、ゲッティンゲン大学に留学した高木を指しているのかもしれない。

1914年は第一次世界大戦の始まった年であるが、同じころ理化学研究所設立の計画が始まり、西川、寺田はそれに参画することになった。同時に西川は海外留学することになったが、第一次世界大戦のためヨーロッパに行くことはできず、R. A. Millikan (1868-1953) や A. A. Michelson (1852-1931) などの一流の学者が輩出しはじめていたアメリカに留学することとし、行き先をニューヨーク州イサカのコーネル大学とした。当時、X線結晶学に関してアメリカは全く未開発の状態であった。ここで、化学の学生だったWyckoffにX線構造解析の手ほどきをし、セシウム化合物の構造解析を進めた。西川はその後戦火が収まったヨーロッパを経由して帰国し、1917年東京大学物理学科助教授に就任した。また同じ年、東大本郷キャンパスからそれ程遠くない駒込上富士前に理化学研究所が設立された。西川は、1922年から1949年まで主任研究員として研究室を主宰し、そこから多くの研究者が巣立っていった。仁田勇²⁷⁾の回想によれば、西川の実験室には、物理、化学、医学、鉱物、冶金など、様々な分野から人が集まり、学際的な雰囲気の中で研究が進められていた。このことは、西川の実験室のみならず、後の仁科芳雄の実験室についても同様なことがいえる。私事にわたって恐縮ではあるが、筆者が理研主任研究員に採用された際、諸先輩からこのような多様性、換言すれば自分と近い分野の人を集めないこと、の重要性を諄々と説かれた。結果として超伝導、中性子、X線天文学、レーザー分光、原子核理論で学位を取った方々を

研究員として採用し、それぞれに放射光との接点を探っていた。西川や仁科の研究室の多様性 (Diversity) には遠く及ばないかもしれないが、この方々の現在の活躍ぶりをみると理研の伝統に乗った人集めは正解であったと考えている。

西川の実験室は、仁田勇、菊池正士、篠原健一、三宅静雄、上田良二など、その後それぞれの分野で大きなスクールを作っていく人材を輩出した。仁田勇は理化学研究所で有機物結晶の構造解析を手掛けた。大阪帝国大学設立時に創立委員として参画し、1931年に化学科物理化学第一講座担当教授として大阪大学に転出した。そこで広範なX線回折研究を展開したが、理研西川研究室での経験によるものが非常に多彩な分野から多くの学生を集め指導を行っている。また、仁田が監修した教科書²⁸⁾は、当時考える最高の執筆陣によってX線結晶学を網羅したものであり、50年以上を経過した現在でも大学等での講義参考資料に挙げられることが多いようである。仁田が大阪大学を1960年に退官する直前の1958年に、蛋白質研究所が発足し、X線構造解析を担当する蛋白質物理構造部門が1959年に設立された。ここには大阪大学工学部から角戸正夫が移籍し担当したが、仁田が退官にあたり大阪大学に蛋白質およびその関連物質を目標とするX線結晶解析専門の研究室を残されたものと意識されている。

3. 理研記念資料室にて

2014年の世界結晶年にあたって、我が国でも「日本委員会」を結成し対応している。²⁹⁾ その委員長には名城大学の飯島澄男教授にご就任いただいた。そのなかの実行委員会委員長を筆者の所属する理化学研究所放射光科学総合研究センターの高田昌樹副センター長が務めている。日本のX線科学の一大拠点としてSPRING-8も世界結晶年に協賛して何かを進めようという相談をしたときに、和光本所の理研記念資料室に眠っている西川正治関連資料を播磨で展示してはどうかというアイデアが出て、高田副センター長に本格的な調査を依頼した。そこで高田が見つけたのは、木箱に入れられ、鉱物、繊維、化合物粉末、金属などの材料ごとに仕切られ、一つ一つが丁寧にパラフィン紙にくるまれた153枚の写真乾板であり、それらには1913~1914年に撮影されたX線回折像が記録されていた(図1)。また、そこにはスピネル構造解析当時の西川のノート片が入っており(図2)、誰も先人が存在しない当時、西川が非常に基本的な解析を進めていた姿が偲ばれる。この資料に関しては、記念資料室長の富田悟が理研ニュースで紹介している。³⁰⁾

このような歴史的資料が大量に見つかったこと自体、一種の驚きであったが、驚きはそれに留まらなかった。写真乾板の一つに「蛙ノ筋肉」というメモのついたものがあったのだ。乾板にはバックグラウンド散乱のみが記録されており、残念ながら回折パターンを見ることはできなかった。しかしながら、筋肉からのX線散乱を記録しようという



図1 理化学研究所資料室に保管されていた、西川正治によるX線回折写真乾板。一つ一つがメモの入ったパラフィン紙に包まれ、木箱に入れられた状態で保管されていた。

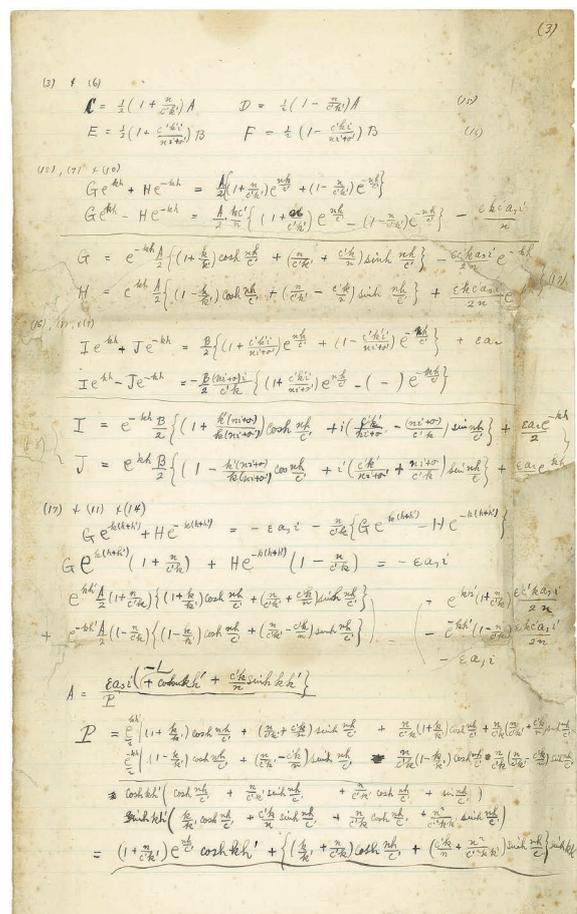


図2 結晶による回折強度を計算した西川のメモ。

試みが1914年になされていたこと自体が、大変なことだと思われる。Braggのお膝元のイギリスで、生体組織をX線で解析する試みが本格化するのには1940年代になってから、H. Huxleyによる。³¹⁾

これらの資料の一部を、世界結晶年への協賛事業の一環として、X線自由電子レーザーSACLA実験研究棟に展示設備を設けて展示した。SPRING-8には、年間20,000人に近い見学者があり、その殆どがSACLA実験研究棟も訪れるので、西川の資料は今後多くの人の目に触れることになる。

4. 菊池正士と電子回折

西川が理研の主任研究員として活躍しはじめた1920年代は量子物理学の黎明期であった。その主要概念としての粒子・波動の二重性があり、そこから電子回折が生まれてきた。粒子の波動性を唱えたのは先にてきたMauriceの弟、Louis de Broglieであり、これはド・ブロイ波として知られている。³²⁾ アメリカのベル研究所のC. J. DavissonとL. H. Germerは、電子波の証明に実験目的とした精緻を極めた低速電子線散乱実験を行い、その証明に成功し、Nature誌に発表した。³³⁾ 一方、イギリスでは電子の発見者J. J. Thomsonの息子G. P. Thomsonが高速電子の薄膜透過の実験を行って、得られた回折図形を解析して物質波を証明し同じくNature誌に発表³⁴⁾したが、Davissonらにわずかに遅れた。Louis de Broglieは1929年のノーベル物理学賞を受賞し、DavissonとThomsonは1937年のノーベル物理学賞を受賞した。

菊池はDavissonらの論文に触発され、そのような実験をしたいと西川に申し出、実験を開始した。³⁵⁾ しかし真空技術の経験が浅く、その対応に苦しんでいる間にThomsonの論文が出た。高速電子線を用いるThomsonの方法では低速電子線によるDavissonの方法より真空技術の制約が少なく、菊池は高速電子線を用いた方式に切り替えることとした。試料としてマイカを用いることによって、結晶による弾性散乱回折パターンの観測に成功したばかりでなく、入射電子が非弾性散乱してエネルギーが変わった電子が結晶格子面で回折を起こすことにより形成される「菊池像」を発見した。その第一報は、1928年6月の帝国学士院で寺田によって紹介され、それに引き続いて第4報までが発表され、さらにそれらをまとめた本論文もその年の内に発表されている。³⁶⁾ 菊池の業績は電子回折と結晶学を結びつけるものであり、菊池自身は1929年のはじめに渡欧したので、電子回折の仕事は山口太三郎(理研から阪大教授)、武藤俊之助(理研から九大教授を経て、戦後東大物性研教授)に引き継がれた。菊池が二年半後に帰国したころには、西川研では篠原健一(理研から九大教授を経て、西川の後任の理研主任研究員、退職後早大教授)、山口太三郎、三宅静雄(理研から小林理研を経て東工大教授、その後東大物性研教授)、上田良二(東大での西川の助手、後に名大教授)らが西川の指導の下、その後の電子回折研究隆盛の基礎を築いていった。菊池は中川重雄(後に立教大教授)と電子回折の研究を進めたが、一年半後に大阪帝国大学に教授として赴任し原子核研究をはじめることとなった。

5. 多波効果と動力的回折現象

動力的回折理論は、現在では完全に近い単結晶でのX線回折を理解するために必須のものであり、多くの放射光・X線自由電子レーザー施設でのX線光学の基礎となっている。我が国では伝統的にこの理論と、それに関連する実験的研究が盛んであるが、これも元をたどると理研の西

川研究室に行きつく。

篠原は方解石、岩塩などの劈開面からの反射電子回折像について、主として菊池像の微細構造を研究し、^{37,38)} それらの解析に電子線に対するBetheの動力的回折理論³⁹⁾を適用した。これがこの理論が実験の解析に用いられた最初の例である。電子波は結晶内に多くのブラッグ反射を同時につくり、これらの多波がさらにブラッグ反射を通じて相互に関連しあう多波効果が動力的回折の特徴である。その後、篠原は菊池が菊池像を発見したときに用いられた電子回折装置を携えて九州帝国大学に教授として赴任したが、そこで学生たちに動力的回折理論の重要性を説いたという。⁴⁰⁾ 電子回折現象の発見初期には、たくさんの興味ある新事実が見いだされたが、理論的には未解決のものが多かった。篠原、山口、菊池-中川らの研究の中に含まれた多くの問題提起が次の世代の研究者に大きな影響を与えた。

1934年に菊池と山口は大阪大学に移り、篠原は海外に留学した。しかも菊池と篠原はその後原子核研究に進んでいったため、この時期に電子回折研究に入った三宅静雄と上田良二に引き継がれることになった。第二次世界大戦中に、全国組織としての「電子回折研究会」が発足し、戦時中ではあってもそれなりの研究活動は続けられたが、戦後になると電子回折に見られる特異な回折現象を、動力的回折理論によって解析し尽くすことにより、電子回折の性質のより深い理解を求めようとする新しい流れが現れてきた。三宅、上田によって電子回折でのフリーデル則の問題が議論され、⁴¹⁾ また電子線鏡面反射条件での強度異常⁴²⁾などが、動力的回折理論により議論された。

一方X線は物質との相互作用が電子と比べて小さいため、動力的回折現象は大きな完全に近い単結晶による回折以外では起こりにくい。しかし1955年ごろには東京都立大学の福島栄之助や当時小林理研において後に名古屋大学に移った加藤範夫によって進められていた。加藤は完全結晶によるX線反射の積分反射強度式を導き、⁴³⁾ 福島は水晶表面の研磨面とその一部をエッチングして研磨の影響を取り除いた部分との境界でX線反射強度が異常に増大する効果を報告し、⁴⁴⁾ 加藤はこの効果を詳細に追及した。⁴⁵⁾ 1960年代になると、加藤範夫、高木佐知夫、高良和武らがX線動力的回折現象、特に歪のある単結晶内での回折現象に関して理論的、実験的に重要な寄与をするようになったが、その下地はそれぞれが電子回折研究に従事していた時期に形成されたものと言ってよい。

X線の動力的回折理論はC. G. Darwin⁴⁶⁾とP. P. Ewald⁴⁷⁾によってはじめられた。その後Laue⁴⁸⁾によって数学的に取扱い易い形に書かれた。この理論は、入射X線を平面波として、完全な結晶にのみ適用できるものであり、半導体工業が進歩してSiやGeなどの大きな人工結晶が作製されるようになるまでは、適用可能な結晶は非常に限られていた。また、大きな結晶であっても、入射波を平面波とする近似は簡単には成立せず、加藤範夫⁴⁹⁾やA. R.

Lang⁵⁰⁾らのセクショントポグラフにみられるような回折現象を生ずる。加藤はこの結果を入射波が球面波であるものと考え、球面波入射での動力的回折理論を展開した。⁵¹⁾加藤はまた、歪が小さい場合に適用できる動力的回折理論を展開した。⁵²⁾高木は、より歪の大きい場合に適用できる理論を構築した。⁵³⁾加藤は、高木の方程式を基礎とし、統計的考察を導入した動力的回折理論を発展させた。⁵⁴⁾一方で、高良和武は、完全結晶光学系による平面波入射での動力的回折現象の精密実験を発展させ、⁵⁵⁾後に、日本で最初の放射光X線源・Photon Factoryの建設を主導することになる。⁵⁶⁾高良の研究室からは菊田惺志、橋爪弘雄、安藤正海、松下正、飯田厚夫、両宮慶幸らが、Photon Factory建設に中心メンバーとして参加した。

6. 強力X線発生装置の希求

X線の発生装置は、W. C. Röntgenによる発見以来1960年代末まではずっと、二極真空管が使われてきた。陰極フィラメント等からでた電子を陰極-陽極間の高電圧によって加速し、金属ターゲット陽極に当てて、そこからの制動放射や特性X線を利用する。結晶によるX線回折研究が始まった頃には、管電流がmA程度であったが、研究の進展に伴ってより高強度のX線源が求められるようになった。

高良和武は、戦時中に九州帝国大学理学部の篠原健一の下で電子回折の動力的理論による研究をはじめたが1948年工学部助教授に移った後、米田泰治、吉松満らの協力を得て、電子回折、融体のX線回折などに加え、回転対陰極型強力X線源の開発を行った。X線管では電子のエネルギーのほとんどは陽極(対陰極)で熱に変わる。このため陽極の冷却が非常に重要になるが、回転対陰極は陽極を回転させることにより、電子ビームの当たる位置を変え、冷却を容易化するものである。吉松はその後理学電機株式会社で回転対陰極X線源の開発を進め、同社がこの分野で世界有数のメーカーとなる牽引力となった。1961年に大阪大学蛋白研に納入された理学電機製回転対陰極X線源は管電圧50 kV管電流300 mAであった。NHKの千川純一と藤本勲は、1968年に理学電機と共同で直径40 cmの回転対陰極発生装置を試作し、管電圧60 kV管電流500 mAを達成した。⁵⁷⁾さらに佐藤史郎と千川純一は1979年に対陰極回転数を上げ、また電子銃と対陰極との間に電子レンズを置く構造により、管電圧70 kV管電流1.4 Aでの安定な運転を実現した。⁵⁸⁾管電流が1 Aを超える回転対陰極装置は、名古屋大学、東京大学、北海道大学、京都大学に順次導入された。しかしながら、従来型の高圧二極真空管によるX線強度の増大には限界があり、一層の高出力X線源を求める全国的な研究者からの要請によって、筑波の高エネルギー物理学研究所(当時)に、Photon Factoryが建設されることになった。

放射光X線が利用できるようになっても、実験室X線

源の進化は続いた。小型の回転対陰極X線源の真空排気にターボ分子ポンプを使うことが普通になり、またそれまでのオイルシールに代わって磁性流体シールを採用することで、管球内の真空度が向上しフィラメント寿命が格段に長くなった。また、高圧電源トランスに高周波インバータを採用することによって、電源の大幅な小型化が実現し、電源を含めたすべての制御装置が標準型19インチラック一本に収納可能となっている。

7. 放射光からX線自由電子レーザーへ

X線自由電子レーザーにつながるX線光源の進化に関しては、最近解説を書いたので、⁵⁹⁾ここではなるべく重複を避けて放射光からX線自由電子レーザーへの発展を辿ってみたい。放射光は高速に近い速度で運動する荷電粒子が磁場などにより運動方向を変えられるとき、軌道の接線方向に放射される電磁波である。⁶⁰⁾1970年代に高エネルギー物理学研究のために建設された蓄積リング型加速器からの放射光を利用する施設が出現し、これらを第一世代放射光源と呼ぶ。その利用により放射光の威力が多数のユーザーに認識されることになり、放射光利用専用に蓄積リングを建設する動きが日本の真空紫外領域光源SOR-RINGを先頭にして起こった。⁶¹⁾X線領域でも1980年代前半に専用施設としてイギリスのSynchrotron Radiation Source (SRS)、⁶²⁾日本のPhoton Factory (PF)、⁶³⁾アメリカのNational Synchrotron Light Source (NSLS)⁶⁴⁾が相次いで稼働した。蓄積リング偏向電磁石からの白色放射光を主として利用することを目的に計画されたこれらの施設を第二世代放射光源と呼ぶ。

第二世代で光源加速器に特化した開発が進むようになって、アンジュレータやウィグラーのような加速器の直線部で特殊な軌道を取るよう設計した挿入光源の開発が促進され、偏向電磁石光源をはるかに上回る性能を持つ光源の可能性が出てきた。アンジュレータを高効率で利用するためには、蓄積リング内の電子ビームのエミッタンスを小さくする必要がある。このようなアンジュレータ利用に最適化した放射光施設が第三世代放射光源であり、1980年代の後半に様々な計画が立案され、1990年代に次々に完成した。アンジュレータは蓄積リングの直線部に周期的な磁場分布をつくり、そこで電子を蛇行させて光を放射する装置である。初期のアンジュレータでは加速器の真空チャンバーの外側に並べられた永久磁石によって周期磁場を形成した。当時は、アンジュレータの磁場分布を高精度に制御することが困難だったため、アンジュレータの高次高調波を用いることは現実的でなく、一次成分を利用することが考えられた。当時の技術では硬X線をアンジュレータで出すためには、6~8 GeVの電子エネルギーが必要と考えられていた。このため、真空紫外-軟X線領域を中心とする低エネルギー施設と硬X線領域を中心とする高エネルギー施設が別々に考えられることになった。高エネルギー

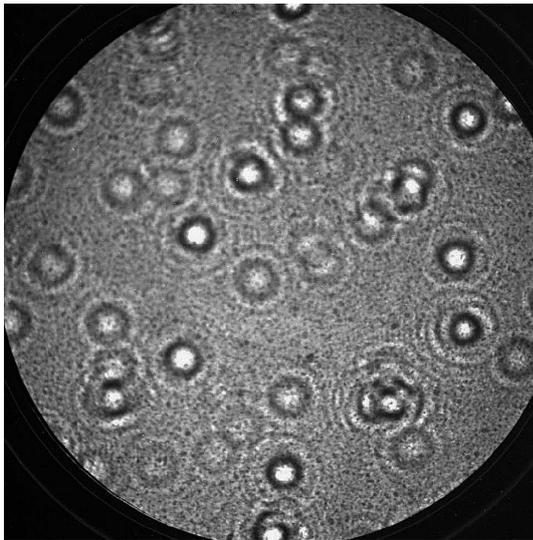


図3 SPring-8の1 km ビームラインで観察された、真空遮断用ベリリウム窓からのスペckル。X線の空間的コヒーレンスの向上によって現れた。X線エネルギー 16 keV。視野 $0.48 \times 0.48 \text{ mm}^2$ 。検出器空間分解能 480 nm。

施設としては、EUのESRF,⁶⁵⁾ アメリカのAPS,⁶⁶⁾ 日本のSPring-8⁶⁷⁾が建設され、低エネルギー施設としては、アメリカのALS,⁶⁸⁾ ドイツのBESSY-II⁶⁹⁾が建設された。第三世代光源では、電子ビームサイズが小さく、またアンジュレータで非常に高輝度な光が得られるため、高分解能X線回折、高分解能X線分光や、サブマイクロビームによる局所解析など、それ以前には困難だった様々な計測が可能になった。

1997年にSPring-8が完成し、高輝度放射光利用が始まった。電子ビームエネルギーが高いこともあって周長は1,436 mと長く844.4 mのESRFと比べても2倍近い。放射光は、ほぼ円形の蓄積リングの接線方向に敷設されたビームラインで取り出すが、周長が大きくなると、接線が円周からなかなか離れないため、結果として光源と試料間の距離が大きくなる。一方で、光源加速器の周囲を取り囲む実験ホールは、先行するESRFが20 m幅ということで、同じ20 m幅に決まった模様だが、円周が大きいことによって同じ20 m幅であっても、はるかに長い光源-試料間距離を確保することが可能となった。さらに、SPring-8にはESRFやAPSにはない、加速器の30 m直線部や、1,000 m長尺X線ビームラインなど多くの新しい試みが盛り込まれていた。蓄積リング型放射光源では、加速器内の電子は独立に光を発生し、それらの間に位相関係はない。しかし電子ビームのエミッタンスを小さくした結果光源サイズが小さくなり、それを離れた場所で観測することから、伝搬によってX線の空間的可干渉性(コヒーレンス)は向上する。⁷⁰⁾ このことが如実に示されたのは、2000年に1,000 mビームラインの初調整が行われたときであり、⁷¹⁾ 1,000 m先で観測されたビームには、見慣れぬ空間強度分布があった(図3)。これは、ビームラインの終端部で真空パスからX線を取り出すために設けられたベリリウム窓の非一様性



図4 SPring-8サイト全景。手前の円形の建物が大型放射光施設SPring-8、右奥の直線状の建物がX線自由電子レーザー施設SACLA。

を原因とするスペckルパターンであり、埃のついた鏡でレーザー光を反射させたときに現れる干渉パターンと同じ成因によるものであり、X線の空間的コヒーレンスが向上することによってベリリウムの空間的密度変化を反映した干渉パターンが出現したものである。

一方で、光源の比較的近くで、ピンホールを用いて空間的にコヒーレントな成分を切り取り、それをイメージングに利用する手法開発が進められた。コヒーレント入射X線のフラウンホーファー散乱は、散乱体の電荷密度のフーリエ変換で表されるが、検出器で記録できるのは散乱X線強度であり、位相情報が消えてしまうため、簡単に逆フーリエ変換で電荷密度に戻すことはできない。しかしながら、強度情報から位相情報を回復するアルゴリズムが開発され、⁷²⁾ 電荷密度情報が得られることが軟X線を用いて示された。⁷³⁾ もちろん、硬X線を用いれば、原理的に空間分解能は高くなるが、その最初の試みがSPring-8で行われ、⁷⁴⁾ Coherent Diffraction Imagingとして世界中で行われるようになっていった。この方法は、入射X線強度が十分に高ければタンパク質分子1個のイメージから原子分解能での構造解析を行うことが原理的に可能であり、⁷⁵⁾ 世界中のX線自由電子レーザー計画推進の大きなモチベーションとなった。

このようなSPring-8で得られた経験は、コヒーレントX線の威力を十分に予感させるものであり、強力なコヒーレントX線源としてのX線自由電子レーザーの可能性を予見するものであった。このこともあって、SPring-8ではコンパクトX線自由電子レーザー建設に向かうことになり、2011年にSACLAとして完成した。その建設過程や施設概要はすでに各所で紹介し、^{59,76)} 本誌でも紹介してあるので⁷⁷⁾ そちらをご参照いただきたい。かくして、SPring-8サイトは、世界最大級の第三世代X線放射光施設とX線自由電子レーザー施設が併存する世界でもユニークな高エネルギーフォトンサイエンス拠点となった(図4)。両者は共用施設として広く産官学のユーザーに利用されている。

8. おわりに

100年前、Bragg父子の研究とほとんど同時進行で進められた、寺田寅彦のX線回折研究は、日本がこの分野でその後世界に伍して戦っていく基礎を築き、その後続いた西川正治、菊池正士、仁田勇などの努力によって日本の物質科学、材料科学、化学などの分野に大きな影響を与えた。これらの分野で現在仕事をしている多くの研究者のルーツをたどると、西川先生に行きつくのではないかとと思われる。放射光やX線自由電子レーザーも同様であり、西川先生の孫弟子、ひ孫弟子がこの分野で大勢活躍している。

100年を経過し、現時点でしっかりと動くX線自由電子レーザーを持っているのはアメリカと日本だけである。本稿を準備する中で先人の事跡を振り返れば振り返るほど、X線自由電子レーザーによって100年後の日本の科学に対する何らかの寄与をしなければならぬとの思いを強くした。今後とも、世界最高水準のX線自由電子レーザー光、並びに放射光X線を供給していくことが我々の使命であり、利用者の皆様とともに100年後に残る基盤づくりを進めていきたい。

参考文献

- 1) W. Friedrich, P. Knipping and M. Laue: Sitzungsber. K. Bayer. Acad. Wiss. (1912) 303.
- 2) W. H. Bragg: Nature **90** (1912) 219.
- 3) A. E. H. Tutton, Nature **90** (1912) 306.
- 4) W. H. Bragg: Nature **90** (1912) 360.
- 5) W. L. Bragg: Proc. Cambridge Philos. Soc. **17** (1913) 43.
- 6) W. L. Bragg: Nature **90** (1912) 410.
- 7) C. G. Barkla and G. H. Martyn: Nature **90** (1912) 435.
- 8) W. H. Bragg: Nature **90** (1913) 572.
- 9) H. Moseley and C. G. Darwin: Nature **90** (1913) 594.
- 10) E. A. Owen and G. G. Blake: Nature **91** (1913) 135.
- 11) T. Terada: Nature **91** (1913) 135.
- 12) M. de Broglie: Nature **91** (1913) 161.
- 13) T. Terada: Nature **91** (1913) 213.
- 14) M. de Broglie and F. A. Lindemann: Nature **91** (1913) 295.
- 15) W. H. Bragg: Nature **91** (1913) 477.
- 16) W. H. Bragg and W. L. Bragg: Nature **91** (1913) 557.
- 17) 『西川正治先生 人と業績』(西川先生記念会, 1982).
- 18) 桜井敏雄, 編: 『日本の結晶学—その歴史的展望—』(日本結晶学会, 1988).
- 19) 三宅静雄, 岡 邦雄: 日本結晶学会誌 **IV** (1962) 1.
- 20) 上田良治: <http://www.lit.nagoya-u.ac.jp/~kamimura/uyeda4-03.html>
- 21) P. P. Ewald, ed.: *Fifty Years of X-Ray Diffraction* (Springer, 1962).
- 22) A. Authier: *Early Days of X-ray Crystallography* (Oxford Univ. Press, 2013).
- 23) S. Nishikawa and S. Ono: Proc. Tokyo Math-Physics Soc. **7** (1913) 131.
- 24) S. Nishikawa: Proc. Tokyo Math-Physics Soc. **8** (1914) 296.
- 25) A. Schönflies: *Krystallsysteme und Krystalstruktur*, B. G. Teubner (Leipzig, 1891).
- 26) R. W. G. Wyckoff: in *Fifty Years of X-Ray Diffraction*, ed. P. P. Ewald (Springer, 1962) Chap. 18.1.
- 27) 仁田 勇: 高分子 **31** (1982) 448.
- 28) 仁田勇監修: 『X線結晶学』(丸善, 上巻1959, 下巻1961).
- 29) <http://www.iycr2014.jp/>
- 30) 富田 悟: RIKEN NEWS, No. **399** (2014) 15.
- 31) H. Huxley: Proc. Roy. Soc. Ser. B **141** (1953) 59.
- 32) L. de Broglie: Ann. de Physique **3** (1925) 22.
- 33) C. J. Davison and L. H. Germer: Nature **119** (1927) 558.
- 34) G. P. Thomson and A. Reid: Nature **119** (1927) 800.
- 35) 菊池正士: 日本結晶学会誌 **12** (1970) 170.

- 36) S. Kikuchi: Jap. J. Phys. **5** (1928) 83.
- 37) K. Shinohara: Sci. Pap. Inst. Phys. Chem. Res. **18** (1932) 223.
- 38) K. Shinohara: Sci. Pap. Inst. Phys. Chem. Res. **20** (1933) 39.
- 39) H. A. Bethe: Ann. de Physique (Leipzig) **87** (1928) 55.
- 40) 高良和武, 私信.
- 41) S. Miyake and R. Uyeda: Acta Crystallogr. **3** (1950) 314.
- 42) S. Miyake, K. Kohra and M. Takagi: Acta Crystallogr. **7** (1954) 393.
- 43) N. Kato: J. Phys. Soc. Jpn. **10** (1955) 46.
- 44) E. Fukushima: Acta Crystallogr. **7** (1954) 459.
- 45) N. Kato: J. Phys. Soc. Jpn. **11** (1956) 748.
- 46) C. G. Darwin: Phil. Mag. **27** (1914) 315.
- 47) P. P. Ewald: Ann. de Physique **54** (1917) 519.
- 48) M. von Laue: Ergebn. exakt. Naturwiss. **10** (1931) 133.
- 49) N. Kato and A. R. Lang: Acta Crystallogr. **12** (1959) 787.
- 50) A. R. Lang: J. Appl. Phys. **29** (1958) 597.
- 51) N. Kato: Z. Naturforsch. **15a** (1961) 369.
- 52) N. Kato: J. Phys. Soc. Jpn. **18** (1963) 1785.
- 53) S. Takagi: Acta Crystallogr. **15** (1962) 1311.
- 54) N. Kato: Acta Crystallogr. A **32** (1976) 453, 458.
- 55) K. Kohra and S. Kikuta: Acta Crystallogr. A **24** (1968) 200.
- 56) 高良和武, 田中治郎, 富家和雄, 佐々木泰三: 応用物理 **49** (1980) 1066.
- 57) 藤本 勲, 千川純一: 日本結晶学会誌 **12** (1970) 249.
- 58) 佐藤史郎, 千川純一: NHK 技研月報 **22** (1979) 437.
- 59) 石川哲也: パリティ **29** (2014) 6.
- 60) 例えば, S. Krinsky, M. L. Perlman and R. E. Watson: in *Handbook of Synchrotron Radiation*, ed. E. E. Koch (North Holland, Amsterdam, 1983) Chap. 2.
- 61) H. Kitamura, T. Miyahara, M. Watanabe, T. Katayama and T. Sasaki: Jpn. J. Appl. Phys. **15** (1976) 1349.
- 62) J. S. Worgan: Nucl. Instrum. Methods **195** (1982) 49.
- 63) K. Kohra and T. Sasaki: Nucl. Instrum. Methods **208** (1983) 23.
- 64) <http://www.bnl.gov/ps/>
- 65) <http://www.esrf.eu>
- 66) <http://www.aps.anl.gov>
- 67) <http://www.spring8.or.jp>
- 68) <http://www.als.lbl.gov>
- 69) http://www.helmholtz-berlin.de/quellen/bessy/index_en.html
- 70) 大橋治彦, 平野馨一編, 百生 敦: 『増補版 放射光ビームライン光学技術入門』(日本放射光学会, 東京, 2013) 第11章.
- 71) T. Ishikawa, et al.: Proc. SPIE **4145** (2001) 1.
- 72) J. R. Fienup: Appl. Opt. **21** (1982) 2758.
- 73) J. Miao, P. Charalambous, J. Kirz and D. Sayre: Nature **400** (1999) 342.
- 74) J. Miao, T. Ishikawa, B. Johnson, E. H. Anderson, B. Lai and K. O. Hodgson: Phys. Rev. Lett. **89** (2002) 088303.
- 75) <http://xfel.riken.jp>
- 76) 新竹 積, 石川哲也: 日本物理学会誌 **64** (2009) 160.

著者紹介



石川哲也氏: 専門は放射光X線光学、X線自由電子レーザー施設SACLAの建設を主導。

(2014年11月19日原稿受付)

An Alley from 'X-rays and Crystals' by Torahiko Terada to an X-ray Free-Electron Laser, 'SACLA' Tetsuya Ishikawa

abstract: The year 2014 has been designated as the international year of crystallography celebrating the 100th year of X-ray crystallography. In the early stage of the establishment of X-ray crystallography took part Dr. Torahiko Terada. His disciple, Dr. Shoji Nishikawa, has built up a systematic method for X-ray crystal structure analysis by the introduction of the space-group consideration. The method was exported

to the United State when Nishikawa studied there, and contributed to the progression of the X-ray crystallography in the country. The X-ray crystallography in Japan, founded by Nishikawa was advanced in his laboratory of newly-established RIKEN at that time by a number of excellent researchers including Drs. Isamu Nitta and Seishi Kikuchi. Electron diffraction by crystals developed by Kikuchi waked the interest in the dynamical diffraction theory and phenomenon, which later

led to the flowering of the X-ray dynamical diffraction required for the characterization of nearly perfect semiconductor crystals when the semiconductor industries were developed. The advancement of these researches always demanded more intense X-ray sources, which produced the rotating-anode X-ray generators, synchrotron radiation sources, and X-ray free-electron lasers.

『大学の物理教育』誌定期購読のすすめ

『大学の物理教育』は、年3回(3月, 7月, 11月)発行で年間購読料(個人)は1,000円です。購読ご希望の方は、1. 会員番号, 2. 氏名(非会員の方は連絡先, 送付先住所も)をメール(pubpub@jps.or.jp)またはFax(03-3816-6208)でご連絡下さい。

また、本誌ホームページのURLは次の通りですので、どうぞご覧下さい。
<http://www.jps.or.jp/books/kyoikushi/>

『大学の物理教育』編集委員会

Vol. 21-2 (7月15日発行) 目次

「きはじ」と論理的思考 松川 宏

特集 なぜ物理学を学ぶのか

「なぜ物理学を学ぶのか—参照基準の策定に向けて—」

趣旨説明 須藤彰三
 物理系人材の特色とそのキャリアパス 栗本 猛
 大学における工学・技術者教育の方向と物理学—金沢工業大学の視点から— 佐藤恵一
 —企業人の経験と想い—物理出身者として— 城石芳博
 物理学分野の参照基準策定の状況 安田淳一郎
 「なぜ物理学を学ぶのか—参照基準の策定に向けて—」

実施報告と総合討論 須藤彰三, 田中忠芳

講義室
 磁場は B だけではうまく表せない 北野正雄
 対称性を用いたビオ-サバルの法則の初等的導出 山村篤志

教育実践

ゲーム性を取り入れた能動的物理学習の実践
 青木さくら, 遠藤理平
 「見る」とはどういうことか? から展開する体験プログラム
 内田聡子, 岡倉加代子, 小鍛治 優

海外の動向

フィリピン物理学会での物理教育に関するワークショップ報告
 笹尾真実子

連載 物理オリンピックと物理教育

物理チャレンジ2015, いよいよ始まる 長谷川修司
 教育に関する一言 高橋 学/植松祐輝/金長正彦

開催情報

編集後記

我が国における反射高速電子回折の発展と全反射陽電子回折への展開

一宮 彪彦[†] ◇

反射高速電子回折 (RHEED) が我が国から始まった表面評価法ということはあまり知られていない。また、最近始まった全反射高速陽電子回折 (TRHEPD) も我が国発の手法である。高速陽電子はすれすれ入射において、全反射を起こす。この全反射条件では、陽電子の進入深さは 0.1 nm 以下である。したがって TRHEPD は結晶の最表面をバルクの影響なしに、最表面の原子の熱振動振幅すなわち表面デバイ温度など、表面物性の測定に強力な手段となる。本稿では、我が国から始まった RHEED と TRHEPD の発展の過程と最近の成果を解説する。

1. はじめに

反射高速電子回折 (RHEED: Reflection High-Energy Electron Diffraction) の歴史は、我が国から始まったといっても過言ではない。その歴史は、ほとんど電子回折の歴史と変わらない。Davisson と Germer による、電子回折の発見¹⁾ さらに G. P. Thomson,²⁾ 菊池,³⁾ Rupp⁴⁾ によってほぼ同時に透過電子回折の実験結果が発表された時期に、西川と菊池は、方解石の劈開面からの RHEED 実験を行っている。⁵⁾ これらの実験は、主に菊池線の発生メカニズムを解明するために行われたものであるが、その後、理化学研究所の西川研究室において、電子線の屈折によるブラッグ反射角のずれから、結晶の平均内部電位の測定法の開発⁶⁾ や、結晶表面におけるエピタキシャル成長過程の研究⁷⁾ など、現在の RHEED 研究につながる成果が多くなされている。

RHEED 研究は、第 2 次世界大戦以後しばらく停滞し、電子回折の主流は主に透過電子顕微鏡法と透過電子回折の組み合わせによる研究成果が多く発表されている。特に、超高压電子顕微鏡の開発により、電子回折現象を用いた精密構造解析手法として、ある加速電圧で、2 次の菊池線のコントラストが消滅する、2 次反射消滅効果⁸⁾ (のちに臨界電圧効果と呼ばれる) の発見は我が国の電子回折の歴史において、菊池線の発見とともに特筆すべきものである。また最近では、超高真空電子顕微鏡を用いて、表面の透過電子回折による Si(111)7×7 表面構造解析を行った高柳邦夫らの成果⁹⁾ が有名である。

我が国において、再び RHEED 研究が盛んになった功績は、なんといっても井野による超高真空 RHEED の開発¹⁰⁾ と、それによる多くの実験結果であり、その最初の論文に掲載された RHEED 図形の美しさは、表面構造研究者たちを勇気づけた。それまで、表面構造解析は低速電子回折 (LEED: Low Energy Electron Diffraction) が主流であったが、RHEED 強度解析による表面構造解析の機運もこれによって高まり、そのための動力的理論の開発も行われた。¹¹⁾

さらにほぼ同時期に、RHEED によるエピタキシャル成長のその場観察によって、薄膜成長中の回折強度の振動 (RHEED 強度振動)¹²⁾ が発見されたことも、RHEED 研究に拍車をかけた。

RHEED は表面敏感な観察・測定法であるが、電子は結晶ポテンシャルに対して引力を受けるため、いかに表面にすれすれに電子を入射させても、結晶内では、深い角度で入射してしまう。筆者は、結晶ポテンシャルに対して斥力を受ける陽電子を用い、その全反射条件を使うことによって、表面敏感な測定ができると考えた。そこで、理論上どの程度表面敏感であるかを、RHEED 用に開発した計算プログラム¹¹⁾ を用いて、表面吸着がある場合の反射高速陽電子回折 (RHEPD: Reflection High-Energy Positron Diffraction) 強度の計算を行ったところ、吸着状態による全反射強度の異常が見られることを示した。¹³⁾ また、表面原子の熱振動による表面デバイ温度の測定も、バルクの影響なしに測定できることを提案した。¹³⁾ 伊藤らは線形加速器を用いた低速陽電子発生装置を開発し、RHEPD を最初に試みたが、ビームの干渉性が低く、解析に堪える回折図形は得られなかった。¹⁴⁾ その後、この提案は、河裾らによる、放射性同位元素を陽電子源とする低速陽電子ビームを用いた RHEPD 装置の開発¹⁵⁾ によって実現し、主に半導体表面に対して、多くの成果が得られている。さらに、高エネルギー加速器機構 (KEK) における低速陽電子実験施設が開設され、より精度の高い測定が可能となった。¹⁶⁾ 特に陽電子ビームの全反射を利用した全反射高速陽電子回折 (TRHEPD: Total Reflection High-Energy Positron Diffraction) によって、精度の高い表面研究が始められている。¹⁷⁾

2. 初期の RHEED 研究

RHEED 実験で最初に注目されたのは、回折スポットの現れる位置が Bragg の法則に一致しないことであり、その原因が、結晶内部電位による電子線の屈折によることを Thomson が説明した。この結晶内部電位の平均値、平均内部電位 V_0 は、常磁性磁化率 χ と比例する。鏡面反射強度が

[†] 名古屋大学名誉教授。

Bragg 反射によって強められる、いわゆる Bragg ピークの位置の、Bragg の法則からの系統的なずれの測定は、山口によって行われ、種々の物質に対して平均内部電位が求められた。⁶⁾ また、これに関連して、菊池と中川は反射回折における、ある入射条件で異常な回折強度が現れることを発見した。¹⁸⁾ この効果は、その後、表面波共鳴として McRae と Jennings によって説明されている。¹⁹⁾ またその RHEED における出現条件は三宅と早川によって示された。²⁰⁾

1930 年代初頭、RHEED 実験は、研磨された金属表面か、劈開面上に蒸着された薄膜を用いて行われていた。そこでは、種々の RHEED 図形が得られており、その原因について説明が試みられていた。そのなかで、特に問題となったのが、ストリーク状の回折図形であった。この回折図形は、Raether によって、非常にエレガントに説明された。^{21, 22)} この説明で RHEED ストリークは結晶の不完全性による、表面の微小な分域によって生じることが明らかとなった。すなわち、微小な分域によって、逆格子ロッドに広がりがあり、それを Ewald 球が切る断面の蛍光スクリーンへの投影がストリーク状になるということである。

1930 年代から 1940 年初頭にわたって、RHEED は表面酸化過程とエピタキシャル成長過程の研究に多く用いられた。三宅は錫表面の酸化過程のその場観察で、屋根型のファセットを持った酸化物結晶が成長することを RHEED 図形の詳細な解析によって示している。²³⁾ また、上田は種々の単結晶表面上での銀のエピタキシャル成長のその場観察を行い、銀の蒸着量の正確な測定と RHEED 図形の詳細な解析から、銀のエピタキシャル成長モードが島状成長であることを初めて明らかにした。⁷⁾

この後、化学反応過程やエピタキシャル成長過程のその場観察は透過電子顕微鏡による研究が主流となり、RHEED による結晶表面の研究はしばらくの間、下火になってしまった。

3. 超高真空 RHEED による表面研究

我が国における RHEED の真の発展は、1977 年における井野による超高真空 RHEED を用いた Si(111) 表面からの吸着構造を含む種々の非常に美しい RHEED 図形の発表に始まるといってよい。その中でも Si(111)7×7 表面からのパターンは、多くの人の印象に残った。¹⁰⁾ その回折図形を図 1 に示す。これまでも Si(111)7×7 表面からの RHEED 図形は Menadue らによって発表されていたが、²⁴⁾ 井野によるパターンはその鮮明さにおいても群を抜いている。また 830°C における Si(111)7×7 構造の“1×1”構造への相転移において、“1×1”構造に無秩序な $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ 構造が含まれることを初めて示し、¹⁰⁾ その相転移機構についてのその後の研究にも火を付けている。さらに、回折図形の解析から 7×7 構造に表面再構成をしていないバルクの (111) 表面の 2 次元単位格子の 2 倍の周期が存在することを初めて示

