

ナノ世界を可視化する放射光科学

－ 基礎から最先端まで －

雨宮慶幸

東京大学大学院 新領域創成科学研究科

ラウエによる「結晶による X 線回折現象の発見」(1914 年ノーベル物理学賞)、ブラッグ父子による「X 線による結晶構造解析に関する研究」(1915 年ノーベル物理学賞) から 100 年。日本では、ほぼ時を同じくして、寺田寅彦が X 線結晶学の扉を開いた。放射光を利用した研究が始まったのは 50 年前。我が国では東大核研リングにおいて、初期の段階からパイオニアの役割を果たしてきた。X 線自由電子レーザーは、米国 LCLS とほぼ時を同じくして、我が国の SACLA が 5 年前に発振に成功し、利用実験が始まっている。放射光の産業利用は、Photon Factory に始まり、世界に先駆けて広く、そして先端的な研究が展開されている。ここ九州シンクロトロン光研究センターでは、利用開始から 10 年を迎え、産業利用が活発に行われて、地域創生にも貢献している。このように、我が国における放射光科学は、学術利用と産業利用の両面で、常に世界のトップレベルを走っていると云える。

放射光科学の基本は、物質を「正しく見る」ことであり、それは、自然科学の基本である。と同時に、仏教が説く、人間が正しく生きることの基本でもある。「正見（しょうけん）」は、八正道（仏教の八種の実践法）の説く第 1 のステップであり、その後に、正思惟（正しく考えること）→正語（正しく語ること）→→→正精進（正しい努力をすること）に続くと言われている。この手順は、学術研究、産業研究の進め方に一致している。

放射光源の高輝度化によって、各種（時間、位置、運動量、エネルギー）分解能が向上し、今まで困難であった計測が可能になってきた。また、高輝度化に伴って、試料が結晶でなくても、構造解析が可能になりつつある。また、モデル系ではなく、実在系を対象とした計測に重点が置かれるようになりつつある。また、散乱・回折法を用いた構造研究と分光法を用いた電子状態研究の相互乗り入れにより、物質中の空間および時間の広い階層構造を計測することの重要性が高まりつつある。

本講演では、放射光科学の基礎から最先端への流れを概観すると共に、私が関わってきた X 線小角散乱法とその応用としての民間企業との共同研究について紹介する予定である。

ナノ世界を可視化する放射光科学 — 基礎から最先端まで —

2017年8月3日

雨宮慶幸

東京大学大学院
新領域創成科学研究科
物質系専攻

1

目次

I. はじめに

見ること、物質と光、X線

II. 放射光科学

放射光、高輝度X線光源、X線回折・散乱

III. 先端的小角X線散乱

ソフトマターの時間・空間階層構造

IV. コヒーレントX線の利用

XFEL

2

観察によって得られる情報量

- I. Seeing $10^6 / \text{sec}$
- II. Hearing $10^4 / \text{sec}$
- III. Touch $10^2 / \text{sec}$

Seeing » Hearing » Touch

百聞は一見に如かず

見えない物は作れない→見れば解決

ナノ観察 → ナノテク

ナノ = ナノメートル = 10^{-9} m

3

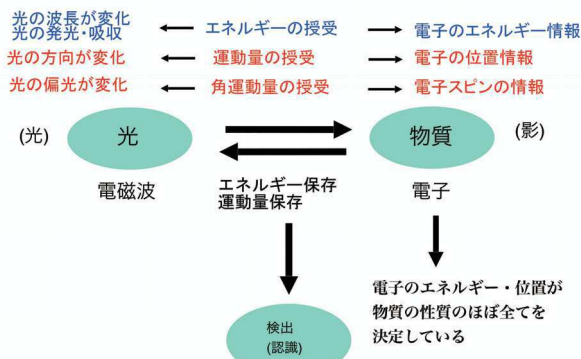
正しく見る—— 正見（しょうけん）

八正道（仏教の八種の実践法）

- ①正見 正しく見ること →（先端）計測
- ②正思惟 正しく考えること → 解析・データ処理
- ③正語 正しく語ること → 議論・情報発信
- ④四正業 正しい行いをすること
- ⑤正命 正しい生活をする事
- ⑥正精進 正しい努力をすること } 新材料・革新
デバイス等の開発
- ⑦正念 正見を得る目的を念じ忘れないこと → 産業創出
- ⑧正定 正しく清浄な禅定に入ること → 価値創成

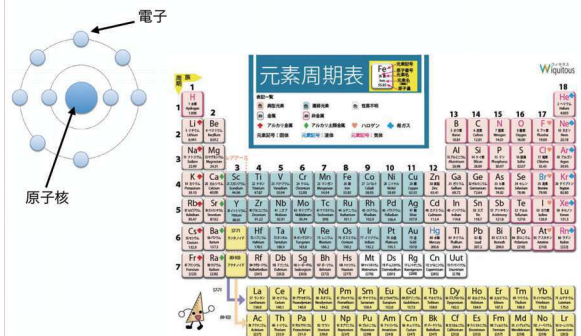
4

光で物質を見るということ = 光と物質のエネルギー・運動量の授受

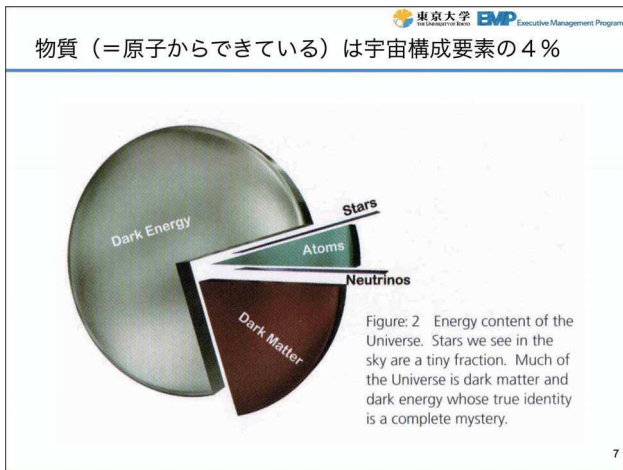


5

物質とは？ →原子からできているもの



6



1915 ノーベル賞

岩塩が、ナトリウムと塩素が並んだ結晶であることをX線で決定

X線で結晶を照らすと、斑点が見える
それから、原子の並びを解明

1879-1960
マックス・フォン・ラウエ
1914 ノーベル賞
Laue斑点の発見

1862-1942
ヘンリー・ブラッグ
1890-1971
ローレンス・ブラッグ
（親子）
ブラッグが決めたNaCl構造
For NaCl
 $AB = 2.8 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$

