C1

高分解能コンプトン散乱

BL08W

関連キーワード: 電子軌道状態、フェルミ面

- 特徴

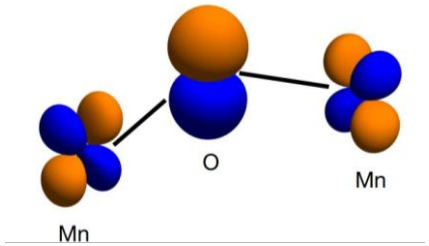
物質の性質は電子軌道やフェルミ面によって決まります。例えば、リチウムイオン電池材料の酸化還元特性は電子を授受する電子軌道によって決まり、超伝導転移や電気伝導、合金規則化などはフェルミ面形状によって決まります。高分解能コンプトン散乱は、運動量空間における電子密度分布を計測することにより、電子軌道やフェルミ面を可視化したり、関連する物理量を導きだしたりすることができます。

高分解能コンプトン散乱の特長として、（１）表面の影響を受けずにバルク状態を計測する、（２）電磁場下や温度可変の計測が可能、（３）雰囲気下や溶液中でのその場計測が可能、などがあります。

- ギャラリー

（１）リチウムイオン電池材料

大容量正極材:$Li_xTi_{0.4}Mn_{0.4}O_2$ の アニオン電荷補償機構（O^{2-}/O^{-}）の検証

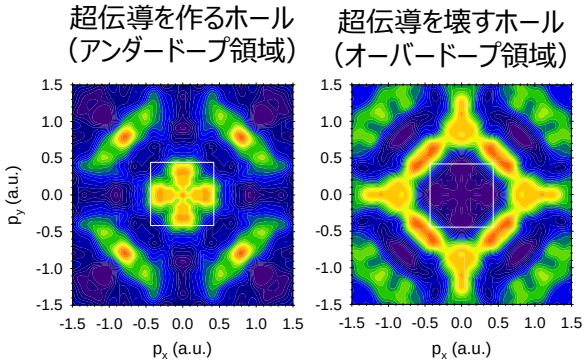


π型 Mn t_{2g} - O $2p$ 酸化還元軌道

Nature **594**, 213(2021)

（２）銅酸化物高温超伝導体

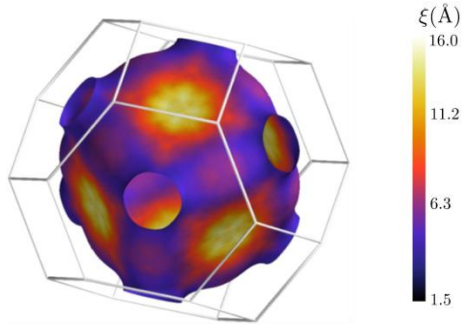
高温超伝導体:$La_{2-x}Sr_xCu_4O_4$ の ホール状態の可視化



Science **332**, 698 (2011)

（３）不規則合金（Cantor-Wu合金）

不規則合金:NiFeCoCrの フェルミ面と電子コヒーレント長:ξ(Å)



Phys. Rev. Lett. **124**, 046402 (2020)

- SPring-8-IIに向けて

高分解能コンプトン散乱は表面状態の影響を受けずにバルクの電子状態を測定することができます。SPring-8-IIにおいては、本手法の特徴を活かして、リチウムイオン電池の大容量化機構などの原理的な理解を促進することで、カーボンニュートラル等で求められる材料開発に貢献します。

C1

磁気コンプトン散乱

BL08W

関連キーワード: 磁性材料、磁気特性

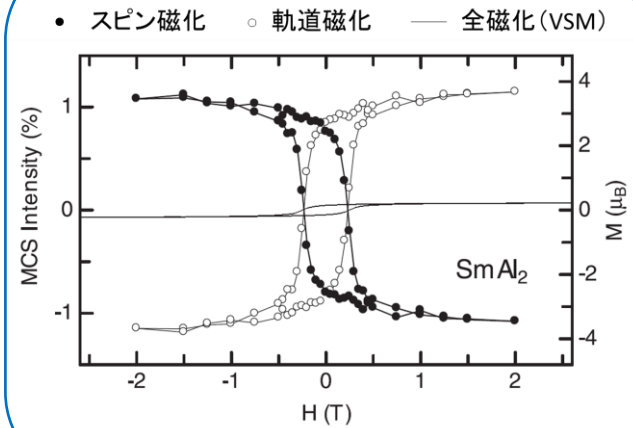
- 特徴

電気自動車産業などの幅広い産業分野において、磁性材料は重要な部品・部材として用いられています。材料の磁性は量子現象を起源としていますが、現在用いられている磁気特性評価は全磁化を計測する手法に限られており、一歩踏み込んで量子論で扱われるパラメータと紐づいた物理量を評価することは難しいとされています。

磁気コンプトン散乱はスピン状態別電子波動関数に直結した物理量を計測をするという特徴を活かして、(1) 全磁化をスピン成分と軌道成分に分離した磁化計測、(2)磁気量子数別に分離した磁化計測、(3)アップスピンとダウンスピン別の電子状態の評価、など従来の磁気測定では不可能な情報を得ることができます。