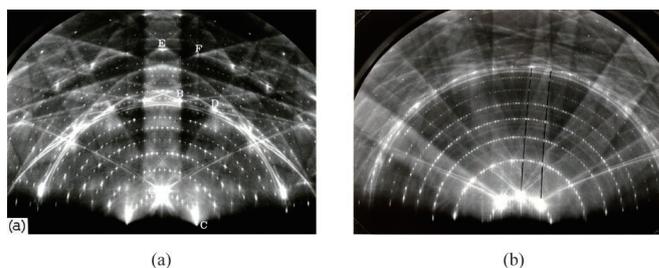


図 1 Si(111)7×7 表面からの美しい RHEED 図形。¹⁰⁾ (a) は $\langle 112 \rangle$ 入射、(b) は $\langle 110 \rangle$ 入射。

唆している。²⁵⁾ Si(111)7×7 構造はその後、超高真空透過電子回折によって高柳らが積層欠陥を含む DAS (Dimer-Adatom-Stacking-fault) 構造⁹⁾ (後述の図 5 に構造の詳細を示す)であることを明らかにしたが、井野が示唆した単位格子の 2 倍の周期の付着原子 (Adatom) の配列が含まれていることは、驚くべきである。井野の結果は世界的に衝撃を与え、それまで低速電子回折 (LEED) が主流であった結晶表面の原子構造解析を RHEED によって行う機運も生まれてきた。

井野のグループはシリコン表面における多くの吸着構造について非常に多くの成果を上げているが、それとともに新しい手法も生み出している。特に、長谷川および大門らと開発した RHEED の電子ビームで励起した X 線の全反射を用いる、RHEED-全反射角 X 線分光法 (RHEED-TRAXS: Total-Reflection-Angle X-ray Spectroscopy) は構造解析とともに表面組成の深さ方向分析を可能とした画期的な方法である。²⁶⁾ さらに、RHEED の試料台に 4 端子電極を取り付け、結晶表面の金属吸着状態と表面電気抵抗を、RHEED 観察と同時にを行うことを可能とし、表面構造と電子状態に関する研究の新しい局面を切り開いた。²⁷⁾

RHEED の研究が盛んになることとほぼ並行して、東工大の本庄グループは超高真空電子顕微鏡を開発した。八木らはその顕微鏡を用いて、反射電子顕微鏡法 (REM: Reflection Electron Microscopy) を開発し、結晶表面における動的な変化を観察することに成功した。²⁸⁾ 特に、Si(111)7×7 構造から 1×1 構造への相転移における 1×1 構造領域の拡大する様子の電子顕微鏡像は世界中の注目を集めた。²⁹⁾ さらに、シリコン表面の加熱電流の方向によって、ステップバンチングが起きることを初めて明らかにし、それによって、広いテラスの作製が可能となった。³⁰⁾ またシリコン表面に吸着した金属のエレクトロマイグレーションの機構を明らかにするなど、表面研究分野に多く衝撃を与えた。³¹⁾

世界的に RHEED が盛んになったもう一つの要因は、1981 年に Harris らによって発見された、エピタキシャル成長中の RHEED 強度振動である。¹²⁾ 我が国でも坂本らが Si(100) 表面上の Si 成長で、美しい強度振動を観測し、³²⁾ エピタキシャル成長速度の測定を可能にするとともに、精度の良い量子井戸構造作製の基礎データを与える道筋を作った。一方、市川と早川によるマイクロ電子ビームによ

る RHEED (μ -RHEED) は、エピタキシャル成長中の結晶表面の実空間観測を可能とした。³³⁾ この手法は我が国発であり、その成果は世界の注目の的となった。市川らは主にシリコン表面におけるエピタキシャル成長過程を観察し、RHEED 強度振動と成長核の分布や、表面形状の変化を明らかにし、世界的に注目を集めた。³⁴⁾

4. RHEED による表面構造解析

電子線は結晶原子との相互作用が大きいので、結晶内で多重散乱する。したがって、電子回折では1回散乱を仮定した運動学的理論では、定量的な解析はできない。そのため、多重散乱を取り入れた動力学理論が必要である。電子回折の動力学理論は、Bethe によって最初に発表された。³⁵⁾ Bethe の理論は、透過電子回折では一般的に使われているが、反射回折では、結晶表面における境界条件で、結晶内の運動量分散の縮退が起き、定量的な解析には実用的ではない。Harding³⁶⁾ は反射回折に適する理論を発表しているが、再構成表面の解析には不向きである。さらに、Menadue²⁴⁾ が Si(111)7×7 表面からの RHEED ロッキング曲線(入射角依存性)および入射方位依存性の測定カーブを発表したことで、それを解析するために、Moon³⁷⁾ および Collera³⁸⁾ によって、コンピュータ計算のための種々の方法が提案されたが、やはり表面再構成に対応させるには難しさがあつた。

表面再構成構造に対する RHEED 強度計算を可能にさせるには、神戸が提案したように、結晶ポテンシャルを結晶表面に平行に2次元フーリエ展開することが必要である。³⁹⁾ この手法を用いた RHEED 動力学理論は Maksym と Beeby による手法⁴⁰⁾ と、筆者による手法¹¹⁾ がほぼ独立に提案された。同様の方法は、後に Zhao らによる R-Matrix 法⁴¹⁾ や Meyer-Ehmsen による WKB 法⁴²⁾ また Nagano による方法⁴³⁾ が提案されている。さらに、Peng と Cowley は透過電子回折の強度計算の手法を反射回折に応用する方法を開発している。⁴⁴⁾ この手法は、REM 像の解釈に非常に適した方法である。

X 線回折による構造解析と異なり、電子回折では動力学的回折効果が大きく、運動学的回折理論による Patterson 関数を用いた解析は難しい。したがって、構造解析は、原子構造モデルを仮定して、回折強度を計算し、測定結果と比較する、いわゆる試行錯誤の方法によるしかないのが現状である。そのため、完全に未知な結晶表面の場合、表面原子構造解析は単位胞の小さい、比較的簡単な結晶表面構造を持つ結晶表面に限られる。表面再構成構造を持つ結晶表面の場合、構造に関連した種々の情報、たとえば、走査トンネル顕微鏡 (STM: Scanning Tunneling Microscope) 像や、光電子分光等による表面近傍のエネルギー状態の情報、吸着表面であれば、吸着量の情報等が、電子回折の情報とともに必要となる。これらを総合して、結晶構造を決定してゆくのである。このような難しさがあるために、RHEED

による結晶表面の原子構造解析は我が国を除いてほとんど発展していない。²²⁾

RHEED による実際の表面原子構造解析は、1983 年の堀尾と筆者による Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag の構造解析である。⁴⁵⁾ 電子線の入射方位を結晶の対称軸からずらすことで、動力学的回折効果を極力抑えて、鏡面反射ビームのロッキング曲線を測定し、Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag 表面の銀原子の位置の表面垂直成分を運動学的に決定した。この回折条件は鏡面反射以外の回折強度が非常に弱く、1つのビームすなわち鏡面反射ビームのみが強いので、1波条件と呼ぶこととした。⁴⁶⁾ 1波条件での動力学計算は非常に簡単でもあり、運動学的理論による解析と併用して、結晶表面における原子位置の表面垂直成分を比較的容易に決定できる手法として確立した。この方法で、1つの原子の原子位置の3つのパラメータ、すなわち表面平行方向の2つの成分と垂直方向の成分、のうちの1つを決めることで、他の2つの成分を、平行方向の成分の情報が得やすい、対称軸に沿った入射条件でのロッキング曲線の解析によって、決定することが比較的容易になる。

この手法で行った表面構造解析としては、高温における Si(111) 表面の無秩序な $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ 構造を含む“1×1”構造の解析が最初である。⁴⁷⁾ この構造解析では、Si(111)7×7 構造の知識を使っている。すなわち、7×7 から“1×1”構造への相転移において、1波近似におけるロッキング曲線がほとんど変化せず、DAS 構造の付着原子がほぼ同じ高さで分布していることがわかった。それまでに、高温における Si(111) 表面構造としては、緩和したバルク表面モデル、空孔を含む緩和したバルクモデル、および無秩序な DAS モデルが考えられていた。しかし、1波近似のロッキング曲線の結果から、無秩序な DAS モデルのみが残った。解析の結果、高温における Si(111) 表面の構造は緩和したバルク表面に、DAS 構造の付着原子とほぼ等しい密度の付着原子が分布する構造との結論を得た。この結果から、この表面の7×7 から“1×1”構造への相転移は、秩序無秩序相転移(いわゆる2次の相転移)ではなく、構造相転移(1次の相転移)であることが明らかになった。また、無秩序な付着原子は2つの異なる付着サイトに分布し、DAS 構造の付着原子サイトと等価な位置に75%、残りのサイトに25%分布することも明らかにしている。⁴⁷⁾

深谷と重田は高温における Si(111) 表面の構造を RHEED ロッキング曲線により詳細に測定し、シリコン表面における原子の振動振幅の表面平行成分が図2に示すように1,540 K において極めて大きい異常を示すことを初めて示した。⁴⁸⁾ これにより、この温度での Si(111) 表面における表面融解の存在を明らかにしている。また、Si(001)2×1 表面の2量体構造の非対称-対称相転移が900 K において存在し、さらに1,440 K において、表面融解が起きることを明らかにしている。⁴⁸⁾

GaAs(001) 表面は基板温度および砒素圧によって

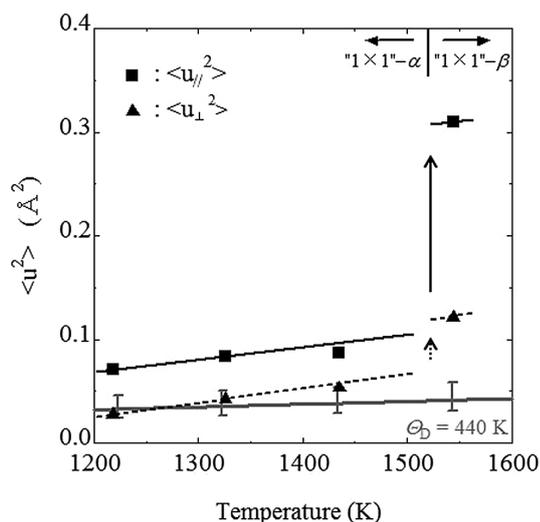


図2 高温におけるSi(111)“1×1”構造の表面原子の平均二乗振幅の温度依存性。1,540 Kで、表面平行方向の振幅が大きく上昇している。⁴⁸⁾

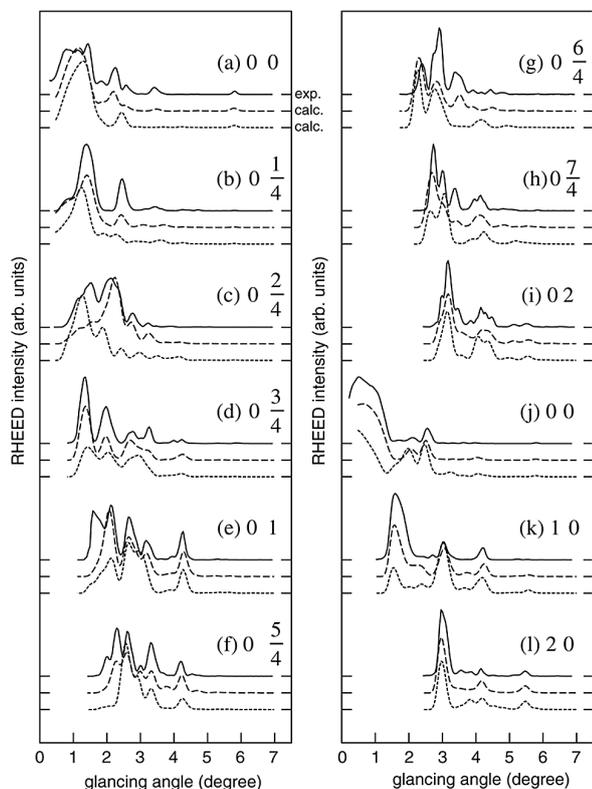


図3 GaAs(001)4×2β相からのRHEEDロックンク曲線。実線が実験曲線。破線がβ2構造を仮定した計算曲線。点線は3個の2量体を仮定した計算曲線。⁵⁰⁾

種々の構造を取ることが知られている。そのなかで、GaAs(001)4×2表面のβ相は3個の砒素2量体が並んだ構造とされていたが、橋詰らはSTM像とRHEED強度の動力学的解析によって、現在β2構造として知られる砒素2量体が2個並んだ構造であることを明らかにした。⁴⁹⁾ 大竹は図3のように、RHEEDロックンク曲線のさらに詳しい解析を行い、基板温度520°C、砒素雰囲気中でのβ相が2量体2個のβ2構造であることを明らかにした。⁵⁰⁾ 大竹は、さらに580°Cでは、β2構造とα層における2量体が1個の

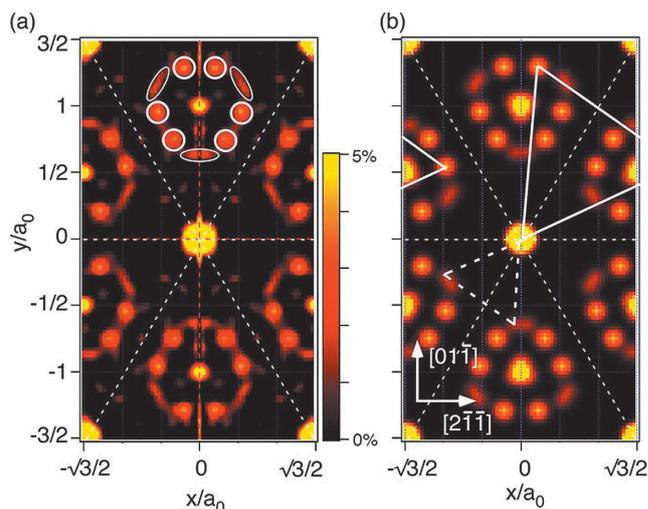


図4 Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag表面からのW-RHEED図形のPattersonマップ。⁵¹⁾ (a)は実験で得られたマップ。(b)は第1原理計算で得られた構造⁵⁴⁾によるシミュレーションマップ。

構造が混在していることを明らかにしている。また、GaAs(001)表面の他の再構成構造に関して、RHEEDロックンク曲線の詳細な解析によって、その原子配列構造を明らかにした。

以上のようにRHEEDによる結晶表面の原子構造解析では、電子ビームの動力学的回折効果のためにPatterson関数による解析は難しい。これを克服する試みが、虻川らによるWeissenberg法の導入である。⁵¹⁾ この手法はX線回折で行われているが、これをRHEEDに導入している。これは結晶を表面垂直軸の周りに入射角を一定にして精密に回転させながら100枚以上のRHEED図形を取得し、一定の出射角に対して回折強度をプロットする。これがWeissenberg写真になる。さらに同様の手順で入射角を変化させて個々の強度を平均して、それを出射角、すなわち波数ベクトルの表面垂直成分の関数としてプロットする。こうして、回折強度の平均値の波数ベクトルの表面平行成分と垂直成分に対するマップが作られる。これによって、動力学的効果を減少させ、このマップをPatterson関数、すなわち運動学的理論で解析しようとする画期的な試みである。

虻川らはこのWeissenberg-RHEED (W-RHEED) 手法によって、Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag表面、⁵¹⁾ Si(111)5×2-Au表面⁵²⁾ やエピタキシャル成長表面⁵³⁾ の解析を行っている。図4は低温(105 K)のSi(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag表面からのW-RHEED図形を解析して得られたPattersonマップと第1原理計算で得られた非等価三量体 (In-Equivalent Trimer: IET) 構造⁵⁴⁾ から計算したPattersonマップを比較した結果である。この結果は非常によく一致している。また、表面X線回折によるPattersonマップともよい一致を示すとともに、他の表面構造解析の結果とも一致している。したがって、このW-RHEED法は表面構造解析にかなり強力な手法であることがわかる。

5. エピタキシャル成長中の表面研究

RHEEDは、試料上方が開いており、結晶表面上における真空蒸着中の構造変化をその場観察できる特徴を持つ。特に、蒸着量を制御できる分子線蒸着法(分子線エピタキシー)によって、蒸着量とRHEEDパターンとの関係なども研究されるようになった。その中で、エピタキシャル成長中のRHEED強度振動の発見は、薄膜結晶成長の世界に衝撃を与えた。

エピタキシャル成長中にRHEED強度が振動する理由は、基板上の結晶が層状成長していることにより、1層完成する間に、成長核により表面に凹凸ができ、層の完成とともに凹凸が消えるため、凹凸による散乱によってRHEED強度が減少するとして説明されていた。これについて、川村らは、RHEEDの動力学的計算によって、表面のステップ構造の周期的変化で振動が起きることを初めて示した。⁵⁵⁾ 一方、運動学的回折理論からは、層状成長中の基板側のテラスの面積と上部のテラスの面積の比が1対1になるときに強度が最小になることが推測できた。⁵⁶⁾ また、ステップ密度がRHEED強度に関与しているとする解釈も現れた。さらに、1層成長する間に強度が2回極小となる場合もあり、これらの解釈についての議論も巻き起こっていた。²²⁾ この2回の極小が現れる原因については、堀尾らが成長層の平均のポテンシャル変化によって説明し、現在この解釈が支持されている。⁵⁷⁾ またステップ密度が関与する場合に関しても、筆者らによって、あるステップ密度ではこの効果が顕著になることを明らかにした。すなわち、RHEED強度振動の機構は、ステップ密度によって異なり、ステップ密度が低い場合は、上下のテラス間の干渉により説明でき、ステップ密度が高い場合は成長層の平均ポテンシャルの変化で説明できる。また、中間のステップ密度では、RHEED強度にステップ密度が寄与することもわかってきた。⁵⁸⁾

エピタキシャル成長中の表面構造変化は、成長機構を理解するうえでも重要である。市川らは μ -RHEEDにより、Si(111)上のSi成長を詳しく観察し、また、RHEED強度振動と成長表面からの顕微鏡像から、成長中の構造について詳しく示している。³³⁾ 中原らはSi(111)表面上のSi成長について、成長中のRHEEDロック曲線の変化を解析し、蒸着されたシリコン原子が付着原子(Adatom)の結合を切断して、準安定構造を形成し、それによって、DAS構造の積層欠陥領域が順積層となることで成長が進むことを示した。⁵⁹⁾ また、成長中は、7×7構造のみではなく、5×5構造が現れることを示し、この2つの構造の小さい分域の形成により、成長が容易に進むことを示した。これについては、既に市川らによる μ -RHEED観察で、狭いテラスに5×5構造が出現することが指摘されていた。³³⁾

深谷らは磁場偏極ビームロックによるRHEEDロック曲線の高速測定法を開発し、Si(111)7×7表面上のSi成長について非常に詳細な測定・解析を行い、成長中の

構造を詳しく決定している。⁴⁸⁾ その結果、成長中に原子位置が非常に大きく変化することを明らかにしている。また、RHEED振動の位相が、入射視射角によって明確に変化することを示している。

6. 反射高速陽電子回折(RHEPD)による表面研究の優位性

結晶表面の研究を行う場合、最表面よりも深いところの情報が得られない方法で測定することが望ましい。RHEEDは比較的表면에敏感な測定法ではあるが、結晶ポテンシャルは電子に対して引力として働くため、RHEED強度には、結晶の深いところの情報が含まれてしまうのはやむを得ない。そこで、筆者は結晶表面における鏡像力の影響を受けにくい、高速陽電子による反射回折法、すなわち反射高速陽電子回折法(RHEPD)を提案した。¹³⁾ 結晶ポテンシャルは高速陽電子に対して斥力として働くため、全反射の条件が得られる。通常、粒子ビームの運動量の表面平行成分は結晶の内外で保存されるため、斥力の効果は表面垂直成分に現れる。真空中および結晶中の陽電子の運動エネルギーにおける運動量の表面垂直成分の寄与(運動エネルギーの表面垂直成分と呼ぶことにする)をそれぞれ E_{0n} および E_n とし、結晶の平均内部ポテンシャルを V_0 、陽電子の電荷を e とすると結晶内部の平均の運動エネルギーの表面垂直成分は

$$E_n = E_{0n} - eV_0$$

となる。ここで E_n が負になると、陽電子は結晶中に侵入できないので、 $E_{0n} = eV_0$ で全反射の臨界角が得られる。真空中の運動エネルギー E_0 の陽電子ビームの結晶表面への入射視射角を θ とすると、 $E_{0n} = E_0 \sin^2 \theta$ なので、臨界角では $\sin^2 \theta = eV_0/E_0$ である。シリコンの場合、平均内部ポテンシャル V_0 は12Vなので、10kVで加速された陽電子線に対して、 $\sin^2 \theta = 1.2 \times 10^{-3}$ である。したがって、臨界角は 1.99° となり、これ以下の入射視射角で全反射が起きる。この全反射条件における陽電子の進入深さ Λ はエネルギーをeVで表すと、

$$\Lambda = (\hbar^2/8m)^{1/2}/(-E_n)^{1/2} = 0.0976/(eV_0 - E_0 \sin^2 \theta)^{1/2} \text{ (nm)}$$

となる。平均内部ポテンシャル12V、陽電子の運動エネルギー10keVの場合、進入深さは入射視射角 1.7° までは、吸収による虚ポテンシャル1.5Vに対して、吸収がない場合とほとんど差がない結果を得た。また、臨界角においても進入深さは0.1nm(1Å)程度である。すなわち高速陽電子ビームは全反射領域ではたかだか1Å程度しか侵入しないので、回折強度に寄与するのは、ほとんど表面1原子層のみになる。従って、RHEPDの全反射領域での回折強度を測定することで、結晶最表面の構造および熱振動や相転移等を結晶内部の影響なしに測定することが可能になるのである。

RHEPDの全反射領域で、陽電子ビームの進入深さが1原子層程度であることを実験的に示した例をSi(111)7×7表面について示す。図5はSi(111)7×7表面のDAS構造の原子配列を示したものである。⁹⁾ 図6は10 kVで加速された陽電子ビームを視射角1.3°で入射させた時の計算と実験のRHEPD図形である。¹⁷⁾ この条件は全反射条件であるので、TRHEPD図形と呼ぶことにする。図6(a)~(d)は519ビームによる動力的計算によって得られたTRHEPD図形である。(a)は結晶全体を含めて計算した結果で、実験結果(e)とよく一致している。(b)は図5(b)に示す付着原子のみの配列による計算結果で、実験回折図形と比較すると、かなり特徴は似ているが、まだ一致は悪い。しかし図5(c)に示す付着原子と第1層を含めた配列からの計算結果(c)は、既に実験結果と非常に良い一致を示している。しかも(c)の計算結果は(a)の結果ともほとんど一致している。図5(d)に示す付着原子から第2層まで含めた計算結果は(a)の結果との差が0.5%以下となっている。同様の比較を全反射領域から少し外れた、入射視射角2.1°において行った結果、第2層まで含めた計算結果と実験結果の一致は非常に良いことが示された。したがって、TRHEPDでは回折図形の実験結果を解釈するうえで、全反射条件では、第2層まで含めれば十分であり、入射視射角が低い場合は付着原子と第1層だけでも、十分に解析に堪えることを示している。同様の比較をRHEEDにおいても行ったが、実

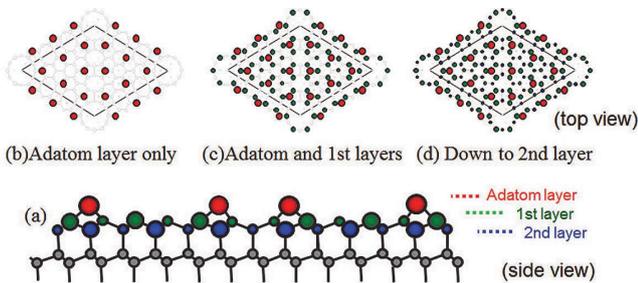


図5 Si(111)7×7表面のDAS構造の原子配列。⁹⁾ (a)は側面から見た原子配列。(b)~(d)は表面上方から見た原子配列。(b)は付着原子のみの配列。(c)は付着原子と第1層原子の配列。(d)は付着原子層から第2層までの原子の配列。

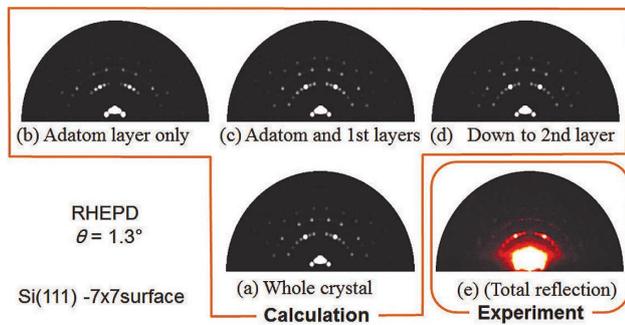


図6 Si(111)7×7表面からの全反射条件(入射視射角1.3°)における計算および実験TRHEPD図形。¹⁷⁾ (a)~(d)は519ビームによる動力的計算で得られたTRHEPD図形。(e)は加速電圧10 kV、入射方位<112>における実験パターン。(a)は結晶全体からのTRHEPD図形。(b)は付着原子配列のみからのTRHEPD図形。(c)は付着原子層と第1層の原子配列によるTRHEPD図形。(d)は付着原子から第2層までの原子配列によるTRHEPD図形。

験によるRHEED図形の強度分布と計算による強度分布の一致は悪く、その原因は、2層以下の原子位置の寄与とともに、結晶内で、Ewald球の半径が大きくなるために、より多くのビーム数が要求されるためと考えられる。したがって、TRHEPDは特に大きい単位胞を持つ複雑な表面原子構造の解析には、非常に強力な方法である。

7. TRHEPDによる吸着構造解析

結晶表面に吸着層がある場合、全反射条件におけるロッキング曲線にその寄与が大きく現れる。吸着層の存在により、平均内部ポテンシャルは吸着層のポテンシャル V_A とバルク層のポテンシャル V_B に分けて考える必要がある。吸着層の平均ポテンシャルがバルク層のそれよりも小さい場合、ロッキング曲線の全反射領域に特徴的な強度減少が現れる。

入射陽電子の真空中の運動エネルギーの表面垂直成分 E_{0n} が吸着層のエネルギーバリア eV_A よりも小さい場合、吸着層表面で全反射する。入射視射角を大きくしてゆくと E_{0n} は eV_A よりも大きくなり吸着層を通過して、吸着層とバルク層の界面で全反射する。このとき陽電子ビームが吸着層内で、非弾性散乱による吸収を受けなければ、入射波も反射波も吸着層の影響を受けず、反射強度は入射強度と等しくなる。したがって、吸着層の存在は反射強度のみからは検出されないはずである。実際には、陽電子ビームは吸着層内で非弾性散乱するため、吸着層内での散乱吸収が起きる。このときの陽電子ビームの吸収係数は $1/(E_{0n} - eV_A)^{1/2}$ に近似的に比例するため、 E_{0n} が少し eV_A よりも大きくなったところで吸収が非常に大きくなり、反射強度は急激に減少する。その後再び反射強度は回復し、吸着層とバルク層の界面での全反射が効くようになる。すなわち、全反射領域に強度の極小が現れる。

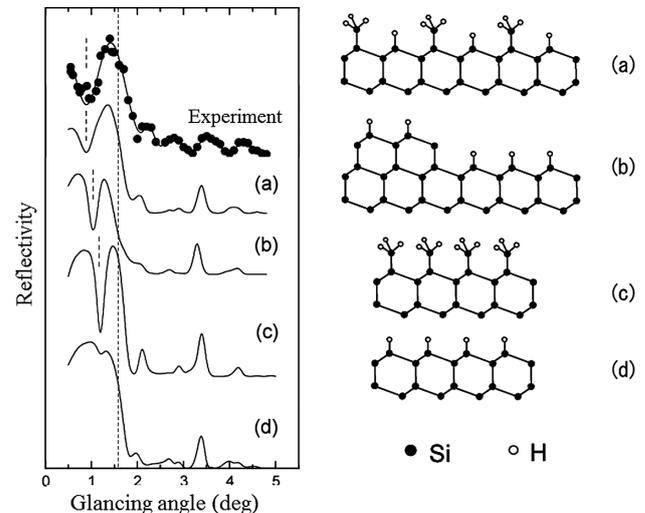


図7 ウェット処理をした水素終端Si(111)表面からのRHEPDロッキング曲線および、右に示した構造モデルによる動力的計算曲線。ロッキング曲線(a)~(d)は右の構造モデル(a)~(d)に対応している。陽電子ビームの加速電圧は15 kVである。⁶⁰⁾

この手法を使って、河裾らはウェット処理をした水素終端 Si(111) 表面の構造解析を行った。⁶⁰⁾ 図7はこの水素終端した Si(111) 表面からの鏡面反射ビームの RHEPD ロッキング曲線である。この場合加速電圧は 15 kV なので、全反射領域は 1.62° 以下になる。これからわかるように、S(111) 表面上の吸着層の密度によって、全反射領域に現れる強度の極小の深さや位置が異なる。この窪みの位置と深さから、水素終端表面の構造は単純に H が吸着した構造と SiH_3 構造とが混在することを明らかにした。

一方、吸着層の平均内部電位がバルクのそれよりも大きい場合、全反射領域がバルクによる位置よりも高角度側に移動する。この場合は、全反射領域に強度の極小部分が現れることはない。この条件は、例えば Si 表面に重元素が吸着した場合などに現れる。

Si(111) 表面に Ag を 700 K で 1 原子層 (Si(111) の 1 原子層の密度と同等) 吸着させると $\text{Si(111)-}\sqrt{3}\times\sqrt{3}\text{-Ag}$ 構造が形成される。この表面に室温で約 0.15 原子層 Au を蒸着すると $\text{Si(111)-}\sqrt{21}\times\sqrt{21}\text{-Au}$ 表面が形成される。⁶¹⁾ また、110 K の低温で、約 0.15 原子層吸着させると $\text{Si(111)-}\sqrt{21}\times\sqrt{21}\text{-Ag}$ 構造が現れる。⁶²⁾ これら構造は $\text{Si(111)-}\sqrt{3}\times\sqrt{3}\text{-Ag}$ 表面上に Cu などの貴金属や Na, K, Cs などのアルカリ金属の吸着においても出現する構造であり、また、高い表面電気伝導度を示すことが知られている。⁶³⁾ これらの表面の原子構造は STM 像や、表面電子状態から同じ構造を取ると考えられるが、複雑な構造のために、STM 観察のみによる構造モデルの提案のみで、構造解析はなされていなかった。

深谷らはこの複雑な吸着表面の構造解析として、 $\text{Si(111)-}\sqrt{21}\times\sqrt{21}\text{-Ag}$ 表面に TRHEPD を応用した。⁶⁴⁾ その結果、1 波条件におけるロッキング曲線が、 $\text{Si(111)-}\sqrt{3}\times\sqrt{3}\text{-Ag}$ からの 1 波ロッキング曲線とほとんど同じであり、また全反射領域にほとんど窪みは見られていないことが示された。また、表面の Ag の密度が Si の密度よりも約 15% 大きいことから、全反射領域は、Si 表面における入射視射角 2° よりも高い角度、約 3° 、まで広がっている。このことから、深谷らは、この構造を形成する Ag の吸着位置はほとんど $\text{Si(111)-}\sqrt{3}\times\sqrt{3}\text{-Ag}$ 構造の Ag の位置に近い位置にあることを明らかにした。Ag の吸着位置に関しては、相沢らの理論計算結果があり、⁶⁵⁾ その結果は実験結果とは一致していない。理論構造の場合、全反射領域にはっきりとした窪みが現れ、実験結果とは明らかに一致しない結果となる。

以上の解析を基にして、入射視射角が全反射領域の 2.7° において、 $1/7$ ラウエゾーンに現れる回折強度の実験値と動力的計算によって、Ag の位置を決定している。⁶⁴⁾ このように、全反射を利用することで、原子位置の不確実性を減らすことができ、かなり複雑な表面構造に対しても、TRHEPD によって、信頼性の高い構造解析が可能となる。

8. TRHEPD による表面物性の研究

8.1 表面デバイ温度の測定

Si(111)- 7×7 の最表面には図5に示したように、シリコンの Adatom があり、この原子の環境は、下の層の原子とはかなり異なった環境にある。⁹⁾ したがって、この Adatom の振動振幅はバルクに比較してかなり大きくなると考えられる。また Si(111) 表面の 7×7 構造から “ 1×1 ” 構造への相転移では、Adatom が (111) 表面で無秩序に配置するとともに構造相転移が起きると考えられており、Adatom の振動振幅に関する知見は、表面構造相転移の機構の理解にも役立つと考えられる。

図8は加速電圧 20 kV の陽電子ビームに対する種々の回折条件で測定された回折強度の温度変化を示している。⁶⁶⁾ 入射視斜角 θ が 1.0° の全反射条件下での鏡面反射強度、すなわち (00) ロッドからの強度の温度変化はあまり大きくない。しかし、(11) ロッドからの強度は大きな温度依存性を示している。一方、全反射領域から外れた鏡面反射、111 ブラッグ反射と 444 ブラッグ反射の強度は顕著な温度依存性を示している。これらの反射強度の温度依存性を動力的回折強度計算¹¹⁾により、測定値と比較することにより、表面デバイ温度を決定することができる。

図8の測定条件における反射強度の温度変化について表面デバイ温度を 290 K に固定し、バルクデバイ温度を 300 K および 600 K として動力的回折理論により計算した。その結果から、入射視斜角 1.0° における全反射領域では、バルクのデバイ温度を変化させても反射強度にほとんど影響が無いことが明らかとなった。⁶⁶⁾ また、全反射領域から僅かに大きい 1.6° 入射、すなわち 111 ブラッグ条件で

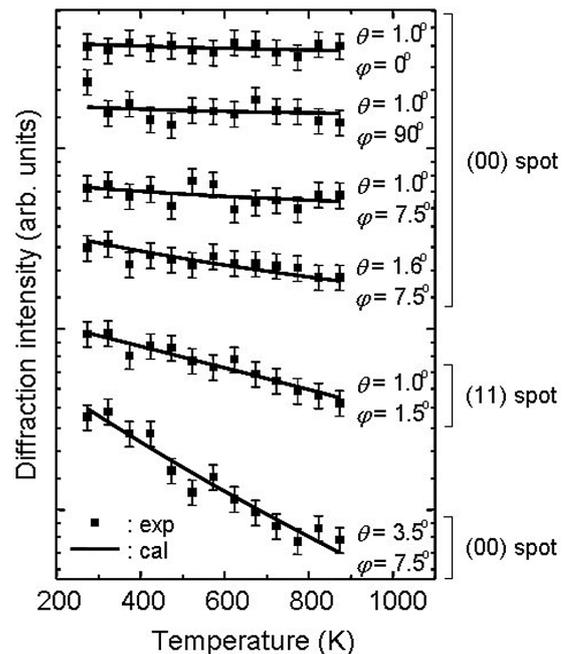


図8 Si(111)- 7×7 表面からの RHEPD 強度の種々の回折条件における温度依存性。⁶⁶⁾ 実線は表面デバイ温度 290 K、バルクのデバイ温度 600 K として動力的計算によって得られた曲線。図中、 ϕ は入射ビームの方位角の結晶軸 (112) からのずれの角度である。

も、バルクの熱振動の影響がほとんど無い結果となった。一方、444ブラッグ反射はバルクの影響が強く、陽電子ビームは結晶内部に深く侵入していると考えられる。³⁴⁾ そのため444ブラッグ反射強度はバルクのデバイ温度によって、温度依存性が大きく異なり、これによって、バルクのデバイ温度の測定が可能である。

全反射領域における鏡面反射強度の温度依存性は主に熱振動による陽電子の吸収係数の温度変化によっており、強度変化が僅かである。したがって、全反射領域の鏡面反射強度の温度変化から表面デバイ温度を求めるのは難しいが、(11) ロッドの回折強度の温度変化を動力学理論¹¹⁾を用いて解析することにより、表面デバイ温度を求めることができる。また、111ブラッグ反射強度の温度変化は、表面垂直方向の熱振動振幅に関係しており、表面デバイ温度の表面垂直成分を求めることができる。図8に示す測定結果を動力学計算による解析で得られたSi(111)-7×7表面の表面デバイ温度は、表面平行および垂直成分ともに290 Kとなった。⁶⁶⁾ 一方、444ブラッグ反射強度の温度変化からバルクのデバイ温度が求まり、その値は600 Kとなった。すなわち、表面デバイ温度はバルクの約半分である。またバルクのデバイ温度は文献67の値とほぼ一致している。

過去に得られたSi(111)-7×7構造の表面デバイ温度については、深谷らが反射高速電子回折によって測定を試みている。⁴⁸⁾ その時の値は420 Kであり、RHEPDによって得られた値よりもかなり大きい。これは、バルクの影響を十分に取り除くことができなかつたためと考えられ、バルクの値600 Kと表面の値290 Kの中間の値を取っている。また、RobinsonらはX線回折によるSi(111)(7×7)表面構造解析において、最適値を得る条件として、Adatomの平均二乗振幅の平方根(平均振幅)の値を室温において0.012 nm(0.12 Å)と推定している。⁶⁸⁾ この値を表面デバイ温度に変換すると約350 Kとなり、RHEPDで得られた値よりも60 Kほど高い値になっている。

RHEPDによって測定された室温におけるAdatomの平均振幅の値は、0.013 nm(0.13 Å)であり、X線で得られた値と近いが、その差は測定誤差以上であり、この違いは大きいと見るべきである。Adatomの平均振幅に対して、バルク原子の平均振幅は0.007 nm(0.07 Å)であり、約半分の振幅である。Si(111)-7×7表面構造が“1×1”構造に相転移する温度近傍、1,000 Kにおいては、Adatomの平均振幅は0.025 nm(0.25 Å)となり、かなり大きい変位を示す。またシリコンのバルクの融点近傍約1,700 Kにおける平均振幅はバルクのデバイ温度から0.016 nm(0.16 Å)と推定される。この値と比較してもAdatomの平均振幅はかなり大きい。因みにSiの融点以上でもデバイ温度が変わらないと仮定すると沸点における平均振幅は0.02 nmである。これから熱振動振幅が0.02~0.03 nm近傍から化学結合が切れやすくなっていると考えられる。したがって、Si(111)-7×7構造から“1×1”構造への相転移は、Adatomが相転移温度付

近において、Adatomの結合が切れ、2次元気体状態となり、かなり動きやすくなったことがトリガーとなって、引き起こされたと考えられる。

表面原子の熱振動と表面相転移の関連については上でも述べたが、Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag表面のHoneycomb Chained Triangle(HCT)構造⁶⁹⁾からIET構造⁵⁴⁾への相転移についても、銀原子の熱振動振幅の役割が大きいと思われる。ここでは、次項で示す表面相転移機構の研究過程で得られた表面デバイ温度の測定結果について述べる。この表面では銀原子が最表面に露出しており、全反射領域では銀原子の平均振動振幅が測定できる。測定の手順は前項のSi(111)-7×7の方法と同様である。

Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag表面からの反射強度の温度依存性の測定⁷⁰⁾からは、表面デバイ温度の表面垂直成分を140 K、表面平行成分を110 K、バルクのデバイ温度を610 Kとして動力学計算を行った結果が、実験結果と良い一致を得た。バルクのデバイ温度は当然ではあるがSi(111)7×7の結果と誤差範囲内で一致している。表面平行成分のデバイ温度は垂直成分に比べて少し低い値を示している。これは、表面平行方向に振動振幅が大きいことを意味する。Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag表面の銀原子に対する表面平行成分のデバイ温度は表面X線回折法によっても測定されており、⁷¹⁾ その値90 Kは、RHEPDで得られた値とほぼ一致している。またモンテカルロシミュレーションによる理論値も90 Kである。⁷²⁾

表面デバイ温度の値から、銀原子の熱振動の平均振幅を求めると、相転移の起きる温度近傍、120 Kでは0.011 nm(0.11 Å)、室温、300 Kでは0.018 nm(0.18 Å)、また銀が脱離する温度800 Kでは0.030 nm(0.3 Å)である。垂直成分は300 Kで0.014 nm(0.14 Å)、800 Kで0.023 nm(0.23 Å)である。銀原子の脱離温度における平均振幅はSi(111)7×7表面の相転移温度におけるAdatomの2次元気体化での平均振幅0.025 nmに対応し、熱振動振幅の上限値と脱離温度との関連があるように思われる。また、前項でも述べたように、銀原子の場合でも熱振動振幅が0.02~0.03 nm近傍から化学結合が切れやすくなっていると思われる。

8.2 表面相転移

TRHEPDでは表面第1層のみの構造からの情報を得ることができる。この利点を生かして、結晶表面の相転移における原子の状態の変化をバルクの原子移動を考慮せずに決定することができる。相転移過程を調べるには表面構造解析が必要であり、必然的に表面構造の決定も行う。

ここでは相転移の例としてSi(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag表面の相転移過程について詳細に述べる。⁷⁰⁾ Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag表面構造は120 K近傍でIET構造からHCT構造に相転移することは前項でも述べた。図9は、10 keVの陽電子ビームの〈112〉入射におけるRHEPD図形の温度変化と(00)、(1/3 1/3)および(2/3 2/3)ロッドの強度の温度依存性を示している。図9(a)において、(00)ロッドと(2/3 2/3)ロッド

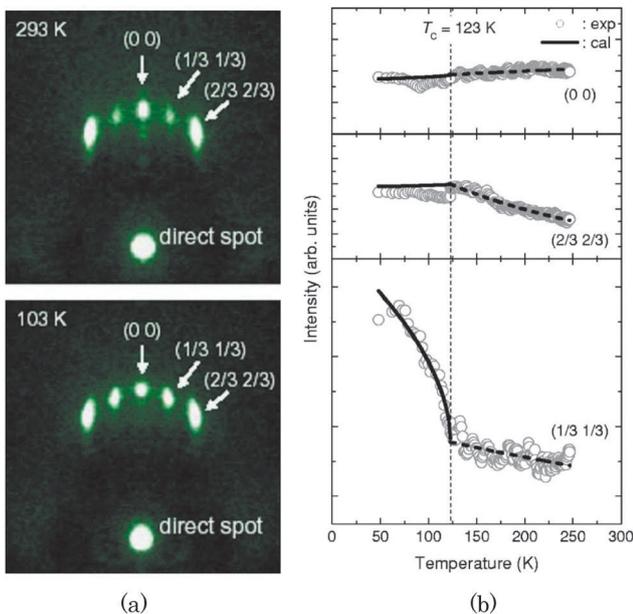


図9 Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag表面からのTRHEPD図形と回折強度の温度依存性。⁷⁰⁾ 入射視射角 3° 。陽電子ビームの加速電圧は10 kVである。(a) 室温および103 Kにおける回折図形。(b) 回折強度の温度依存性。