Proc. R. Soc. Lond. A 1913 89

ノーベル賞公式サイト The Nobel Prize in Physics 1901より

8

寺田寅彦は、時を同じくして、
日本でのX線結晶学の扉を開く

Bragg博士と同じ時期に、雑誌Nature
「X線と結晶」について、1913年に論文を発表

W. H. Bragg
Nature 90(1912)360
Nov. 28th 1912

寺田寅彦
理研・東京帝大
1878-1935
享年57歳

Nature 91(1913)135
Apr. 10th 1913

Nature 90(1912)219
Oct. 24th 1912

Nature 91(1913)213
May. 1st 1913

9

寺田寅彦

- 物理学者（応用物理、実験物理、地球物理、気象・地震・海洋物理）
長岡半太郎、田丸卓郎、本多光太郎に師事
東大教授 地震研究所、航空研究所、理化学研究所
1913年 結晶によるX線回折実験
1917年 学士院恩賜賞受賞
学位論文「尺八の音響学的研究」
生活の中の物理現象（何故だろう？ 何故かしら？）
ひび割れ、墨流し、金平糖の生成の研究
- 随筆家 夏目漱石の門下@五高（熊本）
「我輩は猫である」の寒月（かんげつ）のモデル
「三四郎」の野々宮宗八のモデル
「寺田寅彦全集」（科学随筆）全24巻
科学と文学を巧みに調和させた随筆
多くの俳句
「天災は忘れられたる頃来る」@高知市の邸趾碑文

10

中谷と寺田 1932年10月
札幌にて

寺田寅彦 「科学者とあたま」
1933年8月 より

頭のいい人は、言わば富士のすそ野まで来て、そこから頂上をながめただけで、それで富士の全体をのみ込んで東京へ引き返すという心配がある。富士はやはり登ってみなければわからない。

頭のいい人は見通しがきくだけに、あらゆる道筋の前途の難関が見渡される。そのためにややもすると前進する勇気を阻害しやすい。

頭の悪い人は前途に霧がかかっているためにかえって楽観的である。そうして難関に出会っても存外どうにかしてそれを切り抜けて行く。どうにも抜けられない難関というのはきわめてまれだからである。（中略）

つまり、頭が悪いと同時に頭がよくなくてはならないのである。

中谷宇吉郎 寺田寅彦

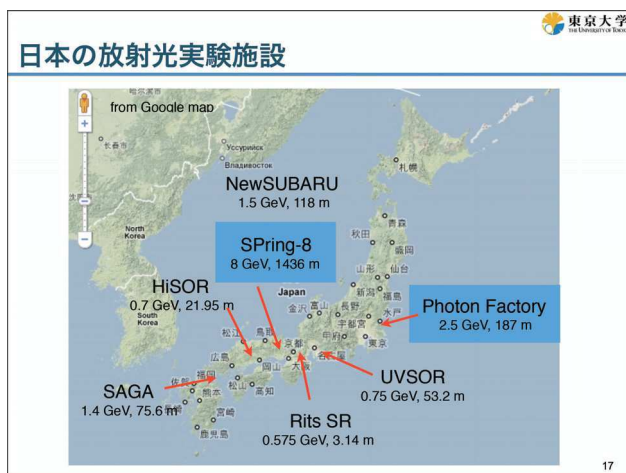
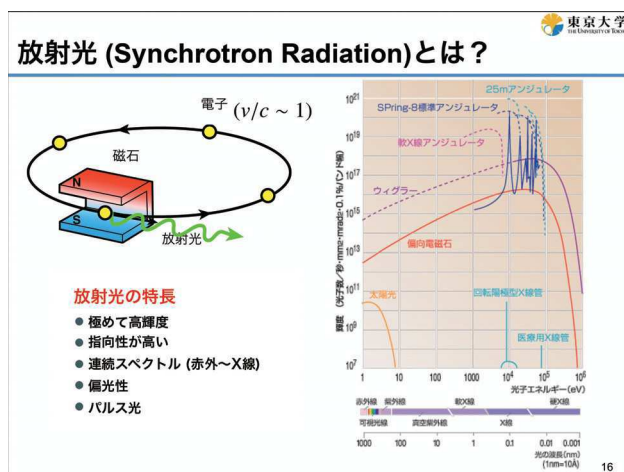
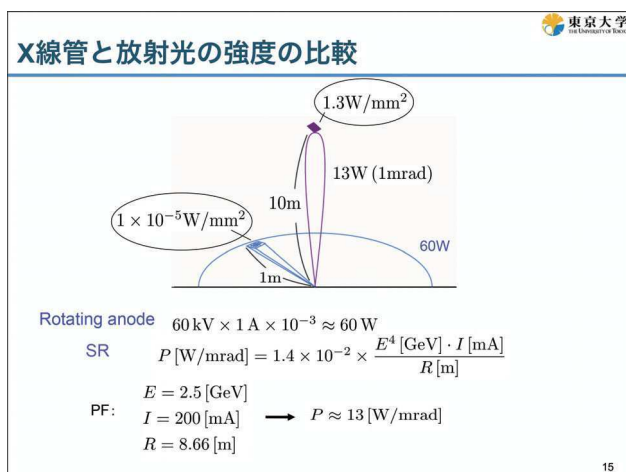
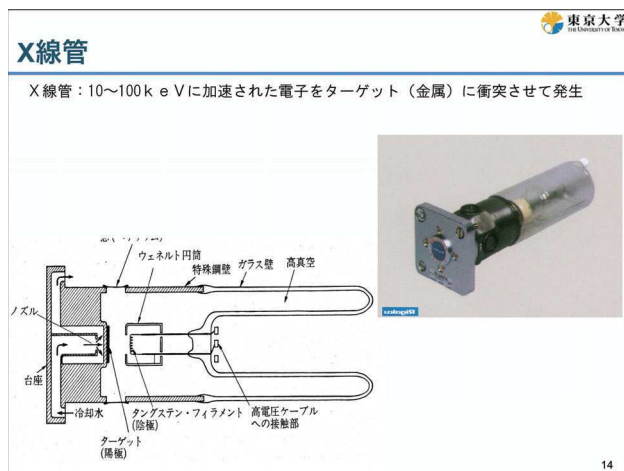
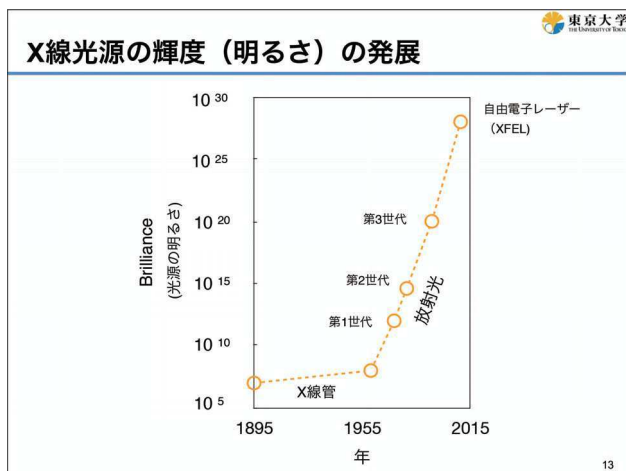
11

東京大学

目次

- はじめに
見ること、物質と光、X線
- 放射光科学
放射光、高輝度X線光源、X線回折・散乱
- 先端的微小X線散乱
ソフトマターの時間・空間階層構造
- コヒーレントX線の利用
XFEL

12



世界の放射光実験施設

19

放射光（X線）で何が見えるのか？

可視光 **放射光（X線）**

物質の形が見える → 放射光 → 原子・分子の形（物質構造）が見える

物質の色が見える → 放射光 → 原子・分子の性質（電子状態）が見える

物質の性質を変える → 放射光 → 原子・分子の結合を変える

回折・散乱（逆空間）
イメージング（実空間）
分光（吸収・発光）
分光器
スペクトル
放射線効果
ラジオグラフィ

20

原子模型はどうして証明されたか？

ラザフォードの原子模型
(長岡半太郎の土星型モデル)