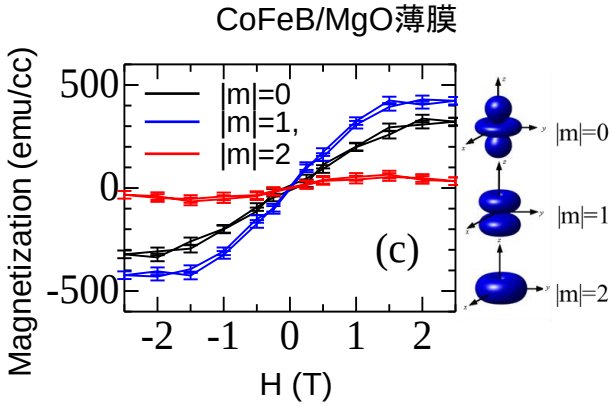
- ギャラリー

（1）スピン/軌道成分分離磁化測定



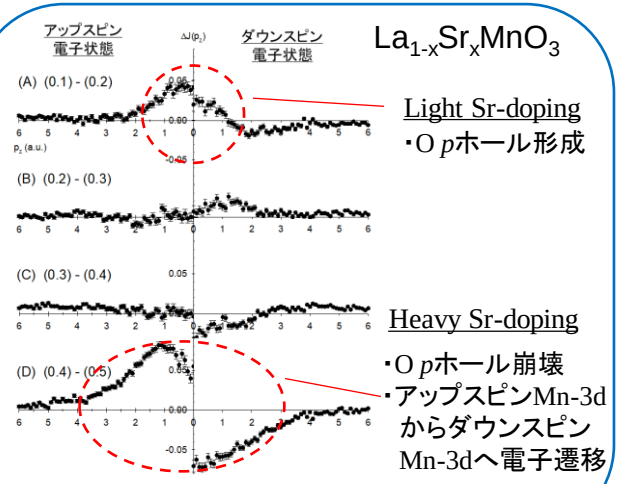
Appl. Phys. Lett. **102**, 082403 (2013)

（2）磁気量子数(m)別分離磁化測定



J. Phys.: Condens. Matter **28**, 436001 (2016)

（3）アップスピン/ダウンスピン別電子状態



Appl. Phys. Lett. **98**, 052107 (2011)

- SPring-8-IIに向けて

磁気コンプトン散乱では物質透過能に優れる高エネルギーX線を用いるため、表面状態の影響を受けずに磁性材料のバルク特性を評価することができます。SPring-8-IIにおいては、高強度・円偏光X線を用いることにより、磁性材料/デバイス内部や界面の磁気特性を高速でマッピングできるようになります。

C2

核共鳴振動分光　-酵素活性中心-

BL35XU, BL19LXU

関連キーワード: 元素選択性

- 特徴

放射光による核共鳴振動分光は特定の同位元素に対してのみ感度をもち、その振動状態に関する情報を与える測定手法です。酵素においては膨大なバックグランドから活性中心の金属の振動のみを抽出することができ、特に鉄を活性中心に含む酵素に対して多くの成果が得られています。水溶液中でも測定でき、ラマン分光と比較して損傷が少ないため、中間状態も調べることができます。洗練されたシミュレーションと組み合わせることにより、振動状態から活性中心の電子構造や幾何学構造に関する有益な情報を得ることができます。

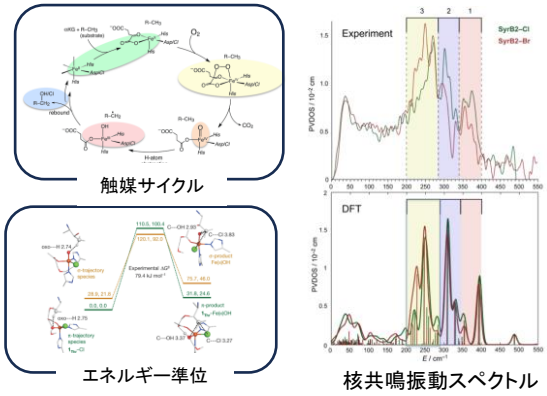
- 事例

年平均3報の高インパクト論文 (I.F.>12)

[1] Nature Chem. Biol. (2023) https://doi.org/10.1038/s41589-022-01226-w.
[2] Inorg. Chem. 62 (2023)
[3] Faraday Discuss. 243 (2023).
[4] Biophys. J., 121 (2022) 346a.
[5] Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A., 118 (2021).
[6] J. Am. Chem. Soc., 143 (2021).
[7] Angew. Chemie Int. Ed., 60 (2021).
[8] J. Am. Chem. Soc., 143 (2021).
[9] Inorg. Chem., 60 (2021).
[10] Chem. Sci., 12 (2021).
[11] Biochemistry, 60 (2021).
[12] Angew. Chemie Int. Ed., 59 (2020).
[13] ACS Catal., 10 (2020).
[14] J. Am. Chem. Soc., 142 (2020).
[15] J. Am. Chem. Soc., 142 (2020).
[16] Chem. Sci., 11 (2020).

