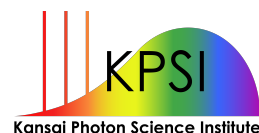


# ANNUAL REPORT 2016

Kansai Photon Science Institute



Quantum Beam Science Research Directorate

National Institutes for

Quantum and Radiological Science and Technology



**ANNUAL  
REPORT  
2016**

## はじめに

関西光科学研究所は、1995年に当時の「特殊法人日本原子力研究所（原研）」の関西研として設置され、2005年10月以降は、「独立行政法人日本原子力研究開発機構（原子力機構）」の一拠点として活動を行ってまいりました。2016年4月に、「国立研究開発法人放射線医学総合研究所（放医研）」と「国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（原子力機構）」の一部が統合して「国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構（量研）」が発足したことにともない、関西光科学研究所は、その中核研究所の一つとして新しいスタートを切りました。量研は、放射線医学研究開発部門、核融合エネルギー研究開発部門、量子ビーム科学研究部門の3つの研究開発部門を持ち、高崎量子応用研究所と関西光科学研究所から成る量子ビーム科学研究部門では、様々な量子ビーム施設・技術を基盤として物質や生命にかかわる幅広い分野の基礎・応用研究が行われています。

関西光科学研究所のミッションは「レーザーや放射光による光科学技術の推進」であり、京都府木津地区と兵庫県播磨地区の2つの拠点で研究系職員約80名及びそれを支える技術系・事務系スタッフを含めて総勢約150名のスタッフが働いています。木津地区では、世界トップレベルの高強度レーザー技術を基盤として、レーザーによる電子やイオンの加速研究などの最先端学術研究や医療・産業への応用研究を実施しています。また、播磨地区では、大型放射光施設 SPring-8 に2本の専用ビームラインを有し、放射光実験や計算機シミュレーションによる様々な物質科学研究などを展開しています。

このアニュアルレポートは関西光科学研究所の2016年度の活動をまとめたもので、主たるイベントや研究トピックスなどをご紹介します。量研発足を新たな発展の機会ととらえ、関西光科学研究所は、「光」を通じた我が国の量子科学技術の発展とイノベーション戦略に貢献する開かれた研究拠点としての役割を果たすべく、職員一同、より一層努力してまいります。皆様のご理解・ご協力を宜しくお願い申し上げます。

内海 渉

## Preface

The Kansai Photon Science Institute (KPSI) originated from the Kansai Research Establishment of the Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) in 1995, and has been a research institute in the Japan Atomic Energy Agency (JAEA) since October, 2005. We made a new start as one of the core research sites in the National Institutes for the Quantum and Radiological Science and Technology (QST), which was newly established on April 1 of 2016 by integrating the National Institute of Radiological Sciences (NIRS) and some institutes promoting quantum beam science research and nuclear fusion research in JAEA. QST has three R&D directorates, i.e., the Quantum Beam Science Research Directorate (QuBS), Radiological Science Research and Development Directorate and Fusion Energy Research and Development Directorate. QuBS consists of KPSI and the Takasaki Advanced Radiation Research Institute (TARRI), where various fundamental and applied research over a wide range of fields such as materials science and life science, are intensively performed on the basis of quantum beam technology.

The mission of KPSI is the research and development of photon science with laser and synchrotron radiation. Our institute has centers of activity in the Kizu (Kyoto Prefecture) and Harima (Hyogo Prefecture) districts, where a total staff of 150, which includes 80 scientists and the supporting technical and clerical staff, are working. In the Kizu district, based on the world's top class high peak power laser technology, cutting edge academic research such as the laser acceleration of electrons and ions has been conducted as well as industrial and medical applications of lasers for innovation. In the Harima district, we have two contract beamlines at SPring-8, and various studies materials science studies are being performed using synchrotron radiation and computational simulation.

This annual report covers the research activities of KPSI for the fiscal year 2016, which introduces our activities, research highlights, user facilities, etc.. Taking the establishment of QST as a chance for big improvements, we will make great efforts to fulfill the role of a leading institute which contributes to “Quantum Science and Technology” and the “Innovation Strategy” of Japan. Thank you very much for your understanding and cooperation.