	原子核	原子
直径	10^{-5}	1
質量	1	1

トムソンのプドウパン模型
原子核の直径 = 原子の直径

21

散乱角度から散乱体の大きさが分かる

アルファ線（ヘリウムの原子核）

波長 λ

$d \propto \frac{\lambda}{\theta}$

散乱体の大きさ

原子核が小さい場合（ラザフォード・長岡モデル）
散乱角が大きい θ

原子核が大きい場合（トムソンモデル）
散乱角が小さい θ

22

波の干渉

光波

物質中の電子が振動して、2次波（球面波）が発生する

二つの電子がある場合、

- 2次波同士が干渉する → 方向によって強弱ができる
- 電子間の距離が小さい場合
→ 大きな角度方向に強め合う
- 電子間の距離が大きい場合
→ 小さな角度方向に強め合う → 小角散乱

23

光(X線)で見えるもの

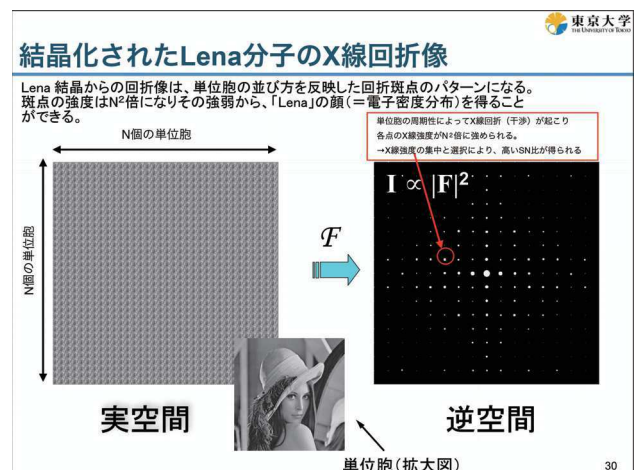
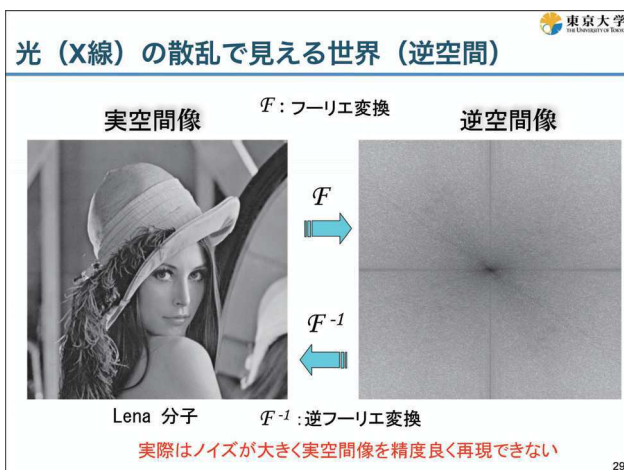
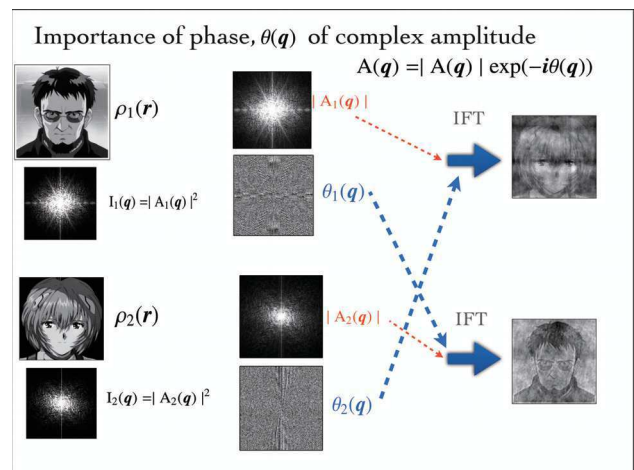
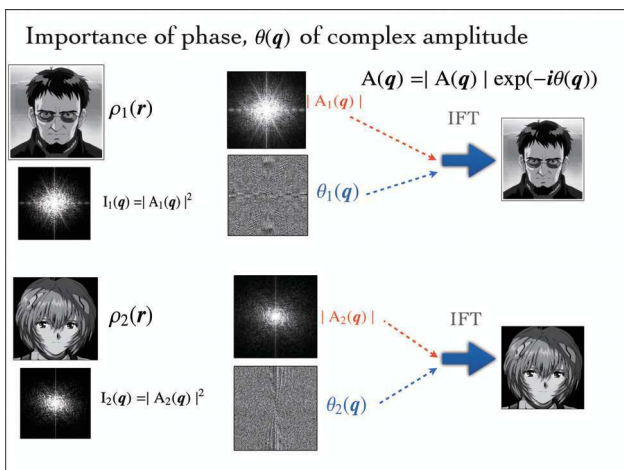
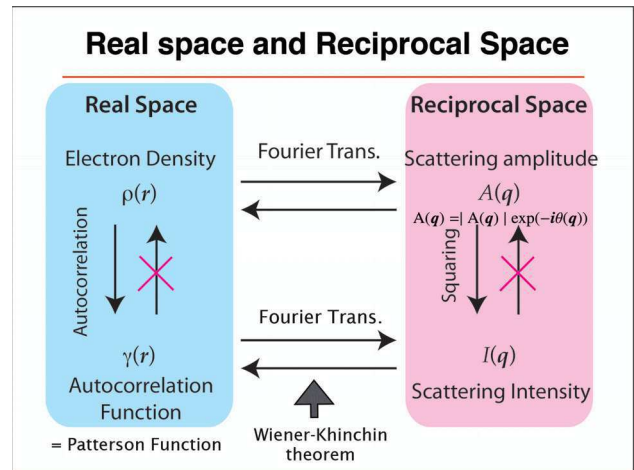
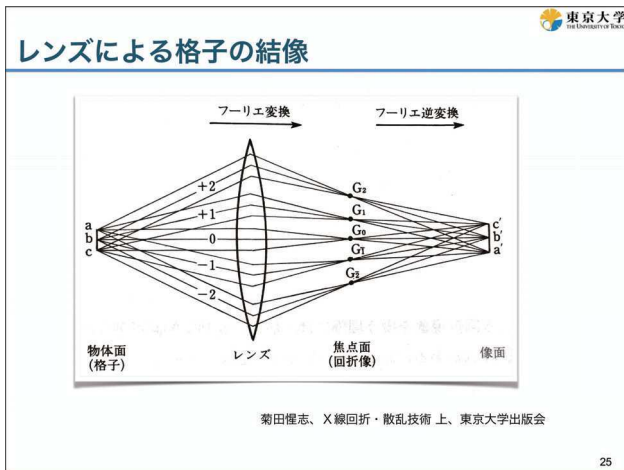
物質中の電子の位置 = 物質の構造