酵素の活性中心だけを観る

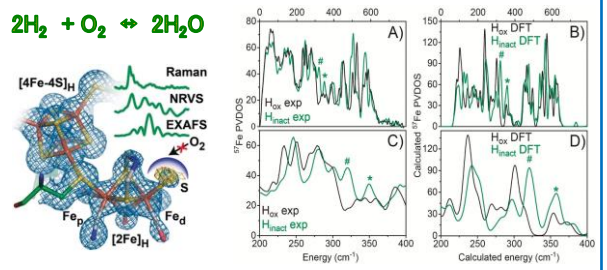
非ヘム鉄酵素ハロゲナーゼの Fe(IV)=O 中間状態の解明



Nature, 499 (2013) 320. doi:10.1038/nature12304

水素を触媒する酵素：ヒドロゲナーゼ

ヒドロゲナーゼのある状態の活性中心に酸素耐性がある理由を解明



Angew. Chemie Int. Ed. **59**, 16786 (2020). https://doi.org/10.1002/anie.202005208

- SPring-8-IIに向けて

極めて小さなエミッタンスを誇るSPring-8-IIではより小さなビームが利用できるとともに、よりエネルギー分解能の高いビームも期待できます。これにより触媒開発に多くのヒントを与えてきた天然に存在する酵素の活性機構解明のみならず、複雑な構造をもつ人工触媒やその反応状態の解明にも貢献していきます。また小さなビームサイズは物性物理などの基礎科学、特に地球科学分野において大きな威力を発揮すると期待されます。

C2

BL35XU, BL19LXU

エネルギー領域放射光メスバウアー分光　-複雑系-

関連キーワード: 元素選択制

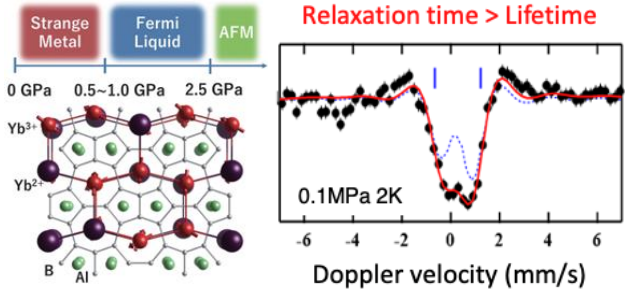
- 特徴

放射光メスバウアー分光は小さなビームサイズや並行ビームが必要な極端条件下や回折条件下、またメスバウアー線源に適当な核種がない場合などに威力を発揮しています。特にSPring-8で開発されたエネルギー領域メスバウアー分光では元素の状態がスペクトルの分布にダイレクトに反映されるため実材料などの複雑な試料の解析に有用です。Fe, Eu, Sm, Sn, Dy, K, Ge, Ni, Ir, Ybなどの元素で測定可能となっています。

- 事例

^{174}Yb メスバウアー分光による電荷揺らぎの観測

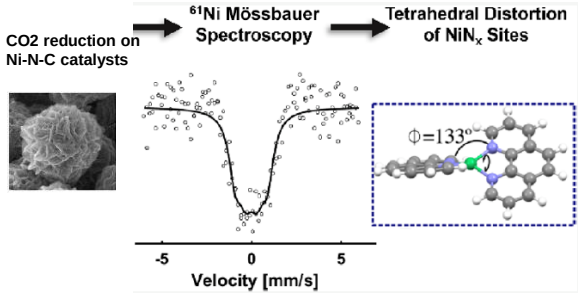
量子物質での異常金属状態における超低速電子電荷揺らぎの観測



Science **379**, 908 (2023).
DOI: 10.1126/science.abc478

^{61}Ni メスバウアー分光による二酸化炭素還元電極触媒の探究

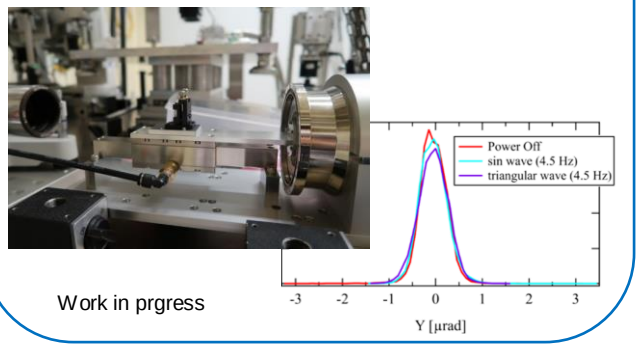
二酸化炭素を還元するカーボン電極触媒のNiNx サイトの構造研究



J. Am. Chem. Soc. 144, 21741 (2022).
https://doi.org/10.1021/jacs.2c09825

放射光メスバウアー線源

より高い集光度を実現するための
^{7}Fe放射光メスバウアー線源
分光装置を開発中



Work in prgress

- SPring-8-IIに向けて

SPring-8-IIの高い輝度によりナノビームの利用が可能になり、実材料、天然鉱石、環境汚染物質などの複雑系試料の高い空間分解測定が可能になります。また水平方向の発散角が小さくなるため偏光の利用が容易になり、複雑な系での解析をより簡単にします。また共同利用に向けて、より高い集光度を実現する^{57}Fe放射光メスバウアー線源分光装置を開発しています。

