

■会議報告

X-ray Diffraction Limit Workshop Series Workshop 6 “Frontier Science with X-ray Correlation Spectroscopies using Continuous Sources” 報告

篠原佑也 (東京大学大学院新領域創成科学研究科)

2011年6月29, 30日に Cornell 大学で開催された表記のワークショップに参加した。本ワークショップは一連の XDL Workshop のうち最後に開催され、後述のように X 線光子相関分光法 (X-ray Photon Correlation Spectroscopy: XPCS) を中心として、X 線のコヒーレンスを活用した相関法の今後、特に XFEL で得られるコヒーレントなパルス X 線ではなく、ERL や USR などから得られるコヒーレントな連続 X 線をどのように活用するかを主題の1つにして議論された。WS6 のオーガナイザーは XPCS を文字通り引っ張ってきた Mark Sutton (McGill University), Simon Mochrie (Yale University) の2名と、WS の実務を取り仕切っていた Arthur Wall (Cornell University) の計3名である。参加者は40-50名ほどであった。

XPCS は1991年に Mark Sutton らによって発表された論文 (Nature vol. 352, 608-610) を嚆矢として進展したと一般には認識されている (もっともこの論文では強度相関はとられておらず、X線領域でのスペックル観察が主である)。90年代後半に相次いで APS, ESRF に専用ビームラインが設置され数多くの研究が実施されている。実験を実施する研究者自身が深く関わった専用の検出器開発が当初より行われてきており、これまでは光源・光学系というよりも検出器の開発と歩調を合わせて測定対象が広がってきている。今後の XPCS の展開に関しても光源だけではなく検出器の進展が本質的に寄与することは明白であり、ほぼ全ての講演の議論において検出器に関する話題が取り上げられた。一方これまでの XPCS の発展には Mark Sutton の影響が極めて大きく、出席者の言を借りれば「XPCS の God Father」として本 WS でも終始議論をリードしていた。また、Sol Gruner (Cornell University) や Arthur Wall などの XPCS を実施してはいない Cornell の人々から議論の際に様々な観点からの問題提起がなされるとともに意見のとりまとめがなされ、会議全体を通して非常に活発に議論がなされた印象がある。各講演では各自が実施してきた研究ではなく、ERL, USR を用いた XPCS によって将来的に実行可能になる先端的測定・サイエンスについて発表するように繰り返し要望されていた。多くの発表がこの要望に応えるものとなっていたように筆者には感じられた。

初日は Don Bilderback (Cornell University) による ERL, USR に関する講演と、Sol Gruner による検出器に関する講演から始まった。その後に Mark Sutton により XPCS のレビュー及び今後の方向性が示された。このレビューはまさに包括的なものであり、実質的にこの後になされたほぼ全員の発表内容を含んでしまっていた。それだけの内容を網羅していることに驚嘆すると同時に、その傘の下から各自が抜け出さないと健全な発展は見込めないのではないかと懸念も同時に抱いたことは否めない。続いて PETRA III での XPCS 実験のビームライン担当をしている Michael Sprung (DESY) から PETRA III の状況、研究例の紹介があった。適切な集光光学系の重要性が力説されたが、それに関連して実験条件についての議論が活発になされた。ビームサイズが変わると検出面上でスペックルサイズも変わり、検出器の特性も絡んで単純な議論とはならない。明るくて大きな少数のスペックルがいいのか、暗くて小さい多数のスペックルがいいのか、使用 X 線エネルギーなども絡めてこの講演以降、繰り返し議論がなされた。Cristian Gutt (DESY) からは最近提案されて実験成果が出てきている X-ray Cross Correlation Analysis (XCCA) が紹介された。原理としては30年以上前に小角散乱領域で提案されたものと本質的に変わらないが、コヒーレント X 線を用いて最近、短距離秩序の対称性に関する情報が得られている。原理や解析法に関する疑問点など様々な議論がなされたが、個人的には学部と同級生が院生時に数値シミュレーションで示した液体中でのクラスター構造をこの手法と XFEL を組合せて初めて実験的に確認できつつあることに感銘を受けた。Bogdan Sepiol (University of Vienna) による講演は、これまで XPCS が主に小角 X 線散乱領域の比較的大きな領域のダイナミクスに関して実施されてきたのに対して、固体中での原子拡散を測定したものであった。結果の妥当性を心配してしまうくらいに S/N が小さい実験ではあるのだが、tracer やメスバウアー分光を用いた従来の手法を適用困難な試料への応用に対する期待を抱かせる内容であった。午前中の最後に行われた議論では XCCA の可能性について集中した議論がなされた。