ドの強度はほとんど温度依存性を示していないのに対して、(1/3 1/3) ロッドの強度は室温で非常に弱くなっている。図9(b) はこれらの回折強度を温度に対してプロットしたものである。これから、(1/3 1/3) ロッドの強度が123 Kを境に温度依存性が大きく変化していることがわかる。この変化は、表面構造の相転移によるものと考えられ、臨界温度は $T_c = 123$ Kである。これまで、この相転移がIET構造からHCT構造への構造相転移か、IET構造の秩序無秩序相転移かで議論が分かれていた。ここでは相転移近傍におけるTRHEPD強度を詳細に解析することにより、以下のようにIET構造の秩序無秩序相転移であると結論している。

IET構造は、HCT構造を形成する、銀原子を頂点とする三角形の配列構造が三角形の重心を中心として僅かに回転してできる構造である。この回転は、プラス方向とマイナス方向で等価なので、IET構造には等価な2つの構造IET(+)とIET(-)が分域を作って混在すると考えられる。そこで、IET(+)構造とIET(-)構造の秩序パラメータ p を導入し、結晶構造因子 F を p の関数として動力的計算に取り込んで解析を行った。⁶⁹⁾

深谷らは臨界温度以上の構造を $p=0$ で回転角が 0° 、すなわち回転のないHCT構造か、有限な回転角での無秩序構造かを、室温において測定されたロッキング曲線の解析によって決定している。⁶⁹⁾ 銀原子の三角形の大きさは固定し、回転角を 0° から 10° まで変化させて、実験ロッキング曲線と計算曲線を比較した結果、最も信頼度が高い結果は、臨界温度以上では回転角は 4.8° を得ている。これにより相転移点以上の温度では回転した銀原子の三角形が $\pm 4.8^\circ$ で無秩序に配置している構造と結論できる。このときの銀原子のHCT構造の位置からのずれは 0.023 nmである。これに対して室温における銀原子の平均振幅は前項で得たよう

に 0.018 nmなので、銀原子のHCT構造からのずれの量にかなり近い。したがってIET(+)構造とIET(-)構造の間を行き来することは容易であり、臨界温度以上ではIET無秩序構造であることは容易に理解できる。

臨界温度以下では、特に(1/3 1/3) ロッドの回折強度が大きな温度依存性を示している。基板温度110 Kにおける実験ロッキング曲線と計算曲線を比較するために秩序パラメータ p を変化させて計算した結果、110 Kにおける秩序パラメータは $p=0.4$ と決定している。この結果から、図9(b)の(1/3 1/3) ロッドにおけるTRHEPD強度の強い温度依存性は秩序パラメータ p の変化によると考えられる。そこで、 $p \propto |1 - (T/T_c)|^\beta$ として得た回折強度の温度依存性が図中実線である。臨界指数 β が0.28である。また、この結果はX線回折による結果、⁷¹⁾ $\beta = 0.27 \pm 0.03$ とも良く一致している。この臨界指数の値は、平均場近似では0.5、2次元イジングモデルでは0.125の値が知られており、今回得られた値はこの中間である。

X線回折において臨界温度以上における構造がHCTと結論されていたのに対して、TRHEPDではIET無秩序構造と結論した。これは、X線回折では、1回散乱による運動学的回折理論によって解析するために、僅かな銀三角形の回転に対しては、原子散乱因子の僅かな変化により、ほとんど回折強度に寄与しないためと考えられる。それに対して、TRHEPDでは陽電子ビームの動力的回折効果(多重散乱効果)によって、銀三角形の回転の効果が回折強度に大きく影響したためと考えられる。したがって、通常は構造解析を困難にする動力的回折効果が、僅かな原子変位に対して効果的に寄与したことになる。

8.3 非弾性散乱：プラズモン励起

陽電子に限らず、荷電粒子は固体内で非弾性散乱する。非弾性散乱は、内殻電子励起、価電子励起(プラズモン励起)および熱励起(フォノン励起)に大きく分けられる。理論的には、非弾性散乱の散乱断面積は電子でも陽電子でも等しいはずである。したがって、非弾性散乱スペクトルには差がないと考えられる。内殻電子励起および熱励起に関しては表面と結晶内部の変化は、現段階での陽電子ビームによるエネルギー分析の分解能からは難しいので、ここでは、特に表面プラズモン励起に関して電子との比較を行い、陽電子による励起過程の特徴を示す。

Si(111)-(7 \times 7)表面は非常に平坦であり、プラズモン励起過程を調べる上では最適である。この表面に対する高速電子による励起過程の詳細な研究は堀尾ら⁷³⁾によって、RHEEDを用いて行われ、その後いくつかの研究²²⁾があるが、高速陽電子における励起過程に関する研究は以下に述べる結果が最初である。図10は電子ビームと陽電子ビームによるエネルギー損失スペクトルである。電子線による表面プラズモン励起では1回励起によるピークが最も高い⁷⁵⁾のに対し、全反射条件での陽電子では2回励起によるピークが最も高くなっているという特徴を示す。⁷⁴⁾ すな

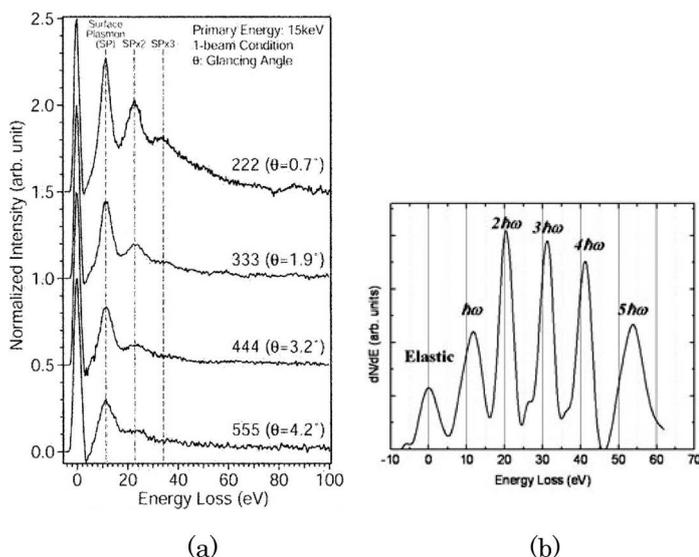


図10 Si(111)7×7表面からの (a) 15 keV 電子ビーム⁷⁵⁾ と (b) 10 keV 陽電子ビーム⁷⁴⁾ によるエネルギー損失スペクトル。入射視斜角 θ は電子ビームに関しては図中に、陽電子ビームに関しては1.5°である。

わち、陽電子では、表面プラズモンの多重励起が起きやすいことを示している。この傾向は入射視斜角にほとんど依存せず、ほぼ同じ傾向を示している。

陽電子のプラズモン励起スペクトルをポアソン分布によって解析すると表面プラズモンの平均励起回数 n_s が得られる。この解析結果から全反射領域における表面プラズモンの平均励起回数はほとんど入射視斜角によらず、 2.5 ± 0.3 回であることが明らかとなった。これに対して、電子の場合、平均励起回数は $1/\sin \theta$ に比例することが知られている。⁷⁶⁾ したがって、全反射領域における陽電子のプラズモン励起過程は電子とはかなり異なることが予想される。

深谷らは電子と陽電子による表面プラズモン励起過程を詳しく比較するために、Al(111)-(1×1) 表面および Bi(001)-(1×1) からの電子および陽電子による表面プラズモン損失スペクトルを解析している。⁷⁴⁾ その結果、Al および Bi とともに電子においては1回散乱の確率が非常に高いのに対して、陽電子では、3回から4回散乱の確率が高いことを示した。また、これらの解析から、表面プラズモンの平均励起回数はほとんど物質によらず陽電子に対して2.5回、電子に対して1.6回であり、陽電子による平均励起回数は電子に比べて約60%大きい。電子と陽電子でプラズモン励起の平均自由行程は等しいと考えられるので、この差は陽電子とプラズモンの間の相互作用距離が電子に比べて60%大きいことを意味する。この平均自由行程の値は、田沼らによる TPP-2M 式⁷⁷⁾ によって導出できて、その値は18~19 nm である。したがって、相互作用距離はこれに平均励起回数をかけて得られる。電子では25~34 nm、陽電子では46~53 nm となり、電子と陽電子で約20 nm の差異がある。

表面プラズモンは電子・陽電子が真空中から表面に近づ

く過程でも励起される。真空中での相互作用は電子も陽電子も差がないと考えられ、また、電子と陽電子で、プラズモン励起の断面積は理論上では等しい。それにもかかわらず、平均励起回数に大きな差異が生じ、それによる相互作用距離に20 nm の差が出るのは、全反射領域で陽電子が表面近傍に滞在する時間が電子に比べて長い、あるいは表面に滞在する距離が20 nm であるために、それだけ相互作用距離が大きくなると考えられる。

9. おわりに

RHEEDの歴史はX線回折の発見に遅れること14年ではあるが、既に80年以上である。また超高真空RHEEDによる清浄表面やエピタキシャル成長の研究も既に40年以上の歴史がある。それに対してTRHEPDはまだ20年弱の歴史であり、限られたグループによる成果があるのみである。しかし、結晶の最表面の構造研究や、特に複雑な構造を持つ結晶表面の構造解析には、RHEEDよりもTRHEPDが非常に有利である。最近ではRHEED研究も下火になってしまっているが、我が国で生まれたRHEEDとTRHEPDの2つの手法を相補的に使うことによって、結晶表面の研究は強力に推し進めることができると信じている。

本稿を執筆するにあたり、写真や図の使用について、快く資料の提供を頂いた、東京大学の井野正三名誉教授、高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所の兵頭俊夫教授、物質・材料研究機構の大竹晃浩博士、日本原子力研究開発機構の河裾厚男博士、深谷有喜博士、東北大学多元科学研究所の虻川匡志准教授に感謝いたします。

参考文献

- 1) C. J. Davison and L. H. Germer: Phys. Rev. **30** (1927) 705.
- 2) G. P. Thomson: Proc. Roy. Soc. A **117** (1927) 600.
- 3) S. Kikuchi: Proc. Imp. Acad. **4** (1928) 271.
- 4) E. Rupp: Ann. d. Phys. **85** (1928) 981.
- 5) S. Nishikawa and S. Kikuchi: Nature **121** (1928) 1019; Proc. Imp. Acad. **4** (1928) 475.
- 6) 例えば T. Yamaguti: Proc. Phys. Math. Soc. Jpn. **12** (1930) 203.
- 7) 例えば R. Uyeda: Proc. Phys. Math. Soc. Jpn. **24** (1942) 809.
- 8) D. Watanabe, R. Uyeda and A. Fukuhara: Acta Crystallogr. A **24** (1968) 580.
- 9) K. Takayanagi, Y. Tanishiro, S. Takahashi and M. Takahashi: Surface Sci. **164** (1985) 367.
- 10) S. Ino: Jpn. J. Appl. Phys. **16** (1977) 891.
- 11) A. Ichimiya: Jpn. J. Appl. Phys. **22** (1983) 176; *ibid.* **24** (1985) 1365.
- 12) J. J. Harris, B. A. Joyce and P. J. Dobson: Surface Sci. **103** (1981) L90.
- 13) A. Ichimiya: Solid State Phenomena **28/29** (1992/93) 143.
- 14) Y. Ito, M. Hirose, S. Takamura, O. Sueoka, I. Kanazawa, K. Mashiko, A. Ichimiya, Y. Murata, S. Okada, M. Hasegawa and T. Hyodo: Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A **305** (1991) 269.
- 15) A. Kawasuso and S. Okada: Phys. Rev. Lett. **81** (1998) 2695.
- 16) K. Wada, T. Hyodo, A. Yagishita, M. Ikeda, S. Ohsawa, T. Shidara, K. Michishio, T. Tachibana, Y. Nagashima, Y. Fukaya, M. Maekawa and A. Kawasuso: Eur. Phys. J. D **66** (2012) 37.
- 17) Y. Fukaya, M. Maekawa, A. Kawasuso, I. Mochizuki, K. Wada, T. Shidara, A. Ichimiya and T. Hyodo: Appl. Phys. Express **7** (2014) 056601.
- 18) S. Kikuchi and S. Nakagawa: Sci. Pap. Inst. Phys. Chem. Res. Tokyo **21** (1933) 256.
- 19) E. G. McRae and P. J. Jennigs: Surface Sci. **15** (1969) 345.

- 20) S. Miyake and K. Hayakawa: *Acta Crystallogr. A* **26** (1970) 60.
 21) H. Raether: *Z. Phys.* **78** (1932) 527.
 22) A. Ichimiya and P. I. Cohen: *Reflection High Energy Electron Diffraction* (Cambridge Univ. Press, 2004) および参考文献.
 23) S. Miyake: *Sci. Pap. Inst. Phys. Chem. Res. Tokyo* **27** (1938) 286.
 24) J. F. Menadue: *Acta Crystallogr. A* **28** (1972) 1.
 25) S. Ino: *Jpn. J. Appl. Phys.* **19** (1980) L161; *ibid.* 1277.
 26) S. Hasegawa, S. Ino, Y. Yamamoto and H. Daimon: *Jpn. J. Appl. Phys.* **24** (1985) L387.
 27) S. Hasegawa and S. Ino: *Phys. Rev. Lett.* **68** (1992) 1192.
 28) REMのまとめとして K. Yagi: *Surface Sci. Reports* **17** (1993) 307.
 29) N. Osakabe, K. Yagi and G. Honjo: *Jpn. J. Appl. Phys.* **19** (1980) L309; N. Osakabe, Y. Tanishiro, K. Yagi and G. Honjo: *Surface Sci.* **109** (1981) 353.
 30) N. Inoue, Y. Tanishiro and K. Yagi: *Jpn. J. Appl. Phys.* **26** (1987) L293.
 31) K. Yagi, A. Yamanaka and H. Yamaguchi: *Surface Sci.* **283** (1993) 300.
 32) T. Sakamoto, N. J. Kawai, T. Nakagawa, K. Ohta, T. Kojima and G. Hashiguchi: *Surface Sci.* **174** (1986) 651.
 33) M. Ichikawa, T. Doi, M. Ichihashi and K. Hayakawa: *Jpn. J. Appl. Phys.* **23** (1984) 913.
 34) μ -RHEEDのまとめとして M. Ichikawa: *Materials Sci. Reports* **4** (1989) 147.
 35) H. Bethe: *Ann. Phys. (Leipzig)* **87** (1928) 55.
 36) J. W. Harding: *Phil. Mag.* **23** (1937) 271.
 37) A. R. Moon: *Z. Naturforsch.* **27A** (1972) 390.
 38) R. Collera: *Acta Crystallogr. A* **28** (1972) 11.
 39) K. Kambe: *Z. Naturforsch.* **22A** (1964) 422.
 40) P. A. Maksym and J. L. Beeby: *Surf. Sci.* **110** (1981) 423.
 41) T. C. Zao, H. C. Poon and S. Y. Tong: *Phys. Rev. B* **38** (1988) 1172.
 42) G. Meyer-Ehmsen: *Surface Sci.* **219** (1989) 177.
 43) S. Nagano: *Phys. Rev. B* **42** (1990) 7363.
 44) L.-M. Peng and J. M. Cowley: *Acta Crystallogr. A* **42** (1986) 545.
 45) Y. Horio and A. Ichimiya: *Surface Sci.* **133** (1983) 393.
 46) A. Ichimiya: *Surface Sci.* **192** (1987) L893.
 47) S. Kohmoto and A. Ichimiya: *Surface Sci.* **223** (1989) 400.
 48) Y. Shigeta and Y. Fukaya: *Int. J. Mod. Sci. B* **18** (2004) 289; Y. Fukaya, K. Nakamura and Y. Shigeta: *J. Vac. Sci. Technol. A* **18** (2000) 968.
 49) T. Hashizume, Q. K. Xue, J. M. Zhou, A. Ichimiya and T. Sakurai: *Phys. Rev. Lett.* **73** (1994) 2203; *Phys. Rev. B* **51** (1995) 4200.
 50) GaAs (001) 構造のまとめとして A. Ohtake: *Surface Sci. Reports* **63** (2008) 295.
 51) T. Abukawa, T. Yamazaki, K. Yajima and K. Yoshimura: *Phys. Rev. Lett.* **97** (2006) 245502.
 52) T. Abukawa and Y. Nishigaya: *Phys. Rev. Lett.* **110** (2013) 036102.
 53) T. Abukawa, D. Fujisaki, N. Takahashi and S. Sato: *e-J. Surf. Sci. Nanotech.* **7** (2009) 866; T. Abukawa, S. Sato and Y. Matsuoka: *Surface Sci.* **604** (2010) 1614.
 54) H. Aizawa, M. Tsukada, N. Sato and S. Hasegawa: *Surface Sci.* **429** (1999) L509.
 55) T. Kawamura, P. A. Maksym and T. Iijima: *Surface Sci.* **148** (1984) 671; T. Kawamura, T. Sakamoto and K. Ohta: *Surface Sci.* **171** (1986) L409.
 56) A. Ichimiya: *Surface Sci.* **187** (1987) 194.
 57) Y. Horio and A. Ichimiya: *Surface Sci.* **298** (1993) 261.
 58) G. Lehmpf, A. Ichimiya and H. Nakahara: *Surface Sci.* **245** (1991) L159.
 59) H. Nakahara and A. Ichimiya: *Surface Sci.* **241** (1991) 124.
 60) A. Kawasuso, M. Yoshikawa, K. Kojima, S. Okada and A. Ichimiya: *Phys. Rev. B* **61** (2000) 2102.
 61) A. Ichimiya, H. Nomura, Y. Horio, T. Sato, T. Sueyoshi and M. Iwatsuki: *Surf. Rev. Lett.* **1** (1994) 1.
 62) M. Lijadi, H. Iwashige and A. Ichimiya: *Surface Sci.* **357** & **358** (1996) 51.
 63) S. Hasegawa, X. Tong, S. Takeda, N. Sato and T. Nagao: *Prog. Surf. Sci.* **60** (1999) 89.
 64) Y. Fukaya, A. Kawasuso and A. Ichimiya: *Surface Sci.* **600** (2006) 3141.
 65) H. Aizawa and M. Tsukada: *Phys. Rev. B* **59** (1999) 10923.
 66) Y. Fukaya, A. Kawasuso, K. Hayashi and A. Ichimiya: *Phys. Rev. B* **70** (2004) 245422.
 67) *International Tables for X-ray Crystallography, Vol. III*, ed. by C. H. MacGillavry and G. D. Rieck (Kynoch Press, Birmingham, 1968) pp. 234.
 68) I. K. Robinson, W. K. Waskiewicz, P. H. Fuoss and L. J. Norton: *Phys. Rev. B* **37** (1988) 4325.
 69) T. Takahashi, S. Nakatani, N. Okamoto, T. Ishikawa and S. Kikuta: *Jpn. J. Appl. Phys. Part 2*, **27** (1988) L753.
 70) Y. Fukaya, A. Kawasuso and A. Ichimiya: *Phys. Rev. B* **75** (2007) 115424.
 71) H. Tajiri, K. Sumitani, S. Nagatani, A. Nojima, T. Takahashi, K. Akimoto, H. Sugiyama, X. Zhang and H. Kawata: *Phys. Rev. B* **61** (2003) 035330.
 72) K. Kakitani, A. Yoshimori, H. Aizawa and M. Tsukada: *Surface Sci.* **493** (2001) 200.
 73) Y. Horio and A. Ichimiya: *Jpn. J. Appl. Phys.* **33** (1994) L377.
 74) Y. Fukaya, A. Kawasuso and A. Ichimiya: *e-J. Surf. Sci. Nanotech.* **8** (2010) 190.
 75) H. Nakahara, T. Hishida and A. Ichimiya: *Appl. Surf. Sci.* **212/213** (2003) 157.
 76) A. A. Lucas and M. Sunjić: *Phys. Rev. Lett.* **26** (1971) 229.
 77) S. Tanuma, C. J. Powell and D. R. Penn: *Surf. Interface Anal.* **21** (1994) 165.

著者紹介



一宮彰彦氏： 専門は、回折結晶学と表面物理学。趣味はオーケストラでのヴァイオリン演奏とスキー。

(2015年1月6日原稿受付)

Development of the Reflection High-Energy Electron Diffraction in Japan and Evolution to the Total Reflection High-Energy Positron Diffraction

Ayahiko Ichimiya

abstract: The reflection high-energy electron diffraction (RHEED) is a method of surface characterization which has been first developed in Japan as well as the total reflection high-energy positron diffraction. For fast positrons, total reflection takes place at grazing incidence, and the penetration depth of positrons is less than 0.01 nm. Since only the topmost surface layer contributes to the total reflection beam intensities, TRHEPD is a powerful tool for measurements of surface characteristics such as surface Debye temperatures and surface phase transition. Recent results by the both methods are also described.

JRR2 から J-PARC への 50 年の歩み (日本の中性子散乱研究の歴史)

遠藤康夫[†] ◇

1932年のチャドウィックに依る中性子発見後、30年以上経ってJRR2研究用原子炉からの低速中性子が使えるようになって漸く日本でも「回折」実験ができるようになった。現在世界最強のパルス中性子を供給するJ-PARCが東海村で稼動し中性子「散乱」研究が軌道に乗る時代を迎えた。JRR2からJ-PARCまでの道筋を辿ると、将来の日本の中性子散乱研究の課題が見えてくる。

1. まえがき

日本の中性子散乱(出発時は中性子回折が一般的定義)の歴史は藤井、神山によって中性子科学会の機関誌「波紋」に要領よく纏められている。¹⁾ 本小特集記事とは趣を異にするとの読者からの批判を覚悟の上、日本が今日世界最先端の大強度陽子加速器施設J-PARCの一角を担う物質・生命科学研究施設(MLF)を運転するまでに至った50年を超える道を辿ることにする。小文では低速中性子を使って物質のミクロな運動を顕微する日本独自の中性子散乱法の進展を振り返ったつもりである。

1965年に原子炉に設置された装置(回折及び散乱を含む)が稼動を始めた黎明期から中性子散乱研究者は約50年、4世代に亘っているが筆者は第2世代に属すると自覚している。1960年代からそれぞれ「黎明期」、「発展期」、「成熟期」と区切り、活動開始以前の「胎動期」を含めて4代の歴史のそれぞれに遺された、公式の科学史にはでてこない裏事情を筆者の独断と偏見で取りあげることにする。小文中には多くの関係者がでてくるが敬称は省略し、かつ敬語を使わずに平常の記述で著したことをお断りしておく。

2. 胎動期(～1960)

1932年チャドウィック(Chadwick)が中性子を発見した直後に、低速(熱)中性子線はX線と同様に回折現象によって物質の原子構造研究の重要な手段となることが理論的に導かれ、実際その検証が開始された。1939年には既に遅い中性子による散乱理論が発表された。²⁾ 理研の西川正治研究室に奉職していた原子核物理研究者の木村一治は中性子散乱に興味を抱き、第2次世界大戦下の研究環境の厳しい時代に、当時の癌研究所から α 線を発生するRnを自ら都電で理研まで運んだ。このRn線源をパラフィンで囲まれた実験容器に挿入し低速中性子線を発生させる作業から始まって、中性子線を漏らさず観測できる測定箱の製作、さらに中性子検出器のための回路装置の組み立てまでの一切の行程を実行し、全散乱断面積の測定に導いた努力には驚嘆を禁じ得ない。³⁾ 中性子線はX線のように点光

源から輝線を得ようとするパラフィンからでてくる低速中性子線をコリメーターで絞って試料に照射しなければならぬ。線源が桁違いに強く無ければ、充分強い中性子線を得ることは到底不可能であるので、むしろ入射中性子と試料によって散乱される中性子の定量的比較から全散乱断面積を導出する実験を行ったが、これは当を得たものと言える。木村はこの方法によって、橋口隆吉と共同で消衰(Extinction)効果の検証を行って実験結果を発表している。この実験は散乱体を通過する中性子線の多重反射によって散乱するブラッグ反射の強度が減少する原因を導いたザカリアセン(Zachariasen)の理論を実証したものである。結晶片(モザイク)の加工によって制御した銅単結晶試料の全散乱断面積が銅単結晶試料のモザイクに依存することを理論式によって解析し、消衰効果を証明した。第2次大戦が終わると、アメリカやイギリスで中性子回折実験が可能となる原子炉(パイル)が建設されることとなった。欧米では戦後10年を経ずに中性子線回折研究が急速に進展したが、この時代を先取りにした木村一治の飽くなき挑戦にはあらためて驚嘆すると共に戦後の時代を木村はどのように過ごしたのかとの思いを馳せる。

1956年に日本原子力研究所(原研)が創設され、その直後から研究用原子炉が建設されたが、1960年に臨界に達したJRR2原子炉に中性子線回折装置が設置されたのが日本における中性子線散乱研究の夜明けである。しかしJRR2の出力の目標値である10 MWに達するまでには原子炉自身に様々な問題を抱えてその解決に相当の時間を要した。また原子炉の運転が不安定な時期が長く続き、中性子散乱研究が実質的に開花したのが1960年代まで先送りされたのは非常に残念なことである。

この間、中性子散乱が物性科学に重要な道具であることを説いた日本学術会議が勧告した結果、原研には中性子回折の研究室(当時固体物理研究室)が創設され、中性子回折装置の建設が実現した。また東大物性研究所に大学研究者が利用できる中性子回折装置を当時の日本電信電話研究所(通研)とビーム孔をシェアする形で建設されることになった。同時に日本の中性子散乱研究を牽引した初代の中性子散乱研究者達の多くがアメリカ大陸で原子炉ビーム

[†] KEKダイヤモンドフェロー、東北大学名誉教授。

実験を行っていた研究所（北から Chalk River, Brookhaven, Argonne, Oak Ridge), イギリスの Harwell 研究所などに派遣されて中性子散乱実験の研鑽に勤めた。帰国後, 原研や東大物性研究所に留まらず東北大, 大阪大, 九州大などで中性子散乱研究室を立ち上げて研究教育活動をしたことが今日の基盤となった。これは大きな財産となったことは言うまでもない。この時代に日本から渡った白根元 (Shirane Gen) や Atoji Masao 等はその後もアメリカの国立研究所の重鎮として世界的な中性子散乱研究者の仲間入りをし, それにも増して, 後の世代の日本人研究者の教育に尽力したことは特筆すべきことではある。

3. 黎明期 (1960~1980)

1960年に臨界になった JRR2 原子炉は様々な経緯で設計値の 10 MW に到達するのに長い年月を要し, その上原子炉運転時間も今では考えられない位短かった。その上, 中性子回折装置を設置した原研と東大物性研究所 (物性研) の協力態勢も万全ではなかったというのが筆者の偽らざる感想である。物性研の中性子散乱研究者は東海には宿泊施設はなく, 原研の周りの「はたご」で寝泊まりし, 寒剤や特殊な実験環境装置は東京から運搬しなければならず, 回収した He ガスはボンベに詰めて物性研に持ち帰るというような環境で実験を行っていた。その中であって 1965 年に久保亮五は日本を代表する物性理論家と中性子散乱研究者を東海のホテルに一同に集めて中性子非弾性散乱研究会なる勉強会を開催した。⁴⁾ 駆け出しの研究者に名を連ねることになった筆者は当時の世界最先端の「中性子非弾性散乱」研究のレベルを知らされて興奮を憶えたのと, これと比べたら日本の (当時の) 実験現場とのどうしようもない落差に衝撃を受けたのを思い出す。久保理論の神髄である「Fluctuation Dissipation Theorem」もこの研究会で初めて学ぶことができたし, 金森順次郎の強磁性 spin wave 散乱理論や実験が紹介されたのもこの機会が最初であった。この研究会はシリーズで 2 回開かれたが, 久保が中性子散乱研究者に問いかけた 2 つの話題も若い研究者には刺激的なものではあった。一つは久保が訪問した Brookhaven 国立研究所の High Flux Beam Reactor (HFBR) では既に後にノーベル賞を受賞した Blockhouse 考案の 3 軸中性子分光器が稼動しスピンドYNAMIXS に関する重要な実験データを出している現場の見聞を報告した。同時に, 参加している中性子散乱研究者に日本に一刻も早く非弾性散乱実験が日常的に可能な大強度の原子炉建設を要求しなければ取り返しのつかない遅れを招いてしまうという危機感を煽った。もう一つは中性子散乱というのは中性子の摂動が弱いために, 所詮は定常状態に与えられる線形応答を測定する手段であるが, 将来は非線形応答や強い刺激の外場応答の研究が非常に大事になることは間違いない。このような先駆的な実験には定常中性子源 (原子炉からの中性子線) の他にパルス中性子が非常に有効であるという慧眼を示した。つまり

強磁場とか強電場とか超高圧などの巨大刺激は畢竟パルス印加が必須で, このパルス刺激に同期させたパルスビーム散乱実験によって中性子応答を観たらどうかと中性子散乱研究者に問いかけたのである。

1960年代後半には JRR3 (国産 1 号原子炉) も動きだし, 10 MW に達した JRR2 と合わせると複数台の回折装置が並ぶようになり, 日本の中性子散乱研究も漸くにして形を整えてきた。形は整っても実験環境の進展は殆ど止ったまま大学の中性子散乱研究者はいわゆる「suitcase scientist」研究者であり続けた。1960年代の末から 1970年代の初頭にかけてミニコンピューター (今のマイクロプロセッサよりも低能力) で制御される完全自動型 3 軸分光器が数台建設されたが, この自動制御が初めて複雑な装置の配置を要求する 3 軸中性子分光装置の運転を可能にしたのである。その上偏極中性子の取り出しとその利用を目的にした回折装置等, 多目的の装置もボチボチ活躍し出した。しかし中性子源としては非弾性散乱実験には未だ満足の行く強度ではなく, 当時報告される欧米の大強度 (中性子散乱分野では高束と定義する) 原子炉からの精度の良い実験結果との大きなギャップは埋まらないままであった。しかし約 10 年近くを経て JRR2 でも中性子非弾性散乱実験ができるようになり, 久保亮五が強調したように固体の中の原子やスピンの動きを捉えてこそ中性子散乱の真価が出るという金言を体感でき, 更に欧米で活躍する高束中性子源を獲得する可能性を求めて本気で議論することで, 中性子散乱研究の明るい未来が見えてきたと日本の中性子研究者の意気は高揚したことも事実である。

この時代に平川金四郎は JRR2 で中性子散乱による磁性体の研究を進める戦略を立ててフッ化物や塩化物など磁性体の純良かつ大型単結晶を自ら育成し, そのスピンドYNAMIXS の研究で次々と重要な成果を発表した。なかでも 1, 2 次元の (反) 強磁性体は次元効果や, 量子効果を反映してスピンの揺らぎ効果が強調されることが理論的に示唆されていることに着目し, 非弾性散乱ではなく, 散乱エネルギーを全部取り込むいわゆる 2 軸法で磁気散乱断面積を測定し動的磁化率を曳き出して理論解析をした研究は JRR2 の価値を高めるのに大きな貢献をした。2 次の相転移点近傍の磁化率の発散などの熱力学現象は系の「次元」, 「対称性」, 「相互作用」, 「量子性」など普遍量で決定される統計理論から理解されることを実験的に証明した。平川等が行った系統的な中性子散乱の例を紹介すると, 反強磁性 K_2CoF_4 の反強磁性ブラッグ点の周りで観測される磁気散乱強度 (磁化率に比例) と散乱プロフィール (相関距離の逆数を与える) はオンサーガー (Onsager) が導いた 2 次元イジング模型に対する理論を証明するものであることを世界で初めて導いた。⁵⁾ 平川はこのような 2 流の原子炉でも欧米の高束原子炉と競争できる実験結果を見せることで研究用原子炉の価値や, さらにその先の大強度中性子源の必要性などを説得したのである。

東北大学理学部教授に就いた木村一治は1966年300 MeVのエネルギーを持つ電子線を発射する電子リニアック加速器建設と運転並びに利用研究を実施する東北大学理学部附属原子核物理学研究施設を立ち上げた。⁶⁾ 通称「核理研」は東北大学の職員宿舎や野球場を含む広大な三神峯キャンパスに建設された。余談になるが、東北大学物理教室はこの時代木村一治が核理研(電子リニアック)、北垣敏男が泡箱解析施設、森田右がサイクロトロン施設と3教授が相次いで大型研究施設を建設したが、理学部物理教室が原子核物理や、やがてニュートリノ研究の中心へと展開した高エネルギー物理、核化学分野の最先端に行く研究場所を創設したのは特筆すべきことである。話を核理研に戻すと、この施設は最初から電子線加速器の多目的利用を意図して建設されたのが特徴で、木村一治の独創性がここでも存分に活かされ、核理研は以後の日本の加速器利用研究の源流の一つになった日本発の加速器多目的利用「文化」を産み出した故郷である。核理研電子リニアックは原子核の励起状態に巨大共鳴現象を発見した光核反応や γ 線から発生する π 中間子に依る原子核構造の研究、日本初のパルス中性子散乱を開拓した物性物理・材料工学分野、超高密度励起発生などの固体光物性研究、化学分析やラジオアイソトープ関連の化学分野などの東北大の物理、化学、工学にまたがる学際分野の研究に利用され、また独創的な研究成果を数多く産み出した。東北大学内に限定されたとはいえ共同利用システムも採用された。

木村一治は加速電子にブレーキをかけて発生する光を重金属に照射し、原子核から中性子を剥ぎ取る bremsstrahlung 反応を用いて繰り返しの早い(50 Hz)パルス中性子を発生させた。この中性子を減速した線源こそが第2次世界大戦中に不可能であった中性子回折実験の夢を実現させた。石川義和は物性研から東北大学理学部物理教室の教授に招かれて、木村一治のパルス中性子プロジェクトの核として、核理研の中性子源強度の強化や中性子散乱専用の実験室を建設する等精力的に活動した。木村、石川の2人の強力な指導者は若い研究者や学生を教育しながら、パルス中性子線を存分に利用し尽くす独創的な研究を先導した。しかし中性子強度は $10^9 \text{ sec}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ と極めて弱く、中性子散乱が威力を発揮する非弾性散乱には到底手が届かなかった。後に石川義和は「every neutrons is good neutron」という名(迷)言を遺したが、同時にJRR2原子炉に3軸中性子分光器を建設し、定常中性子を使った非弾性散乱実験に依る動的磁化率測定と、パルス中性子を利用して独創的な研究に挑戦した両刀使いの実験研究とを体験したこそその重い言葉であった。核理研では木村 sputonik と渾名がついたリング状の中性子検出器を備えたデバイ・シェラー(Debye-Scheller)型粉末回折装置や複数個の検出器を異なる散乱方位角に敷き詰めた全散乱装置、大型のグラファイト単結晶で中性子を単色光化してTOF分析と組み合わせ非弾性散乱スペクトルを撮る中性子分光器など装置開発を主目的

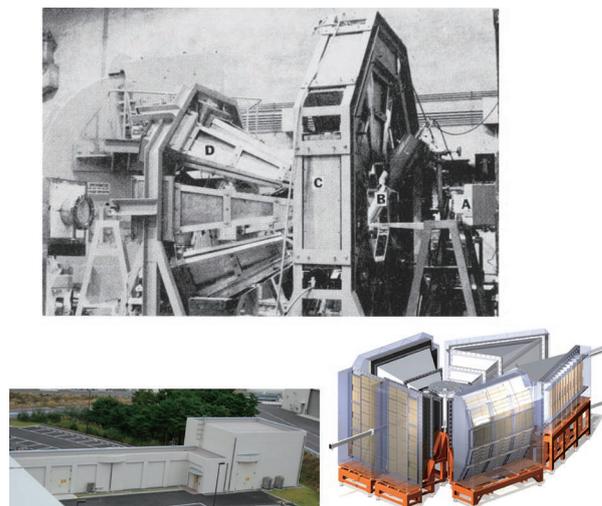


図1 (上) 東北大核理研に建設された木村 sputonik と(下) J-PARC の線源から100 m離れた super HRPD 粉末回折計(原理的には同じデバイ・シェラー型回折計)。

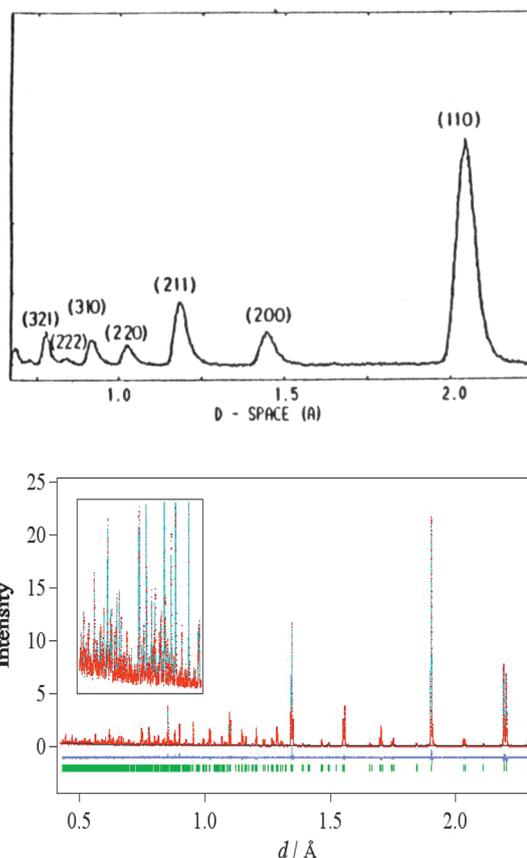


図2 木村 sputonik で得られた回折パターン(体心立方格子のFe)と super HRPD の結果(SrRuO₃)は40年余りの技術の進歩を物語る(神山崇氏の厚意による)。

にした物性研究が行われていた。

石川義和は渡辺昇と共にこの頃(1974年前後)から既に大強度のパルス中性子源を模索するために研究班を創り、将来の大強度パルス線源を模索していた。この研究班の成果は1977年に高エネルギー研究所の陽子シンクロトロンの前段の500 MeV プースターシンクロトロン(の附属設備として、陽子医学利用、中間子科学、そして中性子散乱の

3つのビーム利用研究を包含する施設建設の実現に直結した。⁷⁾ プースターシンクロトロン利用施設 (BSF) の中性子は陽子を重金属に照射してスパレーション (spallation) 反応に依る中性子を発生ターゲットの周りに取り付けられた減速器から取り出された。核理研の電子リニアックから出される光反応の中性子と違って γ 線のバックグラウンドの少ない良質のビームが取り出された。さらに小型の減速器で中性子スペクトルの分布の異なるビームが取り出されるので、言わば小型の挿入光源メリットが多いことも確認された。BSF施設の中性子散乱施設はKENSと命名され、高エネルギー研究所は加速器の全国大学共同利用を既に運営していたのでKENSはその利用体制の仕組みを取り入れることができた(1980年運用開始)。原研の大学共同利用研究は東大工学部の原子力利用システムの中の原子炉照射の中の仕組みに留まっていた、独立した共同利用体制を取っていなかったため、このKENSの共同利用が日本最初の中性子研究のための大学共同利用であったと認識している。当時高エネルギー研究所では同時に放射光利用研究施設 (PF) が建設されていたが、PFの巨大な施設に比べるとBSFの建物が余りに可愛いので、却っていとおしく思えたものである。

石川は不十分なBSF研究スタッフを補間するために新しい共同利用の仕組みを考案し、これをA, B1, B2のカテゴリーに分けて装置開発、装置管理、一般ユーザーにあてて、東北大を中心に全国から新しい中性子ビーム利用層を掘り起こした。北から北大、山形大、日大、名大、京大、広大、九大などから、また研究分野も工学、高分子、化学など多分野の研究者が集うこととなり、筆者など固体物理の狭い分野で活動していた若者にとっては大きな刺激となった。高エネルギー研究所の共同利用システムは充実したもので、長期滞在して実験研究に従事できるようにキャンパス内にある宿泊施設が備えられていて、大学院生にも旅費や滞在費も殆どが高エネルギー研究所から支給されるので高エネルギー研究所での活動に支障はなかった。

KENSでは世界で初という新しい装置とか、研究とか独創的な開発が盛んに行われた。そもそも陽子シンクロトロンからのスパレーション中性子の利用は、Argonne研のZINGやLos Alamos研でも行われていたが、KENSは種類の異なる減速器を備えた世界初の本格的な施設であった。KENS施設はイギリスラザフォード研(RAL)のISISとは2-3年の差で先駆けて開始したので、全てが挑戦であった。特筆すべきは低温減速器を挿入して低エネルギーあるいは冷中性子と呼ばれる長波長の中性子を取り出してその利用研究を開拓したことである。当時北大の電子リニアックを利用して中性子非弾性散乱研究を開発していた井上和彦がKENSに参加し、北大で組み立てた散乱装置をKENSの冷中性子導管の先に設置した。井上は大きな散乱角(後方側)に大型のビーム集束を兼ねたグラファイト単結晶の凹面鏡からの反射によってパンクロの入射パルスビームを試料に

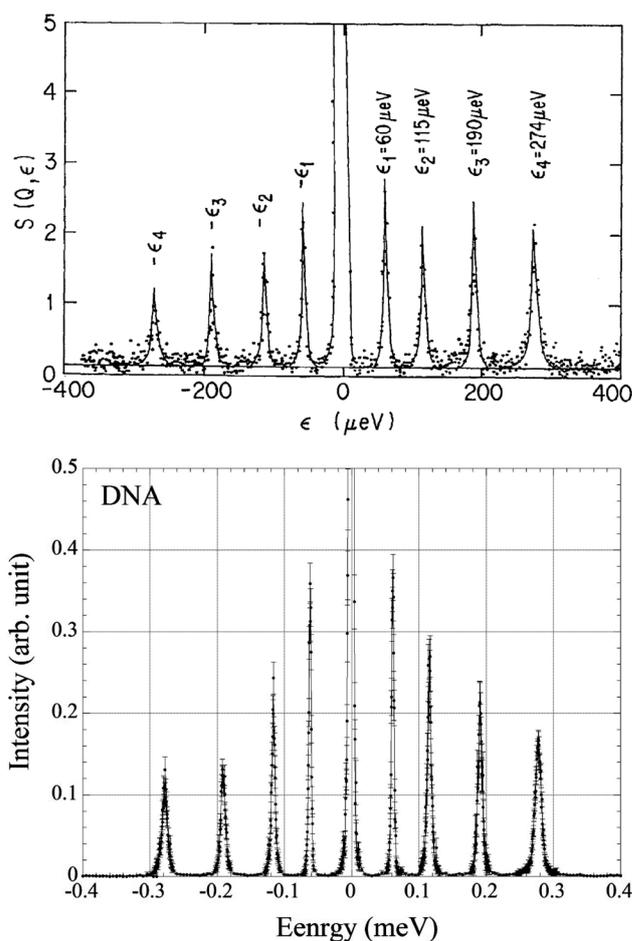


図3 KENS (LAM80ET) (上図 linear scale) と J-PARC (DNA) (下図) で測られた picoline の量子トンネル運動非弾性スペクトルの比較から20年の技術進歩が読み取れる。特に非弾性強度とバックグラウンドの違いに注目(中島健次、柴田薫氏の厚意による)。