C2

時間領域干渉法　-スローダイナミクス-

BL35XU, BL19LXU

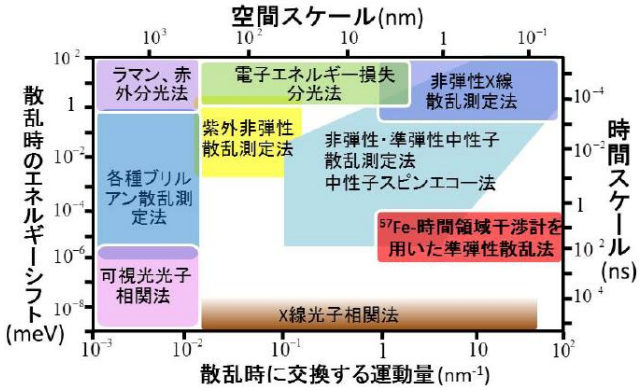
関連キーワード: スローダイナミクス

- 特徴

時間領域干渉法による準弾性散乱測定はナノスケールの空間領域でのnsecからμsecの緩和時間をもつスローダイナミクスに関する情報を与えます。この手法の適用対象としてイオン液体、イオン伝導性ガラス、ゴム、液晶、膜タンパク質などが挙げられます。中性子スピンエコー法と相補的な役割を担っていますが、水素や微小試料に関してはより容易に測定が可能となっています。

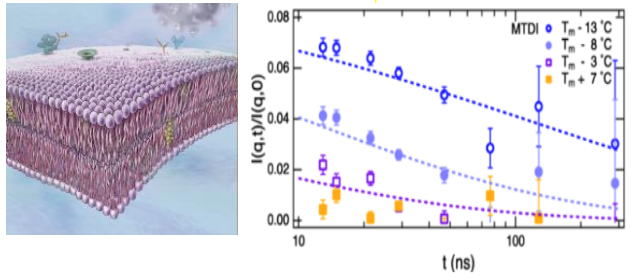
- 事例

各手法がカバーする空間・時間領域



生体膜

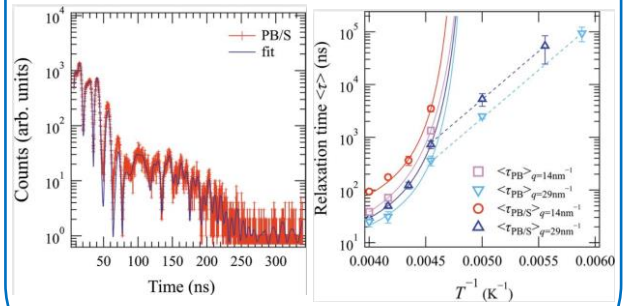
生命活動にかかせない生体膜の性質のより深い理解に向けて



Phys. Rev. Lett. **127**, 078102 (2021).
https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.127.078102

タイヤゴム

ダイナミクスの変化から読み解く架橋されたポリブタジエンのポリマー鎖に対する引っ張りの影響



J. Synchrotron Radiat. 29, 1180 (2022).
https://doi.org/10.1107/S1600577522007998

- SPring-8-IIに向けて

極めて小さなエミッタンスをもつSPring-8-IIでは、より高い空間分解能での測定が可能になります。SACLA/SPring-8基盤開発プログラムではエネルギー領域での準弾性散乱測定法を開発中であり、従来の手法ではカバーしきれない空間・時間領域での測定も可能になり、基礎研究から実用材料まで幅広い領域での発展が期待されます。

C3

熱伝導率とフォノン

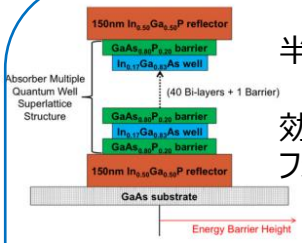
BL35XU, BL43LXU

- 特徴

固体中の熱伝導は、自由電子とフォノンが担っています。熱電材料では高い電気伝導と低い熱伝導を示すもの求められ、電子回路の放熱のために高い熱伝導を示す絶縁体も求められています。このような材料の設計を行うにあたり、フォノンの性質をＸ線非弾性散乱により評価する研究（フォノンエンジニアリング）が行われています。このような材料は時として薄膜状態で合成されるため、基板からのシグナルを除去するために「すれすれ斜入射」での測定が必要となっています。また、すれすれ斜入射は小さな（薄い）試料からのシグナルを増強する効果もあります。この測定方法は中性子によるフォノン測定では完全に不可能です。

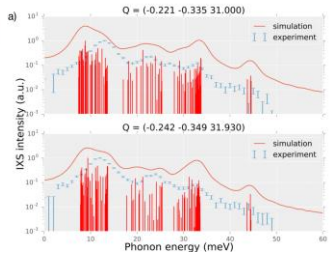
- 事例

半導体多層膜のフォノン測定



半導体多層薄膜

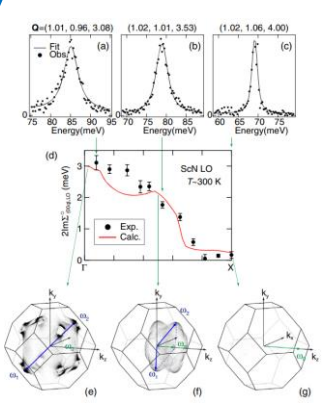
効率的な熱電材料開発にフォノンからアプローチ

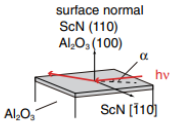


計算結果（赤）と実験結果（青）とは調和する結果

Appl. Phys. Lett. **110**, 043102 (2017)