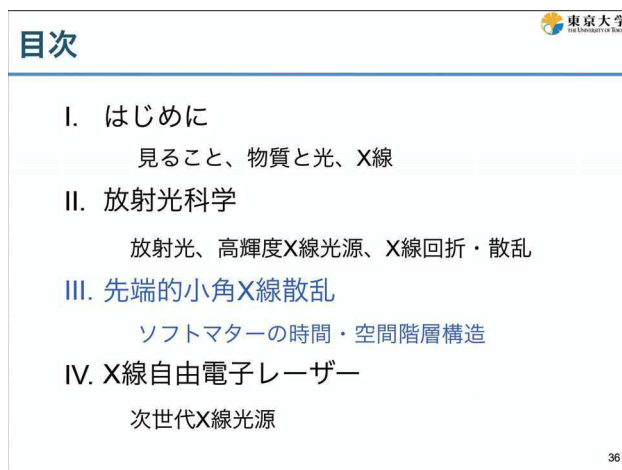
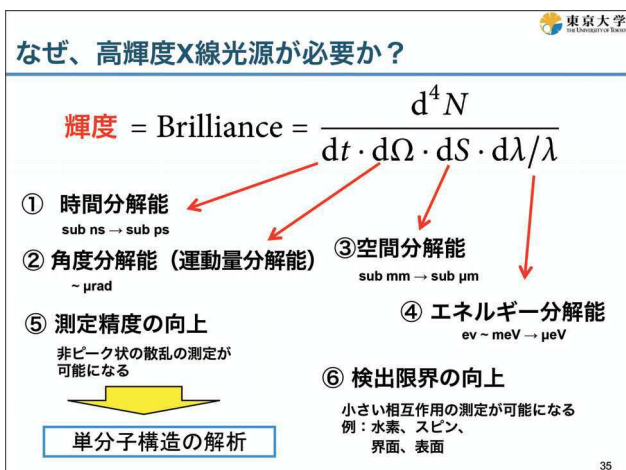
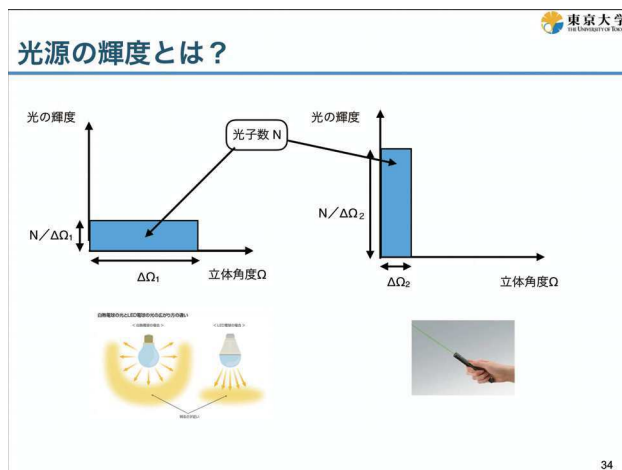
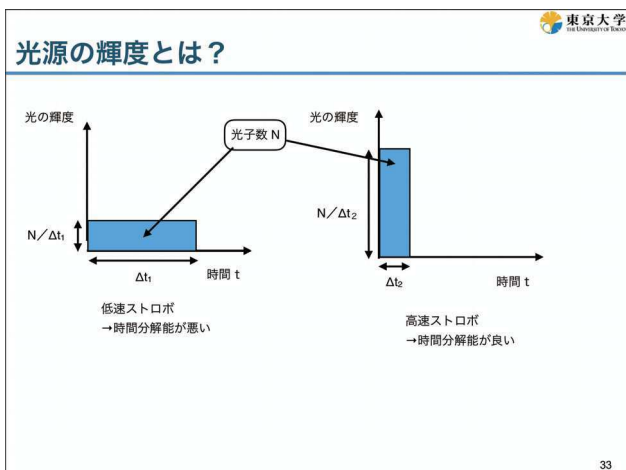
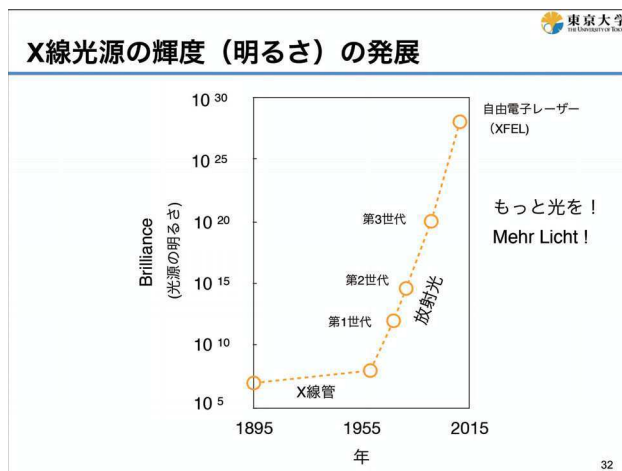
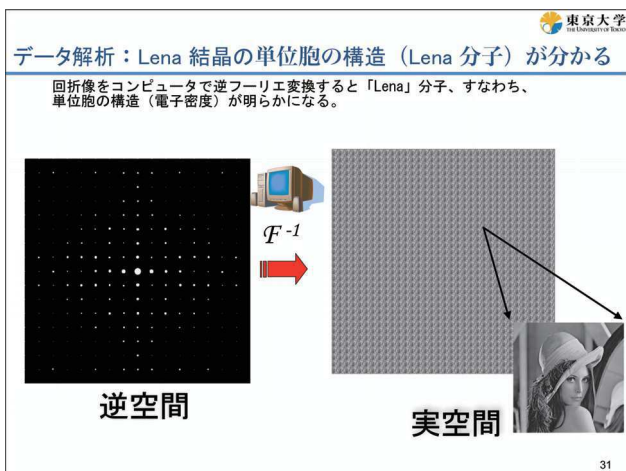
放射光