Wataru UTSUMI

# Contents

Preface .....	1
Activities of KPSI .....	5
User Facilities .....	10
Research Highlight .....	16
Publication List .....	58
The Kid's Science Museum of Photons .....	68
Appendix .....	76



## 関西光科学研究所の主な動き

### 4月1日 量子科学技術研究開発機構発足

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（原子力機構）の量子ビーム部門の一部と核融合部門を放射線医学総合研究所に移管統合する形で、国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構「略称【量研（QST）】」が新しく発足し、関西光科学研究所も量研における中核研究所の一つとして新たなスタートをきりました。



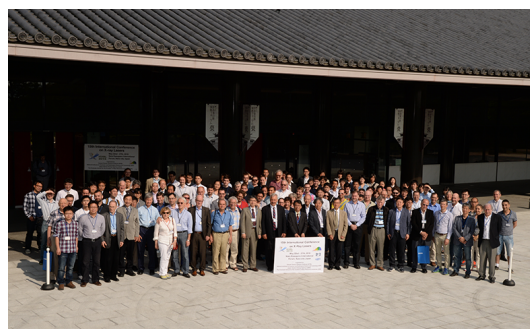
### 5月1日 SPring-8/SACLA 施設公開

恒例の SPring-8/SACLA の施設公開を開催しました。天候にも恵まれ、家族連れ、中学・高校生等、5,800 人を超える来場者でたいへん賑わいました。量研としては、今年4月の発足後、初めての施設公開への出展となりました。今回のテーマを「応力研究」とし、原子力機構と共同で、光弾性に関する工作実験や、応力により音が変わったシンバルを使ったデモ実験等を企画・展示しました。



### 5月22日～27日 第15回 X線レーザー国際会議

奈良春日野国際フォーラム豊において第15回 X線レーザー国際会議（主催：関西光科学研究所、共催：原子力機構、光産業創成大学院大学、後援：文部科学省）を開催しました。参加人数は、国内から65人、海外からは、米国、フランス、ロシアをはじめ84人が参加しました。



### 7月4日～6日 ハンス・アルヴェーン賞受賞

セルゲイ・ブラノフ研究員が、高温プラズマ物理学研究の大規模な次世代装置の開発への実験的理論的な貢献が高く評価され、第43回欧州物理学会ハンス・アルヴェーン賞を受賞し、ベルギーにて受賞講演を行いました。



### 10月13日 包括連携協定締結

国立大学法人大阪大学と国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構の間で包括的連携協力に関する協定書が締結され、その最初の具体的取組みとして、大阪大学レーザーエネルギー学研究中心と量研関西光科学研究所は同日、「光・量子ビーム科学に関する連携協力に関する覚書」を締結しました。





## 10月23日 関西光科学研究所（木津地区）施設公開

関西光科学研究所（木津地区）の施設公開を開催しました。1,387名もの方々にご来所いただき、関西光科学研究所の世界トップクラスの高強度レーザー施設をご見学いただきました。地域住民の方々に對して、関西光科学研究所と関西研に勤務する職員に親しんでいただくべく、実験施設の公開以外に工作教室や光に関する実験ショーを実施し、終日たくさんのご家族連れの方々に賑わいました。



## 11月24日～25日 光・量子ビーム科学合同シンポジウム

大阪大学と量研の合同で光・量子ビーム科学合同シンポジウムを開催しました。文部科学省の田野瀬太道政務官や関西経済連合会の大竹伸一副会長にご来賓あいさつをいただいた他、ドイツのヘルムホルツ・ドレスデン研究機構のザワブライ機構長をお招きし、特別講演をしていただきました。シンポジウムには、産業界からも多くのご参加をいただき、参加者数は274人と、たいへん盛況なシンポジウムとなりました。



## 12月22日 関西光科学研究所歴代所長懇談会

関西研の歴代所長8名のうち7名が関西研（木津地区）に集まり、関西研の研究施設や科学館の見学の後、多目的ホール棟大ホールにおいて講演会を開催しました。初代所長の飯泉仁氏による関西研誕生の経緯から、各氏の思い出話や現況、関西研へのエールなどをお話いただきました。講演会の後、会場を交流棟に移して懇親会を行い、歴代所長と職員との歓談を行いました。