非電導体薄膜のフォノンの寿命



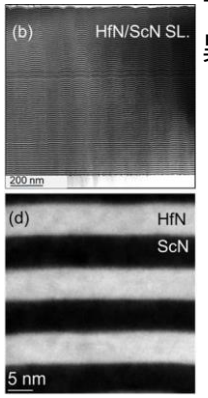


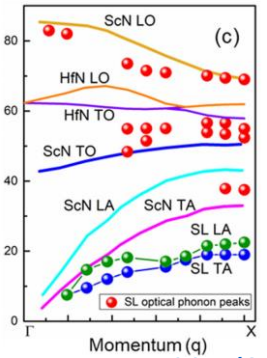
ScN薄膜に対してフォノンの線幅を測定し、3フォノン散乱モデルで説明できることを示した

Phys. Rev. Lett. **120**, 235901 (2018)

人工超格子中のコーン異常

人工超格子では、バルク物質で観察されないqにおいてコーン異常が観測された





Appl. Phys. Lett. **117**, 111901 (2020)

- SPring-8-IIに向けて

SPring-8-IIの光源で向上するブリリアンスはこれらすべての測定をより簡便にしてくれます。試料上の照射面積は小さくなり、入射角を精密にコントロールすることができます。これまで難しかった試料の温度条件を変化させた測定も可能となりますし、より薄い薄膜や、表層の数ナノメートル領域のフォノン測定も実現できるかもしれません。

C3

コンプレックスマテリアルのダイナミクス

BL35XU, BL43LXU

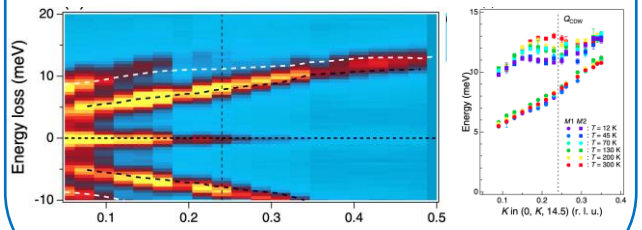
- 特徴

コンプレックスマテリアルは、様々な自由度が相互作用し、格子ダイナミクスが電子秩序、磁気秩序、結晶構造と相互作用することにより生じる新奇な特性を示す材料です。それらの研究を行う多様なコミュニティに対してＸ線非弾性散乱は貢献します。就航可能なＸ線プローブは、他の方法では測定できないような試料に対して、フォノン研究を可能にします。

- 事例

銅酸化物に共通するフォノン軟化

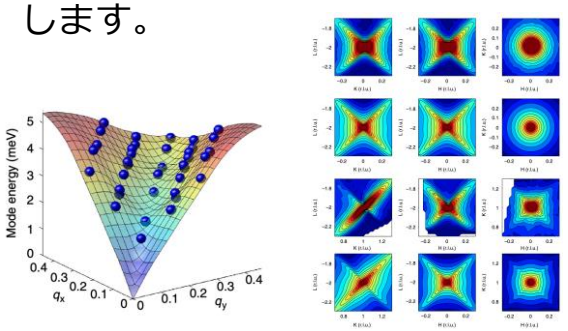
CDW不安定性と、それに関連するフォノンの軟化が、多様な系の銅酸化物超伝導体で生じています。



Phys. Rev. X **8**, 011008 (2018)

反強誘電性のミクロな起源

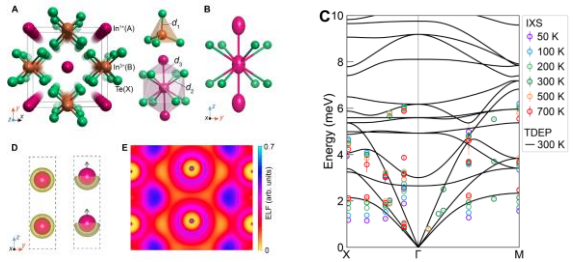
フォノン軟化と散漫散乱から、反強誘電性が隠された相転移によるものであることを明らかにします。



Nature Comm. **4**, 2229 (2013)

フォノンを止める電子

構造研究とダイナミクスの研究を組み合わせることで、 孤立電子対が非調和性を引き起こし、熱伝導を抑制することが分かりました。



Angew. Chemie **62**, e202218458 (2023)

- SPring-8-IIに向けて

より小さく、より速く、より極限へ：SPring-8-IIではＸ線のビームサイズが小さくなるため、より小さな試料の測定がより簡単になります。それだけではなく、これまでは測定が難しかったような極限条件（より高温、高圧、またはその複合環境など）下にある試料を取り扱うことが可能になります。