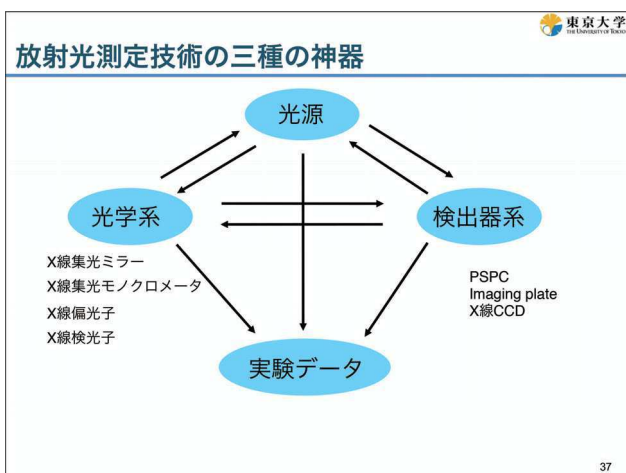
回折・散乱現象

データ測定
逆空間像

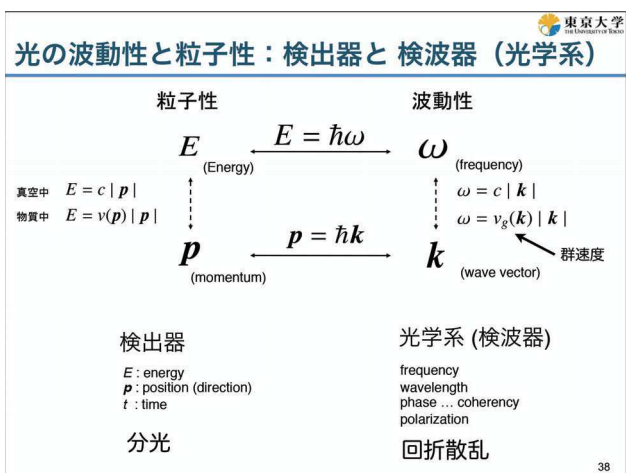
24



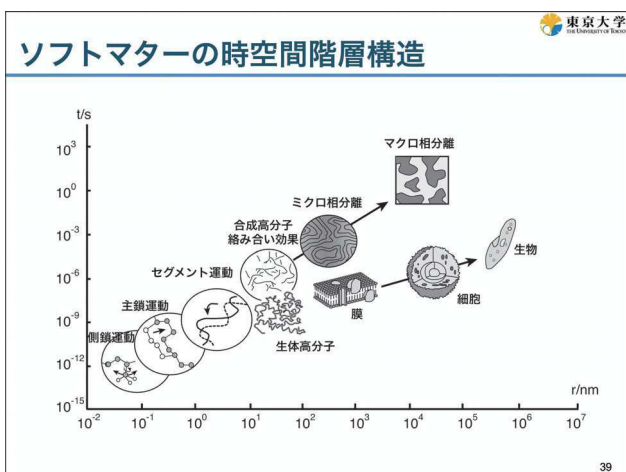




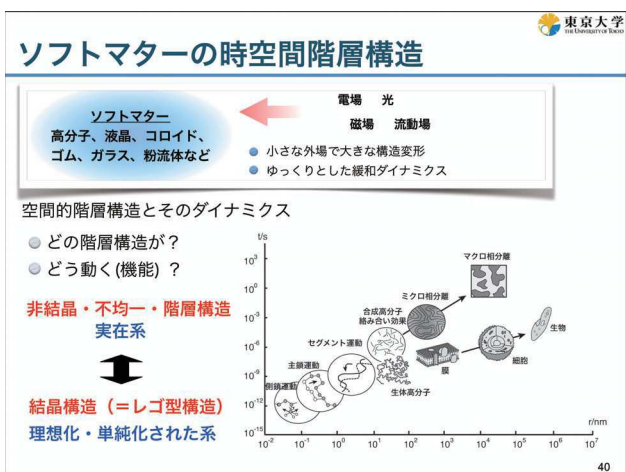
37



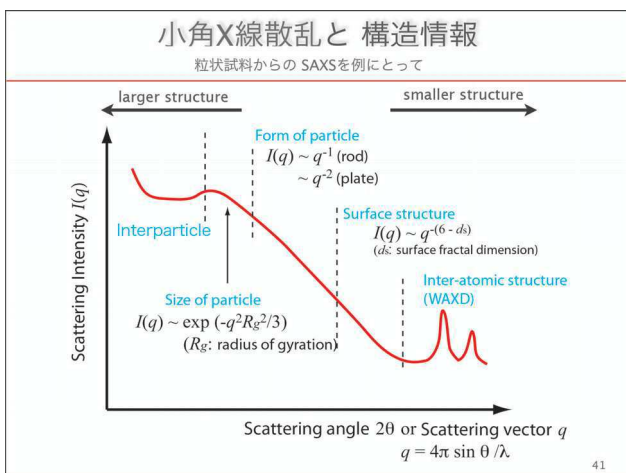
38



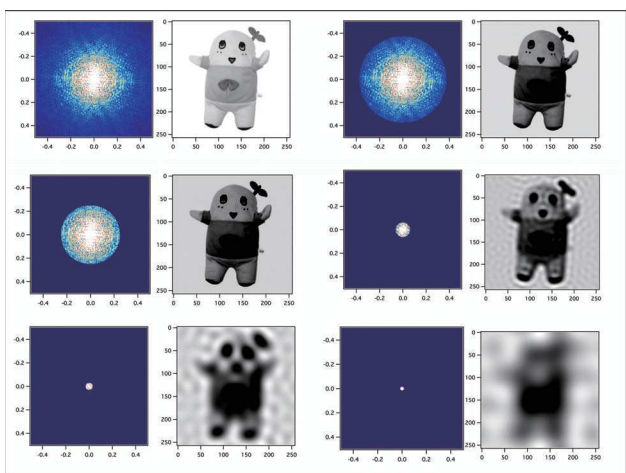
39

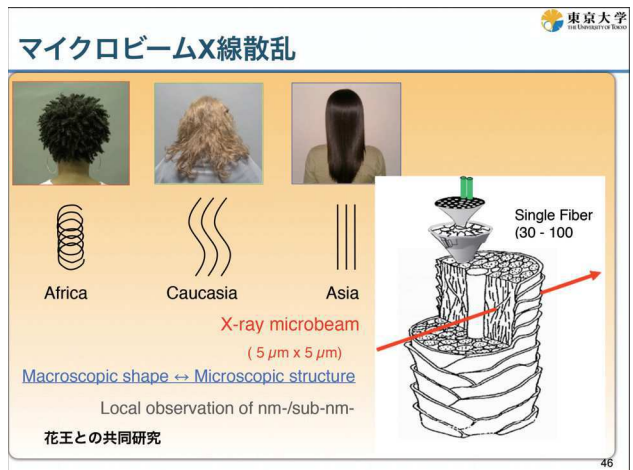
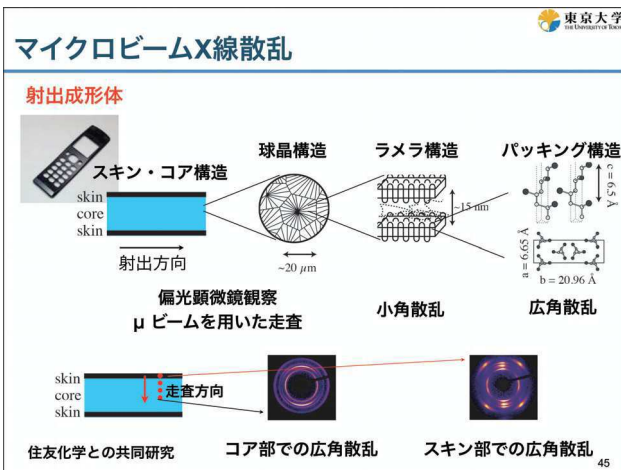
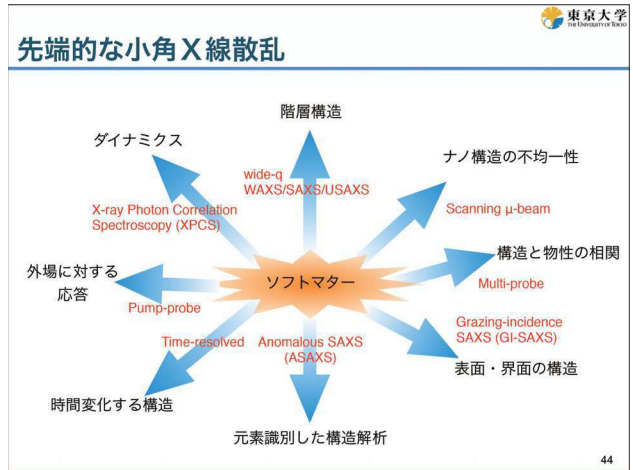
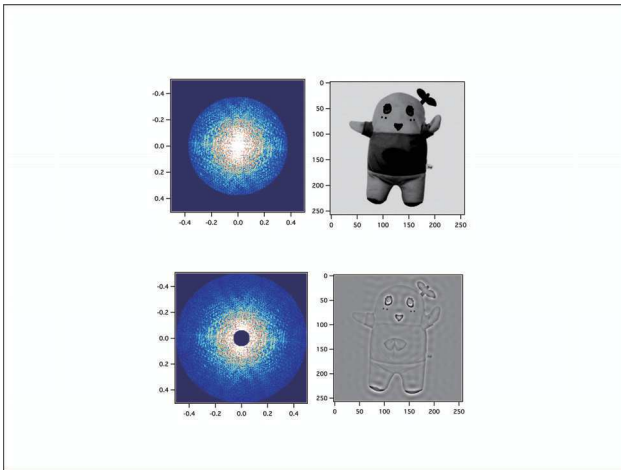