## 1月29日 きっづ光科学館ふおとん来館者数 60万人を達成

きっづ光科学館ふおとんの来館者数が60万人を達成しました。記念すべき60万人目の来館者となられたのは、城陽市からお越しのご家族で、ささやかながら来館60万人の記念イベントを開催させていただき、来館60万人目の証明書、花束、記念品を贈呈させていただきました。



## 2月23日～24日 JAEA-QST 放射光科学シンポジウム 2017/文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業 微細構造解析プラットフォーム放射光利用技術セミナー

量研関西研の放射光科学研究センター、原子力機構物質科学研究センター、文部科学省ナノテクノロジープラットフォームの主催により、シンポジウム・セミナーを開催しました。量研内外から88名の来場者があり、たいへん盛会でした。本シンポジウム・セミナーでは、QST放射光科学研究センターおよびJAEA物質科学研究センターにおける放射光利用研究の最新の研究成果及び計画を報告するとともに、放射光科学分野の第一線の研究者による講演、情報交換、討論が行われました。



## Activities of KPSI

### April 1. Start of QST

The National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology (QST) was founded uniting a part of the Quantum Beam Science Directorate and the Inertial Fusion Directorate of the Japan Atomic Energy Agency with the National Institute of Radiological Science on April 1st. Kansai Photon Science Institute (KPSI) started as one of the Institutes belonging to QST.



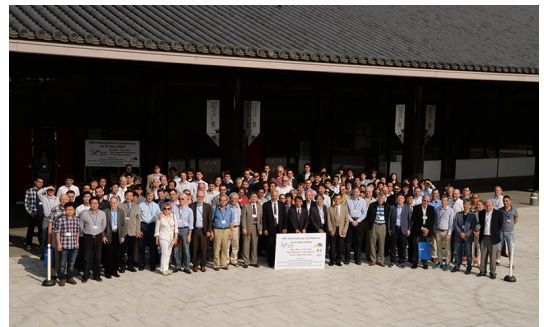
### May 1. Open house of SPring-8/SACLA

An open house of SPring-8 and SACLA was held. The weather was nice and more than 5800 people consisting of families, junior and high school students came. It was the first open house event after the foundation of QST. With the theme of “Stress Research” collaborating with JAEA we carried out hands-on experiments about Photoelasticity and an exhibition and demonstration experiment using an unusual cymbal.



### May 22~27. 15th International Conference on X-Ray Lasers

We held the 15th International Conference on X-Ray Lasers at Nara Kasugano International Forum which was sponsored by KPSI, co-sponsored by JAEA and The Graduate School for the Creation of New Photonics Industries and supported by MEXT. 65 people from Japan and 84 people from abroad such as the USA, France, Russia and so on participated.



### July 4~6. Dr. Bulanov named for Hannes Alfvén award

Dr. Sergei Bulanov who is a visiting researcher of KPSI was awarded by the European Physical Society for his experimental and theoretical contributions to developing a large next generation facility for high-temperature plasma physics and received the 43rd Hannes Alfvén award.



### October 13. Agreement of Comprehensive collaboration cooperation

Osaka University and QST concluded an agreement about Comprehensive collaboration cooperation and as a specific initiative the Institute of Laser Engineering of Osaka University and KPSI of QST concluded a Memorandum of collaboration cooperation about opto-quantum beam science on the same day.



## October 23. Open house of KPSI (Kizu)

The open house of KPSI was held. 1,387 people visited our institute and toured the world class high power laser facilities. In order to get them familiar with KPSI, we conducted hands-on classes and an experimental show related to optical science.



## November 24~25. Opto 2016 Symposium on Photon and Beam Science

Osaka University and QST jointly held the symposium. Mr. Tanose, the Parliamentary Secretary of MEXT, and Mr. Otake, vice chairman of Kansai Economic Federation, gave greetings as guests and Dr. Sauerbrey, Scientific Director of HZDR, gave us a special lecture as an invited speaker. There were 274 participants including many from industry.



## December 22. Workshop with former Directors of KPSI

Seven out of the eight former Directors of KPSI gathered at Kansai Kizusite and held a workshop at the multi-purpose hall after a tour through the research facilities and the science museum. Dr. Iizumi who was the first Director talked about details of the foundation of KPSI and each Director talked about various recollections and also encouraged us.