C3

不規則系のダイナミクス

BL35XU, BL43LXU

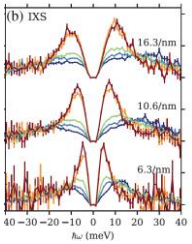
- 特徴

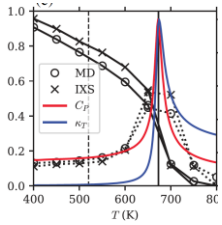
不規則系は科学に残されているフロンティアのひとつです。液体やガラスのような周期的構造を持たない物質は、技術的に重要ではあるものの、あまり理解が進んでいません。これらは巨視的には連続体として扱われますが、メソスケールではその取扱いが破綻します。高エネルギー分解($\Delta E/E<10^{-7}$)X線非弾性散乱(IXS)は、この領域の物理に対するユニークな窓となります。他の手法では得られない情報を得ることにより、新しいコンセプトや共通性の発見を含む、メソスケール領域の科学の発展に貢献します。

- 事例

気体的な液体と液体的な気体

臨界点付近の液体は、動的には気体のように振る舞います



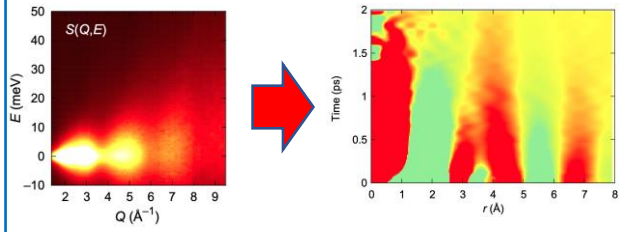


水では、液体中の気体水素結合と関連している

Phys. Rev. Lett. **125**, 256001 (2020)

液体を時空間的に眺める

IXSを用いた新しいアプローチにより、液体のダイナミクスを実空間で直接的に見ることができます



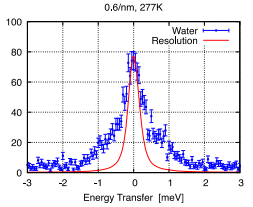
隣り合う水分子間の相互作用

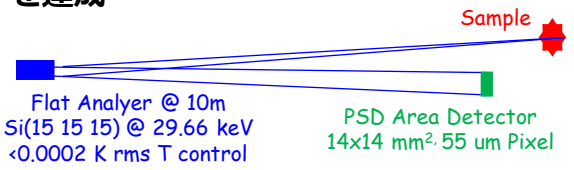
Science Adv. **3** e1603079 (2017)

光散乱とのギャップを埋める

XIXS: Extreme Resolution IXS

0.38 meV FWHM メソスケールの液体ダイナミクス解明に向けて、世界最先端のエネルギー分解能を達成





Work in Progress

- SPring-8-IIに向けて

極限的なエネルギー分解によりギャップを埋める：現時点において、光散乱で観察できる~60 nmとIXSで観察される~6 nm (IXS)の間の領域を調べる方法がありません。SPring-8-IIの光源性能は、IXSの測定領域を光散乱の限界点に近づけることが期待されます。これにより、以前は測定が不可能であった液体ダイナミクスの観察が可能となります。

C3

地球内部物質科学と弾性波速度

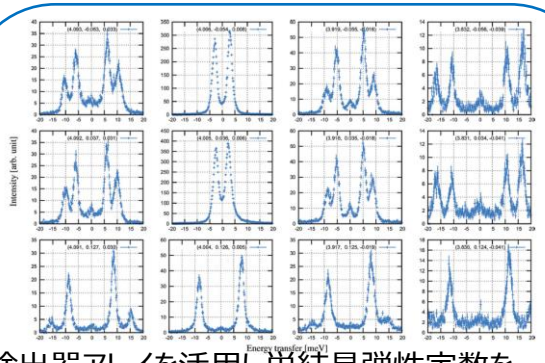
BL35XU, BL43LXU

- 特徴

地球内部は高温高圧の世界です。観測に基づき得られる情報は、地球内部の圧力と密度、そして弾性波速度分布のみで、詳細な化学組成や温度条件は未だ推測の域を出ません。地球内部を物質科学的に理解するためには、実験室で高温高圧条件下の候補物質の密度や弾性波速度を測定し、地球の観測値と比較することで実現されます。そのためには、高温高圧下で精密な弾性波速度を測定することはもちろんのこと、正しい圧力を示すための圧力スケールの創出が必要となります。X線非弾性散乱法を用いることで、地球内部物質を詳らかにします。

- 事例

単結晶弾性定数と絶対圧力スケールの決定

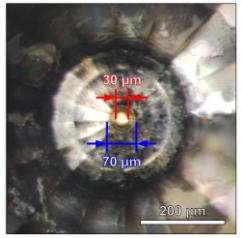


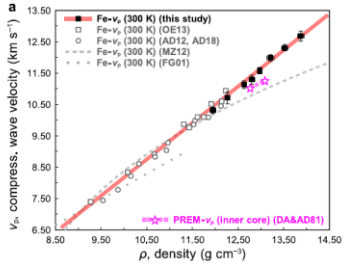
検出器アレイを活用し単結晶弾性定数を効率的に測定
⇒金、白金、NaCl、Taなどの絶対圧力を決定