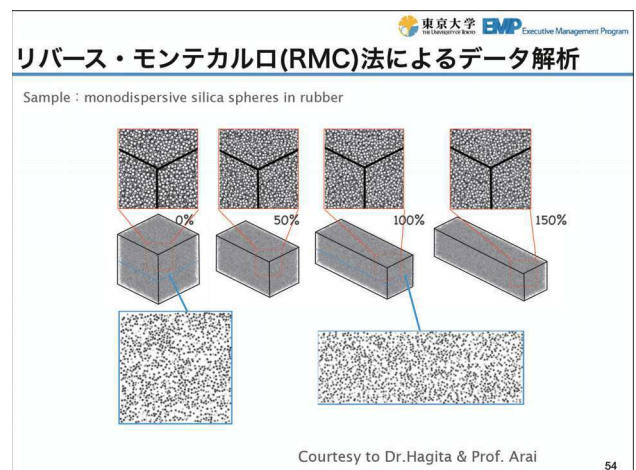
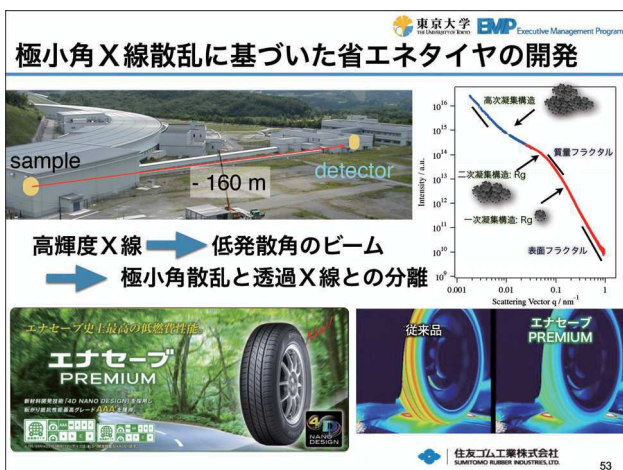
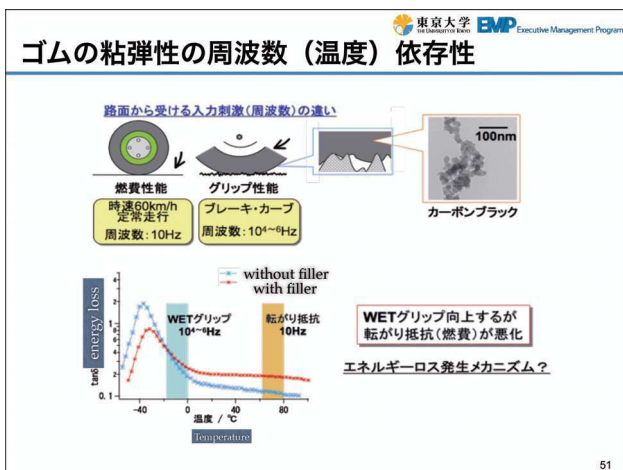
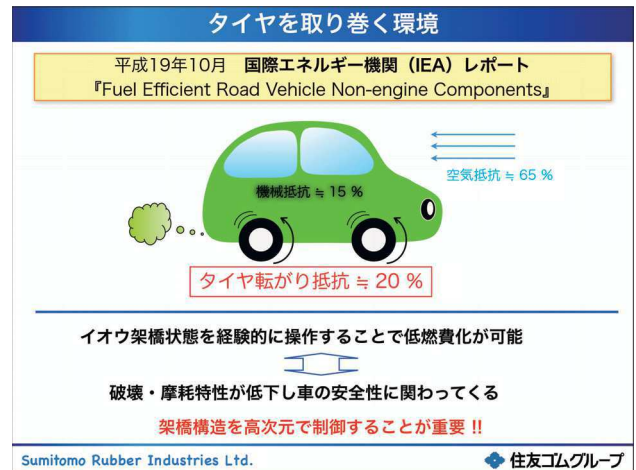
40



41



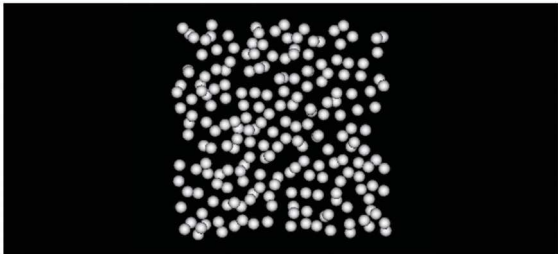




東京大学 **EMP** Executive Management Program

可視化：延伸中のゴム中のシリカ粒子

0→150% : elongation process



non-uniformity increases along the elongation direction.

55

東京大学

目次

- I. はじめに
 - 見ること、物質と光、X線
- II. 放射光科学
 - 放射光、高輝度X線光源、X線回折・散乱
- III. 先端的小角X線散乱
 - ソフトマテリアルの時間・空間階層構造
- IV. コヒーレントX線の利用
 - 次世代X線光源