照射、その散乱中性子のエネルギーをこの単結晶鏡 (large mirror) での反射と TOF で決定する逆転配置の中性子分光法を開発していた。KENSでは大強度の冷中性子がふんだんに使えるので、すぐに大きな成果を出した。この装置はLAMと命名され、北大に限らず多くの大学の高分子 (soft matters) 研究者の利用を喚起した。さらにこの装置は後にISISなどにも取り入れられ (IRIS) たし、ILLなどの後方散乱 (back scattering) のお手本にもなった。今では中性子小角散乱装置とか、反射率測定装置とか言えば馴染みのある一般的な中性子散乱装置であるが、このような装置は日本では初めてKENSで開発された。

パルス印可による実験も開発された。コンデンサーバンクに溜めた電流を測定試料の周りに取り付けられたコイルに一瞬に放出して20 Tesla以上の磁場を発生させ、パルス中性子と同期させてブラッグ反射をTOFで検出した。⁸⁾ この実験には本河光博の協力を得て中間子施設に据え付けたコンデンサーバンクを一時借用し、中性子回折に必要なコイルを製作して、筆者らとそのコイルをクライオスタットに挿入し実験に成功した。ここで得た新しいパルス同期TOF測定方法はその後、ドイツのHMIやILLなどでも使われるようになり、強磁場下の中性子散乱の有効な方法である

ことが認められて定着している。このように多くの新しい分野の研究者が一同に介して、斬新な研究ができるのが中性子散乱研究など大型施設の利用研究をする醍醐味である。

KENSが軌道に乗り出した頃に石川等は既に次期計画の議論を始めていた。次期のパルス中性子源はJEMINI (Geminiを振って着けられた名称) 計画と命名された中性子、中間子の線源となる専用陽子シンクロトロンを建設する石川義和の最後の計画案であったが、予算規模や設置場所の問題等で直ぐに計画案の結論が出ない間に石川義和の突然の逝去によって、幻の案となった。しかし石川を引き継いだ山崎敏光を中心とする研究者が大ハドロン計画として陽子加速器の多目的利用に拡大し、その後のJ-PARC計画の実現という形で変遷して行くことになった。石川義和は現行の施設を順調に稼働させ、これを見届けて次の新しい計画を提案し、議論を深めながらその計画を実行に移していくという計画性と夢で終わらせない現実性を持ち合わせた戦略をたてることのできる希有の能力の持ち主であった。最盛期の真ただ中で逝去するという突然の出来事は衝撃的で、日本の中性子散乱研究分野にとっては余りにも大きな損失であった。しかし、石川の抱いた夢は長い時間が経過したものの、J-PARCの稼働という形で実現したことは第2世代以降の研究者の石川に対する何よりの供養であると筆者は思っている。

中性子散乱研究の歴史を語る時に、国際協力を避けては通れない。上に書いたように日本の中性子散乱研究は欧米、特にアメリカには大凡20年位の水を開けられていた。この時期にはShiraneが定期的にブルックヘブン国立研究所に日本の研究者を招いて研究を通じて実験を鍛えた。筆者もShiraneグループの研究者として合計3年余りを過ごす機会を得て、当時日本に居てはとても不可能な研究をすることができたし、研究を通じて多くの友人を得ることもできた。1970年代中頃にはBrookhaven-ISSP, Oak Ridge-Osaka大学などの協力研究プログラムを通して何人もの日本人が米国に滞在した。その最中に1980年「科学技術に関する日米協力事業」なる日米首脳間の正式締結が結ばれることになり、中性子散乱研究分野がトップダウンで基幹分野の一つとして両国間の公式交流プログラムに取り上げられ事業が出発することとなった。この協力事業は正式の研究者同士の話し合いではなく、両国政府(米国側DOE, 日本側文部省、科学技術庁)のイニシアチブで急ぎ推進された。日米協力事業は30年以上経った現在でも継続されて最盛期程ではないにしても研究成果を発信し続ける希有な事業ではあるが、同時に極めて特殊な形態をしていることも事実である。日米政府間協定に基づくものであるから、担当省庁は前述に書いた通りであるが、実務研究機関として米国はDOEに属するOak Ridge National Laboratory (ORNL) は原研(科技庁傘下)と大阪大(文部省)、Brookhaven National Laboratory (BNL) は物性研(文部省)と組むことになった。ORNL-原研(一部阪大)と一方でBNL-物

性研と棲み分けがはっきりしており、実質上両方の交流は殆どなかった。このような事象で垣間見られるように科技庁傘下の原研と文部省傘下の物性研とは疎遠な関係のまま、省庁合併後も基本的にはこの関係は継続されたままである。事務上の関係はともかく、現場の研究環境においてこのことが微妙に反映して密な協力がとられないのは残念なことではある。筆者は日米協力事業のお陰でBNLと共同で高温超伝導の物性研究が随分と進み、BNLの中性子分光器のマシタイムを惜しげも無く利用できたことで最大限の感謝をしなければならないが、このことと日米協力事業の変則的な運営とは別なので詳細な事情を書き留めた。

大阪府熊取町に建設された京大実験炉(5 MW)は1965年稼働を始めたが、1970年代には大強度中性子の共同利用を目的とする2号炉建設計画が狙上になっていた。一方でKENSの共同利用開始も相まって、日本の中性子散乱研究者はJRR2の一桁強い中性子ビームが供給され非弾性散乱が日常的に可能になる将来計画の必要性を望む気運が高まった。京大2号炉、九州における原子炉建設、更には東海(原研)にビーム実験専用の原子炉建設等幾つかの具体的な案が挙げられたが、京大2号炉計画が文部省で承認されることとなった。今と違って第1世代の研究者によって結論が出され、筆者等の若手研究者はこの突然の決定には随分戸惑った。2号炉計画は炉心を2分割しflux trapをされた2分割の隙間から強い中性子を曳き出すとか、炉室はビーム孔毎に区切って、その中に人工空気を送ってArガスフリーを実現する奇抜な計画案であった。中性子束を高めるためにはコンパクトな炉心が常識であるが、この常識を破りしかも出入りの多い実験室を狭くした上に人工空気中で作業を強制させる特異な環境設定など数々の疑問に対する京大実験炉側の結論が出ない内に、地元の2号炉建設反対運動の高まりで結局最終的に廃案となった。その間に、原研は新しい長期計画でJRR3を全面的に改修し新しくビーム実験を主目的とした原子炉建設案を提示し、1980年代の半ばにこの新規計画を発表した。原研はその時まで原子炉は中性子散乱など中性子ビーム利用を重視しないポリシーを維持していたが、これを逆転させる決断をしたことになる。この経緯を次章の「発展期」でももう少し詳しく記述することにする。

4. 発展期(1990~2010)

1991年にJRR3(20 MW)が稼働を始めたが、冷中性子源を臨む複数の導管の周りに多種類の測定装置が並ぶ広い実験室が出現した。この実験室の地下にはパイプや配線などが切り取られた重厚な放射線遮蔽体ごと旧JRR3原子炉本体が鎮座している。いわば使用済み原子炉の保管の一つの方法を実現させたことになる。中性子導管実験室はその「棺桶」の上に建設された。前期のJRR2における非弾性散乱を展開するための技術的な取り組みと共に、JRR3原子炉管理部が中性子散乱実験をはじめとする利用者の要望を

原子炉の設計に活かすように努力したこと、さらにはこの計画の推進力となった中性子回折室長飯泉仁の構想力と原研の経営陣、科技庁担当部局への交渉力など、全ての戦略が機能して短期間の内にJRR3改修(実効的には新設)が実現した。特記すべきことは原子炉内に冷中性子源を挿入し、その冷中性子源を臨む原子炉から導管室に導く5本の中性子導管も全て原研の炉管理部が担当したことである。JRR3は中性子線を取りだすビーム孔は今では常識になっているように、原子炉炉心の接線方向に差し込まれて、ビーム孔の先端をできる限り薄くして冷中性子減速器に近づけること、熱中性子の密度の濃い重水反射壁に近い所に設置されるように設計されている。また原子炉内の床は装置が載る部分は平坦な大理石が敷き詰められて、3軸中性子分光装置が床に圧縮空気を吹き付けてホーバークラフトのように移動し易い構造の装置を搭載する目的に適している。この他にも新しい取り組みがあったと思うが、なによりもJRR3建設時には原研が原研内外のビーム利用者と協力して利用研究を第一義に取り入れて当時の世界最先端の研究用原子炉を建設したことは、過去には全くないことであった。原研、多大学のビーム利用研究者と原子炉建設を担当する炉管理部との間の調整役であった宮坂靖彦と飯泉仁の尽力によってJRR3は実現した。

JRR3原子炉の建設を期に大学共同利用に大きな変化があった。物性研は組織を改編して中性子散乱施設を立ち上げるとともに、物性研大学共同利用に新しく中性子散乱施設利用を組み入れた。現在では原子炉を利用する大学共同利用の申請は窓口が複数になっていて、この複数の経路で受け付けた後に、ビーム利用を調整する機関があって、複雑な仕組みになっている利用者に対して民主的にビーム利用が分配されている。このような仕組みが前章で記述した高エネルギー研究所と東大物性研究所の共同利用システムと共に全国的に軌道に乗ることとなった。1992年になると物性研中性子散乱施設は東海村に居を移し、利用者の宿泊施設を完備した研究室を移転させた。名実共に東海村に拠点を置く施設の完成によって1965年にJRR2に中性子回折装置を設置して以来、30年近く続けてきた「suitcase scientist」から脱却したのである。この脱却は藤井保彦の出し惜しみをしない交渉力、粘り強い説得力、と何よりも実行力があったからこそである。中性子を利用するグループは全国的な任意団体「中性子利用研究連絡会」の活動期間を経て、この時期に「日本中性子科学会」(JSNS)に移行したが、移行の立役者も藤井保彦であった。欧州全体をまとめる「European Community for Neutron Scattering」やアメリカ大陸をまとめる「American Neutron Scattering Society」などと肩を並べる「Asia Oceania Neutron Science Association」の基幹となる中性子フォーラムへと発展して行くことになった。日本の中性子科学会は学術的会合の他に、将来計画や共同利用などにも影響を及ぼすために、J-PARC、JRR3あるいは原研の施設共同利用者の協議会などの役目

と重複することが多い。

日英協力事業は石川義和が生前にお膳立てをしていた協定を高エネルギー研究所の渡辺昇と筆者が引き継いで正式事業として1987年に発足した。ISISはKENSに遅れて発足したが、既に一桁以上の強度の中性子を供給し、施設としての規模もそれに見合う充実ぶりであり、非弾性散乱実験を目指す将来計画を準備する日本側の研究者には日英協力事業は絶好の機会であった。この事業で日本から定期的にISISに若手研究者を送り込み協力関係を進展させ、世界最強のチョッパー分光器(MARI)を建設することができた。RALにとっても、高速モノクロメーターチョッパー、広面積の中性子位置検出器、大容量中性子データの時間分析やvisualization法など、最高峰の測定技術開発がこの協定を利用して飛躍的に進んだので日英双方の利益は計り知れないものとなった。KEKから池田進、新井正敏、伊藤晋一、古坂道弘など新進気鋭の研究者が入れ替わりながらMARI建設と中性子非弾性散乱実験に研鑽を積みその経験を生かした結果、今日J-PARCの中心となって活躍している。

中性子非弾性散乱のスピンドイナミクスの研究は高束原子炉中性子を照射して3軸中性子分光装置の独壇場であると当時は信じられていたし、複雑な分散を伴う磁気励起などの測定は逆格子散乱面をエネルギーや運動量(逆格子ベクトル)を制御しながらスキニングできる3軸法を凌駕することはないというのが一般的な常識であった。この神話の一角をMARIの出現で風穴を明けた。その一例を取りあげる。単結晶を使って非弾性散乱測定をする際、低次元(1次元、2次元)物質の逆格子面、ないし線上の逆格子点を入射ビームに垂直に配置する。この配置では入射ビーム方向には逆格子点が存在しないので、散乱ビームの終点のモーメントムの位置にある散乱ベクトルは入射エネルギーと散乱エネルギーとの遷移エネルギーが変化しても常にモーメントムは一定になる。つまり、入射ビームを平行に散乱ベクトル位置を連続的に移動させると運動量一定のエネルギーベクトルを撮ることになる。これを図4に表した。

図4は中性子線(k_i)を1次元の逆格子(c^*)に垂直に入射した一次元格子ベクトル(この場合は逆格子 a^* に平行)にとった例である。散乱ベクトル(k_f)の終点を図のように a^* に平行な位置をとると、同じ値の1次元逆格子(q)で異

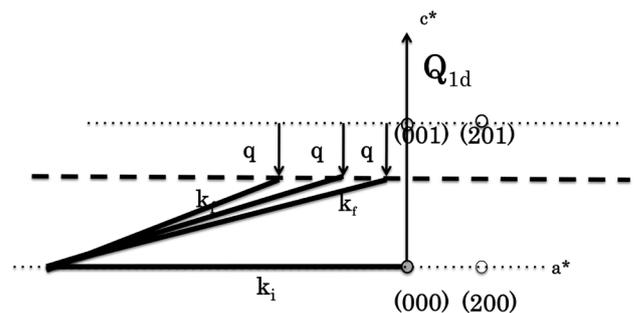


図4 低次元逆格子と散乱配置を散乱面に示した。

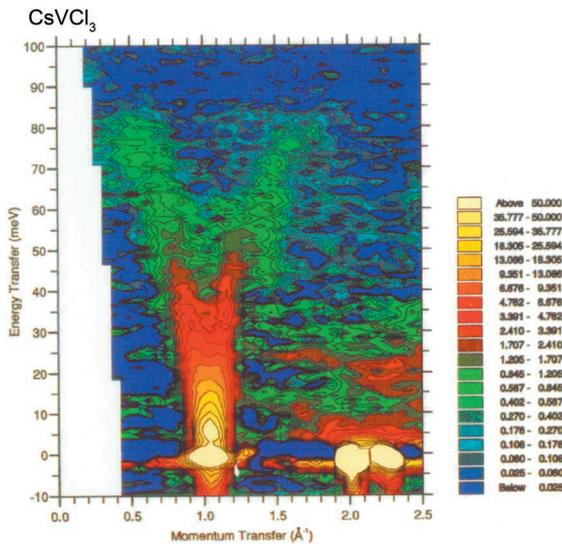


図5 1次元反強磁性CsVCl₃のスピนว波散乱スペクトル。散乱強度はカラーで表示されている。スピนว波の分散関係がモーメントム-エネルギー空間で一目瞭然で解る。

なる散乱エネルギー (E_i)、あるいは遷移エネルギー ($\omega = E_i - E_f$) の散乱位置を与えるので一つの散乱配置で q 一定のエネルギースキャンができることが容易に解るであろう。

この原理を使って1次元反強磁性体のスピนว波を撮ったのが図5の結果である。散乱強度をカラーマップで表すと教科書にでてくるスピนว波散乱スペクトルが得られる。⁹⁾

この方法が広く認められたのはMARIやHETなどのチョッパー分光器を使ったISISで開発された散乱技術の開発が、原子炉における3軸分光器では測れない高エネルギーの励起エネルギーを持つ高温超伝導銅酸化物の磁気励起の検出を可能にしたからである。世界中から注目される強い2次元反強磁性の磁気励起スペクトルが撮られ、超伝導相において高エネルギーのスピนว励起を特異的に示す事実を明らかにすることによって、高温超伝導の機構解明に大きな寄与をした。

日本のパルス中性子散乱研究はKENSからJ-PARCへと発展して行った過程そのものが発展期を超えて成熟期を迎える転換点と位置づけられる。J-PARC計画の経緯に就いては物理学誌にも取りあげられているので、繰り返す必要はないがその道程にはその小特集記事に書かれていない事情が潜在する。¹⁰⁾ それを総て書くことはできないが、2, 3記録に残しておきたい。山崎敏光を中心に将来計画として練られていたJHP計画がその後ニュートリノ分野(アレーナ)を加えてJHF計画へと変遷し、つくばのKEK敷地に建設する計画案が最終段階を迎えていた。JHF施設はつくば地区で建設されるとなると高額な土木工事費や地元対策など実施には困難を伴うという危惧が出始めた。最終的には文部省、科技庁統合の省庁統合という政治的な時代の奔流の中で、原研(科技庁)が進めていた「核破砕中性子源計画」の陽子加速器の規模が、現実的な出力にまで大幅に下げられJHF計画の加速器規模と大小つけ難いことと

なったこともあって、文科省が陽子加速器は東海地区に建設するという裁定を下した。この時点の急展開が最初JEMINI計画から関わって来た中性子散乱研究者に知らされたのは実質的に結論が出てからであったので、関係者は大変驚いた。KEK中性子散乱施設の責任者であった池田宏信はそれまでの心労も加わって急逝した。筆者は石川義和の急死に継いで、盟友の池田を失って呆然自失の悲嘆にくれた時期でもあった。J-PARCは原研とKEKの両機構が双頭の運営体制で計画を遂行するという極めて異例の態勢で出発した。この即断の決定は時代の要請として政治的には順当な施策であったかも知れないが、単一の大規模施設運営組織を持つ方が理想的であることは多くの人が認めていることでもあり、早晩見直される時期がくるのではないだろうか。

5. 成熟期 (2010~)

2006年にBSFの陽子加速器が停止し、2008年にJ-PARCが運転を開始する時を迎えて、日本の中性子散乱研究はJRR3と共に東海の原研キャンパスに拠点を持つことになった。現在、MLF施設の中性子源の遮蔽体の周りに23本のビーム孔が開けられているが、すでに殆どの孔に装置が据え付けられて、MLFの偉容は世界最強の中性子ビームに相応しいものと言える。MLFの中性子発生源は強い陽子線によるスパレーション反応の発熱を除去するために、液体Hgを循環させる最新の技術が開発され、その上実験目的に応じて最適化された3種類の中性子減速器が備え付けられた。3 GeV, 1 MW, 25 Hzの陽子ビームから発生するパルス中性子は原子炉の定常中性子源を超える広いエネルギー(波長)で利用できるように、中性子源や減速器さらに陽子加速器の出力やパルス繰り返し頻度(frequency)など、KEK、原研両機関の緊密な協力態勢で実現した。この協力体制の実現には渡辺昇が貢献した。筆者は当然これを凌駕するパルス中性子源はでてこないように思う。

MLFに建設された装置群は中性子パルス源との整合性まで充分考慮され、測定の高度化技術あるいは装置開発は究極を目指した域に到達している。2, 3の例をあげる。短パルス中性子を供給する減速器を臨む粉末回折計(super high resolution powder diffractometer)は、線源から100 m強の飛行距離後方に位置する。その結果、TOFの波長分解能を1/1,000以下($\Delta d/d \sim 0.1\%$)にできる。この装置を使うと、格子常数の精密測定から磁性体の磁歪効果等が観測できる。第2章に紹介した木村 sputonikの開発以来続けられた40年後の究極の粉末回折装置と位置づけられる。またLAM80としてKENSで活躍した低エネルギー中性子非弾性散乱装置はJ-PARCではDisk chopperやback scatteringの低エネルギー分光器の装置の随所に開発要素が受け継がれて前章で例示されたように、高エネルギー分解能でマイクロエレクトロンボルト(μeV)領域の非弾性散乱測定が達成された。同様に日英協力で開発されたMARIはJ-PARCでは3種の

質の異なる chopper 分光装置として開発経験が活かされ、今後の広いエネルギーと運動量空間を網羅できるマイクロ運動の顕微に寄与することは間違いない。

J-PARCの陽子ビームの強度は現段階では最高値の半分位の段階であるが、すでに装置群の性能はどれを取りあげても世界最高水準にある。2-3年後には1MWの目標値に達すると予定されているので、各装置の性能は倍増すると思うと、期待に胸が高まる。問題はこれらの性能に見合う質の高い研究成果をどう産み出すかで成熟期の最大の課題である。利用研究数が増えることは当然であるが、測定やデータ解析技術を継続的に進歩させて、常に新鮮さを失わない研究環境をどう構築するか、利用者の満足度を充たすことは大きな課題である。筆者は今の日本の大型施設に共通している現象であるが、施設の研究陣の層の薄さが大変気になる。欧米の施設では平均3、4人が1台の装置の世話と利用を担当しているが、J-PARCでは2人にも充たない。その上共通の機器や計算器を専任に担当する陣容も充分ではない。このような状態では装置開発や新しい実験方法等を模索する余裕は容易にでてこない。また、施設と大学との人事交流も盛んとは言い難い。タコツボというような言葉を使いたくないがこの解消には活発な交流が生まれる新しい仕組みが必要である。J-PARCは国際知材と言われて久しいが、国際化への取り組みは遅々として進まないことも問題である。欧州の大型施設を眺めると、大学を始めとする研究機関や国際協力協定等の施策や制度の成熟度は日本とは比較にならない程進んでいる。一方、日本は国際化の取り組みまでの余裕はなく、国内の利用拡大に汲々としている。50年の歴史の間、大施設を統一的に運営する機関を持ち得なかった過去の呪縛を拭い去って、世界一の中性子散乱施設を取り仕切る真の研究センターの設立を希望する。そして懸案となっている課題が順序立てて解決される日が一日も早く来ることを願っている。

2011年3月11日に東北地方を襲った巨大地震と津波のために福島原発の原子炉が爆発し、以来日本の原子炉は原発だけでなく研究用原子炉も停止したままである。それ以前に停止していたJRR3は4年以上眠ったままのあり得ない異常な状態が続いている。この停止以前にはJRR3のビーム強度の上昇プランなど、J-PARCとJRR3と両方の中性子源が互いに800mしか離れていない研究環境をどのように活用するか活発に議論されていた矢先の一瞬の大事件となった。福島事故以来、原子炉利用などを声にだすことさえもできない状況である。しかし、JRR3からの定常中性子源とJ-PARCのパルス中性子源との両刀使いができてこそ、日本の中性子研究の成熟期への展望が開けることは日本の中性子散乱研究者が等しく共有している宿題であるということを読者に訴えてこの章を締めくくる。

6. おわりに

繰り返しになるが今から始まる成熟期の中性子散乱研究

に日本が求められていることは、過去に日本の中性子散乱研究の発展を支援してくれた欧米の施設で活躍する先達の指導で得た成果でもある。同じことを今度は近隣の発展途上国に惜しめない支援と協力としてお返しする機会を与えられた。これを実現するには日本の研究施設の国際化のレベルアップを早急になしとげ、世界中の中性子利用者がMLFなりJRR3に訪問しそれらの施設から世界的な研究結果を出せるようにしなければならない。

半世紀余りの科学史の一端である日本の中性子散乱の歴史を振り返ってみると、当たり前ではあるが、第2次世界大戦の敗戦時から急速な回復と発展、右肩上がりの成長を経て今日のように成熟の過程を歩んで来た社会事情を色濃く映している。歴史を辿ってみて、先人が描いてきた大きな夢であるJ-PARCの中性子散乱施設が世代を繋いでやっと実現し成熟してきたという事実を読者と共有できたとしたら筆者の望外の喜びでもある。最初にお断りしたが、この小文は小特集を企画された方の主旨から逸脱したことを御詫びしながら、筆者の独断と偏見をお許し願いたい。

参考文献

- 1) 藤井保彦, 神山 崇: 中性子科学誌「波紋」24 (2014) 132.
- 2) O. Halpern and M. H. Johnson: Phys. Rev. **55** (1939) 898.
- 3) 木村一治: 『遅い中性子の散乱』(小山書店, 1946).
- 4) 中性子の非弾性散乱研究会報告: JAERI **1113** (1966).
- 5) H. Ikeda and K. Hirakawa: Solid State Commn. **14** (1974) 529.
- 6) 東北大学理学部附属原子核理学研究施設: 『電子線による将来の原子核物理学: 東北大学ライナックの役割』(東北大学原子核理学研究施設出版, 1986).
- 7) 高エネルギー加速器研究機構: 『KEK 陽子加速器の軌跡: 加速器・素粒子・原子核』(高エネルギー加速器研究機構出版, 2007).
- 8) H. Nojiri, M. Uchi, S. Watanabe, M. Motokawa, H. Kawai and Y. Endoh: J. Phys. Soc. Jpn. **60** (1991) 2380.
- 9) S. Itoh, Y. Endoh, K. Kakurai and H. Tanaka: Phys. Rev. Lett. **74** (1995) 2375.
- 10) 日本物理学会誌 **66** (2011) 29—小特集: 大強度陽子加速施設 J-PARC.

著者紹介



遠藤康夫氏: 専門分野は中性子散乱による物性研究。金属強磁性、反強磁性のスピンドYNAMIXス及び中性子分光法に興味がある。

(2014年10月7日原稿受付)

Road to J-PARC from JRR2 (50 years' history for neutron scattering research activity in Japan)

Yasuo Endoh

abstract: Neutron diffraction researches in Japan started more than 30 years after the discovery of neutrons in 1932, when intense thermal neutrons were delivered in Japan from JRR2 of the research reactor. Today, the most intense pulsed neutrons in the world can be supplied at J-PARC facility in Tokai and various neutron scattering research have been developed. This article covers the road of the research activities from JRR2 to J-PARC for about a half century, which may contain a guide for future developments in Japanese neutron scattering activities.

我が国における生体分子・粒子の構造解析 —過去・現在そして未来の展望

中 迫 雅 由 (慶應義塾大学理工学部)

山 本 雅 貴 (理化学研究所放射光総合科学研究センター)

生物の基本単位は何かと問われると、それは細胞であろう。さらに、細胞を相手にする研究の究極の目標は？と問われると、細胞の一生をサブナノメートルの空間分解能とピコ秒程度の時間分解能で記述することが一例として挙げられる。大きさ数～数十 μm 程度の生物細胞は、 10^{18} 個程度の水分子を含む。その中では、脂質分子二重膜によって隔離され、生命現象を担う生体分子群やその設計図である核酸を集積した、高度かつ多階層的機能空間としての細胞内小器官(オルガネラ)が様々な生理学的機能を担っている。細胞や細胞内小器官のような機能空間の時空間構造やそれを構成している生体分子の姿を解明することは、生物学を物理学の俎上に載せるためには不可欠であると考えられる。

生体物質のX線構造研究は、1930年代に英国で始まっており、1960年代には、大量に試料精製可能な蛋白質の結晶構造が決定されていた。我が国では、1970年代半ばから、蛋白質のX線結晶構造解析やX線小角・回折による生体超分子系の構造研究が、大学で行われるようになった。1983年に高エネルギー物理学研究所(当時)においてフォトンファクトリーが稼働し始めると、高強度X線を利用した筋肉や生体膜のX線小角散乱・回折実験が盛んになり、放射光スペクトルの波長連続性を利用した多波長異常分散法による蛋白質結晶構造解析が世界に先駆けて行われた。1997年にSPring-8が稼働すると、回折強度データ収集中に生じる蛋白質結晶の放射線損傷の対策が低温X線回折実験として実現され、それまで困難であった放射線敏感な蛋白質結晶の構造解析を可能とし、21世紀に入って μm サイズの微小結晶の構造解析が実現された。X線小角散乱・回折実験では、一次元の散乱プロファイルから分子の三次元形状を推定することが可能となっている。2012年には、新しい光源としてX線自由電子レーザーが登場し、超高輝度X線を利用した無損傷高分解能X線結晶構造解析や非結晶粒子のX線構造解析の道が開かれた。

本稿では、過去40年間の我が国における生命科学分野でのX線結晶構造解析とX線小角回折の歴史を、我が国のX線構造解析分野が得意とする計測技術の発展を軸としながら振り返ることとした。なお、図の説明では、著者らの実験ノートを見返して、可能な限り露光時間を記録したので、当該分野での40年間の技術発展がいかにかすまじいかを理解いただけたらと思う。参考文献については、初学者が関心を持つように、国内の総説・解説を掲げ、個々の構造解析の成果については、分子生物学などの教科書や学会誌等を参照していただくこととした。

1. はじめに

本稿で取り上げるX線結晶解析は、特殊環境下で生体分子が整列して形成される結晶中での生体分子の平均構造を原子レベルで調べる手段として大きく発展し、X線小角散乱は任意の環境にある生体分子の構造を理解するため長年にわたって用いられてきた。まず、X線回折の原理を復習しつつ、生体分子特有の問題を取り上げ、X線結晶構造解析において生体高分子の立体構造をどのようにして決めているのかという位相問題の解決について記述した後、我が国におけるX線構造解析の歴史を振り返る。

1.1 生体試料のX線回折¹⁾

物質に可干渉性X線束を入射すると、その弾性散乱(トムソン散乱)過程では、入射X線電場によって振動する物質中の電子が、入射X線と同じ波長のX線を双極子放射(散乱)する。マックスウェル方程式の線形性により、照射野にある電子から放射される波が足し合わされ、巨視的スケールでの干渉縞となって観測される。干渉縞の模様と強弱は、物質内の電子密度分布に依存して生じるので、原子間距離(0.15 nm)程度の波長を持つX線を用いて、干渉縞をより広い立体角で測定すれば、物質中の原子配置を知

ることができる。

強度 I_0 で波長 λ のX線を入射伝播ベクトル \mathbf{k}_0 で入射し、回折角 2θ の伝播ベクトル \mathbf{k} の方向で回折強度を測定する。散乱ベクトル \mathbf{S} (本稿では、運動量移行 \mathbf{Q} ($|\mathbf{Q}|=|\mathbf{k}-\mathbf{k}_0|=4\pi\sin\theta/\lambda$)ではなく、構造解析でよく使用され、分解能を計算しやすい散乱ベクトルとして \mathbf{S} ($|\mathbf{S}|=|\mathbf{k}/2\pi-\mathbf{k}_0/2\pi|=2\sin\theta/\lambda$)を用いる)において観測される干渉縞の強度 $I(\mathbf{S})$ は、粒子の構造因子 $F(\mathbf{S})$ とその複素共役、一個の電子に関するX線散乱断面積や干渉縞検出での幾何学的因子の積として表される。

$$I(\mathbf{S}) = I_0 r_e^2 \lambda^2 K F(\mathbf{S})^* F(\mathbf{S})$$

$$F(\mathbf{S}) = \int \rho(\mathbf{r}) \exp(2\pi i \mathbf{S} \cdot \mathbf{r}) d^3r$$

$$= \sum_i f_i(\mathbf{S}) \exp(2\pi i \mathbf{S} \cdot \mathbf{r}_i) = |F(\mathbf{S})| \exp[i\alpha(\mathbf{S})]$$

r_e は古典電子半径(2.8179×10^{-15} m)であり、一電子の散乱断面積は極めて小さい。古典電子半径が小さいため、回折実験では十分な入射X線強度が必要である。 K は、試料サイズやX線の偏光などの実験条件に起因する量である。構造因子 $F(\mathbf{S})$ は物質内電子密度分布 $\rho(\mathbf{r})$ のFourier変換で

あり、個々の原子位置 r と散乱ベクトルで決まる位相項を、原子が X 線を等方的に散乱する能力 (原子散乱因子) $f(S)$ で重みづけしたものの和としても表現できる。例えば、鉱物や無機塩結晶の単位格子内の原子数は数十、有機化合物でも多い場合で数百である。これに対して、蛋白質結晶の場合、 $10^3 \sim 10^7$ にもおよぶ。また、以降、慣例に従って実際の三次元空間を実空間、Fourier 変換で関係づけられる散乱ベクトルの空間を逆空間と呼ぶ。

構造因子の大きさ $|F(S)|$ を構造振幅、偏角 $\alpha(S)$ を位相と呼ぶ。残念ながら、 $\alpha(S)$ は回折強度測定で失われてしまう。構造解析に用いる X 線の波長が 0.1 nm 程度なので、その振動数は 10^{18} Hz のオーダーである。そのような電磁波の位相を実時間計測することはおそらく不可能で、電子密度分布を構造因子の逆 Fourier 変換として得るには、何らかの方法で $\alpha(S)$ を推定せねばならない (X 線構造解析における位相問題)。また、弾性散乱であるが故に、実験で得られる回折強度パターンは、逆空間の半径 $1/\lambda$ 球 (反射球または Ewald 球と呼ばれる。運動量移行 Q を用いる場合、球の半径は $2\pi/\lambda$ である) と交差する強度分布に限られる。実験では、入射 X 線に対して試料を回転させ、逆空間の広い範囲で反射球と回折強度分布の交差を変化させることで、解析に必要な回折強度分布を得る。

細胞及びそれに含まれる分子は、水素、窒素、炭素、酸素、硫黄、リンといった軽元素を多く含んでおり、X 線散乱能に極めて乏しい。そのため、入射 X 線強度を大きくしてより高い解像度でより小さな対象の構造を調べるといった技術開発の方向性が決まってくる。例えば、波長 0.1 nm の X 線を用いて分子量 200 万の生体分子の回折パターンを $S=1/0.8 \text{ nm}^{-1}$ (実空間の分解能 0.8 nm に対応) まで S/N 良く得るには、断面積 $1 \mu\text{m}^2$ の X 線束に 10^{17} 光子程度の X 線光子が必要となる。一方で、立体構造が未知の分子が結晶化できる場合、沢山の分子が規則正しく三次元配列することで、電子散乱断面積の小ささを補償可能な Bragg 回折現象が生じ、小さな電子散乱断面積を克服できる S/N 比での測定を可能とする。

2. 生体分子の X 線結晶構造解析²⁾

現在、生体分子の X 線結晶構造解析は、X 線回折の原理や成り立ちを知らない生命科学研究者が、分光光度計等の計測器と同様に容易にアクセスできる手法として成熟・普及している。本項では、まず、生体分子結晶の特徴と結晶構造解析法を概説したうえで、我が国での黎明期を振り返り、放射光の登場以降将来に至るまで廃れることなく用いられている重要な測定方法について取り上げる。

2.1 生体分子の結晶³⁾

生体分子の結晶を作成することは、今日でも困難なことであるが、 $S=1/0.35 \text{ nm}^{-1}$ (実空間の分解能 0.35 nm に対応) 程度まで回折パターンを与えることのできる良質な結晶を手にすることができれば、その構造解析は容易に可能と

なっている。生体分子の結晶は、硫酸アンモニウムやポリエチレングリコールを代表とする沈殿剤水溶液と生体分子水溶液を混合して得られ、その体積の 30–90% は流動性を保った水溶液によって占有されている。地球上の生体分子には光学異性体が存在しないので、230 種類の空間群のうち、鏡映対称を含まない 65 種類のみが生体分子が取りうる空間群となる。結晶の非対称単位は 1~複数個の蛋白質分子やその複合体 (ウイルス粒子も含む) によって構成されるので、結晶格子定数は、それらの大きさ (数 nm から 100 nm に達する) 程度となる (図 1(a))。それ故、望みの分解能までの Bragg 回折斑点数は、少ない場合でも数千、多い場合には数千万に達することになる。NaCl 結晶の Laue 回折写真 (図 1(b)) と単色 X 線で得られた蛋白質結晶の振動回折パターン (図 1(c)) を比較してみれば、この分野では、大量のデータを扱わなければならないことが容易

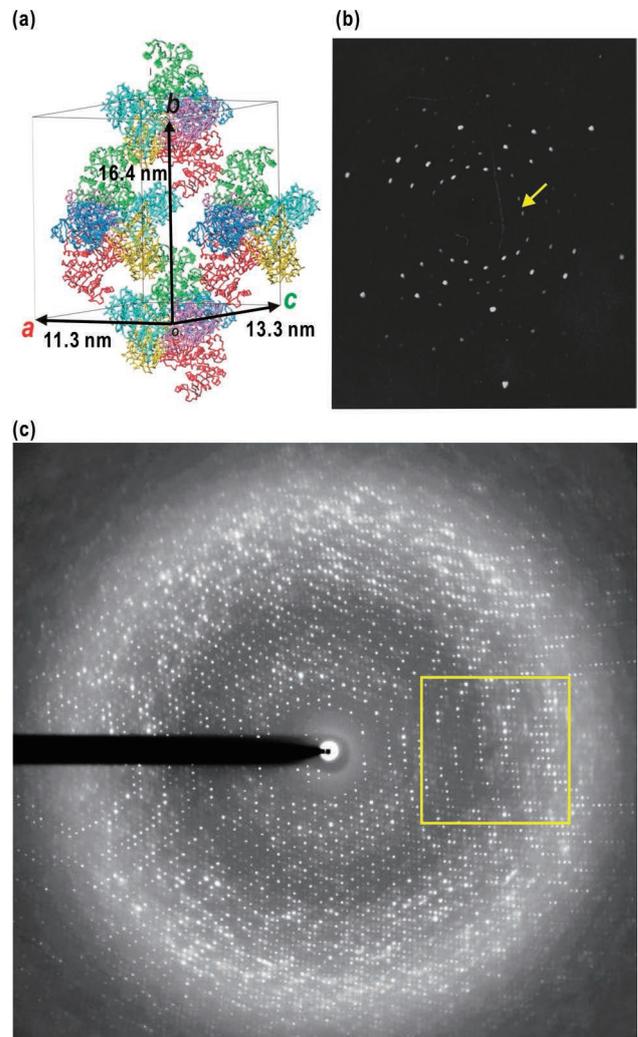


図1 (a) 蛋白質結晶の単位格子と分子質量 280 kDa の蛋白質分子の充填様式。空間群は $P2_1$ である。(b) 1982 年に X 線管球 (35 kV, 10 mA) を用いて得た NaCl 単結晶の Laue 回折写真。露光時間は 1 時間であった。矢印は (c) の回折写真の黄色い箱で示した領域と分解能が同程度である。(c) 2011 年 11 月に SPring-8 BL26B1 においてパネル (a) の単位格子を持つ蛋白質結晶から得られた振動回折パターン。結晶内での分子の構造多形を反映した散漫散乱が顕著である。X 線波長 0.10000 nm, 振動角 0.5 度, 露光時間 20 秒で、CCD 検出器を用いて露光した。黄色い箱は $S=1/0.8 \sim 1/0.4 \text{ nm}^{-1}$ (実空間の分解能は 0.8~0.4 nm に対応) の領域に置かれている。

に想像できるであろう。

2.2 蛋白質 X 線結晶構造解析における位相問題の解決²⁾

ヨーロッパでは1930年代に蛋白質の結晶が得られており、第二次世界大戦後は、戦前にオーストリアから英国ケンブリッジ大学に移ったペルツらによって結晶構造解析が進められていた。当初、彼らは回折強度から得られる自己相関関数(空間相関関数)を用いて構造解析を試みていたが、1950年ごろにクリックがペルツらのアプローチを批判し、従来から有機低分子結晶の構造解析に用いられてきた多重重原子同型置換法(Multiple Isomorphous heavy-atom Replacement: MIR)を用いた位相問題解決が提案された。⁴⁾ここでは、MIRの原理を模式的に説明しながら、実験室での構造解析例を用いてその実際を説明する。

生体分子の結晶には、流動性を持ったnmサイズの溶媒通路(溶媒チャンネルと呼ばれる)が貫通しているので、外部から浸透させた化合物を結晶中の生体分子表面の特定部位に結合させることができる。試行錯誤を繰り返していると、生体分子構成原子に比べて電子を多く含む六周期族等の無機または有機化合物が結合する場合がある(重金属置換体)。この際、結晶格子に対する分子の配向や配置に変化が無ければ(同型性: isomorphism)、置換体の結晶構造因子 $F_{PH}(S)$ には、もともとの結晶(native結晶)の構造因子 $F_P(S)$ に重金属化合物の構造因子 $F_H(S)$ が付与される。

$$F_{PH}(S) = F_P(S) + F_H(S)$$

重金属化合物の構造因子は、置換体と置換していない結晶の回折強度のみから、ある近似の下で差 Patterson 関数から推定できる。図2(a)に示すように、不確かさなく構造振幅を測定できるのであれば、原理的には2種類の置換体を用意し、それぞれの重原子構造因子を決定すれば、複素平面上で3つの構造振幅 $|F_P(S)|$ 、 $|F_{PH1}(S)|$ と $|F_{PH2}(S)|$ から描かれる円が交差する点として、位相 $\alpha(S)$ を決定できる。希望する分解能範囲に出現する Bragg 斑点全てにこの解析を施して位相を決めることができれば、構造因子の逆 Fourier 変換として結晶内の電子密度分布を計算できる。MIRは、例えるならば、位置が不明な2つのスリットに対するヤングの実験において、3つ目の小さなスリットを2種類用意し、干渉縞強度の微妙な変化から、2つのスリットの位置を決定する手法であると言えよう。

実際には、X線回折強度測定における、X線検出時のポアソン雑音をはじめとする様々な要因が回折振幅に不確かさをもたすため、図2(a)のように位相を一意に決めることは困難であり、位相を確率分布として取り扱うことになる(図2(b))。この点はMIRの導入当初からクリックによって指摘され、確率分布関数に基づいて彼が導入した指標を用いて、位相の確からしさが見積もられる。図2(c)に示した電子密度図は、実験室で収集した不確かさの高い回折強度データをもとに得た位相の組を用いて計算したものである。どこに蛋白質分子が存在するのかを見通すには

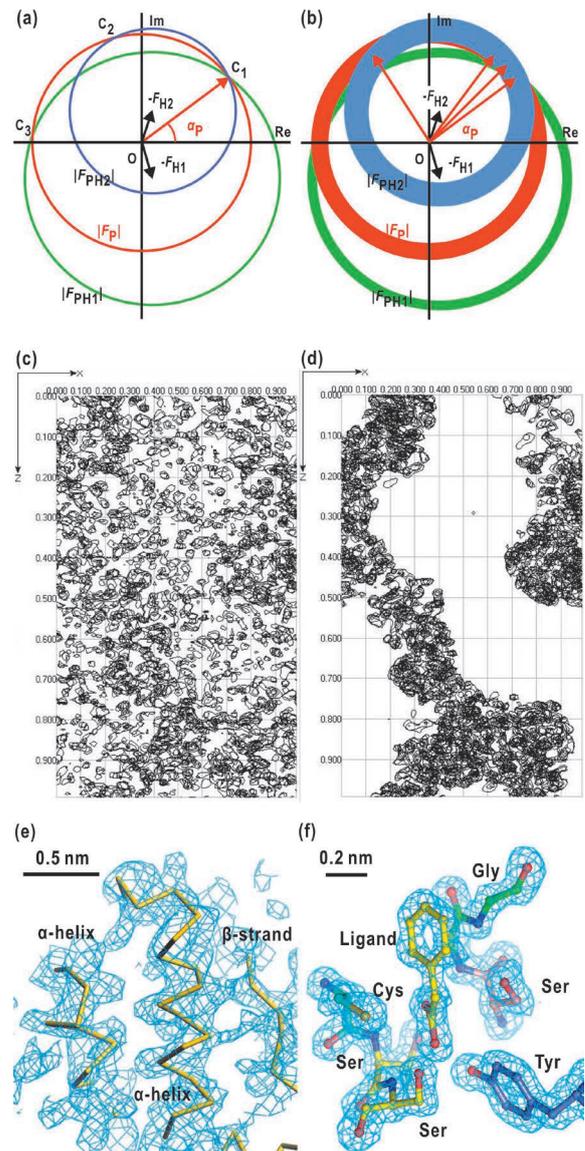


図2 (a) 回折強度データに不確かさが無い場合のMIRによる位相決定。複素平面上である散乱ベクトルでの構造因子を描いてある。重原子の構造因子(F_{H1} や F_{H2})は自己相関関数を用いた方法で決定された重原子位置から計算される。(b) 回折強度データに不確かさが含まれる場合、位相は確率分布関数として扱われる。(c) 実験室で得られた一つの native 結晶と四種類の重原子置換体の回折振幅データから得た位相の組を用い、 $S=1/0.35\text{ nm}^{-1}$ (実空間の分解能は0.35 nmに対応)までの回折強度データに対して計算された電子密度図。(d) パネル(c)の電子密度の溶媒領域電子密度を平滑化し、位相再計算後に得た電子密度。(e) パネル(d)の一部を拡大すると α -ヘリックスや β -ストランドと呼ばれる構造が見出される。(f) 電子密度に分子模型を構築した後、 $S=1/0.15\text{ nm}^{-1}$ (実空間の分解能は0.15 nmに対応)の回折データまでを順次取り込みながら分子構造の結晶学的精密化を行った結果得られた触媒中心付近の電子密度と分子模型。