## January 29. 600,000 visitors to The Kids' Science Museum of Photons

The number of visitors to The Kids' Science Museum of Photons reached 600,000 people. The memorable 600,000th visitor was a family coming from Joyo City and a commemorative event of the 600,000th visitor was held and Flowers and souvenirs were presented.



## February 23~24. JAEA-QST Synchrotron Radiation Research Symposium 2017 and MEXT Nanotechnology Platform Synchrotron Radiation Technology Seminar

The Symposium was jointly hosted by QST Synchrotron Radiation Research Center (SRRC), JAEA Materials Sciences Research Center, and MEXT Nanotechnology Platform. Eighty-eight people contributed to the success of the symposium. The most recent research products and future research plans were reported from QST-SRRC and JAEA-MSRC, respectively, and several invited talks were given by the top researchers in the field of synchrotron radiation research. Related discussion and information exchange were actively carried out.





# User Facilities

## 主要な施設・装置

### 木津地区

#### ○ J-KAREN-P レーザー装置

##### 【装置概要】

世界トップクラスの極短パルス超高強度レーザーです。30 J のレーザーエネルギーを 30 フェムト秒（1 フェムトは 1000 兆分の 1）の時間に閉じ込めることにより 1000 兆ワットの超高強度を実現します。（右の写真は強力な励起レーザーの光で緑色に光っています。）

##### 【装置性能】

- ・エネルギー：30 J/pulse
- ・コントラスト比： $10^{-12}$
- ・中心波長：800 nm
- ・繰り返し：0.1 Hz
- ・パルス幅：30 フェムト秒
- ・集光強度： $10^{22}$  W/cm<sup>2</sup>

##### 【主要な研究課題】

レーザーの高度化技術の開発、イオンおよび電子のレーザー加速技術の開発、高エネルギーコヒーレント X 線の発生等



#### ○ X 線レーザー実験装置

##### 【装置概要】

強力なレーザーで作ったプラズマを使って発振する X 線のレーザーです。目に見える光に比べて発振波長が短く、さらにほんの一瞬の短い間しか光らないという特徴を生かして、ものの表面で起こる物性現象の変化の様子の観察等に利用しています。

##### 【装置性能】

- ・エネルギー：1  $\mu$ J/pulse
- ・波長：13.9 nm
- ・繰り返し：0.1 Hz
- ・パルス幅：約 10 ピコ秒
- ・ピーク輝度： $10^{26}$  phs/sec mm<sup>2</sup> mrad<sup>2</sup> 0.1%bw

##### 【主要な研究課題】

X 線レーザーの高繰り返し化、軟 X 線光学素子の評価、フェムト秒レーザーアブレーションの機構解明



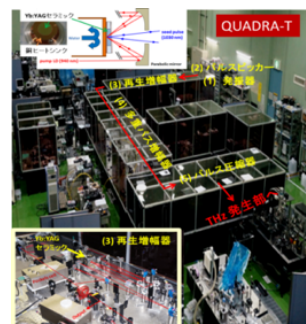
#### ○ QUADRA-T レーザーシステム

##### 【装置概要】

1 秒間に 1000 発のレーザーパルスが繰り返せる高平均出力ピコ秒パルスレーザーです。高強度テラヘルツパルス光源の励起レーザーとして利用しています。

##### 【装置性能】

- ・エネルギー：10 mJ/pulse
- ・波長：1  $\mu$ m
- ・繰り返し：1 kHz
- ・パルス幅：1 ピコ秒



## 【主要な研究課題】

高繰り返し高出力レーザーの開発、高強度テラヘルツ光源の開発、分子の選択的励起技術の開発

## 播磨地区

播磨地区では大型放射光施設 SPring-8 に 2 本の QST 専用ビームラインを設置している他、原子力機構 (JAEA) の専用ビームラインにも複数の放射光実験装置を常設しています。一方で、QST 専用ビームラインには JAEA の実験装置が置かれています。

### ○ BL11XU (QST 極限量子ダイナミクス I ビームライン)

#### 【装置概要】

SPring-8 標準の真空封止アンジュレータを光源とし、マルチ結晶交換システムを装備することで、広範囲のエネルギー領域の高輝度放射光 X 線が高効率に利用可能なビームラインです。