56

東京大学

コヒーレンス？

干渉性

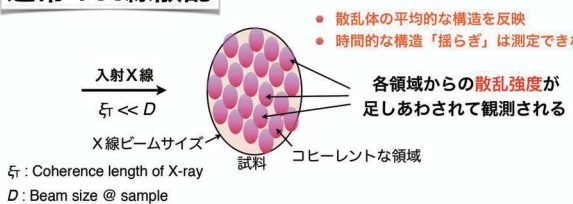
コヒーレント光

位相の揃った波形が**空間的・時間的に**十分に長く保たれている干渉性をもつ光

57

通常のX線散乱

入射X線 $\xi_T \ll D$



- 散乱体の平均的な構造を反映
- 時間的な構造「揺らぎ」は測定できない

各領域からの散乱強度が足しあわされて観測される

試料 コヒーレントな領域

ξ_T : Coherence length of X-ray
 D : Beam size @ sample

コヒーレントなX線散乱

入射X線 $\xi_T \approx D$

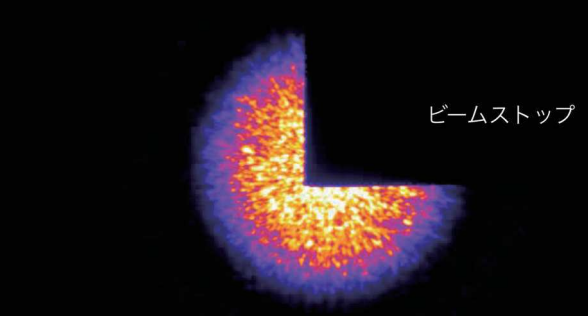


- 散乱体の電子密度分布を直接反映
- 時間的に構造が揺らげば散乱像も揺らぐ

試料全体の散乱振幅平均化されていない

58

X-ray Photon Correlation Spectroscopy



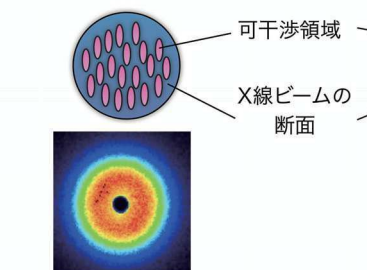
ビームストップ

スペックルの揺らぎ → ゴム中でのナノ粒子の揺らぎ

従来のX線散乱

可干渉領域

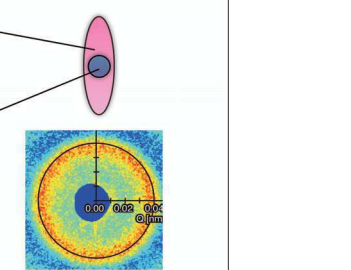
X線ビームの断面



$$I(q) = \sum \left| \int \rho(r) \exp(-iqr) dr \right|^2$$

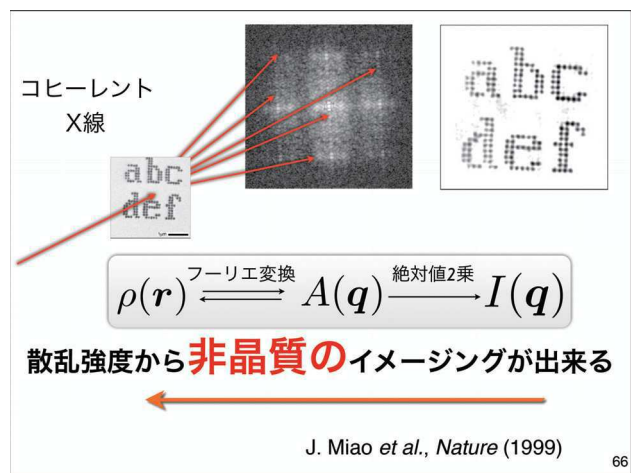
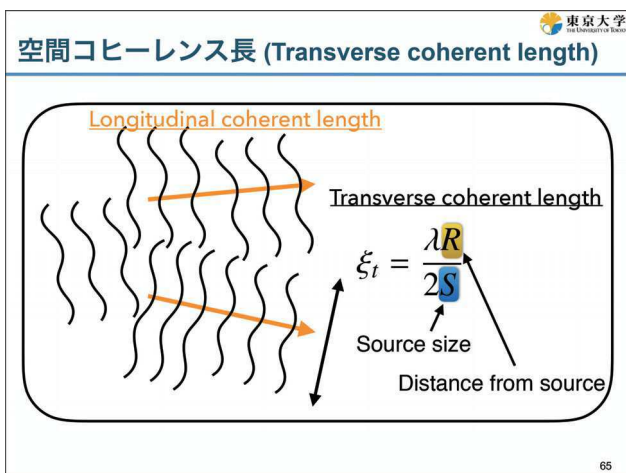
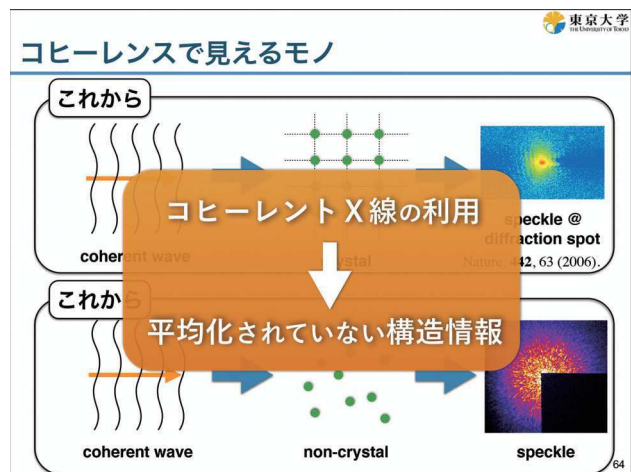
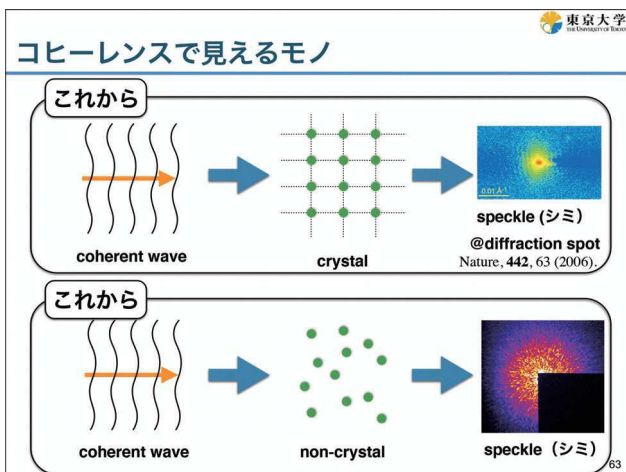
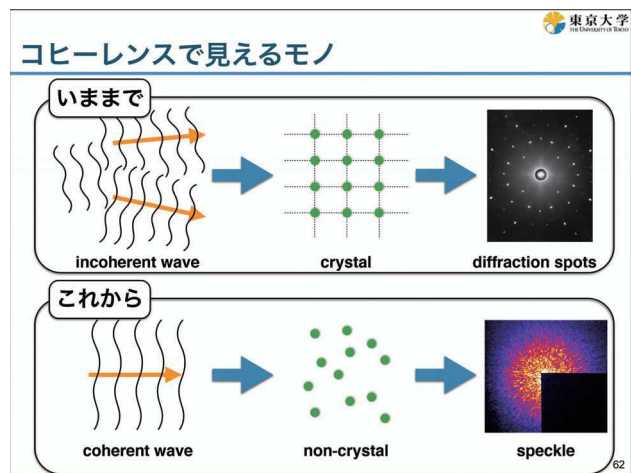
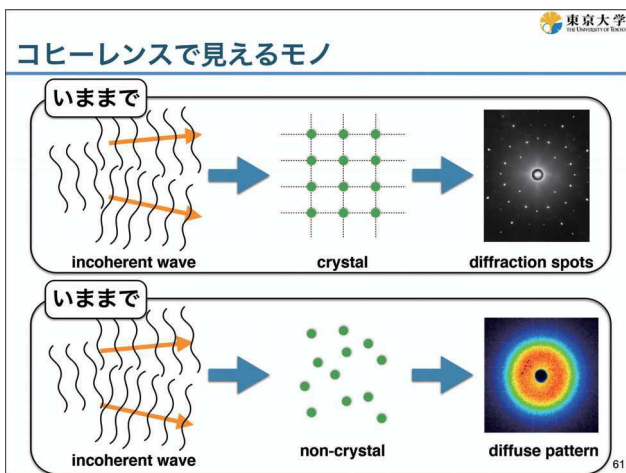
空間的に平均化された情報