初日の午後のセッションでは、まず Andrei Flueraș (NSLS II) から NSLS II で建設予定のビームラインにつ

いての紹介があり、Speckle Visibility Spectroscopy を用いて放射線損傷を抑えた上でダイナミクス解析することの重要性や、タンパク質結晶を対象にピーク周辺の Speckle を解析することで、結晶内部のダイナミクスを解析しようとする取り組みが紹介された。続いて篠原佑也(東京大学)により、ソフトマターの時空間階層構造解明に向けた ERL, USR などを用いた XPCS の展開についての提案が出された。背景紹介のところでこれまで取り組んできたタイヤのゴムへの応用例を簡単に紹介したが、XPCS 初(?)の現実社会で用いられている試料への応用例ということで特にこれから施設・装置開発の予算をとらなければならない人々への受けが極めてよいという思わぬ反響があった。また、ESRF, APS で XPCS 実験をしたことのない唯一の人間としてこれまで SPring-8 において鎖国状態で研究してきており、用いている検出器など全てが異質であったために多くの質問が検出器などに関して出された。Wes Burghardt (Northwestern University) からは剪断中・剪断後のダイナミクス研究例が紹介され、XPCS の測定領域がレオロジーで重要な空間・時間スケールと対応していることが指摘された。初日の最後には、高繰り返し光源の活かし方、照射損傷や検出器性能を考慮した際のビームサイズ・コヒーレントフラックスについての意見が交わされたが、これらの光学系のデザインが検出器性能に大きく依存することが改めて確認され、早急な高性能検出器開発の重要性が強調された。

2日目朝は Sol Gruner から光源側の立場として 20 keV 以上の比較的高エネルギーな X 線を用いることによる XPCS 測定上の利点に関する問題提起がなされ、それに基づいて照射損傷、散乱強度などの観点から議論がなされた。引き続き Simon Mochrie により高分子や生体膜に関する応用例・今後の展開への期待が紹介されたが、系によっては近年発展著しい超解像顕微鏡などの他の手法を適切に用いることの重要性も強調していた。Larry Lurio (Northern Illinois University) からは膜の XPCS について原理と実例が紹介された。XPCS では短期間に多量の 2次元散乱像を取得しているが、検出器だけでなく多量のデータを処理するためのハード・ソフト両面に渡る開発の重要性が改めて指摘された。Maikel Rheinstadter (McMaster University) は自身の対象が XPCS の領域から外れているため XPCS については一切しゃべらない、との宣言の後に、脂質膜やタンパク質のダイナミクスについての紹介がなされた。その後の議論の際にはソフトマターにおける照射損傷や動的不均一性に対する高次相関関数を用いた解析の可能性についての意見が交わされた。Alec Sandy (APS) は長年に渡り APS の 8-ID のビームライン担当者として数多くの XPCS 実験に携わってきた経験から success, bleeding edge, failure の 3 つに分類して多様な実験例・可能性が紹介された。ソフトウェアについ

て、参加者の多くが小角散乱のバックグラウンドを持っていることから溶液散乱で標準的に用いられているソフトウェアの類似物を作れないかという議論になったが、XPCS では処理コンピューターに圧倒的に高い性能が要求されることなどから汎用的に用いることのできるソフトウェアを作成するのは難しいのではないかという議論になった。Michael Pierce (APS) からは表面 XPCS についての実例が紹介され、より輝度の高い光源の必要性が強調された。

2日目の午後のセッションではまず Stephen Kevan (University of Oregon) から磁気構造とそのダイナミクスに関する展開についての発表があった。引き続き Karl Ludwig (Boston University) からは非平衡系への XPCS 応用についての問題提起がなされた。現状でも XPCS は非平衡系へも適用されているが、一方で確立した解析手法は線形応答の枠内に留まっているものが多い。実験手法やデータ処理を工夫することで非平衡系のダイナミクスに関する情報も得られているが、より本質的な理解のためには、理論・数値シミュレーションを大幅に進展させる必要があることが強調された。これに関してはこれまでの経験から筆者も強く共感する。様々な試料について XPCS を実施すると揺らぎに関する情報が得られるが、揺らぎの時定数を求めただけでは十分ではない。またこれまでに多様なモードのダイナミクスが観察されているが、パラメータの違いとしてしか現状では解釈できず、それが結果を他分野の研究者に共有してもらおうための障壁となっている。つまり XPCS では結果の解釈に関する研究に未開拓な部分が多く残されているのが現状である。

最後に、XPCS が他分野、一般社会にどのようなインパクトを与え得るか、どのような産業応用が可能であるかという問題提起を元に議論がなされたが、筆者の発表で言及されたゴムへの応用例以外に明示された提案が現状ではなかったことに様々な意味で衝撃を受けた。全員での議論の終了後、今後の XPCS の有りよう、特に外部に向けてどのように XPCS を売り出していくか、どのような先端的測定があり得るのかに着目したレポートを課され、提出後に BBQ ディナーとなった。

私個人としては、これまで論文で接するだけだった XPCS の開拓者・第 1 線の研究者の顔を初めて認識することができ、論文には書いていない実験上の技術、今後への展望を直に確認できたことは大きな経験となった。Cornell 大学のスタッフにも個別に言われたが、XPCS は ERL, USR などの発展により確実に測定上の恩恵を受け、さらに XFEL との棲み分けも明白であるため、そこで可能になるサイエンスをより明確にできれば、キラーアプリケーションとして次世代リング型光源の予算獲得につながられる可能性が高い。自分自身の研究面だけでなく、より広い視野で認識を新たに出来る良い機会となった。