#### 【装置性能】

- ・光源：真空封止アンジュレータ
- ・エネルギー領域：6~70 keV
- ・分光結晶：Si(111)、Si(311)
- ・実験装置：放射光メスbauer分光装置、共鳴非弾性 X 線散乱装置、表面 X 線回折計及び XAFS (X 線吸収微細構造) 測定装置 (JAEA)

#### 1. 放射光メスbauer分光装置

$^{57}\text{Fe}$ ,  $^{61}\text{Ni}$  等のメスbauer核種を対象とした放射光メスbauer分光が可能で、物質の電子、磁気状態から格子振動状態に関する情報が得られる装置です。

#### 2. 共鳴非弾性 X 線散乱装置

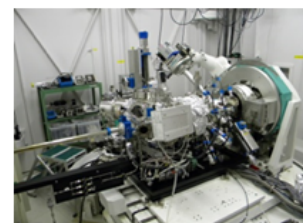
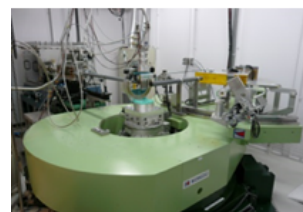
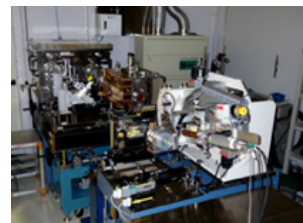
2m 長アームに搭載した球面湾曲型集光式アナライザー結晶による背面反射を用いることで、高分解能の X 線分光を行い、散乱光の方位や入射光とのエネルギー差から、運動量移行を伴う固体内素励起が観察できる装置です。

#### 3. 表面 X 線回折計

分子線エピタキシー (MBE) チェンバーを搭載した表面構造解析用装置で、窒化物を含む半導体結晶などの成長過程を、X 線回折法を用いてその場観察・リアルタイム観察できる装置です。

#### 【主要な研究課題】

金属薄膜の原子層単位での磁性探査。白金系燃料電池触媒の電子状態解析。半導体量子ドット、半導体多層膜の成長過程のリアルタイム解析



### ○ BL14B1 (QST 極限量子ダイナミクス II ビームライン)

#### 【装置概要】

偏向電磁石を光源とすることで、連続スペクトルを持つ白色 X 線や高エネルギーの単色 X 線が利用可能なビームラインです。全反射ミラーや分光結晶の曲げ機構によって、試料位置への集光ができるビームラインです。

#### 【装置性能】

- ・光源：偏向電磁石
- ・エネルギー領域：白色 X 線 (5~150 keV)、X 線 (5~90 keV)
- ・実験装置：高温高圧プレス装置、分散型 XAFS 測定装置 (JAEA) 及び  $\kappa$  (カッパ) 型回折計 (JAEA)

#### 1. 高温高圧プレス装置

高温高圧の条件下にある試料の結晶構造を、白色 X 線を用いたエネルギー分散型 X 線回折法やラジオグラフィ

法、単色 X 線を用いた XAFS (X 線吸収微細構造) 法や角度分散型 X 線回折法によって調べることができる装置です。

【主要な研究課題】

高压下での金属水素化物形成過程のその場観察



○単色 X 線実験用高温高压プレス装置 (JAEA BL22XU)

【装置概要】

高温高压下の X 線回折測定や X 線吸収法を用いた密度測定、室温、1MPa 未満の水素ガス雰囲気中でのその場 X 線回折観察、時分割 X 線回折測定が可能な装置です。

【装置性能】

到達圧力 10 GPa (10 万気圧)、到達温度 2000 K 程度。

【主要な研究課題】

高温高压下での金属融体の密度測定、水素貯蔵合金の水素吸蔵過程の時分割その場 X 線回折測定



○ダイヤモンドアンビルセル回折計 (JAEA BL22XU)

【装置概要】 大型イメージングプレート検出器と高エネルギー X 線を利用することにより、高压下での単結晶 X 線回折及び粉末 X 線回折実験、X 線全散乱測定及び原子二体分布関数 (PDF) 解析が可能な装置です。

【装置性能】

- ・イメージングプレート検出面積：400 × 400 mm<sup>2</sup>
- ・試料-検出器間距離：250~730 mm (可変)
- ・X 線全散乱測定範囲：最大  $Q=27 \text{ \AA}^{-1}$
- ・原子二体分布関数 (PDF) 解析：約 100  $\text{Å}$  まで