コヒーレントX線散乱

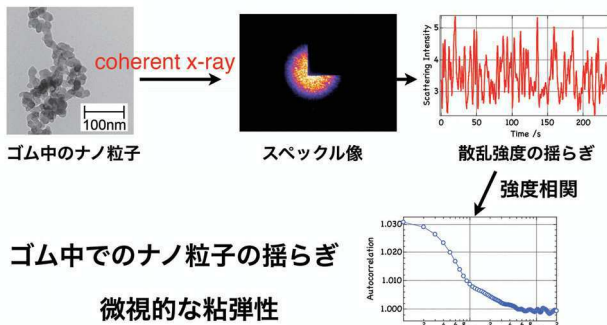


$$I(q) = \left| \int \rho(r) \exp(-iqr) dr \right|^2$$

60



■ ナノ粒子充填ゴムの XPCS

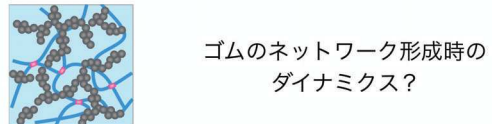


■ いま XPCS で可能なこと

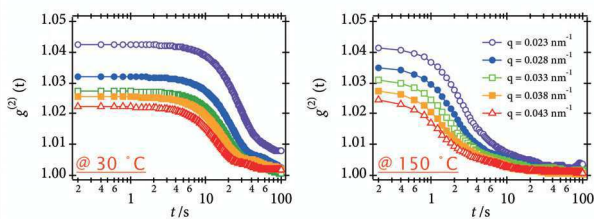
定常状態のダイナミクス解析



非定常状態のダイナミクス解析

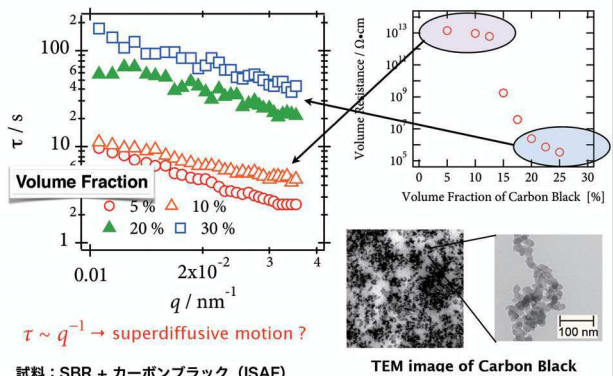


■ XPCS 測定例

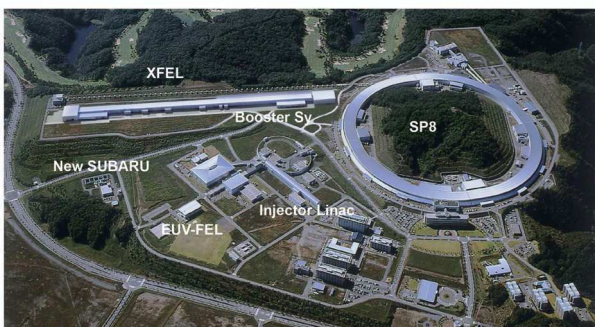


$g^{(2)}(q, t)$: 散乱強度の時間相関関数

■ ダイナミクスの体積分率依存性



X線自由電子レーザー (XFEL) : SACLA



「夢の光」をついに実現-X線自由電子レーザー施設 SACLA (サクラ) がX線レーザーの発振に成功-



東京大学
The University of Tokyo

X線自由電子レーザー (Free Electron Laser)

Spontaneous radiation

自発放射

各電子から放射された光の
強度が足し合わされる

proportional to N

Stimulated radiation

誘導放射

各電子から放射された光の
振幅が足し合わされる

proportional to N^2

73

東京大学
The University of Tokyo

SASE : Self Amplified Spontaneous Emission

X線自由電子レーザー

Distance along undulator

J. Als-Nielsen & D. McMorrow, "Elements of Modern X-ray Physics", John Wiley & Sons (2001)

74

東京大学
The University of Tokyo

コヒーレンスを活かした測定

PNAS, 106, 11511 (2009)

Nature, 442, 63 (2006).

Nature, 467, 436 (2010)

Quantitative 3D measurements of the osteocyte lacunae (L)

コヒーレントX線を用いた散乱像

→ 不均一・非結晶・階層的なもの = **実在系の可視化**

75

東京大学
The University of Tokyo

コヒーレンス、位相

X-ray non-linear optics
X-ray phase-contrast microscopy
Photon correlation spectroscopy

ナノビーム

Scanning diffraction
Scanning spectroscopy

X線自由電子レーザー

超短パルス

ps- & fs- chemistry

高輝度

Single molecule scattering

Detection before destruction

76

東京大学
The University of Tokyo

物質科学における放射光の役割・必要性

- 物質科学の目的 = 物質現象の理解と応用
- 物質科学の対象 = 物質現象
 - = 電磁相互作用
 - = 電子・スピンの授受 (構造と動き)
- 物質科学の方法論 (= 科学的方法論の基本) = 観察 (実験) + 合理性 (理論)

放射光は、物質現象を観察できる最も強力な顕微鏡

→ 物質構造・電子構造の観察 → 可視化 → 機能解明 → デザイン

∴ 高輝度放射光は物質科学の基盤的かつ先端的ツール

→ 物質科学の応用展開 = 生命科学・医学・環境・エネルギー科学

∴ 全ての物質現象が完全に解明されるまで放射光の必要性は不変

77

東京大学
The University of Tokyo

Motivationを高める心：物質と精神

学生 (私自身) へのmessage

精神の3機能: 知

↓

好奇心

↓

真

情

↓

感動する心

↓

美

意

↓

使命感

↓

善

価値の追求:

78

CREST・さきがけ複合領域
「計測技術と高度情報処理の融合による
インテリジェント計測・解析手法の開発と応用」

研究総括(CREST担当)

雨宮 慶幸

東京大学大学院新領域創成科学研究科 教授

研究副総括(さきがけ担当)

北川 源四郎

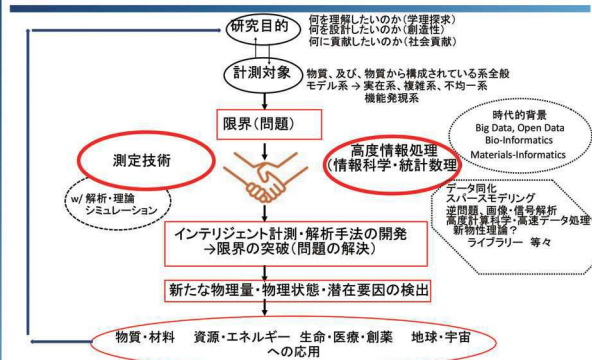
情報・システム研究機構 機構長



科学技術振興機構

Japan Science and Technology Agency

本CRESTの趣旨



Japan Science and Technology Agency

科学技術振興機構

80