J. Synchrotron Radiat. **15**, 618 (2008)

地球内核圧力での弾性波速度測定

ダイヤモンドアンビルセル中で300万気圧（地球内核の圧力に相当）まで加圧された鉄

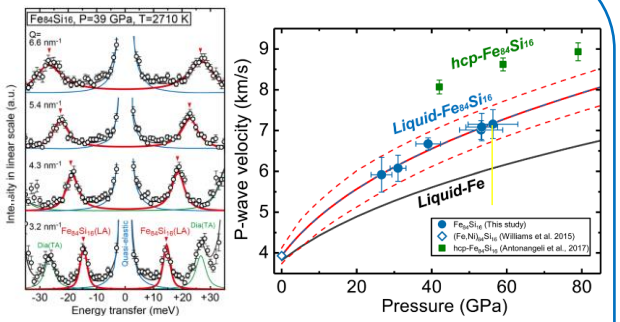




密度と縦波弾性波速度の関係から地球核の組成に迫る

Nature Comm. **13**, 7211 (2022)

鉄合金融体の弾性波速度



鉄-シリコン合金融体の弾性波速度から、現在の地球外核がシリコンに欠乏していることを推測

J. Geophys. Res. B **125**, 019399 (2020)

- SPring-8-IIに向けて

SPring-8-IIの光源ではX線集光が容易になると期待され、超高圧条件にあるような微小試料に対する測定がさらに簡便になります。また実験時間を短くすることができれば、長時間保持することが難しいような超高圧・超高温状態に置かれた試料に対する測定も可能となり、実際の地球内部の温度圧力条件でのデータ取得ができます。これにより外挿によらない地球内部物質科学研究が展開されます。

C4

蛍光X線ホログラフィ

BL47XU

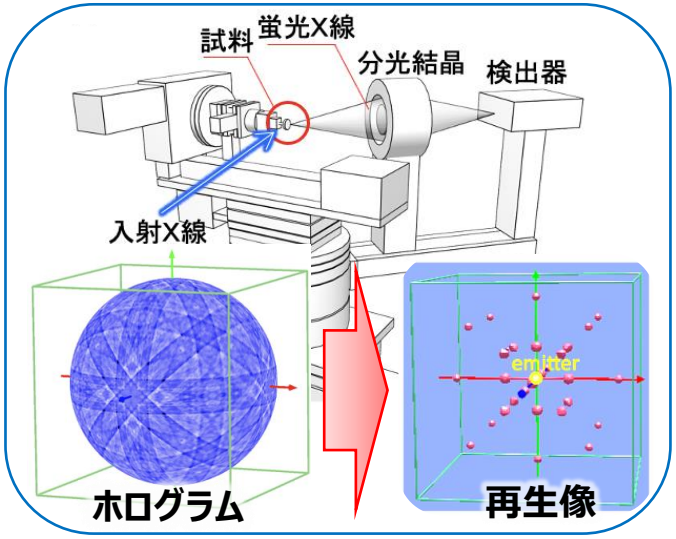
関連キーワード： 3次元原子像可視化

- 特徴

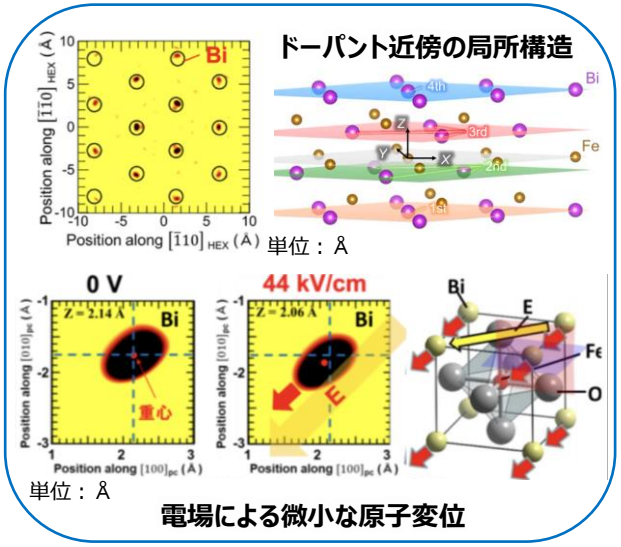
ホログラフィ技術は、可視光での立体的な像再生や紙幣の偽造防止など広く活用されていますが、SPring-8では大強度かつ広いエネルギー範囲の硬X線を用いることで、**元素を選んでその周りの3次元原子像を原子分解能で可視化**することが可能です。産業上重要な半導体に代表される、結晶中の添加元素まわりの局所構造や、タンパク質内の金属元素周辺構造など幅広いマテリアルに活用できます。
大きな試料空間を有する可搬式の**専用装置**を利用でき、**通常のX線回折では検出できない周期的な秩序構造からの“ずれ”の検出・可視化**に有効です。SPring-8のもつ波長選択性によって多くの元素に対応しています。