多少の馴れが必要であり、さらに位相の分布確率の改善のために新たな重原子置換体を探索する必要があるように見える。

現在では、蛋白質結晶中の溶媒領域の電子密度が空間的に大きく変動しないこと、蛋白質内の電子密度はどれでもおおそ同じ頻度分布を示すこと等を利用し、溶媒領域の電子密度を平滑化したり、蛋白質内部の電子密度分布を変化させて、正しい位相により近づけるアルゴリズムが考案されている。図2(d)の例では、このような方法で改良さ

れた電子密度図に分子の姿が現れている。より拡大してみると、電子密度の中に α -ヘリックスと呼ばれる蛋白質を形成する基本構造が見出された(図2(e))。電子密度がこのような質に達すると、立体構造が高い解像度で判明している生体分子の構成要素であるアミノ酸や核酸等を、その構造の柔軟性を考慮しながら電子密度に当てはめる。さらに、最尤法や焼きなまし法等を用い、立体化学的制限の下で回折振幅をもっともよく説明する立体構造モデルを推定する結晶学的構造精密化を施す。構造解析対象分子に類似した立体構造を持つ分子がある場合には、回折強度のFourier変換で得られる空間相関関数を頼りに分子置換法(Molecular Replacement)によって解析が進められる。

人類の資産ともいふべき立体構造解析の成果は、Protein Data Bank (<http://www.rcsb.org/pdb/home/home.do>)に登録されており、だれでも簡単に立体構造をダウンロード可能である。教育、研究のみならず産業界でも利用されている。

2.3 我が国におけるX線構造解析の始まり：1970-1980年代における実験室での構造解析

蛋白質のX線結晶構造解析発祥の地、英国では、1930年代に蛋白質の結晶が得られ、その回折パターンの撮影にも成功していた。1960年代には、マッコウクジラ・ミオグロビン、ウマ・ヘモグロビン、卵白リゾチームなど、食物から大量に試料精製可能な蛋白質について結晶構造解析がなされていた。

我が国独自の蛋白質の結晶構造解析は、1970年代に大阪大学・蛋白質研究所・物理構造部門^{5,6)}と東京大学・薬学部・薬品物理分析教室⁷⁾で行われた。それぞれの研究室では、海外の研究室と共同ではなく、最新の技術を博士後研究留学で学んだ若手研究者が、後進を指導しながら、あるいは大学院生が稀有な能力を発揮しながら、⁸⁾蛋白質の立体構造をMIR法で明らかにした。

当時のX線回折による構造解析は、回転対陰極型または管球型X線発生装置と、反射球面をなぞるための歳差運動カメラ(現在の若手研究者からはロスト・テクノロジーと揶揄される)を用いた空間群の決定に始まる(図3(a))。例えば、逆格子($hk0$)面などのBragg斑点を歪みなくX線フィルム上に露光し、消滅則と格子定数から空間群や非対称単位を占有する蛋白質分子数等を決定した。一方、精密な回折強度測定には、四軸回折計を用い⁹⁾(図3(b))、指定した指数の逆格子点がBragg回折条件を満足するように三軸で結晶方位を制御しながら、第四の軸に搭載されたシンチレーション検出器でその回折強度を測定する。千程度の回折斑点を測定するのに月の単位を要し、放射線損傷を受けた結晶を取り替えながら測定したとのことである。

重原子置換結晶を調製する毎に、歳差運動カメラを用いて回折強度変化の有無を調べ、重原子が結合しているものについては四軸回折計で回折強度データを収集する。回折強度データの処理、Fourier変換など、沢山の過程で大型計算機が使用されるので、結晶解析の研究室は当時の大学

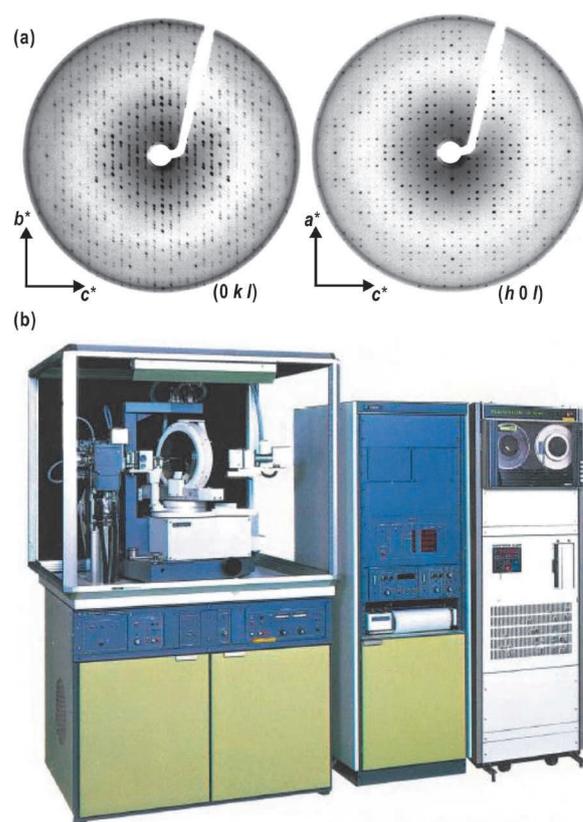


図3 (a) 蛋白質結晶の歳差運動写真によって写し取られた $(0kl)$ (左)及び $(h0l)$ (右)の逆格子面。X線管球(45 kV 40 mA)を用い、露光時間は12時間であった。消滅則と格子定数から、空間群 $P2_12_12_1$ 、格子定数 $a=5.4$, $b=6.9$, $c=14.6$ nmであり、非対称単位中に分子質量14 kDaの蛋白質が4個存在することが推定された。(b) 1970年代中ごろ~1990年代中ごろまで、実験室における蛋白質結晶の回折強度データ収集に用いられた回転対陰極X線発生装置と四軸回折装置(株式会社リガク御提供)。

に設置された大型計算機のヘビー・ユーザーであった。黎明期の構造解析過程に興味があれば、当時の博士論文⁸⁾などを国立国会図書館で閲覧することができる。

2.4 異常散乱を用いたX線結晶構造解析

1983年に高エネルギー物理学研究所(当時)のPhoton Factory (PF)がユーザー利用を開始し、第二世代放射光を用いた構造解析が始まった。2.5 GeVの電子(陽電子)蓄積リングは、それまでに無い強力なX線光源となって、様々な分野の研究者がその恩恵に浴した。位相安定によってバンチ化した電子群は、偏向電磁石やウィグラーにおいて加速エネルギーに反比例した角度幅で観測者にパルス光を発するため、そのパワースペクトルは波長の短いX線領域から真空紫外領域までの広域に及ぶ。この波長の連続性を利用し、世界に先駆けた多波長異常分散法(Multi-wavelength Anomalous Dispersion: MAD)による蛋白質の結晶構造解析が、同施設のBL14Aにおいて始まった。¹⁰⁾このビームラインは縦型ウィグラーを光源とし、シリコン二結晶モノクロメーターによって10 keV前後のエネルギーを持つX線をeVの精度で分光し、水平型四軸回折計を設置した実験ハッチに供給した(図4(a))。

ここで、多波長異常分散法による位相問題の解決につい

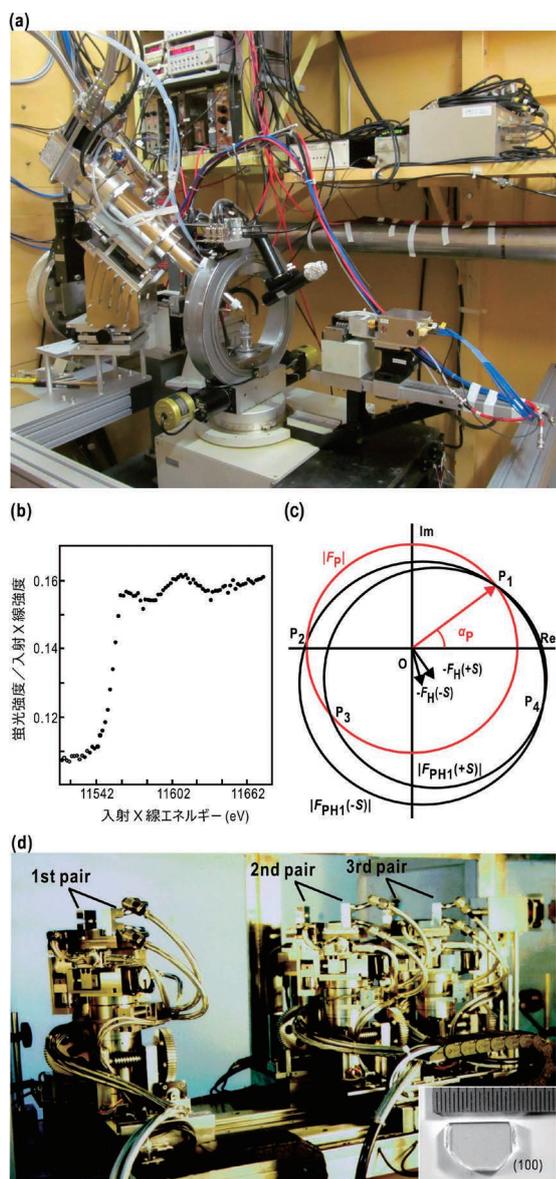


図4 (a) PF BL14Aの実験ハッチに設置されている水平型四軸回折計(2014年撮影。高エネルギー加速器研究機構PF岸本俊二博士御提供)。(b)1990年にBL14Aにおいて得られた蛋白質の白金置換体結晶に対する白金 L_{III} 吸収端近傍での蛍光X線強度測定結果。(c)MIRの考え方に従えば、異常散乱によるFriedel則の破れを利用して、Bijvoet対構造因子の差を蛋白質結晶からの位相決定に利用できる。(d)1997年にSPRing-8のBL45に設置された通称トリクロメーター。異常散乱原子吸収端近傍の三波長を三組の定位置出射型ダイヤモンドモノクロメーターによって提供する。右下は使用された高品質人工ダイヤモンド単結晶。

て簡単に紹介しておきたい。¹⁰⁾ 一般に、原子散乱因子は

$$f = f_0 + f'(\lambda) + f''(\lambda) \exp\left(i \frac{\pi}{2}\right)$$

と表される。第一項は弾性散乱に、第二項は電子に対する摩擦と束縛力に由来する分散、第三項は量子飛躍に由来する異常分散を表す。第一項が波長依存を示さないのに対して、第二、第三項は入射X線波長に依存して変化し、第三項では1/4波長の位相シフトを生じ、 $f'(\lambda)$ と $f''(\lambda)$ はKramers-Kronig変換で相互に結び付けられる。原子の吸収端付近で $f'(\lambda)$ と $f''(\lambda)$ は大きく変化するので、入射X線の波長を連続的に変化させながら、異常分散効果を示す原

子からの蛍光X線強度変化を測定することで、異常分散による原子散乱因子の変化が顕著となる2つ以上の波長を選択できる(図4(b))。それぞれの入射X線波長で回折強度を測定すれば、原理的に、MIRと同様の考えによって蛋白質結晶からの構造因子の位相を推定することが可能となるであろう(図4(c))。

このような異常分散原子の原子散乱因子を考慮すれば、異常分散原子を含む蛋白質結晶の構造因子は

$$F(\mathbf{S}) = F^N(\mathbf{S}) + F^A(\mathbf{S}) \frac{\sqrt{[f_0 + f'(\lambda)]^2 + f''(\lambda)^2}}{f_0}$$

となる。 $F^N(\mathbf{S})$ と $F^A(\mathbf{S})$ は、それぞれ、非異常分散原子集団の構造因子、異常分散原子集団の構造因子で、波長依存性を持たない。これより観測される強度は、

$$\begin{aligned} I(\mathbf{S}, \lambda) \propto & F^N(\mathbf{S})^2 + F^A(\mathbf{S})^2 \frac{[f_0 + f'(\lambda)]^2 + f''(\lambda)^2}{f_0} \\ & + 2F^N(\mathbf{S})F^A(\mathbf{S}) \frac{f_0 + f'(\lambda)}{f_0} \cos[\alpha^N(\mathbf{S}) - \alpha^A(\mathbf{S})] \\ & - 2F^N(\mathbf{S})F^A(\mathbf{S}) \frac{f''(\lambda)}{f_0} \sin[\alpha^N(\mathbf{S}) - \alpha^A(\mathbf{S})] \end{aligned}$$

と表される。それ故、異常散乱子を含む結晶について、Bijvoet対のFriedel則($F(+\mathbf{S}, \lambda) = F(-\mathbf{S}, \lambda)$)が厳密に成り立たなくなる(図4(c))。構造振幅 $|F(\pm\mathbf{S}, \lambda)|$ を複数の波長 λ で測定すれば、上記連立方程式を解き、非異常分散原子集団からの回折波の位相 $\alpha^N(\mathbf{S})$ を求めることができる。

実験室で任意波長の高強度X線を得ることは困難であるが、放射光の波長連続性がそれを可能とした。入射X線波長を任意に選べるので、第三項の $f'(\lambda)$ あるいは第四項の $f''(\lambda)$ からの寄与を最大にすることが可能となり(図4(b))、1種類の異常分散原子について、波長を変化させるだけで重原子多重同型置換と同様の効果を得ることができる。ただし、異常分散効果による波長に依存した回折強度変化はMIRで利用される六周期族化合物の蛋白質分子への結合によって生じる変化ほど大きくないので、高精度の回折強度データ収集が不可欠である。そのための、強力なX線光源と量子収率の高いX線検出器が必要であり、それによって、蛋白質結晶が放射線損傷を生じる前にデータを短時間で収集しなければならない。また、異常散乱効果を最大にするには、回折強度測定に先立って、X線吸収端分光によって異常散乱効果を最大限活用できる入射X線波長を選ぶ必要がある(図4(b))。

BL14Aでは、当時のミニコンピュータ上に独自に開発されたビームライン光学素子制御プログラムによって、X線吸収端微細構造測定を容易に可能とし、高速データ収集用四軸回折計を用いることができた。のちには、後述するイメージングプレートを用いた振動結晶法によって当時としては迅速なデータ収集を行うことが可能となった。このような世界に例を見ないハードウェアに基づいて異常分散効果を最大限に利用できる実験環境を整備することで、蛋白質内鉄原子結晶中での位置決定や、セレン含有化合

物-蛋白質複合体の立体構造をセレン原子の異常分散効果を利用して決定する等の画期的成果が相次いで報告された。さらに、蛋白質を構成するアミノ酸メチオニンに含まれる硫黄原子をセレン原子に置換したセレノメチオニンを用い、メチオニン要求株大腸菌で大量発現、精製、結晶化した蛋白質について、セレン原子の異常分散効果を用いた構造決定に成功した。この結果は、結晶学と分子生物学を融合した新しい構造解析スキームの提示となり、MIRを超えた現在の結晶構造解析の基盤となる技術が世界に先駆けて確立された。これら一連の成果は、PFの光源性能だけではなく、ビームラインを設計・担当した研究者個人の能力に大きく依存した成果であったと考えられる。

大型放射光施設 SPring-8 では、1997年に、MAD法の利用に向けて高度化された測定装置がBL45に建設された。¹¹⁾ 当時、高品質のダイヤモンドが工業的に生産できるようになっており、同ビームラインでは、定位置射出型二結晶ダイヤモンド・モノクロメーターを3組用いたトリクロメーターが分光装置として開発された。シリコン単結晶とは異なり、原子番号の小さな炭素の単結晶であるダイヤモンド単結晶はX線の吸収が小さくBragg条件を満たさないX線を透過するので、単色化するための二結晶モノクロメーターを複数設置して、異なる波長の単色X線を精度よく、ほぼ同軸で提供可能である。これにより、一旦X線吸収端分光実験で測定波長を決定すれば、Bijvoet対をモノクロメーターを動作させることなく、二結晶間に設置したシャッターの切り替えだけで連続して測定することができた。従来は1つの波長で1データセットの測定を完了した後、放射線損傷を受けつつある結晶で、第二、第三の波長での測定を行っていた。しかし、トリクロメーターによるほぼ同時での三波長強度測定により、異常散乱原子による回折強度の波長変化を精度よく測定することが可能となった。後述する低温X線結晶解析技術と併用することで、海外施設ではMAD法による構造解析に失敗した結晶に対してさえ構造解析に成功する等、生命科学分野での高難度蛋白質結晶の構造解析に大きな成果を挙げた。

現在では、情報理論に基づいた溶媒や蛋白質領域の電子密度を改良することによって位相を改選するアルゴリズムが発展したため、複数波長ではなく一波長での異常散乱効果測定から位相決定を行う単波長異常分散法(Single-wavelength Anomalous Dispersion: SAD)による構造解析が主流となっている。また、蛋白質が本来持っている硫黄の異常散乱効果を手がかりにした低エネルギーSAD法の開発が進められている。この方法のメリットは、セレノメチオニンが不要であり、蛋白質を天然のまま結晶化するだけで位相を求めることができる点にある。

2.5 低温結晶構造解析

PFでは、1990年ごろから、回折強度データ収集中に生じる蛋白質結晶の放射線損傷が顕在化し始めており、より高輝度なX線が利用可能となるSPring-8では蛋白質結晶解

析にとって致命的であると予想されていた。1960年代には液体窒素温度に蛋白質結晶を保持できれば、蛋白質結晶の損傷が防げることが明らかになっていた。1980年代後半には、欧米の放射光実験施設では、非破壊的に蛋白質結晶を液体窒素温度付近まで急速凍結して、放射線損傷を防ぐという手法を開発する研究者が現れ、生体試料の電子顕微鏡観察ではすでに低温下でのデータ収集が常であった。一方、我が国では、結晶が劣化したら取り替えて実験すればよいとの考えが大勢を占めており、低温技術を開発する研究者も皆無であった。当時、放射線損傷のメカニズムは良くわかっていなかったが、X線照射によって蛋白質分子の一部がオージェ電子を放出して構造が壊れる一次的損傷、周辺の水分子が酸素ラジカルに転化して、寿命が尽きるまで結晶中を動き回りながら結晶配列を乱してしまう二次的損傷が想定されていた。

1994年に、非破壊的に結晶を液体窒素温度程度まで冷却する方法として、蛋白質結晶化溶媒に不凍溶媒を添加し、100 K程度の低温窒素ガスに晒すことで結晶及び周辺溶媒をアモルファス氷として低温凍結する手順が考案された。¹²⁾ 液体窒素温度付近に保持することで、結晶の放射線損傷低減の効果は絶大で、実験室でのX線回折実験で $S=1/0.5\text{ nm}^{-1}$ (実空間の分解能は0.5 nmに対応) に達しない回折パターンしか得られない結晶が、実は、放射線敏感であり、実際には、一週間実験室で銅K α 線を照射し続けても $S=1/0.27\text{ nm}^{-1}$ の分解能(実空間の分解能は0.27 nmに対応)まで回折パターンを与えることが明らかになった例もある(図5(a))。低温下でのX線回折強度データを収集後、結晶を室温まで戻すと、一瞬にしてX線照射された結晶及び溶媒領域から泡が発生することから、酸素ラジカルがX線照射によって発生するものの、低温に保持することでその拡散が抑制されるために、二次的に発生する結晶性の低下を回避できるものと考えられた(図5(b))。

1994~1995年にかけて低温X線回折実験法が確立され、操作マニュアルの配布や講習会の開催、従来技術では全く不可能であった超薄結晶等の低温構造解析成功例が報告されると、慣れてしまえば難しくないのでその実験技法は、すぐに若手研究者に広まることとなった。冷却結晶の回収や保存に向けた器具も多数販売されるようになり、現在そして将来においても、低温X線回折実験技術は、蛋白質結晶解析で不可欠なものとなっている。

結晶の凍結は、様々な形態と力学的脆弱性を示す結晶を扱うために、現在でも人の手を介す必要がある場合が多い。しかし、一旦凍結して液体窒素中に保存してしまえば、ロボティクスの導入によって交換やゴニオメーター上でのセンタリングを行うことができる。実際、SPring-8では、特殊なネジを持つ専用マウント具を用いたサンプルチェンジャが開発された(図5(c))。これにより、ユーザーは凍結結晶を液体窒素中の専用サンプルトレイにセットするだけで、脱着用ロボットがトレイから結晶を取り出し、ゴニ

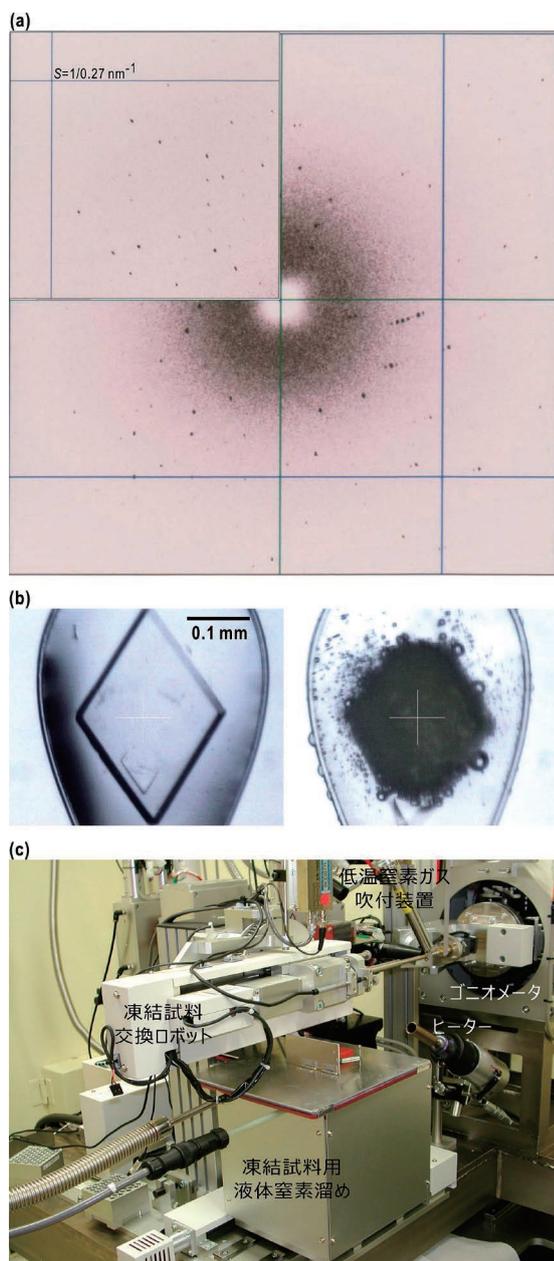


図5 (a) 1995年に実験室のX線回折実験で得られた、非破壊的に凍結した蛋白質結晶からのX線回折パターン。蛋白質結晶の温度は低温窒素ガス吹付装置で露光中は100 Kに保たれていた。回転対陰極X線発生装置からのX線を集光して照射し、IPを用いて振動角0.3度で1時間露光した。左上の象限のみ $S=1/0.27 \text{ nm}^{-1}$ (実空間の分解能は0.27 nmに対応) 付近を拡大して表示してある。(b) SPring-8のBL44B2で撮影された蛋白質結晶の写真。X線露光中100 K (左) と3時間程度のデータ収集終了後に室温まで温度上昇させた直後に撮影した (右)。(c) SPring-8のBL26B1に設置された全自動の低温凍結蛋白質結晶交換装置。

オメーターに正確かつ迅速に載せ、あるいは測定後に、逆の動作で外してトレイに戻すことが可能となり、実験ハッチに立ち入らずに遠隔操作のみで、回折強度データ収集が行えるようになった。¹³⁾

2.6 微小結晶の結晶構造解析

2005年ごろにはMAD/SAD法の確立、それを支える低温回折実験と迅速なデータ収集を可能とする精密ゴニオメーターやCCD検出器、データ収集ソフトウェアによって、結晶ができさえすれば、確実に構造解析が可能な時代

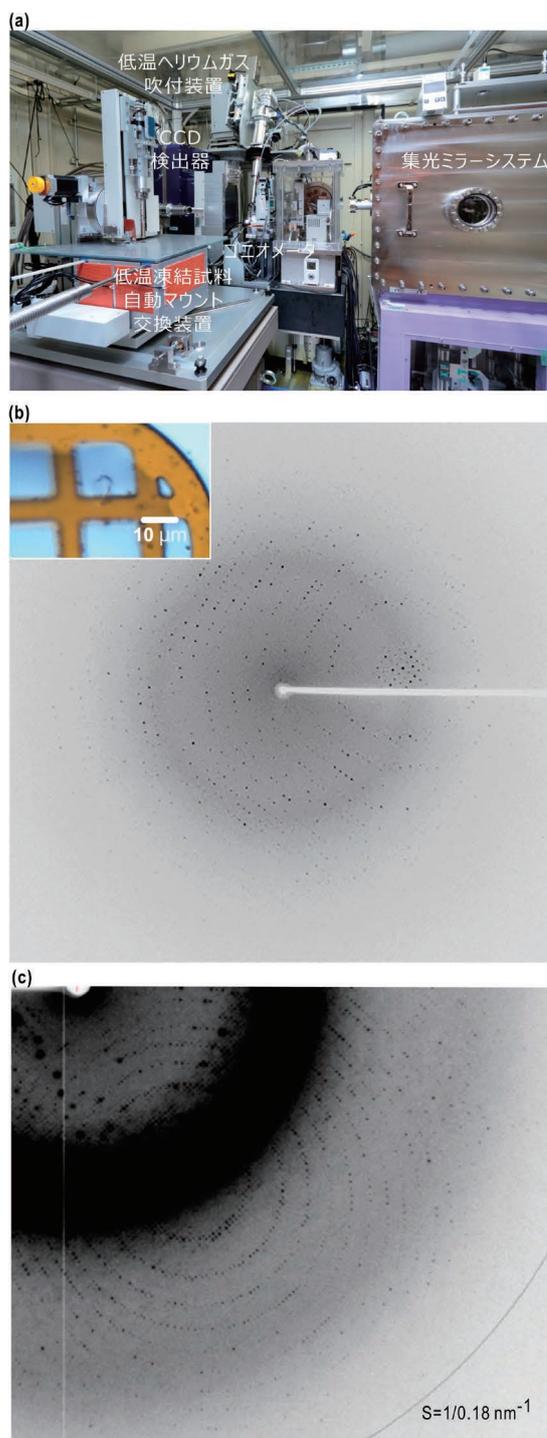


図6 (a) SPring-8のBL32XUにおける微小蛋白質結晶X線回折実験用装置群。集光ミラーによって1 μm 四方のX線ビームが照射位置に供給される。X線ビームや試料の位置安定性確保のため、実験ハッチ内は恒温化され、低温凍結試料自動マウント交換装置によって、ハッチ内に立ち入ることなく実験を行う。また、微小蛋白質結晶のX線露光は、同BL担当者が開発したソフトウェアKUMA (Kessyou wo Ugokashitari Mawashitari suru Application) によって効率的に実施される。(b) 大きさ4 μm に満たない蛋白質結晶からの回折パターン。(c) SPring-8のBL32XUで構築された微小結晶のデータ収集システムや放射線損傷に関わる蓄積は、XFEL施設における無損傷回折データ収集の実施に大きく貢献した。それにより巨大膜蛋白質からシングルショット回折パターンを $S=1/0.18 \text{ nm}^{-1}$ (実空間の分解能は0.18 nmに対応) まで収集することに成功している。

となった。このような背景下、これまでは断念していた数十 μm サイズの微小結晶から、構造モデル構築可能な分解能での回折イメージデータを任意の波長で取得できること

が望まれていた。結晶化条件の再検討には多大な時間と労力が必要であり、微小結晶から高精度の回折強度データを収集して構造解析ができれば、その恩恵は計り知れない。SPRING-8では、これまでの構造解析技術の一つの到達点ともいべきBL32XUが建設された(図6(a)).¹⁴⁾

微小ビームを生み出すために極限集光ミラー¹⁵⁾を用い、2009年には、集光サイズ $1\mu\text{m}^2$ で 6×10^{10} 光子/秒という世界最高性能の高フラックス微小ビームを用いた回折データ収集が可能となった。自動試料交換ロボットによる結晶マウント、微小結晶をX線照射によって検出して高精度に位置を決定するなどの技術開発が進められ、強烈な強度のX線照射による低温下での結晶の放射線損傷に注意しながら、適切な測定戦略を立てたデータ収集を行うためのソフトウェアも開発されている。高フラックス微小ビーム実験は、従来の測定に比べて時間や労力が増えたが、これまで不可能であった高難度蛋白質の微小結晶構造解析が次々に実現されるようになった(図6(b)).

2.7 放射線損傷の無い結晶構造解析

2012年に新しい光源としてX線自由電子レーザー(XFEL)が開発され、SPRING-8 Angstrom Compact Laser(SACLA)で利用できるようになった。¹⁶⁾ この新しい光源XFELによってこれまでの放射光実験では不可能であった新しい生体高分子の構造研究の可能性が広がった。XFEL光はパルス幅10 fs程度の大強度パルスX線であり、その照射によって、イオン化過程を経て最終的に試料はクーロン爆発するが、破壊前に回折現象が起こると考えられる。実際、 $10^{10}/\mu\text{m}^2/10\text{ fs}$ パルス程度のX線を結晶に照射することで、破壊前の回折パターンを取得できる。この現象は“Diffract-before-destroy”と呼ばれ、XFEL光を利用した構造解析の基本となっている。我が国で提案され、既にSACLAでの成果が報告されているXFELの蛋白質結晶構造解析での利用方法として、無損傷高分解能X線結晶構造解析¹⁷⁾が挙げられる。

無損傷構造解析では、SPRING-8のBL32XUなどで開発された回折計をXFELに導入し、数百 μm サイズの比較的大きな低温凍結結晶に対して回折実験を行う。10 fsでは、化学結合の切断やラジカル生成等の直接的・間接的放射線損傷は起こっていないので、シンクロトロン放射光では不可能であった「完全無損傷」の結晶構造解析が可能になる。また、シンクロトロン放射光実験における結晶の限界照射X線量を上回る極短パルス超強力X線を用いれば、結晶損傷による分解能低下が無いので高分解能でのデータ収集が期待された。放射線損傷を受けやすい金属活性中心が機能に重要な二種類の巨大膜蛋白質集合体について、これまでのシンクロトロン放射光実験では不可能であった無損傷構造の解析に成功している(図6(c))。さらに将来的には、極端パルスXFELを利用した蛋白質の高分解能時分割構造解析によって、ps程度の時間しか出現しない蛋白質の反応の遷移状態の構造解析も視野に入りつつある。

3. X線小角回折・散乱

3.1 小角回折・散乱領域に含まれる構造情報

小角回折・散乱では、回折・散乱角が10度程度以下の領域から、非結晶粒子の低分解能構造情報を得る。溶液試料では、露光中にX線に対して粒子があらゆる方向を取ると考える。無限希釈溶液条件での小角散乱強度は、Guinier近似により、電子密度 $\rho(\mathbf{r})$ を有する粒子の原点散乱強度 $I(0)$ (粒子に含まれる総電子数に関する情報)や慣性半径 R_g (粒子の広がりに関する情報)を得ることができる。

$$I(S) = I(0) - \frac{4\pi^2}{3} S^2 R_g^2$$

$$I(0) = \int_{\mathbf{r}} \int_{\mathbf{r}'} \rho(\mathbf{r}') \rho(\mathbf{r}) d^3r d^3r',$$

$$R_g^2 = \frac{1}{2} \frac{\int_{\mathbf{r}} \int_{\mathbf{r}'} \rho(\mathbf{r}') \rho(\mathbf{r}) |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^2 d^3r d^3r'}{\int_{\mathbf{r}} \int_{\mathbf{r}'} \rho(\mathbf{r}') \rho(\mathbf{r}) d^3r d^3r'}$$

また、粒子を N 個の小球体の集合体と見做せる場合には、Debyeの式によって散乱強度を

$$I(S) = I_0(S) \left[N + \sum_{i>j} \frac{\sin(2\pi S r_{ij})}{2\pi S r_{ij}} \right]$$

と表すことができる。ここで、 $I_0(S)$ は小球からの散乱強度、 r_{ij} は任意の2つの小球間の距離である。

本稿では詳細を記さないが、筋肉に代表される一軸配向繊維試料については回折強度を配向軸について平均したものが観測される。螺旋状繊維単位から形成される試料の場合、回折パターンは層線パターンと呼ばれる独特の図形を示し、螺旋の周期や半径といった構造情報を得ることができる。

3.2 X線小角回折・散乱による生体分子集合体などの構造研究

1970年代後半、生物物理学分野では、生体膜の構造や筋収縮のメカニズムの解明を目指す研究が盛んであった。それら研究対象は非結晶試料であり、大阪大学基礎工学部生物工学科等において、小角回折・散乱実験によって構造研究が行われた。代表的なものとして、筋肉の収縮・弛緩状態の静的構造解析¹⁸⁾や光受容蛋白質に富む細胞器の構造研究などを挙げることができる。PFの共同利用開始時、BL10CとBL15A(図7(a))に小角回折計が設置され、筋肉に電気刺激を与えて収縮・弛緩を繰り返し、それに同期させてX線を入射する時間分解測定、¹⁹⁾蛋白質変性の時間分解追跡、光受容蛋白質の光構造変化の研究(図7(b))等、生の生体物質が外部刺激によってどのような構造変化を起こすのかを、分解能が低いながらも、明らかにした研究例が多い。

SPRING-8では、BL45(図7(c))、BL40B2、BL40XU等でも小角回折計が設置され、PFでの構造解析を高度化して、より高精度、より時間分解能の高い測定等に目が向けられた感がある。²⁰⁾特に、二次元集光光学系と面検出器(IP、CCDやピクセル・アレイ検出器等)を用いることで、微小

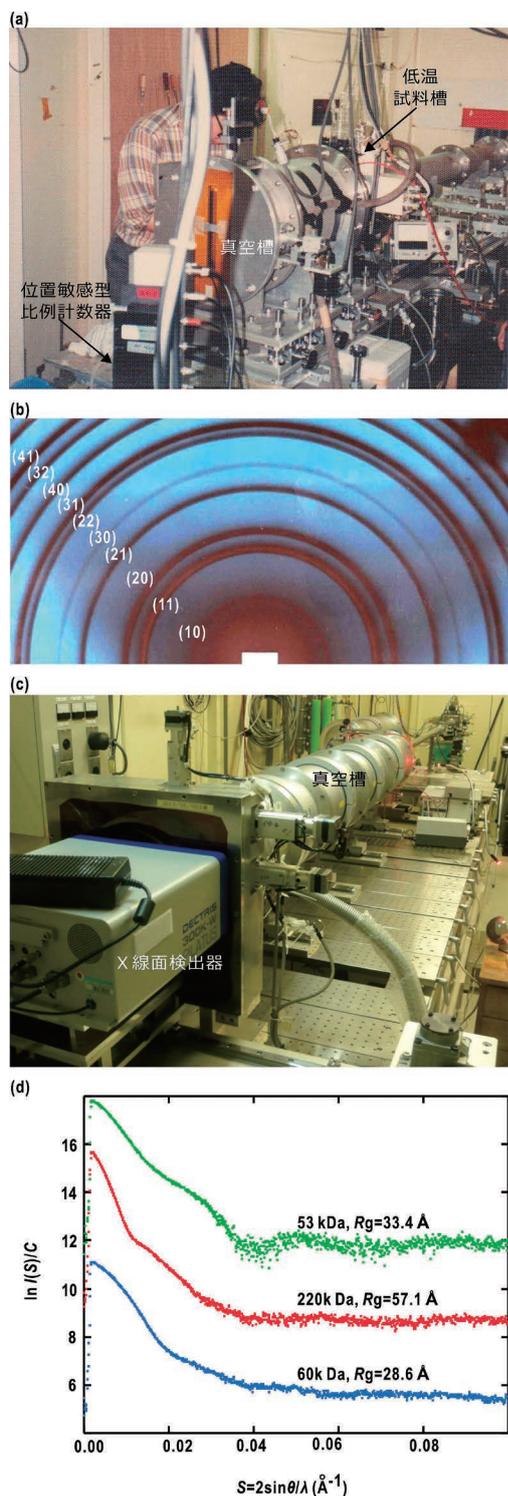


図7 (a) PFのBL15Aに設置された通称“筋肉回折計”(1987年ごろの撮影) 検出器には一次元の位置敏感型比例計数器が使用され、高エネルギー物理で利用されていたComputer Aided Measurement And Controlシステムによって、X線回折パターンを記録した。(b) 1986年に得られた膜蛋白質二次元結晶を含む生体膜ベレットからのX線回折パターン。二次元結晶は、空間群 $p3$ の六方晶で格子定数は6.27 nmであった。0.1488 nmのX線を20分間照射して、X線フィルムに露光した。ラベルは二次元結晶の面指数である。(c) SPring-8のBL45に設置された小角散乱カメラ(2013年の撮影)。小角回折・散乱パターンの記録はピクセル・アレイ検出器にて行われ、1ないし3秒の露光フレームを連続して記録し、後で積算することで、放射線損傷の有無を推定可能である。(d) SPring-8のBL40B2にて、IPを記録媒体として得られた様々な分子量の水溶性蛋白質(濃度は1~2 mg/mL程度)からの小角散乱パターン。波長0.1000 nmのX線を用い、露光時間は60秒であった。濃度で規格化した強度の対数をプロットし、見やすくするために縦軸に沿ってシフトしてある。分子量とGuinier近似で求められた慣性半径の値を示してある。

量の試料に対して円環平均による低雑音の散乱プロファイルが得られるようになった(図7(d))。2000年ごろからは、散乱プロファイルから立体構造を予測するアルゴリズムを用いて、溶液中の概形構造を簡便に推定できるようになっている。SPring-8では光源の安定化としてトップアップ運転によって入射強度の安定性が担保され、試料を工夫したり、試料周辺機器の改良などが行われて、生物学的に重要な事象や試料に的を絞った実験が比較的容易に行えるようになった。²¹⁾ 将来的には、結晶解析と同様に測定自動化が強く要望されている。

3.3 X線回折実験に利用された医療用X線露光媒体“イメージングプレート”

1985年ごろ、ダイナミックレンジと量子収率に優れ、記録したパターンを読み出した後に光消去して何度でもX線露光が可能な記録媒体“イメージングプレート”(IP)がX線回折実験に使われるようになった。このX線記録媒体は富士写真フィルム株式会社が医療用に開発したもので、²²⁾ ユーザーがPF BL15Aの筋肉回折計での実験に用いたのがX線回折分野での利用の端緒となった。IPに記録されたX線強度を知るには専用の読み取り装置が必要であり、彼らは都内の病院に露光したIPを運んで読み出しを行ったとのことである。放射光施設での小角回折実験でその有効性が示され、²³⁾ イメージングプレートを搭載したX線回折装置が市販されるに至り、実験室でも、0.1 mm程度の結晶から精度の高いX線回折データ収集が可能となった。

結晶構造解析の分野では、1970年代後半に、巨大分子量蛋白質やもっと大きなウイルスの結晶からの回折強度測定に振動カメラが考案されていた。さらに、X線フィルムに露光された回折パターンの回折斑点の指数付けと強度算出のためのソフトウェア、フィルム間の相対尺度や結晶の劣化を算出するソフトウェア、そして、X線に対する結晶の向き、格子定数、結晶性等を算出してより正確に回折強度を算出するソフトウェアが開発されていた。IPをこれらのハードウェアとソフトウェアを併用することで、結晶解析分野で回折強度データの収集と解析が容易に可能となり、実験室でのX線結晶構造解析を容易にした。現在の放射光実験施設では、CCD検出器などが主流となったが、我が国の産業界で開発され、X線小角回折実験に用いられ始めたこのX線露光媒体は一時代を築いたと言える。

3.4 コヒーレントX線回折イメージング

これまで、結晶化できない粒子のX線構造解析は困難であるとされ、そのような試料の構造研究は電子顕微鏡によってなされてきた。しかし、電子の物質との相互作用の強さが仇となって厚みのある試料の内部構造は観察できないままである。15年程前から、高強度の平面波X線を用いるコヒーレントX線回折イメージング(Coherent X-ray Diffraction Imaging: CXDI)によって厚みのある非結晶粒子の構造解析が可能となってきた。²⁴⁾ CXDIでは、照射野に

孤立した試料粒子に平面波X線を入射して観測される連続的に複雑な縞模様（スペックルパターン）を高い空間分解能を有した面検出器で細かくサンプリングして回折パターンを記録する。構造解析では、以下の離散的Fourier展開の連立方程式を解くことで、入射X線方向（上式では z 方向）に投影された粒子の電子密度図 $\rho_p(x, y)$ を再現することが原理的に可能である。

$$|F_{\text{OBS}}(S_x, S_y, S_z=0)| = \left| \sum_{x=0}^{N_x-1} \sum_{y=0}^{N_y-1} \rho_p(x, y) \exp \left[2\pi i \left(S_x \frac{x}{N_x} + S_y \frac{y}{N_y} \right) \right] \Delta x \Delta y \right|$$

ここで、 N_x と N_y は、それぞれ、 $\rho_p(x, y)$ を分解能 Δx と Δy で再現するために必要な画素数である。実際には、反復的位相回復法と呼ばれるアルゴリズムを用いて、構造振幅のみからX線入射方向に投影した粒子の電子密度を再生する。²⁵⁾ また、粒子に様々な方向からX線を照射して干渉縞を記録すれば、粒子の三次元密度分布を得ることもできる。よって、透過性の高い波長0.1 nm程度のX線を用いるCXDIは、電子顕微鏡の適用範囲を超えた厚い試料の内部構造を光学顕微鏡では到達不可能な分解能で可視化できる可能性がある。例えば、細胞内小器官に生体分子やその複合体がどのように集積されているのかといった、細胞に関する未解明あるいは推定の域を出ない構造などに関するイメージングが期待されている。