- ギャラリー

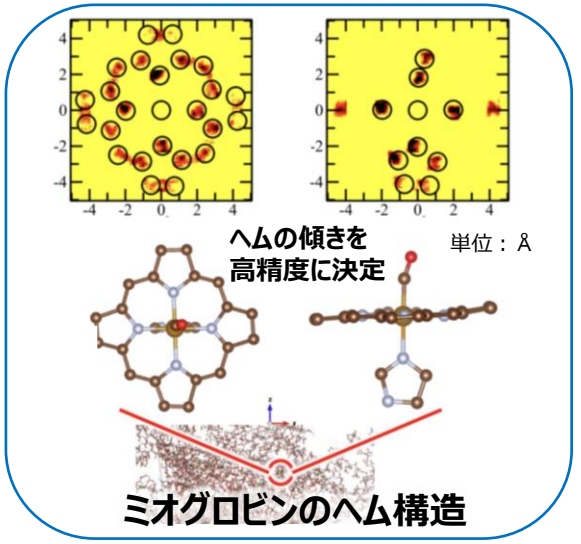
蛍光X線ホログラフィ装置



添加元素周り・原子変位の可視化



バイオ試料の可視化



- SPring-8-IIに向けて

これまで評価不可能であった**結晶とアモルファスの中間相を原子レベルで可視化**することで、半導体への不純物添加による伝導特性デザインに代表される、**点欠陥による機能デザインを超えた新しい機能創出**に貢献します。たとえば、複合欠陥や結晶ライクガラスの他、ミクロン・ナノサイズの微小な結晶粒、多孔性ゼオライトといった**実材料の機能に関わる局所構造・単ドメイン内構造の可視化**が実現できます。そのためにナノビーム利用を強化します。

C5

コンプトン散乱イメージング

BL08W, BL05XU

関連キーワード: オペランド観察、デジタルツイン

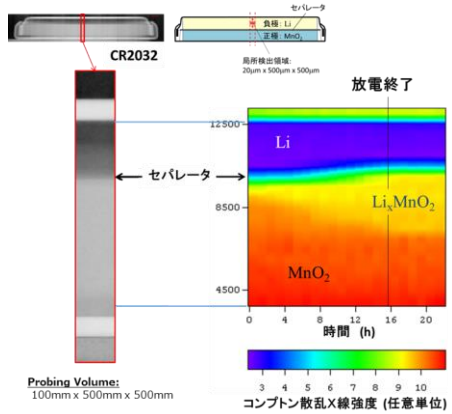
- 特徴

手の平サイズの対象物の内部観察において、対象物を回転せずに断面を観察する手法は有用です。例えば、蓄電池のようにシステムの中に組み込まれた対象物を動作下で観察する場合には、対象物を回転させることは容易ではありません。コンプトン散乱イメージングは、対象物を回転させることなく、非破壊で内部観察を可能にする手法です。
コンプトン散乱イメージングの特長をまとめると、（１）対象物を回転させることなく断面像の観察ができる、（２）軽元素に対する感度を有する、（３）重元素の蛍光X線分析が同時に可能、などがあります。

- ギャラリー

（１）コイン電池

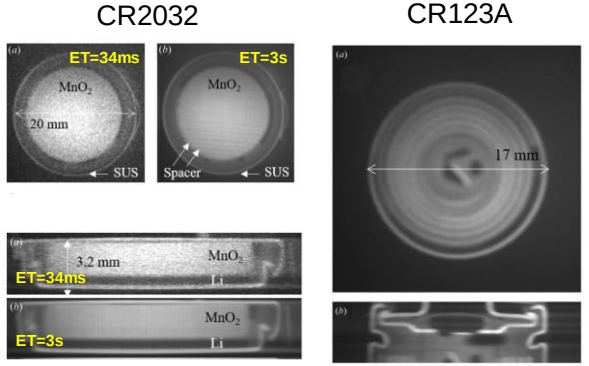
リチウムの移動を可視化



J. Synchrotron Rad. **22**, 161-164 (2015)

（２）蓄電池製品

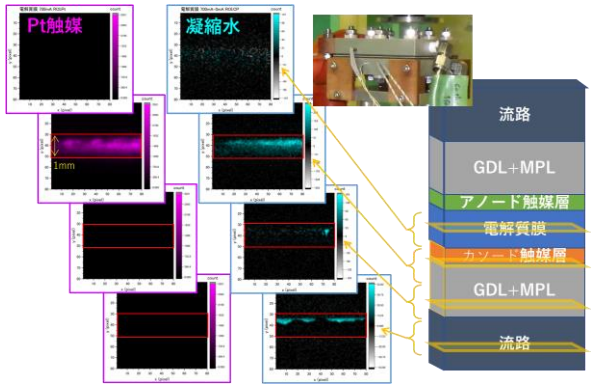
電池製品内部の構造可視化



J. Synchrotron Rad. **28**, 1174-1177 (2021).

（３）燃料電池

燃料電池内部のPt触媒分布および凝縮水分布の可視化



Appl. Sci. **13(19)**, 10753 (2023)

- SPring-8-IIに向けて

コンプトン散乱イメージングは、手の平サイズの製品内部の構造観察のみならず、製品内部の物質移動などの動的なの観察が可能です。軽元素に感度を有するコンプトン散乱と重元素の蛍光X線の同時計測を実現することにより、蓄電池中のリチウムイオンや燃料電池中の凝縮水の動的挙動の観察を実現します。SPring-8-IIでは、高速観察を実現することにより、製品デジタルツインの構築や現象シミュレータのバリデーション等での活用を目指します。