2012年からは、XFEL施設SACLAにおいてもCXDI実験が行われている（図8(a)）。波長0.2 nmの平面波X線を 10^{11} X線光子/ $1 \times 1 \mu\text{m}^2/10 \text{ fs}$ パルスの強度で試料粒子に入射して、超強光子場の単パルスによる破壊が起こる前に回折パターンが得る。例えば、試料粒子をガラス状氷中や炭素薄膜上に散布し、低温凍結固定してから真空中の照射野に投入した後、高濃度散布試料を20 μm /パルス程度の速度で走査しながら、10-90%程度の歩留まりで回折パターンを得ることができる。散乱断面積が大きな100-200 nm大の非結晶金属粒子については $S=1/3 \text{ nm}^{-1}$ （実空間の分解能は3 nmに対応）まで1ショット回折パターンを（図8(b)）、1 μm 大の細胞内小器官1個では、回折パターンを $S=1/20 \text{ nm}^{-1}$ （実空間の分解能は20 nmに対応）で収集（図8(c)）できる。今後、細胞など、電子顕微鏡で内部構造を見ることができない粒子について、数十nmの解像度の可視化が期待されている。²⁶⁾

2014年3月に、スタンフォード大学でインフォーマルな会合が開催され、現在のX線自由電子レーザーの性能では不可能な分子の構造解析に向けて、2020年を目途にその実現に向けた装置開発案が示された。一方、近年電子顕微鏡が大きな進歩を遂げ、分子質量が20万 Da程度の蛋白質の立体構造が単粒子解析によって決定可能であることが実証された。欧米や中国の主要なシンクロトロン放射光施設では、最新の電子顕微鏡を購入し、手法横断的な構造研究を展開し始めた。さらに、多変量解析を大きく進歩させ

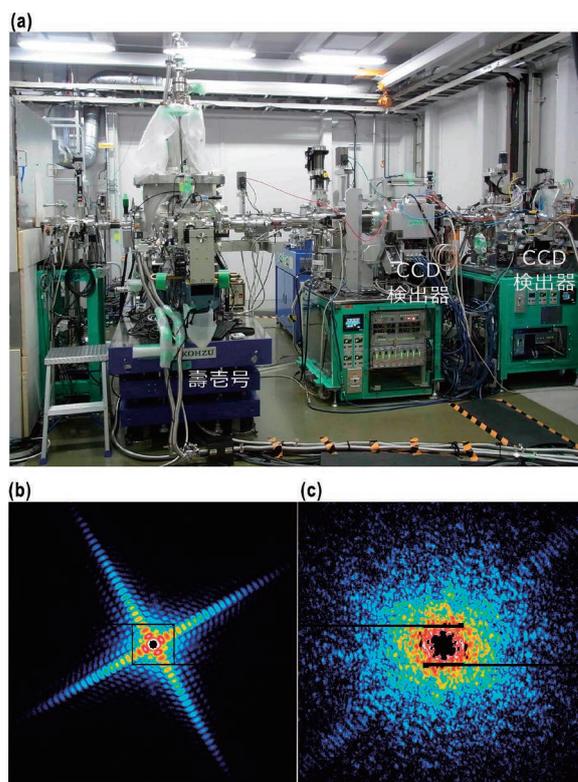


図8 (a) SACLAのBL3-EH3で稼働中の低温試料固定照射装置“壽老号”。MPCCD検出器2台を用いて測定系のダイナミックレンジを大きくし、コヒーレントX線回折パターンを取得する。(b) 大きさ500 nm程度の方形金属材料試料から得られたシングルショット回折パターン（パターンの端は $S=1/12.3 \text{ nm}^{-1}$ （実空間の分解能は12.3 nmに対応）、2014年7月）。(c) 大きさ800 nm程度の細胞核から得られたシングルショット回折パターン（パターンの端は $S=1/28.7 \text{ nm}^{-1}$ （実空間の分解能は28.7 nmに対応）、2013年12月）。

た画像超空間内での分類法も大きな進歩を遂げており、昨今のスーパーコンピューターの計算速度の向上が構造解析の量と質を飛躍的に高めつつある。このような状況下、CXDIが今後どのような空間階層を対象としてゆくのか、電子顕微鏡や光学顕微鏡、そして計算科学などの洗練されたイメージング手法との融合的利用を常に考えながら実験を進めてゆく必要がある。

4. おわりに

筆者らは、1980年代後半にPF-BL10Cの酵素回折計を用いた実験で修士の学位を取得した。光源が安定化し、ビームライン機器制御もPCで簡便に行えるようになった現在と比べるとのんびりした時代ではあった。日照によってPFの建物全体が膨張収縮してビーム軌道を変化させることが明らかになり、陽電子蓄積による光源の低エミッタンス化などが試みられた時代でもある。まだPF蓄積リングも万全とは言えず、しばしば、リング電流が低下して、線形加速器からの電子入射が行われた。入射中は蓄積リング棟から退避すると、深夜であれば、蓄積リングに電子が溜まるまでカップラーメンをすすったものである。朝、測定に余裕があれば、空腹を抱えながら自転車で食堂に行き、“栄養定食”に衝撃を受けた。検出器が壊れたので分解修

理して、終了間際に1データのみを露光して帰ったこともある。

そのようなんびりした時代と比較して、昨今は研究成果の刈り取りに余念がない。技術開発によってルーチンの構造解析が可能となった現在、本稿で述べた原理や技術の詳細を知る必要はほとんど無く、ただ、ひたすらにモノ勝負を挑むだけとなった。しかし、少し悲観的な見方をすれば、新たな構造解析や技術を生み出せる人材が不足しないかと不安になることも多い。実際、回折実験を主に扱う物理系や工学系研究室は少なくなっており、Fourier変換をはじめとする物理数学、電磁気学、物理光学などの基礎を理解し、メカトロニクス、制御・解析プログラミングができる多機能型人材が途切れないかと、我々も年寄の仲間入りをする始末である。そろそろ、次第に年かさが増してきたので、かつての大先生方がやられたように、放談しながら²⁷⁾ 将来を考えてみたい気がしているところである。

参考文献

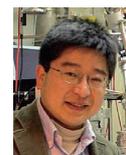
- 1) 三宅静雄：『X線の回折』（朝倉書店、1988）。
- 2) 日本結晶学会誌 **48** (2006) No. 3-6—入門講座「タンパク質結晶構造解析入門—ブラックボックスの中身—」。
- 3) 坂部知平監修，相原茂夫編：『タンパク質の結晶化』（京都大学学術出版会，2005）。
- 4) H. F. Judson：『分子生物学の夜明け（下）』（東京化学同人，1982）。
- 5) 角戸正夫：日本結晶学会誌 **42** (2000) 252。
- 6) 田中信夫：日本結晶学会誌 **25** (1983) 237。
- 7) 飯高洋一：日本結晶学会誌 **23** (1981) 169。
- 8) 佐藤能雅：東京大学薬学部博士論文 (1977)。
- 9) 田中信夫：日本結晶学会誌 **21** (1979) 60。
- 10) 佐藤能雅：蛋白質・核酸・酵素 **37** (1992) 567。
- 11) 山本雅貴，熊坂 崇，植木龍夫：日本放射光学会誌 **11** (1998) 29。
- 12) 中迫雅由：日本結晶学会誌 **41** (1999) 47。
- 13) 上野 剛，廣瀬雷太，井田 孝，神田浩幸，熊坂 崇，山本雅貴：日本放射光学会誌 **19** (2006) 83。
- 14) 平田邦生，山本雅貴：『膜蛋白質構造解析のための技術』（東京化学同人，2014）p. 123。
- 15) 日本放射光学会誌 **23** (2010) No. 3—X線集光技術特集。
- 16) 日本放射光学会誌 **25** (2012) No. 2—特集 動き始めたXFEL施設SACLA。
- 17) 平田邦生，吾郷日出夫，岩田 想，山本雅貴：実験医学 **32** (2014) 1486。

- 18) 難波啓一，若林克三，三井利夫：日本結晶学会誌 **21** (1979) 261。
- 19) 若林克三：日本結晶学会誌 **38** (1996) 208。
- 20) 藤沢哲郎：日本放射光学会誌 **19** (2006) 429。
- 21) 岩本裕之，井上勝晶，八木直人：日本放射光学会誌 **19** (2006) 241。
- 22) 宮原諄二，加藤久豊：応用物理 **53** (1984) 884。
- 23) 日本結晶学会誌 **32** (1990) No. 5—特集 イメージングプレートの生物結晶学への応用。
- 24) 西野吉則：日本結晶学会誌 **51** (2009) 239—CXDI。
- 25) 中迫雅由，荳口友隆，高山裕貴，小林 周，児玉 渉，坂本啓太，吉留 崇，池口満徳：日本放射光学会誌 **26** (2013) 11。
- 26) 中迫雅由，荳口友隆，関口優希，小林 周，橋本早紀，山本雅貴，引間孝明，米倉功治，高山裕貴，眞木さおり，高橋幸生，鈴木明大，松永幸大，乾 弥生，星 貴彦：日本結晶学会誌 **56** (2014) 27。
- 27) 日本放射光学会誌 **2** (1989) 64—学会設立特別座談会。

著者紹介



中迫雅由氏：生命科学におけるナノイメージングに取り組んでおり，X線回折実験技術開発や解析理論に興味がある。“宇宙戦艦ヤマト”と“相対論的宇宙論”の影響で物理学科に進んだ。



山本雅貴氏：放射光を用いた生体分子・粒子に対するX線回折実験技術および構造解析方法の開発に取り組んでいる。

(2014年10月3日原稿受付)

X-ray Structure Analyses of Biological Molecules and Particles in Japan—A Brief History and Future Prospect—

Masayoshi Nakasako and Masaki Yamamoto

abstract: In Japan, X-ray structure analyses of molecules and particles from biology started in the 1970s. The structure analysis methods have been developed through the innovation of various techniques in advance, and have contributed for understanding the elementary and microscopic processes in life. Here we summarize briefly the history of X-ray structure analyses for structural biology in Japan and think about the prospect.

トポロジカル絶縁体薄膜の構造物性

白澤 徹郎 〈東京大学物性研究所, 科学技術振興機構さきがけ〉

高橋 敏男 〈東京大学物性研究所〉

近年注目を集めているトポロジカル絶縁体は、バルク内部はバンドギャップを持つ絶縁体であるが表面にギャップレス状態を持つ。従来のバンド絶縁体においても表面の特異性によって表面に金属状態が現れる例がいくつも知られているが、トポロジカル絶縁体の表面状態はバルクの波動関数から計算されるトポロジカル数によって規定され、表面を切り出すことで必然的に現れる。しかも従来の表面状態が不純物等によって容易に破綻するのに対して、トポロジカル表面状態は時間反転対称性という自然界の基本的な要請によって摂動から守られる。このような著しい特徴のために新しい量子相として迎えられ、新奇物性の発現やデバイス応用が期待されている。

トポロジカル絶縁体の3次元物質が最初に報告されたのは2008年であり、これまでに薄膜を含む30を超す物質が見つまっている。一方、物質探索の新しい切り口として、非トポロジカル物質を低次元化や格子圧縮などによってトポロジカル物質に相転移させる方法や、ドーピングによって超伝導や強磁性を持たせる方法が試されている。本稿ではこれらに関連する話題として、薄膜化によってトポロジカル半金属に相転移するBi薄膜と、トポロジカル超伝導体として注目されているCuドーピングBi₂Se₃の薄膜について、X線CTR (Crystal Truncation Rod) 散乱法を用いた原子レベル表界面構造解析から明らかになった構造物性について報告する。

Bi₂Te₃上に成長させたBi薄膜の電子状態はバルクBiと異なることが平原らによって示され、第一原理計算によってトポロジカル相転移していることが提案された。

我々は表界面を含むBi薄膜中全ての原子位置を決定して内部歪みが第一原理計算で予想された値と一致することを示し、エピタキシャル格子歪みが相転移の駆動力になっていることを証明した。

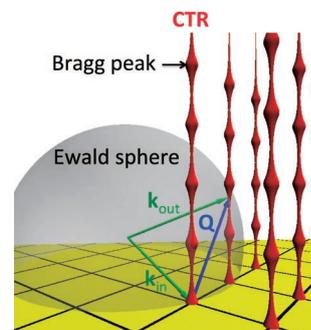
一方、トポロジカル絶縁体Bi₂Se₃にCuをドーピングした結晶は4K以下で超伝導転移することが知られており、トポロジカル超伝導体の候補物質として注目されている。CuがBi₂Se₃層間に挿入されて電子ドーピングすることで超伝導体になることが広く受け入れられてきたが、高温合成したバルク結晶は不均一性が大きく様々な副相を含むことが知られている。我々はBi₂Se₃薄膜に室温でCuをドーピングすることで、副相の形成を抑えつつインターカレーション構造ができることを確認した。しかし十分な電子ドーピングが有りながら0.8Kまで超伝導転移しないことが分かった。この結果はインターカレーション構造が超伝導の起源であるという仮説に疑問を投じる。

これらの結果はX線CTR散乱法の直接的構造解析に基づいている。伝統的には適切な構造モデルを試行錯誤的に見つけ出して最小二乗法で精密化する方法が用いられているが、我々は、ホログラフィ法を用いて未知構造部分を直接的にイメージングし、これを初期構造として反復位相回復法で薄膜中全ての原子層を再生することで、実験データから直接的に薄膜及び表界面層全ての構造パラメータを得ることに成功している。薄膜表界面のような多数の原子を取り扱う際に曖昧さのない解析法として、表界面が舞台となる分野でのさらなる活躍が期待される。

—Keywords—

X線CTR (Crystal Truncation Rod) 散乱:

その名の通り、結晶が表面で打ち切られることで現れる表面に垂直なロッド状の強度分布を持つX線散乱をいう(下図)。表面のある結晶の電子密度を表すには、結晶内部の電子密度と表面でのステップ関数の掛け算になる。X線散乱分布は、このフーリエ変換であるので、結晶内部の電子密度のフーリエ変換、すなわちデルタ関数(Braggピーク)と、ステップ関数のフーリエ変換である減衰関数 i/Q_z の畳み込みとなる(Q_z は散乱ベクトルの表面垂直方向の成分)。X線散乱強度は、Braggピークの位置から ΔQ_z だけずれると $1/(\Delta Q_z)^2$ に従って減衰する。表面構造によってステップ関数の形(電子密度の打ち切り方)が微妙に違うので、ロッドに沿ったCTR散乱強度分布を解析することによって原子レベルの表面構造が分かる。表面上に薄膜があるときには薄膜からの散乱との干渉波となり、薄膜及び界面構造を解析できる。



1. はじめに

トポロジカル絶縁体¹⁾の加熱する研究ブームを牽引してきたのは光電子分光法による表面電子状態の直接観察とあってよいだろう。²⁾一方で、物性の舞台となる表界面の構造研究はほとんど行われてこなかった。原因としては、これまでに見つかっているトポロジカル絶縁体のほとんどが層状物質であり、表面での再構成構造や組成変化を考えなくても済んだことや、³⁾劈開表面において回折実験に要求される一様性の良い表面を得るのが難しいことなどが挙げられる。しかし表面での格子緩和、表面再構成、表面修飾によるトポロジカル状態の変調と制御という可能性はあらゆる系に潜在しているため、実表面の物性を正しく理解するためには原子レベルの構造情報が必須である。

表面構造の原子レベル解析には電子線回折を用いるのが簡便だが、表面敏感性の代償として多重散乱が顕著であり解析は複雑になる。この効果は重元素から構成されるトポロジカル絶縁体では特に大きくなるため解析結果には曖昧さがつきまとう。また、界面まで電子が届かないため薄膜界面の非破壊観察には無力である。X線CTR散乱法を用いると表面から界面までその場観察でき、一回散乱近似によって精緻な解析結果が得られる。しかし薄膜試料の原子レベル構造解析を行うためには多数の構造パラメータを決定する必要があり、これらを試行錯誤的に一意に決めるのは困難である。我々は曖昧さを無くしてX線CTR散乱強度データから直接的に構造解を得るために、ホログラフィ法と反復位相回復法を併用するアプローチを用いている。本稿ではこの方法による直接的な表界面構造解析から明らかになったトポロジカル絶縁体薄膜の構造物性について2つの話題を紹介する。^{4),5)}

2. X線CTR散乱法による表界面構造解析

薄膜と基板が格子整合するときX線CTR散乱波は基板の散乱波と薄膜及び界面層の散乱波との干渉波になるため、解析によって薄膜及び界面の構造を知ることができる。埋もれた界面の原子スケール構造を非破壊的に解析する強力な方法であり、様々な界面に適応されている。⁶⁾一回散乱理論では複素散乱振幅と試料の電子密度はフーリエ変換で結ばれるが、位相情報を直接観測できないため、回折強度データをすぐさま電子密度に変換できない。このため伝統的には、測定したCTR散乱強度分布を再現する構造モデルを試行錯誤的に見つけ出して最小二乗法によって精密化する方法が用いられてきたが、この方法を薄膜試料に適用するのは難しい。一般に薄膜内部では表界面から伝搬する格子緩和や、平均位置からの静的ゆらぎが膜厚方向に一樣ではない。これらが物性に効く場合には、薄膜及び界面に含まれる全ての原子の結晶学的パラメータを決定しなくてはならない。多数の構造パラメータ全てを最小二乗法で大域的最小値に落とし込むのは難しいし、界面に特殊な構造や組成混合が有る場合にこれを決定するのは困難である。

このためCTR散乱データから直接的に薄膜表界面構造を解く試みがなされており、最近ではフーリエ反復位相回復法⁷⁾が成果を上げている。この方法は原理的には初期構造を必要とせずランダムな電子密度から開始しても良いが、薄膜のように原子数が多い場合は適当な初期構造から始めないと真解に収束するのは難しい。特に本稿で示すような1次元データの場合は解の一意性が保証されていないため、⁸⁾初期位相を整えておく必要がある。このため実験データから直接的に未知構造を推定する方法があると有用である。

著者らは、ホログラフィの原理に倣って1回のフーリエ変換でCTR散乱強度データから未知原子像を再生する方法を提案しており、⁹⁾反復位相回復法と併用することで薄膜試料の直接解法として有効であることを示している。¹⁰⁾詳細については最近の解説に譲り、¹¹⁾ここでは概念のみを説明する。ホログラフィは振幅と位相が既知である参照波 F_R と被写体からの散乱波(物体波) F_O の干渉パターンから被写体を再生する方法である。¹²⁾このアナロジーで考えると、CTR散乱分布は既知構造を持つ基板からの散乱波 F_R と未知部分からの散乱波 F_O の干渉パターンと見なすことができる。従ってホログラム関数を適当に定義して⁹⁾フーリエ変換を1回実行するだけで未知部分の電子密度分布を再生することができる。薄膜界面構造の再生には薄膜内部の平均構造を参照構造として用いればよい。¹¹⁾

3. Bi_2Te_3 上の歪みBi膜

バルクBiは半金属であるが、1 bilayer (BL)のBiは2次元トポロジカル絶縁体になることが予想され、¹³⁾トポロジカル絶縁体 Bi_2Te_3 上にエピタキシャル成長させた1BLのBiにおいて実現している。¹⁴⁾Biと Bi_2Te_3 の格子ミスマッチは $a_{\text{Bi}}/a_{\text{Bi}_2\text{Te}_3} \sim 1.03$ ほどあるが、歪んだBi膜が10BL程度まで成長する。平原らは光電子分光法によって歪みのないBi膜に比べてバンド構造が異なることを観察し、第一原理計算との比較から従来半金属からトポロジカル半金属に相転移していることを提案した。¹⁵⁾Biは擬2次元構造を持ち、BL内とBL間の層間距離のバランスで電子状態が大きく変化するため、¹⁶⁾電子状態を理解するためには歪みBi膜の内部構造を決定する必要がある。

我々はSi(111)基板上に Bi_2Te_3 層を7QL (Quintuple layer)成長させ(厚さ約7nm)、その上にBiを7BL(厚さ約3nm)積層させた試料を作製し、その場でX線CTR散乱測定を行った。⁵⁾図1に示すように、実線矢印で示す Bi_2Te_3 層のBraggピーク及び点線矢印で示すBi層のBraggピークと細かな膜厚振動が観測された。横軸の逆格子単位の基準値はBiバルク結晶の格子定数 $c = 11.814 \text{ \AA}$ である。Bi層の2つのBraggピーク位置 l の値は整数値3と9よりそれぞれ~4%ほど小さく、バルクBiより c 軸方向に伸長していることを示している。Biは Bi_2Te_3 格子($a = 4.39 \text{ \AA}$)に整合していることが非鏡面ロッドの測定から確認されたため、Bi

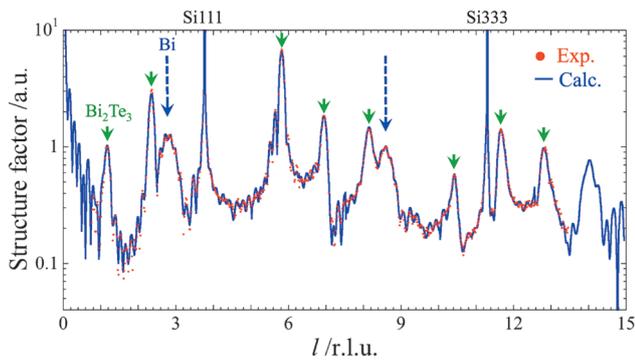


図1 Bi(7BL)/Bi₂Te₃(7QL)/Si(111)薄膜のCTR散乱プロファイル(鏡面反射ロッド). 横軸の逆格子単位の基準値はBiバルク結晶の格子定数 $c=11.814$ Å. 実線矢印はBi₂Te₃膜からのBraggピーク, 点線矢印はBi膜からのBraggピークを示す. 計算プロファイルは図3の電子密度分布から計算したものの.

膜の平均構造は面内方向に約3%収縮し面直方向に約4%伸長していることが分かった.

次に薄膜内部構造の定量解析を行った. まずCTR散乱ホログラフィ法を用いて未知構造部の再生を試みた. 結果を図2に示す. 参照構造にBi/Bi₂Te₃膜の平均構造(電子密度プロファイルを点線で示す)を用いると, 実線プロファイルで示す再生像が得られた. 参照構造を単純化していることや基板の影響を無視していることから再生像の雑音は大きい, Bi₂Te₃膜の3.2 Å下にある明瞭なピークは計算条件を変えても(図2の一点鎖線)再現された. これは界面に付加原子層があることを示している. 事実, この界面層を加えてモデル計算したCTR散乱プロファイルを実験と比較すると, R因子は0.28から0.21に改善した. 界面層の存在は後発のCTR散乱実験によっても確認されている.¹⁷⁾ ちなみに, 電子密度解析から界面層はTe原子が無秩序に積もった層であることが分かっており, 界面層のおかげでBi₂Te₃膜は基板Siとの相互作用から切り離され, 表面と裏面で反転対称に近い薄膜になっている. これは光電子分光法で観察されている, 表面と界面のトポロジカル表面状態の干渉効果を自然に説明する.¹⁸⁾

界面層を加えた薄膜を初期構造として反復位相回復法で求めた電子密度プロファイルを図3に示す. 図1に示すようにこれは実験データを良く再現する(R因子=0.05). プロファイル中のピークは原子層に対応し, Bi₂Te₃が7QL, Biが7BL, SiとBi₂Te₃の間に界面層があるのが分かる. 各ピークをガウス関数でフィッティングして成分分離することで, 原子層位置, 電子数, 静的構造揺らぎの情報が得られる. ここではBi膜内部の層間距離だけに注目する. 解析で得られたBL内の層間隔は1.68(0.06) Å, BL間の層間隔は2.42(0.05) Åであった. 括弧内の値は平均値からの標準偏差である. これに対し, 第一原理計算で得られたトポロジカル相転移する6BLのBi膜の値は, それぞれ1.70(0.02) Å, 2.40(0.03) Åであり,¹⁵⁾ 非常に良く一致する. 計算ではこのような歪み構造を持つときのみバンド反転が起こってトポロジカル数に変化することが示されている.

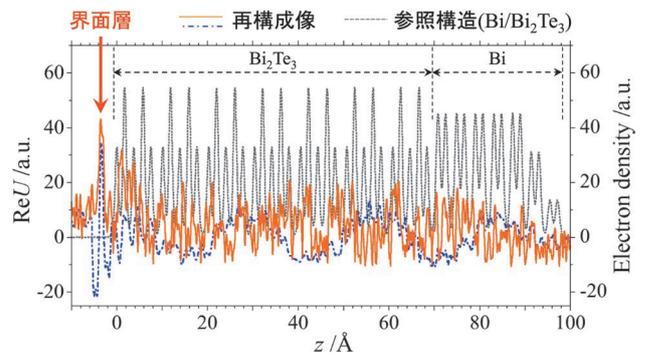


図2 CTR散乱ホログラフィ法で再生した界面層. 点線は参照構造に用いたBi/Bi₂Te₃膜の電子密度プロファイル(右縦軸). 実線及び一点鎖線は異なる条件で計算した再生像の実部をとったもの(左縦軸). 計算条件によらずにBi₂Te₃膜の3.2 Å下に界面層が再生されている.

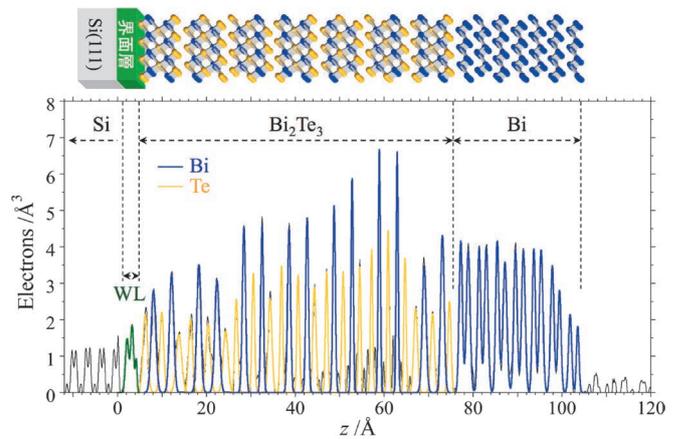


図3 反復位相回復法で得られたBi/Bi₂Te₃膜の電子密度プロファイル.

4. Cu_xBi₂Se₃薄膜

次に, CuドーピングBi₂Se₃薄膜の結果について解説する. トポロジカル超伝導では超伝導ギャップ中に表面ギャップレス状態ができ, そこでの励起状態は自分自身が反粒子であるマヨラナ粒子となる.¹⁹⁾ マヨラナ粒子はボーズ統計やフェルミ統計と異なる非可換統計に従い, 擾乱に強い量子演算への応用が期待されている. CuドーピングBi₂Se₃結晶が4K以下で超伝導になることが報告されて以来,²⁰⁾ トポロジカル超伝導体の期待が高まりマヨラナ粒子の検証が行われているが観察結果は一致していない.²¹⁻²³⁾ 主な原因に挙げられているのは結晶の不均一性である. 溶融法で作った結晶では超伝導体積分率は20%不足である.²⁰⁾ 一方, 電気化学的にCuドーピングした結晶では60%近くまで増加するが不均一性は著しく増加する.²⁴⁾ これらの結晶は比較的高温(溶融法は850°C, 電気化学法は530°C)で合成するためCu-Bi-Se相図に含まれる様々な副相が形成し,²⁵⁾ その中には2.4Kで超伝導転移するCuSe₂も含まれる.²⁶⁾

結晶構造解析の報告はまだ見当たらないが, Cuドーピングによって c 軸方向の格子定数が0.2%ほど大きくなると同時に電子濃度が大きくなることから, 図4(a)に示すようにCuがBi₂Se₃層間にインターカレートし, 電子ドナーとなることで超伝導が発現すると考えられている. 我々は

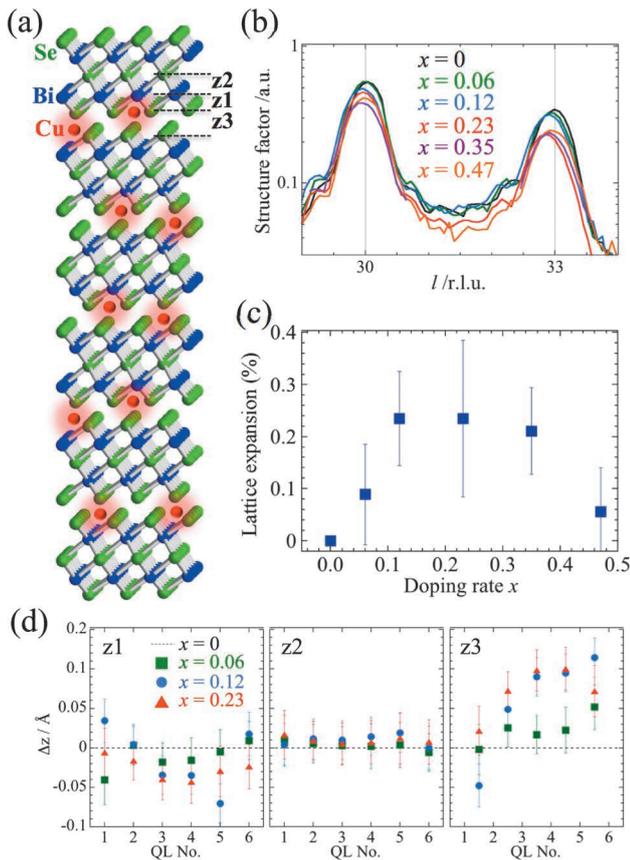


図4 $\text{Cu}_x\text{Bi}_2\text{Se}_3$ 構造の構造特性. (a) 構造モデル. Bi_2Se_3 層間にCuが挿入されている. (b) x の異なる試料からのCTR散乱プロファイルの一部. 横軸の逆格子単位の基準値は無ドーピング試料 ($x=0$) の格子定数 $c=28.54$ Å. (c) (b) の Bragg ピーク位置から見積もった格子定数 c の $x=0$ 試料に対する伸長率. (d) 層間距離 z_1, z_2, z_3 のドーピング x 依存性 [定義は (a) に示す]. 点線で示す無ドーピング試料の平均値に対する変位である. 無ドーピング試料の平均値は $z_1=1.56$ Å, $z_2=1.91$ Å, $z_3=2.54$ Å. 横軸は基板側から数えたQLの番号.

Bi_2Se_3 薄膜上にCuを蒸着すると薄膜内部に入り込むことを利用して,²⁷⁾ 室温で $\text{Cu}_x\text{Bi}_2\text{Se}_3$ 薄膜を作り構造と電子輸送特性を評価した.⁵⁾ 図4(b)に膜厚6QLの $\text{Cu}_x\text{Bi}_2\text{Se}_3$ のCTR散乱分布の一部を示す. Bragg ピーク位置を注意深く見るとドーピング量 x に依存して変化している. ピーク位置から見積もった格子定数 c を無ドーピング試料 ($x=0$) に対する膨張率として図4(c)に示した. x の増加に従って c は大きくなり, $x=0.12$ で膨張率は約0.2%になる. その後 c の増加は停滞し, $x>0.35$ では相分離が起こり無ドーピングの値に近づく.⁵⁾ もう一度図4(b)を見ると, $x=0.12$ では Bragg ピーク強度が $x=0$ とほとんど変わらないのに対して x がそれ以上大きくなると強度が小さくなり, 結晶性が劣化しているのが分かる. 従って, 格子伸長が最大になりかつ結晶性が保たれるという観点では, 最適ドーピング量は $x\sim 0.12$ と結論できる. この結果は溶融法の結晶と一致する.²⁸⁾

反復位相回復法で決定した構造から, 図4(a)に定義する層間距離 z_1, z_2, z_3 の値をQLごとに抽出して図4(d)にプロットした. 図中に点線で示すのは無ドーピング試料における平均層間距離である. z_2 の値はドーピング量にほとんど依存せず一定であり, z_1 の値にも明瞭な増加は見られないが, z_3 の値は無ドーピング試料に比べて明瞭に増加している. つ

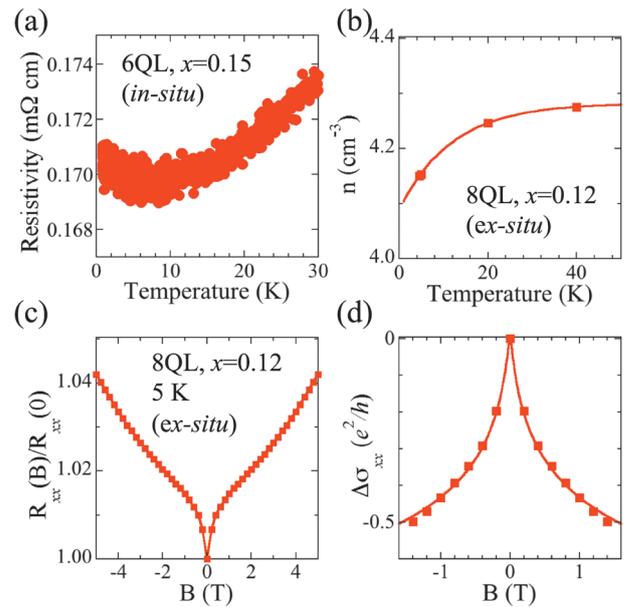


図5 $\text{Cu}_x\text{Bi}_2\text{Se}_3$ 薄膜の電子輸送特性. x 及び膜厚は各図中に示している. (a) 抵抗率. (b) ホール係数測定から求めたキャリア密度. (c) 磁気抵抗値. (d) (c) の弱磁場領域における伝導率. 実線はHLN理論式.³²⁾

まり図4(c)に示す格子伸長は格子の一般的な伸長ではなく, z_3 の伸長に帰する. これは蒸着したCuが Bi_2Se_3 層間にインターカレートしたことを示している. なお, Cuが希薄であるため電子密度プロファイルにはCuの寄与は明瞭に現れなかったが, CuのK吸収端のX線を利用したCTR散乱測定からCuが Bi_2Se_3 層間に存在することが示されている.⁵⁾ 図4(d)から, z_3 ギャップの拡大は表面側から数えて4-5QLの位置まで起こっており, 実効的なCuドーピング領域は表面側から5QL程度であることが分かる.

しかし, Cuを挿入しても超伝導転移は起こらない. 図5(a)は試料作製後に超高真空中でその場測定²⁹⁾した抵抗率である. 0.8Kまで超伝導転移は無い. 膜厚やドーピング量を様々に変えても同様であった. 図5(b)に示すように, ホール係数測定から得られたキャリア密度は 10^{20} cm^{-3} 台であり, 無ドーピング薄膜³⁰⁾に比べて1桁大きく, バルク結晶^{20,31)}の値と同等である. つまりインターカレーション構造を持ち, 十分な電子ドーピングが達成されているが超伝導にならないのである. 図5(c)は磁気抵抗測定の結果である. $|B|<1$ Tの低磁場領域において見られる異常は Bi_2Se_3 の強いスピン軌道相互作用による弱反局在効果³⁰⁾であり, 図5(d)に示すようにHikami-Larkin-Nagaoka (HLN) 理論式で合わせられる.³²⁾ つまり Bi_2Se_3 の基本的性質は失われていない. また, 前段落で説明したように実効的なCuドーピング領域は5QL \sim 5nmであり, これは超伝導コヒーレント長4 \sim 5nm^{20,33)}と同等であり, 低次元下による影響は大きくないだろう. これらの結果は, Bi_2Se_3 に単純に電子ドーピングするだけでは超伝導体にならないことを示唆している. バルク結晶の超伝導の起源についても結晶構造解析などを用いた詳細な検討が必要である.

5. おわりに

CTR 散乱法の直接解法を用いてトポロジカル絶縁体薄膜の構造物性を明らかにした。トポロジカル絶縁体の研究は始まったばかりであり、バルク物質探索に先導されているが、物性の舞台は表面面であるため、本稿で示したような低次元化や表面構造制御によるトポロジカル物性制御の研究がこれから展開されていくだろう。こうした研究に本稿で示した手法が活用されることを期待したい。

最後に本稿で紹介した研究は長谷川修司氏と平原徹氏との共同研究として行われた。両氏に感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 村上修一, 平原 徹, 松田 巖: 日本物理学会誌 **65** (2010) 840; M. Z. Hasan and C. L. Kane: Rev. Mod. Phys. **82** (2010) 3045.
- 2) 木村昭夫: 放射光 **24** (2011) 188.
- 3) D. D. dos Reis, *et al.*: Phys. Rev. B **88** (2013) 041404(R).
- 4) T. Shirasawa, *et al.*: Phys. Rev. B **87** (2013) 075449.
- 5) T. Shirasawa, *et al.*: Phys. Rev. B **89** (2014) 195311.
- 6) CTR 散乱の解説書. R. Feidenhans'l: Surf. Sci. Rep. **10** (1989) 105; I. K. Robinson: *Handbook on Synchrotron Radiation*, vol. 3, ed. by G. Brown and D. Moncton, ch. 7 (Elsevier Science Publishers B. V., Amsterdam, 1991); I. K. Robinson and D. J. Tweet: Rep. Prog. Phys. **55** (1992) 599; G. Renaud: Surf. Sci. Rep. **32** (1998) 1; 田尻寛男, 高橋敏男: 放射光 **22** (2009) 131.
- 7) D. K. Saldin, *et al.*: Comput. Phys. Commun. **137** (2001) 12; Y. Yacoby, *et al.*: Nature Mater. **1** (2002) 99; M. Björck, *et al.*: J. Phys.: Condens. Matter **20** (2008) 445006.
- 8) Y. M. Bruck and L. G. Sodin: Opt. Commun. **30** (1979); F. van der Veen and F. Pfeiffer: J. Phys.: Condens. Matter **16** (2004) 5003.
- 9) T. Takahashi, K. Sumitani and S. Kusano: Surf. Sci. **493** (2001) 36.
- 10) T. Takahashi, *et al.*: e-J. Surf. Sci. Nanotech. **7** (2009) 525; T. Shirasawa, *et al.*: Phys. Rev. B **85** (2011) 075411.
- 11) 白澤徹郎, 高橋敏男: 日本結晶学会誌 **56** (2014) 263.

- 12) D. Gabor: Nature **161** (1948).
- 13) S. Murakami: Phys. Rev. Lett. **97** (2006) 236805.
- 14) T. Hirahara, *et al.*: Phys. Rev. Lett. **107** (2011) 166801.
- 15) T. Hirahara, *et al.*: Phys. Rev. Lett. **109** (2012) 227401.
- 16) Z. Liu, C.-X. Liu, Y.-S. Wu, W.-H. Duan, F. Liu and J. Wu: Phys. Rev. Lett. **107** (2011) 136805.
- 17) Y. Liu, *et al.*: Phys. Rev. Lett. **110** (2013) 226103.
- 18) Y.-Y. Li, *et al.*: Adv. Mater. **22** (2010) 4002.
- 19) トポロジカル超伝導の解説書. X.-L. Qi and S.-C. Zhang: Rev. Mod. Phys. **83** (2011) 1057; F. Wilczek: Nat. Phys. **5** (2009) 614; 佐藤昌利: 日本物理学会誌 **69** (2014) 297.
- 20) Y. S. Hor, *et al.*: Phys. Rev. Lett. **104** (2010) 057001.
- 21) S. Sasaki, *et al.*: Phys. Rev. Lett. **107** (2011) 217001.
- 22) N. Levy, *et al.*: Phys. Rev. Lett. **110** (2013) 117001.
- 23) H. Peng, *et al.*: Phys. Rev. B **88** (2013) 024515.
- 24) M. Kriener, *et al.*: Phys. Rev. B **84** (2011) 054513.
- 25) N. B. Babanly, *et al.*: Russ. J. Inorg. Chem. **55** (2010) 1471.
- 26) Y. Ando: J. Phys. Soc. Jpn. **82** (2013) 102001.
- 27) Y.-L. Wang, *et al.*: Phys. Rev. B **84** (2011) 075335.
- 28) L. A. Wray, *et al.*: Nat. Phys. **6** (2010) 855.
- 29) M. Yamada, *et al.*: e-J. Surf. Sci. Nanotech. **10** (2012) 400.
- 30) M. Liu, *et al.*: Phys. Rev. B **83** (2011) 165440.
- 31) M. Kriener, *et al.*: Phys. Rev. Lett. **106** (2011) 127004.
- 32) S. Hikami, A. I. Larkin and Y. Nagaoka: Prog. Theor. Phys. **63** (1980) 707.
- 33) T. V. Bay, *et al.*: Phys. Rev. Lett. **108** (2012) 057001.

(2014年9月4日原稿受付)

Structural and Physical Properties of Topological Insulator Films

Tetsuroh Shirasawa and Toshio Takahashi

abstract: Our recent approach to the direct structure analysis of X-ray crystal truncation rod scattering is applied for the study of structural physics of topological insulator thinfilms. The strain-induced topological phase transition of Bi film and the possible superconductivity of Cu-doped Bi₂Se₃ films are reviewed.

日本物理学会誌 第70巻 第10号 (2015年10月号) 予定目次

巻頭言

JPSJ 編集委員長への就任に当たって 上田和夫
現代物理のキーワード

荷電レプトンで探る新物理 三原 智
シリーズ「国際光年 IYL2015 に寄せて」

光合成による水分解: 生命の巧みな光エネルギー変換のしくみ
..... 野口 巧

解説

宇宙を満たすガンマ線背景放射の起源と残された謎 井上芳幸
最近の研究から

固体中のスピン軌道相互作用が引き起こす特異な電子スピン
構造 宮本幸治, 木村昭夫, 奥田太一

ランドスケープ描像で見る細胞分化の物理 寺田智樹
ナノカーボンのディラック電子=フォノン間相互作用

ダイナミクス 片山郁文, 武田 淳, 北島正弘

キタエフ量子スピン液体の“気液”相転移

..... 那須讓治, 宇田川将文, 求 幸年
話題—身近な現象の物理—

「かえるのうた」に耳をすませば~身近な生物の同期現象~
..... 合原一究

話題—企業の研究から—

酸化チタン薄膜に対する Li⁺ イオンのインターカレーション
挙動 上田未紀

JPSJ の最近の注目論文から 6月の編集委員会より

..... 上田和夫
追悼

南部陽一郎先生をしのいで 江口 徹
新著紹介

マガンの群れの集団動力学

早川 美徳 (東北大学教育情報基盤センター)

1. はじめに

煮物にガンモドキは付きものであるし、ガンヅキやラクガンは定番の和菓子である。切手の意匠としても良く知られた歌川広重の「月に雁」に限らず、浮世絵や日本画にはガンをモチーフにしたものも多い。このように、雁(ガン、カリ)は生活の中でもしばしば耳にする鳥名であるが、現在の我が国で、実際に大空を飛ぶ様子を見る機会は限られているかもしれない。

筆者は宮城県に暮らしているが、同県の北部では、今でもガン類を当たり前のように目にする事ができる。というのは、この地域に点在する湖沼を安全なねぐらとして、また、その周囲に広がる広大な田畑は格好の採餌場所として、ガンを含む多くの渡り鳥がこの地で越冬するからだ。コンビニで買い物をして、駐車場でふと空を見上げると、賑やかに鳴き合いながら、ガンの群れが当たり前のように頭上を通り過ぎていく。ひとつの沼に(近隣の人口を遥かに超える)数万以上の個体が集まる時期もあるようだ。その中でも突出して数が多いのがマガンで、体重が2 kg程度、翼長(翼の端から端までの長さ)1.5 m程度と、飛行動物としてはかなり大型の部類に属する。額のあたりが白いことから、英語ではwhite-fronted gooseと呼ばれ、亜種も含め、北半球に広く生息しているようである。そして、彼らが群れで飛行する様子を、二、三の物理的な視点から捉えてみようというのが、この小文の主題である。

2. V字型の飛翔隊形

ガンやハクチョウなどの渡り鳥の飛行と言えば、まず頭に浮かぶのが、そのV字型の飛翔隊形であろう。前方の個体の斜め後方に位置しながら飛行すると、前方の翼端から生じている渦の上昇成分から追加の揚力が得られるため、その結果、「楽に」飛ぶことができるはずである。こうした飛行コストの節約効果がV字型の隊形の理由であろうと考えられている。^{1,2)} 隊列を組むことで、飛行に必要なエネルギーを10%程度以上減らせる、という見積もりもある。実際にマガンの群れの様子を観察していると、綺麗なV字ばかりとは限らず、鉤形や紐状など、その形にはバリエーションがあるものの、確かに、前方の斜め後方に位置しようと「努力」しているように感じられる。

それでは、彼らはどれくらい正確に互いの位置を調整しているのだろう。自作のステレオカメラを野外に持ち出し、V字で飛行している群れをビデオ撮影して、三角測量の原理で軌跡を調べてみた。そのデータをもとに、飛んでいる

マガンの視点になって、自分の位置を原点として、ひとつ前方の個体が相対的にどの位置を飛んでいたのかを数秒間プロットしてみた例が図1である。群れを構成する個体毎に、進行(速度)方向、進行方向に直交し水平面に平行な方向、そして上下方向に座標を設定し、前方の最近接個体の相対位置を重ね書きしてある。図で点の密な領域が、マガンが「好む」配置ということになる。

こうした計測を通じて、隊列を成す個体はほぼ同じ(平均的には、後方の個体のほうがやや高い)高度で、後方の個体は前方に対して、進行横方向にかなり正確に1 m程度の間隔をおいて飛行していることが分かる。一方、進行方向については、着目するペアによって数十 cmから数メートル程度と、間隔にかなり大きなばらつきがある。翼端から生じた渦糸はほぼ真後ろに伸びているはずなので、横方向の1 m強という間隔は、渦場の上昇成分の恩恵を最も受けやすい位置が選択された結果と解釈できる。さらに、横から風を受けているような状況では、相対位置が風向きに応じてずれることも確認できるので、群れの位置決めが気流の影響を受けていることは間違いないだろう。

飛行機が当たり前のように空を行き交っている現代でも、(生きている)鳥が集団で飛行する状況を周囲の流体場まで考慮して精密に計算するのは未だに難しいようである。高レイノルズ数の状況(10^6 以上)で、複雑に運動し変形する体と羽。例えば、生きた状態と死んで冷凍状態の鳥を風洞に入れて比較すると、境界層の剥離の状況は大きく異なるという。¹⁾ けれども、ここではそうした詳細には立ち入らないで、「マガンは隊列を組みたがる」という性質から生じる集団的な振る舞いにフォーカスすることにしよう。

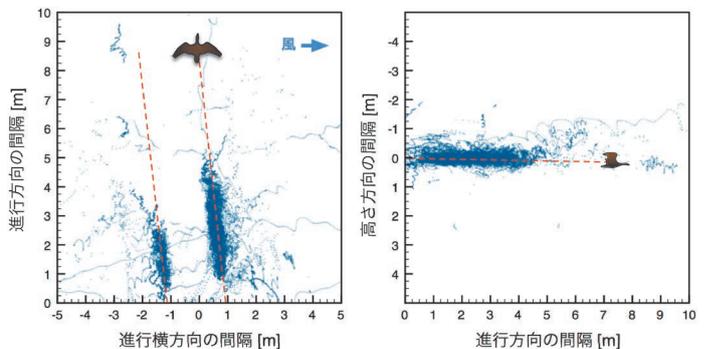


図1 前方の最近接個体との相対的な位置関係。大きな群れが数秒間飛行する間の変化を各個体について重ね書きしたもの。位置関係によっては、隊列中のひとつ前の個体を表していない点も含まれることに注意。軸の定義は本文を参照のこと。観測中、図中の矢印の向きに弱風が吹いていた。

3. 群れのサイズ分布

日中、あちこちの田んぼなどに分散して餌（イネの落ち穂や根）を食べていたマガンは、日没から薄暮にかけての短い時間帯にほぼ一斉に飛び立ち、ねぐらとなる湖沼へと戻る。そんな時間帯に、餌場とねぐらの中間的な場所に立って空を見上げると、空いっぱいには大小様々の群れが同じ方向を目指して飛行している。身を寄せながら厳しい冬を耐え、命をつないでいるその様子は感動的でさえある。

それを写真やビデオに撮って、それぞれの群れを構成している個体数（群れのサイズ）を数取り器を片手に手動で数え、ヒストグラムにまとめたのが図2(a)である。複数のシーズンに亘る多数のスナップショットからのデータを集めた結果、サイズ s の群れを見出す頻度分布 $f(s)$ はべき乗に指数関数的なカットオフを加えた形

$$f(s) = As^{a-1} \exp(-bs) \quad (1)$$

(ここで、 $a=0.58$, $b=0.041$, A は規格化定数) でよく表すことができることが分かった。群れの大小は、鳥の社会的な行動様式といった極めて複雑な情報処理過程を経て、鳥自身が決めているような気もする一方で、沢山のサンプルを集めると、分布関数にはある種の決まった傾向が現れるようである。

そこで、大小の群れが形成される過程を単純化して、次のように考えてみることにする。まず、サイズ i と j の群れは、時間あたり $K(i, j)$ の頻度で合体して、 $i+j$ のより大きな群れを形成すると仮定する。事実、空中に漂う隊列を眺めていると、群れの後方に別の群れの先頭が結合する様子をしばしば目撃することができる。他方で、群れの途中がちぎれて、2つ（ときにはそれ以上）の小さな群れに分裂する事象も同じように生じている（図2(b)-(d)）。そこで、サイズ $i+j$ の群れが i と j に分裂するレートを $F(i, j)$ で表すことにしよう。こうした過程がランダムかつ空間的に一様に生じていると考えると、サイズを s 、時刻 t として、群れの数密度 $f(s, t)$ の時間発展は、平均場モデル

$$\begin{aligned} \frac{\partial f(s, t)}{\partial t} = & \frac{1}{2} \sum_{i+j=s} [K(i, j) f(i, t) f(j, t) - F(i, j) f(s, t)] \\ & - \sum_{j=1}^{\infty} [K(s, j) f(s, t) f(j, t) - F(s, j) f(j+s, t)] \end{aligned} \quad (2)$$

によって記述できる。例えば、右辺のひとつ目の総和記号の中の第一項は、2つの群れが合体してサイズ s の群れが新たに生じる過程を、第二項はサイズ s の群れが分裂する過程を表している。これはエアロゾル粒子の粒径などを議論する際に、古くから研究されてきたスモルコフスキー方程式（に分裂の効果を付加したモデル）に他ならない。

ここで意外にも、マガンの群れのほうが、複雑な形状の粒子の凝集を論ずる場合よりも、状況はむしろ単純と言えるかもしれない。というのは、マガンの群れは基本的に一次元

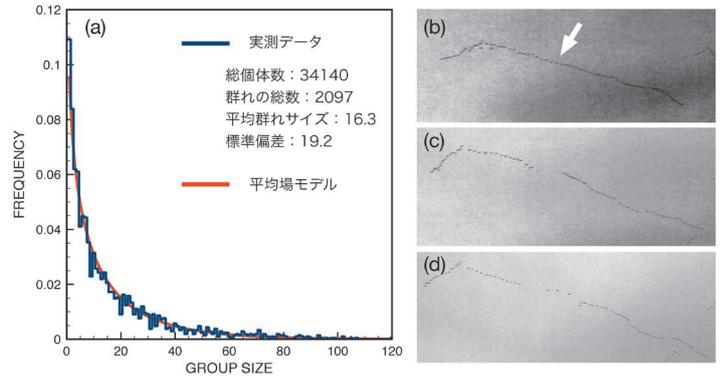


図2 マガンの群れのサイズ分布。(a) 群れサイズの頻度分布。赤線は平均場モデルで $a=0.58$ とおいた場合の定常解。(b)-(d) 分裂する群れの例。3秒おきに撮影。

的な構造であることから、「反応」ゾーンはその両端（先頭と後端）に局在しており、しかも群れの「移動度」は群れの大きさに依らないので、合体レートは、合体前の群れのサイズ i, j には依存しないだろうと考えられるからである。すなわち、 $K(i, j) = (\text{定数})$ と見なし構わないはずだ。

分裂については、紐が2つに分断されるレート $F(i, j)$ をどのように置くべきか、不明な点が多いが、ここでは、群れのサイズ（「ボンド」の数）にべき乗的に依存する、すなわち、 $F(i, j) = 2\kappa(i+j-1)^{\alpha-1}$ を仮定してみる。 $\alpha=0$ はサイズに依らず全ての群れが等しいレートで、 $\alpha=1$ は全てのボンドが等しいレートで分裂する場合に、それぞれ対応する。

さて、多数の群れが餌場からねぐらに向かう間には、空中で何度も合体と分裂を繰り返すはずで、そのサイズは次第に定常的な分布に近づいていこうと想像できる。そこで、上記のような反応レートを仮定した上で、スモルコフスキー方程式の定常解を調べると（紙数の都合でその詳細は省略するが）、まさに式(1)の分布型が得られ、分裂カーネル $F(i, j)$ 中の指数 α が分布関数のべき指数を決める ($a=\alpha$ である) ことが分かった。³⁾ すると、観察から得られた $a=0.58$ は、「大きな群れほど分裂しやすい」（ただし、ボンドあたりで考えると、分裂レートは減少する）傾向を示唆していると解釈できる。

このモデルで個体の総数 $M = \sum_s s f(s)$ はもちろん保存するが、分布関数中のもうひとつのパラメータ b は、この M を通じて決まる。そこで、観察から得られる b を再現するような M を数値的に求めたところ、 $M \approx 130$ が得られた。この数は、マガンが群れを構成する際にどの程度の数の個体と相互作用しているのかを表す指標と解釈できる。

このように、沢山の群れが同時的に空中にある場合、そのサイズに関する限り、マガンの群れは「合体と分裂を繰り返す紐状の凝集体」と考えて差し支えなさそうである。

4. 群れを伝搬する波動

前節で述べたように、頻度としては相対的に小さな群れ



図3 基線長約2mでステレオ撮影したマガンの群れ。両眼視すると、群れが空中に浮んでいる様子が分かる。手前の群れはカメラから約45mの高度を水平に飛行している。

が多いものの、長く観察を繰り返していると、ときには図3に示すように数十を超えるような大きな(長い)群れが出現することがある。筆者が撮影した動画が、動物行動の映像データベース (<http://www.momo-p.com/index.php?movieid=momo131007un01b>) に登録されているので、この記事と合わせてご覧いただきたい。こうした大きな群れも、いずれは分裂や組み替りが生じるものの、数十秒から分程度の時間スケールでは、一本の運動する「紐」と見なせる場合がある。その動きをよく観ると、鞭がしなるように揺らぎながら、波が群れの前方から後方に向かって伝搬し、しかも、波の振幅は群れの後方に向かうほど増大しているように見える。

そうした揺らぎの性質を調べるため、時刻 t ごとにV字の片側に直線を当てはめ、群れの先頭から n 番目の個体の直線からのずれを $w(n, t)$ とし、その時間・空間的な変化を濃淡で表した例を図4(a)に示す。こうした解析を通じて、波は分散的で先頭から後方のみ伝搬しており、長波長の位相速度は約7個体/s、等の知見が得られている。⁴⁾

このような波動はどのように生じるのだろうか。上空の気流の乱れが群れの隊列を乱している可能性もあるが、揺らぎが増幅されながら後方に伝搬する直接の説明にはならない。むしろ経験的には、強風時よりも風が凪いだ条件下でのほうが、巨大な群れが出現し、こうした波動がより顕著に見られるようである。

群れの中で、後方の個体は前方の斜め後ろに位置するよう調整されているのはすでに述べたとおりであるが、その調整時間のスケールを、前後の加速度相関から調べてみると、進行方向に対して水平横方向の位置合わせが最も「遅い」傾向にある。翼端渦の恩恵に与ろうとすれば、その影響が最大化されるような位置(前方の翼端付近から後方に長く伸びた領域)を注意深く探らなければならないはずである。計測結果からは、前後の間隔と高低差についての相関時間は短く(1回の羽ばたき程度)、おそらく視覚情報に

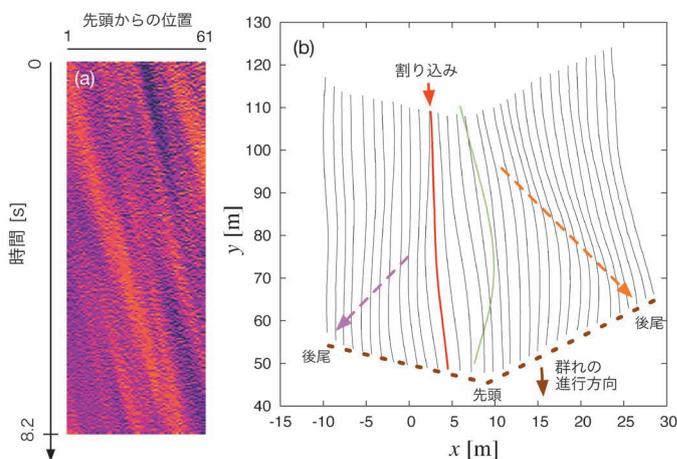


図4 マガンの群れを伝搬する波動。(a) 61羽が連なった群れが約8秒飛行する間、群れの中での平均的な位置からの変位を色の濃淡で表現し、時間・空間プロットした例。(b) V字型の群れ(茶色の破線はその概形)の一部にマガンが割り込む様子。黒線は隊形を成して飛行している各個体の3.5秒間の軌跡を水平面に投影したもので、赤で示した個体が矢印の位置から割り込みをかけている。割り込み位置よりも後尾の個体が進路を調整し「隙間」を作っており、その付近からマゼンタ色の破線に沿って、軌道の変形(湾曲)が後尾に伝搬している。また、先頭をはさんで、割り込みとは反対側の「枝」でも、先頭付近で生じた軌道の揺らぎが伝搬の様子が確認できる(オレンジ色の破線)。緑色の実線は、V字編隊のすぐ下を飛行しながら割り込みを試みたものの失敗した個体の軌跡。横方向のスケールを拡大していることに注意。

頼って短時間に調整されているのではないかと想像される。それに対して、横方向の最適位置は横風の影響も受ける上に「見えない」ため、その調整には、羽ばたきにして数回程度以上の、さらなる遅れを伴うようなのである。

一方、前方の個体は、後方をどれくらい「気にして」飛んでいるのだろうか。頻度は低いものの、群れの途中で別の個体が割り込みをかけたり、群れから1羽が離脱したりする事象が偶然撮影されることがある(図4(b))。その際の軌跡を調べてみると、割り込みや離脱が起こった位置よりも後方の個体は航路を再調整するが、先頭寄りの個体が進路を変える様子は見られない。すなわち、相互作用は非対称で、後方側は前方に影響を及ぼさない。

これらの知見をもとに、状況をうんと単純化して、マガンの一次元的な群れを(特殊な)バネ・質点系と見なしてみよう。先頭から n 番目の個体の群れの進行方向に対して水平横方向の最適位置からのずれを x_n とすれば、その現象論的な運動方程式は

$$m\ddot{x}_n = F(x_{n-1} - x_n) - \gamma\dot{x}_n \quad (3)$$

と書ける。ここで、 m は鳥の質量、右辺第一項は非対称な相互作用で、この項が通常のバネ・質点系との大きな違いをもたらす。また、第二項は流体からの抵抗よりもむしろ能動的な速度調整からの寄与が大きく、その意味で、 γ は「速度フィードバック係数」と解釈するのが適当である。この式は、一次元交通流を抽象化したモデルとして良く知られている最適速度(OV)モデルに他ならない。⁵⁾ OVモデルでは、車両の密度に応じて系の動作点が変わり、渋滞領域が疎密波として伝搬する解を持つことが知られている。

マガンの飛行について、「社会的相互作用」 F の具体的な形はよく分からないものの、形式的に $F(\delta x) = \alpha_1 \delta x + \alpha_3 \delta x^3 + \dots$ と展開してみる。そして、系の線形安定性を調べてみると、無次元量 $\hat{\alpha}_1 = m\alpha_1/\gamma^2$ に応じて、 $\hat{\alpha}_1 < 1/2$ では系は線形安定であるが、 $\hat{\alpha}_1 > 1/2$ で不安定化し、前方で生じた擾乱が後方で拡大することが分かる。また線形波の(無次元)位相速度は $\hat{\alpha}_1$ で与えられる。^{*1}

ここで、マガンの羽ばたき時間(約0.25秒)を系の特徴的な時間^{*2}と考えると、観測された位相速度(7個体/s)から、 $\hat{\alpha}_1 \approx 1.7 > 1/2$ となるため、系は不安定領域にあること、仮想的な「バネ定数」は $\alpha_1 \approx 50 \text{ N}/(\text{個体間隔})$ 程度であること等が、かなり荒い議論ではあるが、推定できる。

ここまでをまとめると、マガンの一次元的な隊列は、それが維持されている限りは、一次元交通流の別バージョンという枠組みで捉えることができ、波動は「空中で生じたある種の渋滞」と見なすことができそうである。

では、こうした波動の伝搬はマガンに限って見られるのだろうか。マガンよりさらに大型のハクチョウもV字飛行をするが、紐状の隊形はより安定しており、筆者が知る限りでは、揺らぎが拡大しながら伝搬する様子は見られない。一方、マガンよりも少し小型のカリガネなどのカモ類は、紐状の隊形は呈するものの、群れの構造は乱れやすく

乱雑である。ひとつの可能性として、上記のモデルのパラメータ領域が、ハクチョウは線形安定領域に、カリガネはより不安定な領域に位置していると考えerことで、群れの「乱雑さ」の起源を説明できるのではあるまいか。式(3)のモデルは、不安定点の近傍での遅いダイナミクスがソリトンのように振る舞うことが分かっているが、群れの中を波が時間・空間共にゆっくりと伝搬している様子から類推すると、マガンは(上記の推定よりもさらに)不安定点に近い臨界的なところに位置している可能性もある。

5. おわりに

東日本大震災のしばらく前から、休日になると観察に出かけ、屋外で何時間も空を眺めていることが多くなった。鳥がやって来はしないかと目を凝らしてうちに、思いのほか沢山の飛行機が頭上を行き交っていることに驚かされる。ジェット旅客機ともなれば、翼端渦の影響はマガンの比ではなくて、例えば、その影響を緩和するためにウィングレットを取り付けただけでも、十分な省エネ効果を発揮するようである。さらに進んで、旅客機をマガンのように編隊飛行させることで燃料を節約してはどうか、といった論文や記事を何度か目にしたこともある。また、最近ではドローンと呼ばれる小型の無人飛行機が生活の様々なシーンで実用化されようとしているので、そう遠くない未来、空のあちらこちらで人工的な飛行物体が「群れ」を成して行き交うような時代が到来するのかもしれない。ドローンとカモが仲良く編隊飛行していたところが、ドローンの運ぶ宅配便の中身はネギだった、というようなこともあながちあり得ないとは言えないだろう。

物体を「群れ」で飛行させるためには、当然、事故を起こしたり効率が悪くなったりしないよう、集団飛行のための特別な設計や配慮が必要ははずである。そんな際、マガンに限らず、鳥や昆虫の集団飛行をよく調べることで、新しい発想や手がかりが得られそうな気がする。

参考文献

- 1) C. J. Pennycuik: *Modeling the flying bird* (Academic Press, 2008).
- 2) A. Azuma: *The Biokinetics of Flying and Swimming*, 2nd ed. (Amer. Inst. of Aeronautics, 2006).
- 3) Y. Hayakawa and S. Furuhashi: *Phys. Rev. E* **86** (2012) 031924.
- 4) Y. Hayakawa: *Europhys. Lett.* **89** (2010) 48004.
- 5) M. Bando, K. Hasebe, A. Nakayama, A. Shibata and Y. Sugiyama: *Phys. Rev. E* **51** (1995) 1035.

(2015年1月31日原稿受付)

*1) バネが強いと、非対称な相互作用によって前方の変位が下流側に伝搬する過程で、オーバーシュートの影響が拡大される。対称な相互作用では、このような挙動は生じない。

*2) 速度調整に要する時間 m/γ が羽ばたき1回程度分に対応すると仮定。

上田和夫 (JPSJ編集委員長)

有機導体で見られたヘリカル表面状態を伴う新しい量子ホール状態

層状有機導体 α -(BEDT-TTF)₂I₃ はグラフェンに続く第2の固体中ディラック電子系であり、ここでは電子は相対論的な運動法則に従う。この物質の強磁場下の層間電気伝導の異常な振舞いを説明するモデルとして、ディラック電子系特有の磁場中ゼロエネルギー準位のスピン分裂に起因する「量子ホール強磁性」状態の可能性について考察した。具体的には、この状態特有の試料側面に形成される「ヘリカル表面状態」の伝導特性を理論的に調べ、実験との整合性を確認した。これはグラフェンにおける「量子ホール絶縁体」状態とは対照的な、新しいトポロジカル電子状態である。

グラフェン(原子1個の厚さの炭素の2次元結晶)の研究は、2005年の発見以来、基礎と応用の両面で爆発的に進展し、2010年には発見者である英国のガイム、ノボセロフ両博士にノーベル物理学賞が授与された。グラフェンの特異な性質は、グラフェン内の電子が相対性理論と同様な運動法則に従うことに由来する。このような電子を固体中ディラック電子と呼ぶ。固体中ディラック電子の顕著な性質の1つとして、磁場をかけても周回軌道運動を行わない特異なゼロエネルギー状態($n=0$ ランダウ準位)の存在があげられる。十分な強磁場ではすべての電子がゼロエネルギー状態に落ち込むが、これが複数のエネルギー状態に分裂すると、分裂の仕方により異なる性質を持つ占有数ゼロの量子ホール状態が現れる。この分裂様式と量子ホール状態は多くの研究者の興味を集め、グラフェンの場合、占有数ゼロの量子ホール状態はバレー分裂に起因する「量子ホール絶縁体」状態という非磁性の状態であることが明らかになっている。

有機分子からなる層状の導電性結晶 α -(BEDT-TTF)₂I₃ は1980年代から知られていたが、高圧を加えて低温で起こる絶縁体転移を抑えると、固体中ディラック電子系が実現する。この事実は2006年に名古屋大学の小林・鈴村らのグループにより理論的に指摘され、その後、実験的に確認された。この第2の固体中ディラック電子系において、どのような占有数ゼロの量子ホール状態が現れるかは、興味深い問題である。

最近、東京大学物性研究所の研究グループは、層状有機導体 α -(BEDT-TTF)₂I₃ の積層方向の電気抵抗が強磁場の下で指数関数的に増加した後に飽和する傾向があることに注目し、これを説明するために「結晶表面に金属的な状態ができるような占有数ゼロの量子ホール状態が実現し、抵抗増大に歯止めをかけている」という仮説を立てた。この

量子ホール状態は「量子ホール強磁性」状態と呼ばれるもので、ゼロエネルギー状態のスピン分裂に起因するスピン偏極状態で、結晶側面に「ヘリカル表面状態」という導電性領域が現れるという著しい特徴を持つ。この仮説に基づいて伝導特性を理論的に考察したところ、種々の実験結果をよく説明することがわかり、仮説の正当性が確認された。ヘリカル表面状態を伴う占有数ゼロの量子ホール強磁性状態は、この物質で初めて実証された新しいトポロジカルな電子状態である。この成果はJPSJの2015年5月号に掲載された。

一般に絶縁体状態、すなわち電子が詰まった準位と空の準位がエネルギーギャップによって隔てられた電子状態は、トポロジカル数という整数によって分類できる。トポロジカル数の異なる絶縁体同士は、連続的に移り変わることができない。従ってトポロジカル数が変化する絶縁体の境界には、絶縁体ではない状態、すなわち金属状態が形成されることになる。従来の量子ホール状態はトポロジカルに非自明な絶縁体状態の典型例であり、いくつのエネルギー準位に電子が詰まっているかを表す占有数がトポロジカル数(チャーン数という)になっている。このとき自明な絶縁体である外部との境界である試料端には、金属的なエッジ状態が現れることはよく知られている。しかし固体中ディラック電子系の占有数ゼロの量子ホール状態は、チャーン数がゼロなので、一般には自明な絶縁体状態となる。一方、本論文で考察している「量子ホール強磁性」状態では、チャーン数とは別のスピンチャーン数というトポロジカル数が有限になるので、トポロジカルに非自明な状態となり、

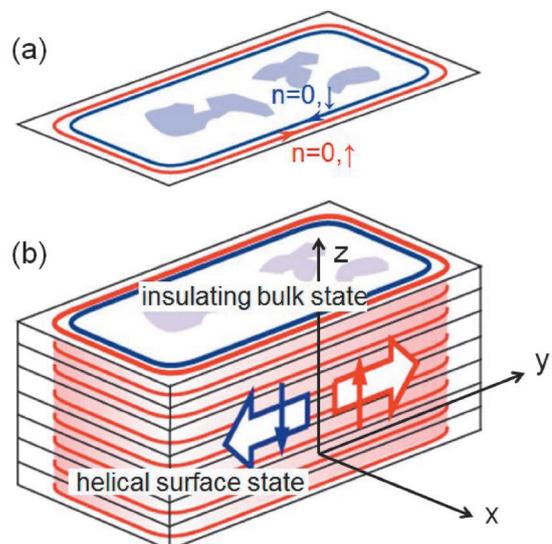


図1 量子ホール強磁性状態において結晶を取り巻くヘリカル表面状態。

試料側面に金属的な「ヘリカル表面状態」が現れる(図1)。このヘリカルエッジ状態では、スピンの向きに応じて電子の運動方向が決まるため、永久スピン流が流れている。こうした性質は、近年盛んに研究されている「 Z_2 トポロジカル絶縁体」とよく似ている。

有機分子性結晶である α -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ で固体中ディラック電子系が実現していること自体興味深いが、そこでグラフェンでは見られなかった新しいトポロジカル電子状態が実現していることはさらに興味深い事実である。この状態を特徴づける「ヘリカルエッジ状態」による表面伝導に関して、今後、実験的研究が進展することが期待される。

原論文

Surface Transport in the $\nu=0$ Quantum Hall Ferromagnetic State in the Organic Dirac Fermion System

T. Osada: J. Phys. Soc. Jpn. **84** (2015) 053704.

〈情報提供：長田俊人(東京大学物性研究所)〉

News and Comments

Helical Surface State in Multilayer Massless Dirac Fermion System

A. Kobayashi: JPSJ News and Comments **12** (2015) 07.

ここでは日本物理学会が発行している Journal of the Physical Society of Japan (JPSJ) の論文で2015年4月に掲載可となった中から2015年5月の編集委員会が選んだ“Papers of Editors' Choice”(JPSJ注目論文)を紹介しています。なお、編集委員会での選考では閲読者等の論文に対する評価を重要な要素としております。

この紹介記事は国内の新聞社の科学部、科学雑誌の編集部で電子メールで送っている「紹介文」をこの欄のために少し書き直したものです。専門外の読者を想定し、「何が問題で、何が明らかになったのか」を中心にした読み物であるので、参考文献などはなるべく省いています。なお、紹介文は物理学会のホームページの「JPSJ注目論文」でも公開しています。内容の詳細は、末尾に挙げる論文掲載誌、または、JPSJのホームページの「Editors' Choice」の欄から掲載論文をご覧下さい(掲載から約1年間は無料公開)。また、関連した話題についての解説とコメントがJPSJホームページの「News and Comments」覧に掲載されていますので、合わせてご覧下さい。

JPSJ編集委員会では物理学のあらゆる分野の興味深い論文を「注目論文」としてこの欄で紹介したいと思っています。物理学会会員からのJPSJへの自信作の投稿を期待します。

日本物理学会2015年秋季大会におけるJPSJフレンドシップミーティング案内

日本物理学会2015年秋季大会(関西大学千里山キャンパス)におけるJPSJフレンドシップミーティングは9月17日(木)12:30~13:20 BA会場において開催されます。フレンドシップミーティングではJPSJの現状の報告と、最近選ばれた注目論文に関連して徳永将史氏による「量子極限環境下における単元素半金属グラファイトおよび黒燐の異常量子伝導」についての講演があります。皆様の参加をお願いします。

応用物理 第84巻 第9号(2015年9月号) 予定目次

解説

液晶偏光 GRIN レンズを用いたフレネルインコヒーレント

自己相関ホログラフィ(FINCH)顕微鏡……………橋本信幸
高電圧 SiC 素子の実現に向けた大口径、高品質 4H-SiC

エピタキシャル成長技術の開発……………土田秀一
トランジスタ型強誘電体メモリの応用展開……………金子幸広

最近の展望

プラズマの環境・バイオ応用……………永津雅章

極小領域のみで再現可能な超音波スピーカ……………西浦敬信
研究紹介：レーザー核融合技術における高速点火原理実証実験
に向けた中性子線検出技術の開発……………清水俊彦、他

基礎講座：温度管理技術(低温、高温の制御)のコツ
……………丹波 純、中野 享

連載：科学を詠む⑨ 60兆分の1の世界……………松村由利子

Science As Art：イオン液体に咲いた花……………小柴康子

高エネルギー加速器研究機構監修，小玉英雄，井岡邦仁，郡 和範著

宇宙物理学

共立出版，東京，2014，x+ix+291p，22×16 cm，本体4,000円（KEK物理学シリーズ第3巻）

[専門・大学院向]

ISBN 978-4-320-03486-0

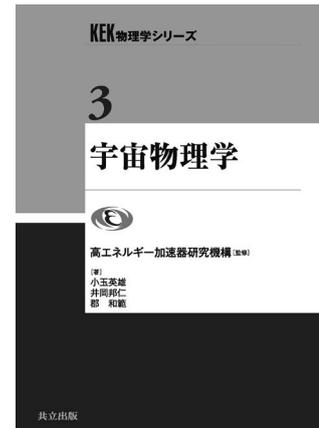
問 瀬 圭 一 〈千葉大院理〉

本屋にて一冊の本に目が留まる。実際には目に留まるまでに幾分かの時間がかかった。「宇宙物理学」，無骨なタイトルである。手にしてみると，よく知った名前が著者に並ぶ。また，KEK物理学シリーズなるものが創刊されたことを初めて知る。パラパラとページをめくると我々が遂行するIceCubeの最新結果が紹介されている。一気にこの本に吸い込まれていった。

本書の巻頭でも述べられているように「KEKで宇宙?」と思われる方もいるであろう。本書は高エネルギー物理学と宇宙物理学の境界領域を埋めるべく2007年にKEKに創設された宇宙物理理論グループのメンバーが総力を結集して書かれた宇宙物理学に関する本である。現在，宇宙論，天体物理のそれぞれについて書かれた日本語の本は少なからず存在するが，本書は素粒子宇宙論，高エネルギー天体物理，宇宙線等の多岐にわたる宇宙物理全般について高エネルギー物理学的観点から俯瞰し，その基礎から最前線の研究まで系統的に解説した目新しい本となっている。海外には本書のような本は存在し，幾つかは和訳もされている（例えば，C. グルーベン著，小早川恵三訳『宇宙素粒子物理学』）本書のような本が日本で刊行されるようになったことを単純に喜ばしく思う。KEKの思惑がここに一つ結実したと言って良いであろう。

本書の構成は，まず第1章にて現在における宇宙の描像を俯瞰する。第2章から第5章では高エネルギー天体現象に関連した題材を扱う。第2章では星の構造と進化について，第3章では重い星の最期に起こる超新星爆発とガンマ線バーストについて，第4章では超新星残骸，パルサー，活動銀河核，相対論的ジェット等の高エネルギー天体現象について扱う。第5章において高エネルギー宇宙線実験，高エネルギーガンマ線実験，高エネルギーニュートリノ実験，重力波実験の最新の結果並びに現況が示されると共に，その理論的解釈が与えられており，本書を特徴付ける一つの章になっている。第6章から第9章においては，宇宙論に関する題材が扱われている。第6章では宇宙背景放射形成時期にあたる宇宙の晴れ上がり前後の物理について，第7章では宇宙初期の元素合成について，第8章ではバリオン生成，暗黒物質について標準理論を超える素粒子理論からの説明がなされる。最終章第9章において宇宙のインフレーションモデルが我々の住む宇宙の歴史をいかに説明するのを見る。

本書においては宇宙物理の多岐にわたる最新の実験結果が最新の理論により端的に説明されている。例えばフェルミ加速の項では粒子の衝突による古典的な描像ではなく，電磁流体モデルにより説明されており，加速粒子のス



ベクトルのベキが衝撃波前後の流体の圧縮比（密度比）のみで決まり，非相対論的な強い衝撃波の場合ベキが2になることが端的に示されている。その一方で，式等が比較的多く天下りの与えられていることもあり，要求されるレベルは高い。完全に理解するためには更に基礎的な教科書にあたる必要があるであろう。無論，多岐にわたる題材を簡潔にまとめるためには仕方ないのかもしれないが，もう少し丁寧に式等の説明をする，もしくは参照論文，文献をより多く付け加えれば，幅広い読者にとって有用であると思われた。

多岐にわたる最新の宇宙物理学全般を一冊の本に端的にまとめるという本書の試みは革新的であり，教科書とは銘打っているが，学生のみならず，この分野に携わる研究者が最新結果とその物理的解釈を手取り早く包括的に一望するのに格好の書となっている。

最後に，最新の結果が多く掲載されている本書であるが，この分野の進展も早い。新たな結果の現出と共に本書も改訂され続けてゆくことを強く望む。

（2015年3月5日原稿受付）

田中宏幸, 竹内 薫

素粒子で地球を視る；高エネルギー地球科学入門

東京大学出版会, 東京, 2014, vi + 186p, 21 × 15 cm, 本体2,800円 [大学院〜一般向]

ISBN 978-4-13-063712-1

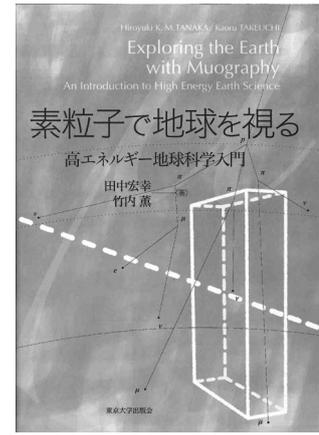
宮原ひろ子 (武蔵野美術大)

本書は、2006年にミュオンを用いて浅間山の内部の密度構造を可視化することに初めて成功し「高エネルギー地球科学」の第一線で活躍する著書によって書かれた入門書である。素粒子を観測の手段として用いることで、これまで見ることのできなかった地球内部の様子を可視化することが可能になり、地球科学は新たな展開を迎えようとしている。昨今火山活動が世界各地で活発化しており、噴火予測の実現が切望されるが、現在の予測手法は、マグマの上昇に伴う山肌の非常に僅かな震動を検知することによるもので、予測が困難な場合も多い。本書のカラーページで紹介されている薩摩硫黄島内部のミュオグラフィ透視像のように、火山内部のマグマの様子を手取るように観測できるようになれば、噴火予測は大きく実現に近づくであろう。その他、ミュオグラフィは、原子炉の内部を遠隔で可視化できる手法としても注目を集めており、本手法について耳にすることも多くなったのではないだろうか。素粒子で高密度の物体の内部を観察することのできる本手法は汎用性も高く、そういう意味でも、読者の専門分野を問わず、本書のような解説書を心待ちにしていた方は多いのでは

ないかと思う。

本書は、まず第1章で、素粒子で地球内部を視るに至るまでの歴史的背景が、ピラミッドの透視などの興味深い話題とともに述べられ、“視る”ということが何を意味するのか、素粒子を用いることで何が視えるようになるのか、ということが解説されている。その後、第2章では、素粒子とは何か、相互作用とは何か、という点に始まり素粒子で地球を観測するために必要な知識が、基礎的な項目から丁寧に解説されている。物理を学び始めたばかりの学生にもとっつきやすく分かりやすい構成となっている。第3章では、素粒子を検出するための測定器について、そして第4章で実際のミュオグラフィの実際の手法の概要が述べられている。素粒子とその観測技術、そして地球物理、という比較的遠い2分野をつなぐために必要な知識がこの1冊にまとめられているのは学習者にとっても指導者にとっても非常に活用しやすいのではと感じた。

物理学会誌読者の方々はずいぶん第5章にページを進めてほしい。本章で目を引くのはなんといっても、本手法の応用が地球科学だけではなく火星や小天体の科学にまで及ぶという点である。



特に、地震が地球の1/1,000しかない火星では、地震波トモグラフィ（自然地震で発生した波の伝播から内部構造をマッピングする手法）が使えず、本手法が大活躍できる可能性があるとのことである。

ミュオグラフィの一步先の展望としてニュートリノグラフィについても述べられている。現在世界各国で活発に行われているニュートリノ観測技術の開発は、地球科学の進展にも大きく寄与するであろう。今後の進展がとても楽しみである。

(2015年3月24日原稿受付)

本欄では物理に関する新著を中心に、隠れた良書や学会員にとって有意義な本などを紹介していきます。紹介書籍の表紙画像につきましては、出版社の許可を得られたもののみ掲載しております。

図書リスト

最近の寄贈書より

- E. Fradkin: Field Theories of Condensed Matter Physics 2nd Ed.
Cambridge Univ. Press, Cambridge, 2013, xvi + 838p, 25 × 18 cm, \$109.99
ISBN 978-0-521-76444-5
- W. Horton: Turbulent Transport in Magnetized Plasmas
World Scientific, Singapore, 2012, xvi + 501p, 26 × 18 cm, \$150.00
ISBN 978-981-4383-53-0

- L. アカルディ著, 大矢雅則監訳, 松岡隆志訳: 壺とカメレオン: 実在と偶然を巡る量子論の新解釈
牧野書店, 東京, 2015, xviii + 388p, 21 × 15 cm, 本体3,800円 (数理情報科学シリーズ28)
ISBN 978-4-434-20731-0
- H. カーオ著, 岡本拓司監訳: 20世紀物理学史: 理論・実験・社会 (上)
名古屋大学出版会, 名古屋, 2015, v + 299p, 22 × 15 cm, 本体3,600円
ISBN 978-4-8158-0809-9
- H. カーオ著, 岡本拓司監訳: 20世紀物理

- 学史: 理論・実験・社会 (下)
名古屋大学出版会, 名古屋, 2015, iv + 330p, 22 × 15 cm, 本体3,600円
ISBN 978-4-8158-0810-5
- 磯 暁: 現代物理学の基礎としての場の量子論
共立出版, 東京, 2015, xviii + 277p, 22 × 16 cm, 本体4,200円 (KEK物理学シリーズ4)
ISBN 978-4-320-03487-7
- 鈴木雄一: 磁石の発明特許物語: 六人の先覚者
アグネ技術センター, 東京, 2015, iii +

118p, 21×15 cm, 本体2,000円
 ISBN 978-4-901496-80-3
 園田英徳：幾何学的に理解する物理数学サイエンス社，東京，2015，vi+168p, 26×18 cm, 本体2,296円 (SGC ライブラリ-117)
 ISSN 4910054700558
 生井澤寛：キーポイント電磁気学 岩波書店，東京，2015，xviii+239p, 21×15 cm, 本体2,700円 (物理のキーポイン

ト2)
 ISBN 978-4-00-007957-0
 日本セラミックス協会編：理系生活；先輩理系人からのキャリアアドバイス 学事出版，東京，2015，143p, 21×15 cm, 本体1,500円
 ISBN 978-4-7619-2128-6
 パリティ編集委員会編：先生，物理っておもしろいんですか？ 丸善，東京，2015，x+261p, 19×13 cm,

本体1,600円
 ISBN 978-4-621-08924-8
 福江 純：完全独習現代の宇宙物理学 講談社，東京，2015，viii+359p, 21×15 cm, 本体4,200円
 ISBN 978-4-06-153291-5
 山崎茂明：科学論文のミスコンダクト 丸善，東京，2015，x+147p, 21×15 cm, 本体2,400円
 ISBN 978-4-621-08939-2



掲示板

毎月1日締切 (17:00 必着)，翌月号掲載。但し1月号，2月号は前々月の20日締切。修正等をお願いする場合があります。締切日よりなるべくお早目にお申込み下さい。書式は <http://www.jps.or.jp/books/keijiban.php> にありますので，それに従ってお申込み下さい。webからのお申込みができない場合は，e-mail: keijiban@jps.or.jp へお送り下さい。必ず Fax 03-3816-6208 へも原稿をお送り下さい。Faxがありませんと，掲載できない場合がございます。HP掲載をご希望される場合は，上記URLの「2. ホームページ掲載」をご参照下さい。本欄の各項目の内容につきましては，本会は関与致しかねますのでご了解下さい。

人事公募

人事公募の標準書式 (1件500字以内)

1. 公募人員(職名, 人数)
2. 所属部門, 講座, 研究室等
3. 専門分野, 仕事の内容 (1行17字で7行以内)
4. 着任時期 (西暦年月日)
5. 任期
6. 応募資格
7. 提出書類 (書類名の前に○印をつけ簡潔に, 1行17字で6行以内)
8. 公募締切 (西暦年月日, 曜日)
9. ①書類送付先 (郵便番号, 住所, 所属, 担当者名) ②問合せ先 (郵便番号, 住所, 所属, 担当者名, 電話, Fax, e-mail 等, 必要と思われるもの。①と同じ場合は省略)
10. その他 (1行17字で5行以内)

■理化学研究所放射光科学総合研究センター特別研究員

1. 特別研究員1名

2. XFEL 研究開発部門加速器研究開発グループ基盤光源チーム
3. X線自由電子レーザー装置である SACLA の加速器ハードウェアの研究開発を行っている。大電力高周波源の構成機器の半導体化に関する研究を行って頂く。
4. 決定後早期 (応相談)
5. 単年度契約, 評価により再契約可 (但し, プロジェクト終了時, 受入研究室等解散時以降の雇用契約は締結しない。それ以外の場合も2020年4月1日以降の雇用契約は締結しない。)
6. 博士号取得者又は取得見込者。電磁気学, マイクロ波回路等の知識が有ることが望ましい。
7. ○履歴書 (写真貼付) ○研究業績リスト (査読付論文, 学会発表等) ○今迄の研究概要及び着任後の研究に対する抱負 (A4, 約2枚) ○主要論文別刷3編以内 (コピー可) ○照会可能者2名の氏名, 所属, 連絡先
8. 適任者決定次第
9. 679-5148兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1 理化学研究所放射光科学総合研究センターXFEL 研究開発部門加速器研究開発グループ基盤光源チーム 大竹雄次 電話 0791-58-2800 Fax 0791-58-2898 otake.spring8.or.jp
10. 封筒に「基盤光源チーム 研究員応募書類在中」と必ず朱書し送付。提出書類は当研究所個人情報保護規程に則り厳重に管理し, 採用審査の用途に限り使用 (正当な理由なく第三者への開示, 譲渡及び貸与することは一切ない)。履歴書等不返却。選考方法: 書類審査, 書類選考通過者のみ面接。勤務地: 理化学研究所放射光科学総合研究センター (兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1)。待遇: 給与は経験, 能力, 実績に応じた年俸制で通勤手当, 住宅手当支

給有。社会保険適用有。理研共済会 (互助組織) に要入会。休日は土日, 祝日, 年末年始 (12/29~1/3), 当研究所設立記念日。その他当研究所規程による。日本学生支援機構奨学金 (平成15年度までに大学院第一種奨学生に採用されている場合) の返還特別免除の対象及び科学研究費補助金の申請資格有。当研究所は女性も男性も1人1人が能力を発揮できるよう様々な取組を行い男女共同参画を推進。

■高エネルギー加速器研究機構教員

[I]

1. 准教授1名 (公募番号15-2)
2. 素粒子原子核研究所理論センター
3. 素粒子物理学の理論的研究を行うと共に機構に関わる素粒子実験に理論的側面から協力する。
4. 採用決定後早期
5. なし
7. ○履歴書 ○研究歴 ○発表論文リスト ○着任後の抱負 ○推薦書又は参考意見書
8. 2015年9月17日 (木)
9. ①305-0801つくば市大穂1-1 高エネルギー加速器研究機構総務部人事労務課人事第一係 電話029-864-5118 jinjil_ml.post.kek.jp ②研究内容等: 素粒子原子核研究所 磯 暁 電話029-864-5392 satoshi.iso@kek.jp (提出書類については①)
10. 封筒に「教員公募関係」「公募番号」を朱書し郵送 (書留) 又は持参。詳細は <http://www.kek.jp/ja/Jobs/ReseachingStaff/apip15-2j.pdf> 参照。

[II]

1. 准教授1名 (公募番号15-3)
2. 素粒子原子核研究所 Belle グループ
3. 素粒子原子核研究所 Belle グループに所属し, Belle II 実験において主に計

算機システムの構築及び運営に中核的な役割を果たし、将来に亘り物理解析を促進する。勤務地はつくばキャンパス。

4, 5, 7, 8, 9①は [I] に同じ。

9. ②研究内容等：素粒子原子核研究所 堺井義秀 電話029-864-5335 yoshihide.sakai kek.jp (提出書類については①)
10. 封筒に「教員公募関係」「公募番号」を朱書き郵送(書留)又は持参。詳細は <http://www.kek.jp/ja/Jobs/ReseachingStaff/apip15-3j.pdf> 参照。

[III]

1. 助教1名(公募番号15-4)
2. 素粒子原子核研究所短寿命核グループ
3. 素粒子原子核研究所短寿命核グループに所属し、和光原子核科学センターの元素選択型質量分析器KISSでの計測装置の改良開発に従事し、施設の安全円滑な運営に主体的に関与。短寿命核ビームを用いた原子核物理実験を推進。勤務地は和光原子核科学センター(埼玉県和光市)。

4, 5, 7, 8, 9①は [I] に同じ。

9. ②研究内容等：素粒子原子核研究所 宮武宇也 電話048-462-7611/029-879-6051 hiroari.miyatake kek.jp (提出書類については①)
10. 封筒に「教員公募関係」「公募番号」を朱書き郵送(書留)又は持参。詳細は <http://www.kek.jp/ja/Jobs/ReseachingStaff/raip15-4j.pdf> 参照。

■茨城大学教員

[I]

1. 准教授又は助教1名
2. 理学部理学科物理学領域・物性理論研究室
3. 物性理論
4. 2016年4月1日
5. なし
6. 博士取得者又は採用迄の取得見込者。学部と大学院理工学研究科において教育、研究指導、大学運営に係る校務を担当できる方。
7. ○履歴書(写真貼付) ○研究業績リスト(学術誌論文、国際会議論文、解説・総説等に分類) ○主要論文別刷5編以内各1部(コピー可、自己評価順位を付す) ○今迄の研究概要と着任後の研究計画 ○今迄の教育実績と着任後の教育への抱負(地方大学での学部・大学院教育に対する抱負含) ○その他参考となる事項(外部資金獲得状況、受賞歴等) ○照会可能者2名の氏名、連絡先(所属、住所、電話、e-mail)、及び内1名からの推薦書1通

8. 2015年9月25日(金) 必着
9. ①310-8512水戸市文京2-1-1 茨城大学理学部物理学領域 藤原高德
- ②同 福井隆裕 電話029-228-8349 fukui mx.ibaraki.ac.jp
10. 封筒に「物理系教員応募書類在中」と朱書き簡易書留にて送付。応募書類原則不返却。最終選考過程で講演をして頂く(旅費等自己負担)。

[II]

1. 准教授1名
2. 大学院理工学研究科応用粒子線科学専攻量子基礎科学講座
3. 物理学分野(特に量子ビームの基礎や応用に関連した分野)。大学院の講義(量子線科学等)と理学部の物理系基礎科目(物性実験、力学、電磁気学、固体物理学等)
- 4, 5は [I] に同じ。
6. 博士号又はPhD取得者
7. ○写真付履歴書 ○研究業績リスト ○主要論文別刷10編以内(コピー可) ○今迄の教育研究概要 ○着任後の教育研究に関する抱負 ○その他(詳細はWeb参照) ○照会可能者2名の氏名、所属、連絡先
8. 2015年10月31日(土) 必着
9. ①316-8511日立市中成沢町4-12-1 茨城大学大学院理工学研究科 馬場充
- ②同研究科応用粒子線科学専攻 高妻孝光 電話029-228-8372 kohzuma mx.ibaraki.ac.jp
10. 書類は封筒に「茨城大学大学院理工学研究科教員応募書類(量子基礎科学)」と朱書き簡易書留で送付。応募書類原則不返却。主たる勤務地は水戸キャンパス。2016年度に研究科の改組予定。女性の応募を歓迎。選考は書類審査の上面接(交通費支給なし)。詳細は必ず <http://www.ibaraki.ac.jp/employment/index.html> 参照。

■名古屋大学素粒子宇宙起源研究機構(KMI) 准教授

[I]

1. 准教授1名
2. 基礎理論研究センター
3. 広い意味の素粒子理論、宇宙理論、又はその境界分野についての研究を行うと共に、KMIの分野横断的な活動と運営(セミナーの開催や国際会議の主

催等)を担う。

4. 2016年4月1日以降早期
5. 2021年3月迄
6. 着任時に博士号を有すること
7. ○履歴書 ○今迄の研究内容 ○業績リスト(主要論文3編以内明記) ○研究計画 ○着任可能時期 ○推薦書又は意見書2通
8. 2015年9月30日(水) 必着
9. ①Academic Jobs Onlineより電子的に行う。詳細は <http://www.kmi.nagoya-u.ac.jp/jpn/requirement/2015/kmi-2015-1.php> 参照。
- ②464-8602名古屋千種区不老町 名古屋大学素粒子宇宙起源研究機構基礎理論研究センター長 野尻伸一 nojiri gravity.phys.nagoya-u.ac.jp
10. 本機構の概要、構成メンバーは <http://www.kmi.nagoya-u.ac.jp/> 参照。本学では業績(研究業績、教育業績、社会的貢献、等)の評価において同等と認められた場合には女性を積極的に採用。

[II]

1. 准教授1名
2. 現象解析研究センター
3. KMI現象解析研究センターに所属する教員と協力して、同センターが進める国際共同プロジェクト(Belle/Belle II, LHC-ATLAS, LHCf, ASTRO-H, 暗黒物質探索、ニュートリノ、ガンマ線観測、中性子基礎物理)を推進すると共に、KMIの分野横断的な活動と運営(セミナーの開催や国際会議の主催等)を担う。
- 4, 5, 6, 7, 8, 10は [I] に同じ。
9. ① <http://www.kmi.nagoya-u.ac.jp/jpn/requirement/2015/kmi-2015-2.php> に従いe-mailで行う。
- ②現象解析研究センター長 飯嶋徹 iijima hepl.phys.nagoya-u.ac.jp

■東北大学大学院理学研究科教員

1. 准教授又は助教1名
2. 物理学専攻量子物性物理学講座
3. 広い意味での表面物理・界面物理分野の実験的研究。須藤彰三教授と協力し意欲を持って研究・教育を展開する。
4. 決定後早期
5. 2020年3月31日迄
6. 博士号取得者か着任時迄の取得見込者
7. ○履歴書(様式任意、顔写真貼付) ○業績リスト(主要論文5位迄の順位を付す) ○主要論文別刷5編以内(コピー可) ○研究業績概要(A4, 4頁) ○今後の研究・教育への抱負(A4, 4

- 頁以内) ○推薦書2通
- 2015年9月30日(水)
 - 980-8578 仙台市青葉区荒巻字青葉6-3 東北大学大学院理学研究科物理学専攻 須藤彰三 電話022-795-7751 suto@surface.phys.tohoku.ac.jp
10. 助教への応募の場合、提出書類を「○業績リスト(主要論文3位迄の順位を付す) ○主要論文別刷3編以内(コピー可)」とし、他は7.の通りとする。詳細は <http://www.phys.tohoku.ac.jp/positions/index.html> 参照。

■兵庫県立大学大学院物質理学研究科助教

1. 助教1名
 2. エックス線光学分野
 3. 高輝度放射光の特性を活かし、X線光学を駆使した新たな物性測定法の開発と物質科学への応用を展開する。SPRING-8の兵庫県ビームラインの管理運営も担う。
 4. 2016年4月1日(予定)
 5. 5年(再任有)
 6. 着任時に博士号を有すること。
 7. ○履歴書 ○研究業績リスト ○主要論文別刷又はコピー約3編 ○今迄の研究概要と今後の研究に対する抱負 ○放射光を用いた産学連携の取り組みへの抱負 ○科研費などの競争的研究費の取得状況 ○照会可能者2名の氏名、連絡先 ○詳細は下記URLを必ず参照
 8. 2015年10月5日(月)必着
 9. ①678-1297 兵庫県赤穂郡上郡町光都3-2-1 兵庫県立大学大学院物質理学研究科 本間健二(経営部総務課気付) 電話0791-58-0101
②同研究科 籠島 靖 電話0791-58-0230 kagosima@sci.u-hyogo.ac.jp
10. 封筒に「エックス線光学分野助教応募書類在中」と朱書きし簡易書留で送付。応募書類原則不返却。詳細は http://www.sci.u-hyogo.ac.jp/staff/img/koubo20151005_1.pdf 参照。

■分子科学研究所若手独立フェロー(特任准教授)公募

1. 特任准教授2名
2. 理論・計算分子科学研究領域
3. 独自の着想で新たな分子科学を切り拓く意欲のある若手研究者で、独立した研究室を主宰するのに十分な能力を有する者。
4. できる限り早期
5. 5年

6. 博士号取得見込、博士号取得後2年以内、海外の博士研究員(帰国後1年以内含)の何れか。
 7. ○推薦書(自薦は不要) ○履歴書(所定様式、HP参照) ○主要論文3編以内の業績説明(A4, 2頁以内) ○業績リスト(所定様式、HP参照) ○主要論文3編以内の別刷又はプレプリント各2部 ○着任後の研究計画(A4, 2頁以内)
 8. 2015年10月10日(土)消印有効
 9. 444-8585 岡崎市明大寺町字西郷中38番地 自然科学研究機構岡崎統合事務センター総務課人事係 電話0564-55-7113
10. 詳細は <http://www.ims.ac.jp/recruit/2015/> 参照。当研究所は男女雇用機会均等法を遵守し男女共同参画に取り組んでいる。

■筑波大学数理物質系物理学域助教

1. 助教1名
 2. 宇宙観測
 3. 当該グループでは地理院32m鏡による電波観測、南極におけるサブミリ・テラヘルツ観測、ALMA等を用いたミリ波サブミリ波観測による銀河・銀河系・遠方宇宙等の研究を推進している。主としてサブミリ・テラヘルツ波望遠鏡を開発し南極天文学の推進に参画する助教を求む。物理学類と物理学専攻の教育も担当。
 4. 2016年4月1日以降早期
 5. 5年間のテニュアトラック対象、着任時から5年以内の審査次第でテニュア(定年制適用職員)を取得
 6. 博士号取得者又は着任迄の取得見込者
 7. ○履歴書(写真貼付) ○主要論文別刷5編(4編以上は5年以内のもの) ○業績リスト(査読論文とその他を区別) ○今迄の研究概要(約2,000字) ○今後の研究教育の計画と抱負(約2,000字) ○意見書2通以上又は照会可能者2名以上の氏名、連絡先
 8. 2015年10月15日(木)17時必着
 9. ①305-8571 つくば市天王台1-1-1 筑波大学数理物質系物理学域 矢花一浩
②同上 中井直正 電話029-853-4281 nakai@physics.px.tsukuba.ac.jp
10. 封筒に「宇宙観測分野助教応募書類在中」と朱書きし簡易書留にて送付。

■立命館大学理工学部特任助教

1. 特任助教1名
2. 物理科学科・素粒子論研究室

3. 素粒子論、前後期合せて2授業時間の授業担当と、実験・実習系科目の補助業務
 4. 2016年4月1日
 5. 1年(双方合意の場合1年毎の契約により4回を上限として契約更新する場合有)
 6. 着任迄に博士号を有し、上記の専門分野の優れた研究業績がある方。本学部の教員と連携して革新的な研究を推進できる方。私立大学における教育・研究を深く理解して取り組まれる方。
 7. ○履歴書 ○教育研究業績書 ○主要論文別刷約5編(コピー可) ○研究業績概要(A4, 約1,000字) ○今後の研究計画(A4, 約1,000字) ○教育に対する抱負(A4, 約1,000字) ○照会可能者2名の氏名、連絡先(電話、e-mail等) ○最終学位の証明書(学位授与証明書等)
 8. 2015年10月23日(金)
 9. 525-8577 草津市野路東1-1-1 立命館大学理工学部物理科学科 菅原祐二 電話077-561-5852 ysugawa@se.ritsume.ac.jp
10. 詳細は <http://www.ritsumeiji.jp/job/pdf/se2012-youkou150708-3.pdf> 参照。

■北海道大学大学院工学研究院応用物理学部門教授

1. 教授1名
2. 光波動量子物理工学分野(フォトリソグラフィ研究室)
3. 光科学を主領域とした応用物理(フォトリソグラフィ、光量子科学、量子エレクトロニクス等)に関する実験的研究。大学院では応用物理学専攻、学部では応用理工系学科に関する講義等を担当。
4. 2016年4月1日以降早期
5. なし
6. 着任時に博士号又はPh.D.所有者。十分な研究実績と指導能力があり、独創的な研究を推進できると共に、教育に熱心で当該研究室スタッフと協力して研究室を運営できる方。
7. 所定の書式。詳細は <http://www.eng.hokudai.ac.jp/graduate/research/recruit/> 参照。
8. 2015年11月24日(火)必着
9. ①060-8628 札幌市北区北13条西8丁目 北海道大学工学系事務部総務課人事担当 電話011-706-6156, 6117, 6118
②大学院工学研究院応用物理学部門 戸田泰則 電話011-706-6627 toda@eng.hokudai.ac.jp <http://www.eng.hokudai.ac.jp>

hokudai.ac.jp/edu/div/applphys/

10. 封筒に「応用物理学部門教員公募27-18」と朱記し書留で送付。

学術的会合

学術的会合の標準様式 (1件500字以内)

掲載されている例を参考にして、次の項目中、必要なものを簡潔に作成して下さい：
○会合名 ○主催 ○日時(西暦年月日、曜日) ○場所(会場名の後に括弧して郵便番号、住所、電話) ○内容(1行18字で2行以内) ○定員 ○参加費(物理学会員、学生の参加費) ○申込締切(講演、参加、抄録、原稿提出の別を明記) ○連絡先(郵便番号、住所、所属、担当者名、電話、Fax、e-mail等) ○その他(1行18字で5行以内)

■一般相対性理論誕生100年記念市民講演会

主催 一般相対性理論誕生100年記念市民講演会委員会

後援 日本物理学会、日本天文学会

日時 2015年9月～2016年3月

場所 弘前、仙台、新潟、神岡、長岡、つくば、東京、名古屋、京都、大阪、広島等の各都市

内容 2015年11月25日、時空を支配するアインシュタインの一般相対性理論は誕生100年を迎える。それを記念して、一般相対性理論が持つ意味と関連する研究の最先端に触れて頂く市民講演会を全国15箇所で開催。世界の一線で活躍する研究者達が、一般相対性理論のこれまでの歴史と今後の展開について平易な言葉で語りかける。

参加費 無料

連絡先 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 安東正樹 電話 03-5841-4141 <http://www.gw.hep.osaka-cu.ac.jp/Gmunu100>

その他 高校生以上対象。各会場の日時・場所等詳細はHP参照。

■第10回高崎量子応用研究シンポジウム

主催 日本原子力研究開発機構原子力科学研究部門高崎量子応用研究所

日時 2015年10月8日(木)～9日(金)

場所 日本原子力研究開発機構原子力科学研究部門高崎量子応用研究所(370-1209 高崎市綿貫町1233 電話027-346-9651)

内容 イオン照射研究施設(TIARA)、電子線及びコバルト60ガンマ線照射施設等において実施された研究の成果の発表。

利用者や利用を計画している研究者が情報交換・討論を行う事により量子ビーム応用研究の推進と施設の有効利用を図る事を目的として開催。

定員 350名

参加費 無料

申込 e-mail又はFaxにて(事前登録締切以降は当日受付にて対応)

事前登録締切 2015年9月30日(水)

連絡先 370-1209高崎市綿貫町1233番地 日本原子力研究開発機構原子力科学研究部門高崎量子応用研究所放射線高度利用施設部利用計画課 瀧澤春喜

電話027-346-9651 Fax 027-346-9690

taka-sympo jaea.go.jp <http://www.taka.jaea.go.jp/>

■分子アーキテクトニクス研究会第6回研究会

主催 日本化学会分子アーキテクトニクス研究会

日時 2015年10月23日(金)～24日(土)

場所 京都大学桂キャンパスローム記念館(615-8520京都市西京区 電話075-383-2516)

内容 招待講演：柳田敏雄(阪大)。依頼講演：伊藤耕三(東大)、関 修平(京大)。一般講演(1講演約15-20分を予定)、ポスター発表。

定員 未定

参加費 3,000円

申込 HPより

発表申込/予稿原稿/参加登録申込締切

2015年9月19日(土)

連絡先 615-8510京都市西京区京都大学桂 京都大学大学院工学研究科物質エネルギー化学専攻 第6回研究会事務担当 寺尾 潤 電話075-383-2516 Fax 075-383-2514 terao scl.kyoto-u.ac.jp <http://conf.molarch.jp/>

■有機分子・バイオエレクトロニクス分科会講習会「次世代太陽エネルギー変換デバイスの研究開発を支える先端計測」

主催 応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会

日時 2015年11月6日(金)

場所 電気通信大学付属図書館301室マルチメディアホール(182-0021調布市調布ヶ丘1-5-1)

内容 有機半導体や有機・無機・金属等のナノ粒子を用いた次世代太陽エネルギー変換デバイスとして、有機薄膜太陽電池、増感型太陽電池、ナノ粒子光触媒等が注目されている。これらは安価な次世代デ

バイスとして期待されており、デバイス材料やデバイスそのものを分析する様々な計測技術に関する基礎から研究の最先端まで、包括的な情報を提供する場として、本講習会を企画。

定員 80名

参加費 8,000円、学生4,000円

参加申込締切 2015年10月23日(金)

連絡先 113-0034東京都文京区湯島2-31-22湯島アーバンビル7階 応用物理学分科会担当 岡山昇平 電話03-5802-0863 Fax 03-5802-6250 okayama jsap.or.jp <http://annex.jsap.or.jp/support/division/MandBE/>

■日本希土類学会第33回講演会

主催 日本希土類学会

日時 2015年11月6日(金)13:30～

場所 東工大蔵前会館(東京都目黒区大岡山2-12-1)

内容 瀧 真悟(青学大)希土類イオン添加ガラスの近赤外広帯域蛍光体への応用、木下和也(三井金属鉱業)酸化セリウムの酸素吸収素材への応用、八島正知(東工大)エネルギー・環境材料の精密構造解析と新物質探索

定員 未定

参加費 4,000円、学生2,000円(要旨集込)

参加申込締切 2015年10月23日(金)

連絡先 565-0871吹田市山田丘2-1 大阪大学大学院工学研究科応用化学専攻内 日本希土類学会事務局 電話06-6879-7352 Fax 06-6879-7354 kidorui chem.eng.osaka-u.ac.jp

その他 懇親会：同日17時半より大岡山西地区大学食堂にて(会費：10/23迄に払込済4,000円、当日5,000円)

■第67回白石記念講座「新しい世紀の形態計量学—数学と鉄鋼研究のコラボレーション—」

主催 日本鉄鋼協会

日時 2015年11月13日(金)9:00～17:00

場所 早稲田大学西早稲田キャンパス63号館2階会議室(169-8555東京都新宿区大久保3-4-1)

内容 森戸茂一(鳥根大)趣旨説明、若山正人(九大)産業に息づく数学と数学研究、小谷元子(東北大)AIMRにおける実験—数学と材料科学の連携、栄 伸一郎(北大)不安定化がパターンを生む、佐伯 修(九大)組織構造の斬新な数学的解析手法～トポロジーとその考え方、和田浩史(立命館大)バイオメカニクス：かたちと動きを描く数学と物理学、三浦

岳〈九大〉生物のかたちを数学で理解する、足立吉隆〈鹿児島大〉総括・総合討論

定員 約100名

参加費 8,000円、学生会員1,000円

連絡先 103-0025東京都中央区日本橋茅場町3-2-10 鉄鋼会館5階 日本鉄鋼協会育成グループ 電話03-3669-5933

Fax 03-3669-5934 educact isij.or.jp

https://www.isij.or.jp/muwuv846u

■第28回国際超電導シンポジウム (ISS2015)

主催 国際超電導産業技術研究センター

日時 2015年11月16日(月)~18日(水)

場所 タワーホール船堀(134-0091東京都江戸川区船堀4-1-1 電話03-5676-2211)

内容 超電導に関する国内外の著名研究者による特別講演をはじめ、物理、化学、線材・テープ、薄膜・デバイス、システム応用の各分野における第一線の研究者による招待講演、一般講演、約120件の口頭発表と約280件のポスター発表。各分野における基礎から応用迄の研究成果についてエルゼビアBV社からプロシーディングス(Physica Procedia, Physica C)を発行予定。新たなビジネスチャンスや技術移転を推進する為、超電導材料や技術、超電導を応用した機器、システム等の展示による紹介。

連絡先 213-0012川崎市高津区坂戸3-2-1 KSP R&D A棟9階 国際超電導産業技術研究センター普及啓発・国際部 倉持純子 電話044-850-1612 Fax 044-850-1613 iss istec.or.jp http://www.istec.or.jp/ISS2015

■第13回X線結像光学シンポジウム

主催 X線結像光学研究会

後援 日本天文学会、日本物理学会、放射光学会、応用物理学会

日時 2015年11月17日(火)~18日(水)

場所 名古屋大学野依記念学術交流館(464-8602名古屋市千種区不老町 名古屋大学東山キャンパス 電話052-788-6121)

内容 X線結像光学は、理学と工学に広く跨り、その利用領域の多様性から科学と技術の要に位置し、宇宙科学、生命科学、物質・材料科学、放射光科学、プラズマ・核融合科学、医療技術、精密工学の広範な分野における研究進展に大きな役割を果たしている。エネルギー領域100 eV~200 keVにおける光学・計測技術、それらによる科学研究及びX線結像光学の基盤技術に関する最新の研究成果を発表し、

将来の展望を議論する。

定員 150名

参加費 5,000円、学生3,000円

参加登録・原稿提出締切 2015年10月9日(金)

連絡先 464-8602名古屋市千種区不老町名古屋大学大学院理学研究科素粒子宇宙物理学専攻 田原 譲 xio13th u.phys.nagoya-u.ac.jp http://fennel.u.phys.nagoya-u.ac.jp/xio13th/

その他 招待講演+ポスター発表+企業展示からなるシンポジウムで、ポスター発表と企業展示での参加募集。詳細はweb参照。

■表面・界面スペクトロスコープ2015

日時 2015年11月27日(金)~28日(土)

場所 国立女性教育会館(355-0292埼玉県比企郡嵐山菅谷728番地 電話0493-62-6723)

内容 表面・界面の物理的・化学的な性質を分光学的に探求する実験及び理論の研究者が集まり、全参加者が泊り込んで集中的に議論する事で、情報の交換、問題意識の共有を図る事を狙い、年一回開催。表面振動分光、操作型プローブ顕微鏡、各種光電子分光等、表面・界面に敏感な分光手法を中心とした、最新の研究成果を発表して頂き、多様なバックグラウンドをもつ研究者が討論を通して相互理解し、更には新たな共同研究が生まれる事を目的とする。

講演/参加申込締切 2015年10月17日(土)

連絡先 http://www.surfchem.k.u-tokyo.ac.jp/SIS2015/index.html

その他 Student prize応募の場合は発表要旨を提出する必要有。

■第4回国際ワークショップ「微小光共振器とその応用」(WOMA2015)

主催 第4回国際ワークショップ「微小光共振器とその応用」実行委員会

日時 2015年12月1日(火)~4日(金)

場所 北海道大学学術交流会館(060-0811札幌市北区北8条西5丁目 電話011-706-2141)

内容 微小光共振器の基礎研究と応用技術に関連する最先端の研究者が集い、微小球・トロイド共振器、結合共振器システム、共振器中量子カオス、ナノファイバー、ランダムレーザー、共振器光デバイス等のトピックスについて最新の研究開発の動向と今後の課題・将来展望の活発な討論を行う。

参加費 25,000円、学生10,000円

一般発表申込(予稿投稿)締切 2015年9月(WEB参照)

参加登録(WEB登録)締切 2015年11月13日(金)

連絡先 第4回国際ワークショップ「微小光共振器とその応用」実行委員長 笹木敬司 電話011-706-9396 Fax 011-706-9390 secretariat woma2015.com http://www.woma2015.com

■第16回「イオンビームによる表面・界面解析」特別研究会

主催 応用物理学会薄膜・表面物理分科会

日時 2015年12月5日(土)~6日(日)

場所 奈良女子大学G棟2階G202教室(630-8506奈良市北魚屋西町)

内容 低・中・高エネルギーイオン散乱による固体表面・界面の分析、及びイオンビームと固体表面との相互作用について、海外からの招待講演: Prof. Pedro Luis Grande (Universidade Federal do Rio Grande do Sol) Exploring alternative methods for characterization of the thin films and nanostructures (予定)。

定員 100名

参加費 2,000円、学生無料

参加申込締切 2015年11月27日(金)

講演申込締切 2015年11月6日(金)

連絡先 630-8506奈良市北魚屋西町 奈良女子大学理学部物理科学科 小川英巳 電話/Fax 0742-20-3380 ogawa cc.nara-wu.ac.jp http://annex.jsap.or.jp/tfspd/activity/conf/index.html

その他 一般講演申込者はアブストラクト(英文, A4, 1頁)と講演者氏名、連絡先(e-mail, 電話, Fax, 住所)をe-mailで送付。

■第34回法政大学イオンビーム工学研究所シンポジウム

主催 法政大学イオンビーム工学研究所

日時 2015年12月9日(水)11:00~17:00

場所 法政大学小金井キャンパス西館地下1階マルチメディアホール(184-8584小金井市梶野町3-7-2)

内容 招待講演: 原 史朗(産総研)、豊川 弘之(産総研)、平子敬一(IHI)。口頭発表、ポスター発表。イオンビーム技術の電子材料やその他材料への応用、分析技術等の研究成果を討論する。

定員 なし

参加費 無料(予稿集・論文集は当日受付にて1,000円で販売)

口頭発表・ポスター発表申込及び予稿(和文)原稿締切 2015年11月5日(木)

論文(英文)原稿締切 2015年12月9日(水)
 連絡先 184-8584小金井市梶野町3-7-2
 法政大学イオンビーム工学研究所シンポジウム係 西村智朗, 天本真弓(事務)
 電話 042-387-6094 Fax 042-387-6095
 ion-sympo ml.hosei.ac.jp http://www.ionbeam.hosei.ac.jp/sympo/symposium.html
 その他 聴講のみの参加は直接会場へ(申込不要). 詳細は順次HPに掲載予定.

■表面・ナノ科学シンポジウム2016 (SSNS'16)

主催 応用物理学会薄膜・表面物理分科会
 日時 2016年1月13日(水)~17日(日)
 場所 新富良野プリンスホテル(076-8511 富良野市中御料)
 内容 1999年から毎年開催され, 2001年にはヨーロッパの表面科学シンポジウム(3S)を招致して合同で開催した経験もある国際シンポジウム. 人数を限り, 合宿スタイルによって表面・ナノ科学全般

についての緊密な討論を通じて表面・ナノ科学の新しい展開へと繋げることが期待されている. 今回も国際シンポジウムとして開催するので, 使用言語は英語.

定員 40名
 参加費 34,000円
 要旨・参加申込締切 2015年11月25日(水)
 連絡先 630-0192生駒市高山町8916-5
 奈良先端科学技術大学院大学 大門 寛 電話 0743-72-6020 daimon ms.naist.jp
 http://mswebs.naist.jp/LABs/daimon/SSNS16/index-e.html
 その他 要旨の形式は「英語:A4, 1頁(講演題目, 氏名, 所属, 連絡先, 本文)」.

その他

助成公募の標準様式 (1件500字以内)

○名称 ○対象(1行18字で7行以内)
 ○助成内容 ○応募方法(1行18字で4行

以内) ○応募締切(西暦年月日, 曜日)
 ○詳細問合せ先(郵便番号, 住所, 所属, 担当者名, 電話, Fax, e-mail等)

その他 ○標題 ○内容 ○連絡先

■会員専用ページ: ユーザ名とパスワード
 本会 web site (http://www.jps.or.jp/) の会員専用ページには, 各種変更届, 刊行委員会報告, 過去の大会プログラム等の情報を掲載しています. アクセスするためのユーザ名とパスワード(今月と来月分)は次の通りです. (英数字は半角入力, 大文字小文字は区別されます.)
 9月ユーザ名 : 15Sep
 パスワード: Paul688
 10月ユーザ名 : 15Oct
 パスワード: Otto465
 ユーザ名とパスワードは巻頭言の前の広告ページにもあります.

行事予定

[詳しくは表中の右欄記載の会誌各巻号の掲示板欄(*印は会告欄)をご参照下さい.]

開催月日	名 称	開 催 地	会誌巻号または世話人
2015年			
9/7~9	第49回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム	北九州市(福岡)	70-6
9/7~9	2015年日本液晶学会講演会・討論会	横浜市	70-7
9/14~15	第25回格子欠陥フォーラム	豊中市(大阪)	70-8
9/16~19	日本物理学会2015年秋季大会(関西大学)(物性)	吹田市(大阪)	日本物理学会
9/23~25	第63回レオロジー討論会	神戸市	70-5
9/24~25	TMU Int. Symp. on "New Quantum Phases Emerging from Novel Crystal Structure"	八王子市(東京)	70-4
9/24~25	第6回社会人のための表面科学ベーシック講座	東京	70-7
9/25~28	日本物理学会2015年秋季大会(大阪市立大学)(素核宇)	大阪市	日本物理学会
9/26~28	日本流体力学学会年会2015	東京	70-4
9/28~10/2	5th Int. Conf. on Quantum Cryptography, Updating Quantum Cryptography and Communications 5	東京	70-4
9月(~16年3月)	一般相対性理論誕生100年記念市民講演会	弘前(青森), 仙台, 新潟, 神岡(岐阜), 長岡(新潟), つくば(茨城), 東京, 名古屋, 京都, 大阪, 広島	70-9
10/2	本多記念講演会—金研100周年を前にして—	仙台市	70-8
10/2	第1回ドイツ物理学セミナー	Berlin(ドイツ)	70-8
10/3	第20回久保記念シンポジウム「非平衡をめぐる数理」	東京	70-8
10/8~9	第10回高崎量子応用研究シンポジウム	高崎市(群馬)	70-9
10/12~16	9th Int. Conf. on Reactive Plasmas/68th Gaseous Electronics Conf./33rd Symp. on Plasma Processing	Honolulu	70-6
10/19~21	第36回日本熱物性シンポジウム	仙台市	70-7
10/20~21	第60回表面科学基礎講座	吹田市(大阪)	70-8
10/23~24	分子アーキテクトニクス研究会第6回研究会	京都市	70-9
10/25~30	10th Int. Symp. on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '15	松江市	70-2

開催月日	名 称	開 催 地	会誌巻号または世話人
2015年			
11/2~4	第54回電子スピンスイエンズ学会年会	新潟市	70-6
11/5~7	生物・医学を物理する：放射線と物理、医療を物理する、生命システムのモデリング	京都市	70-6
11/6	有機分子・バイオエレクトロニクス分科会講習会「次世代太陽エネルギー変換デバイスの研究開発を支える先端計測」	調布市（東京）	70-9
11/6	日本希土類学会第33回講演会	東京	70-9
11/6~8	第54回NMR 討論会（2015）	習志野市（千葉）	70-8
11/10~12	第56回高圧討論会	広島市	70-6
11/13	第67回白石記念講座「新しい世紀の形態計量学—数学と鉄鋼研究のコラボレーション—」	東京	70-9
11/16~18	第28回国際超電導シンポジウム（ISS2015）	東京	70-9
11/17~18	第13回X線結像光学シンポジウム	名古屋市	70-9
11/24~25	第33回量子情報技術研究会（QIT33）	厚木市（神奈川）	70-8
11/27~28	表面・界面スペクトロスコーピー2015	嵐山（埼玉）	70-9
12/1~3	2015年真空・表面科学合同講演会/第35回表面科学学術講演会・第56回真空に関する連合講演会	つくば市（茨城）	70-7
12/1~4	第4回国際ワークショップ「微小光共振器とその応用」(WOMA2015)	札幌市	70-9
12/5~6	第16回「イオンビームによる表面・界面解析」特別研究会	奈良市	70-9
12/9	第34回法政大学イオンビーム工学研究所シンポジウム	小金井市（東京）	70-9
2016年			
1/13~17	表面・ナノ科学シンポジウム2016（SSNS'16）	富良野市（北海道）	70-9
3/19~22	日本物理学会第71回年次大会（東北学院大学）	仙台市	日本物理学会
6/12~16	The 11th Int. Conf. on Coatings on Glass and Plastics	Braunschweig（ドイツ）	70-8
6/19~24	The 14th Int. Symp. on Nuclei in the Cosmos	新潟市	70-8
9/13~16	日本物理学会2016年秋季大会（金沢大学）(物性)	金沢市	日本物理学会
9/21~24	日本物理学会2016年秋季大会（宮崎大学）(素核宇)	宮崎市	日本物理学会

編集後記

これまでの長い研究生生活の中で、今でも強く記憶に残っているのは大学院の博士課程時代である。毎日図書館に籠り、研究のネタを考えていたのだが、そのときの情景は今でもはっきりと思い浮かべることができる。薄暗い照明、僅かなカビの匂い、窓から見える風景、書庫の並び、古風な建物の中にある小さな図書館だったが、その奥に木製の机が何台か置かれていて、いつ行っても人はおらず、そこが私のお決まりの場所となった。不思議なもので、それまで物理が好きで好きで仕方がなかったはずなのに、図書館に籠っていた時期にはどんな論文を読んでも心に響かず、適当に手にとって眺めた固体物理の教科書はなぜか私を攻撃しているように感じたものだ。

これではいかんと思い、ふとファイマンの自伝に「スランプの時にまったく関係ない力学の計算をしてスランプを脱出した」というエピソードがあったのを思い出して、バイトをしていた塾で高校生向けの力学の授業準備に注力することにした。高校生にどうやって「物理は面白い」とい

ことを説明しようかと考え、いろいろな書籍を探して読んだが、そのときに朝永振一郎の『物理学とは何だろうか』を初めて熟読した。この本は朝永先生の晩年の著書で、わかりやすく明快な著書ではあったが、最後の熱力学の部分は「情念」としかいいようのない文章の集まりである。この本の迫力に圧倒されたと同時に、今更ながらに自分が物理に向かい合う意味を自問するようになったのである。そしてようやく、「やらなくてはいけないから研究する」のではなく、「やりたいから研究する」という姿勢でないと続かないのだ、という当たり前のことに気がついたのだった。心の奥底にある自分の気持ちによく耳を傾けてやらないと、やる気が起きなくなるのだということが、身を持ってわかった瞬間であった。

と、ここまでで終われば、ちょっとした回想エピソードである。それから15年以上も経過した今なら、「27歳の自分」にはもう少しやってやれることがある。それは「もっと人と話すべきだ」ということだ。どうも大学院時代の私は、物理の本質は「事実の集積体」で、書籍や論文を読めば十分にわかると思っていた節がある。もち

ろんそれらは重要な情報だが、「物理を理解する」という点からも「心に響く」という点からも、迫力不足なことが多々あるのだ。例えば、専門家に質問してほんの10分話ただけで「ああ、こうやって考えているのか！」と腑に落ちる経験はよくあることだ。また「なぜこの人がこの研究をしているのか」ということをふとした会話から（もしくは飲み屋での会話から）知ったり理解したりすることは、自分の研究活動にとって大切なこととなっている。

もしも物理が単なる「事実の集積体」にすぎないのであれば、ネット上で手に入るプレプリントや解説などで十分のはずだ。でも、そういうことだけでは決して物理は進展しないのだと思う。「人との交流」こそが、物理を支える原動力なのだ。このような観点から、物理学会誌としても「人との交流」を助けたり促進したりすることが大切ではなからうか。物理学会誌はいろいろな物理の分野の研究者が目を通す、唯一のチャンネルである。著者の方々は、どうしても物理学会誌に載るといことで、「しっかりと書きたい」という気持ちを強く持ってしまうがちだとは思ふ。でも、そ

こはぐぐっと我慢して、「なぜ面白いのか」「なぜそれを研究しているのか」ということが、異分野の人にも活き活きと伝わるように書いていただけると、大変ありがたい。それが研究者間の交流の第一歩になると思うし、(かつての私のような)若い研究者に向けてのメッセージにもなると思う。

加藤岳生 (<)

石岡 邦江, 今村 卓史, 沖本 洋一,
加藤 岳生, 岸根順一郎, 栗田 玲,
桑本 剛, 鈴木 康夫, 須山 輝明,
高須 昌子, 田島 俊之, 田中 良巳,
田沼 肇, 常定 芳基, 藤井 芳昭,
松尾 泰, 松本 重貴, 水崎 高浩,
南 龍太郎, 目良 裕, 望月 維人,
李 哲虎, 渡邊 康, 片山 郁文,
板橋 健太, 藤山 茂樹

黒岩 芳弘, 酒井 彰, 中村 光廣,
野村 清英, 松井 広志, 水野 義之,
溝口 幸司

新著紹介小委員会委員

片山 郁文 (委員長), 浅野 勝晃,
安藤 康伸, 宇田川将文, 大西 宏明,
郡 宏, 越野 和樹, 小山 知弘,
西浦 正樹, 長谷川秀一, 廣政 直彦,
間瀬 圭一, 三輪 光嗣, 山本 貴博

編集委員

森川 雅博 (委員長), 長谷川修司, 飯塚 剛, 石井 史之, 奥西 巧一,

(支部委員)

第 71 期 (2015 年 3 月 31 日~2016 年 3 月 31 日) 理事・監事

会 長	藤井保彦	副 会 長	柴田利明		
庶 務 理 事	板倉明子・小形正男・大槻東巳・香取浩子・小林研介・櫻井博儀・須藤彰三 松川 宏				
会 計 理 事	小林研介(兼任)・澤 博・松井哲男・松川 宏(兼任)				
会誌編集委員長	森川雅博	JPSJ 編集委員長	上田和夫	PTEP 編集委員長	坂井典佑
刊 行 委 員 長	小林富雄	監 事	波田野彰・三宅康博		

本誌の複写をご希望の方へ

日本物理学会は、本誌掲載著作物の複写に関する権利を(一社)学術著作権協会(以下、学著協)に委託しております。

本誌に掲載された著作物の複写をご希望の方は、学著協より許諾を受けて下さい。

※企業等法人で、(公社)日本複製権センター(学著協が社内利用目的複写に関する権利を再委託している団体)と包括複写許諾契約を締結している場合を除く(社外頒布目的の複写については、学著協の許諾が必要です)。

※複写以外の許諾(著作物の転載等)に関しては、学著協に委託しておりません。

直接、日本物理学会(E-mail: pubpub_jps.or.jp)へお問合せ下さい。

※日本国外における複写について、学著協が双務協定を締結している国・地域においてはその国・地域のRRO(海外複製権機構)に、締結していない国・地域においては学著協に許諾申請して下さい。

権利委託先 一般社団法人学術著作権協会

〒107-0052 東京都港区赤坂9-6-41 乃木坂ビル 3F

Fax: 03-3475-5619 e-mail: info_jaacc.jp

日 本 物 理 学 会 誌 第 70 卷 第 9 号 (平成 27 年 9 月 5 日発行) 通巻 795 号

©日本物理学会 2015

Butsuri

発 行 者 〒113-0034 東京都文京区湯島 2-31-22 湯島アーバンビル 8F

白 勢 祐 次 郎

印 刷 所 〒169-0075 東京都新宿区高田馬場 3-8-8

株 式 会 社 国 際 文 献 社

発 行 所 〒113-0034 東京都文京区湯島 2-31-22 湯島アーバンビル 8F

一 般 社 団 法 人 日 本 物 理 学 会

電 話 03-3816-6201 Fax 03-3816-6208

郵 便 振 替 00120-4-167544 定 価 1 部 2,400 円 年 額 25,000 円

本誌に掲載された寄稿等の著作権は一般社団法人日本物理学会が所有しています。