【主要な研究課題】

金属水素化物、負の熱膨張材料、超伝導体、f 電子系化合物、準結晶等の金属間化合物などの構造解析



○大型 X 線回折計 (JAEA BL22XU)

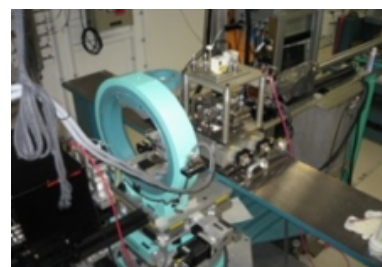
【装置概要】

共鳴 X 線散乱による電子軌道状態の観測、スペックル回折によるドメイン構造の研究、応力・歪み分布測定などの回折マッピングなど多目的に利用する四軸回折計です。

【装置性能】

- ・最大印可磁場：約 6 T
- ・冷却能力：約 2 K まで
- ・その他：大型試料チェンバーが装備可能

【主要な研究課題】





コヒーレント X 線を利用したスペックル散乱によるナノドメイン観察、応力・歪の 3 次元分布測定、共鳴 X 線回折による軌道秩序の解明

## 施設の稼働実績

### ○光量子科学研究施設

#### 実施課題件数

装置名称	独自研究	受託研究	共同研究	施設共用
J-KAREN-P レーザー装置	1	0	1	0
X 線レーザー装実験装置	2	0	5	3
QUADRA-T レーザーシステム	4	0	0	0
kHz チタンサファイアレーザー	5	0	2	0
X 線回折装置	13	0	26	0
軟 X 線平面結像型回折格子	16	0	0	0

### ○放射光科学研究施設

2016 年度の SPring-8 蓄積リングの運転時間は 4941 時間で、放射光利用時間はそのうちの 4152 時間であった。量研、原子力機構とも専用ビームラインでは 10~20% 弱程度の調整時間を除き、放射光利用時間で独自研究や受託研究、外部利用者への施設共用と研究支援を行なっている。

#### 実施課題件数

ビームライン	独自研究	受託研究	共同共用	施設共用
BL11XU	6	0	1	13
BL14B1	3	0	1	0
BL22XU	4	2	2	19

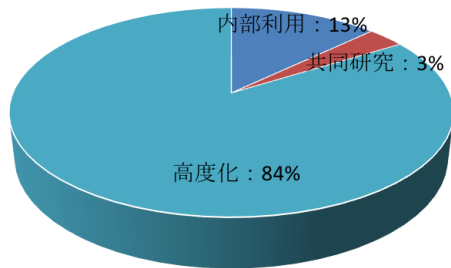
#### 利用日数

ビームライン	独自研究	受託研究	共同共用	施設共用
BL11XU	60	0	10	43
BL14B1	15	0	7	0
BL22XU	17	11	29	53

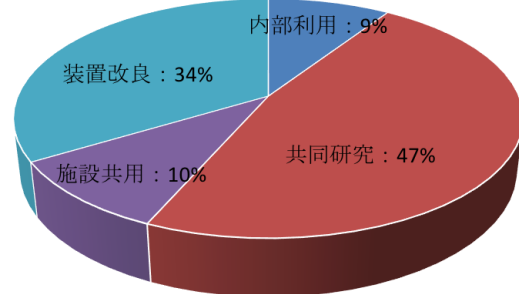
## 施設の利用状況

### ○光量子科学研究施設

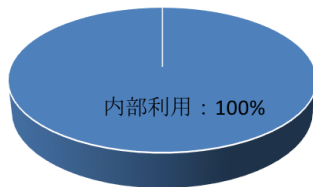
J-KAREN-PLレーザー装置  
(合計ビームタイム:1365時間)



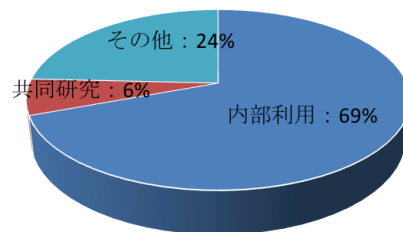
X線レーザー実験装置  
(合計ビームタイム:1538時間)



QUADRA-Tレーザーシステム  
(合計ビームタイム:500時間)

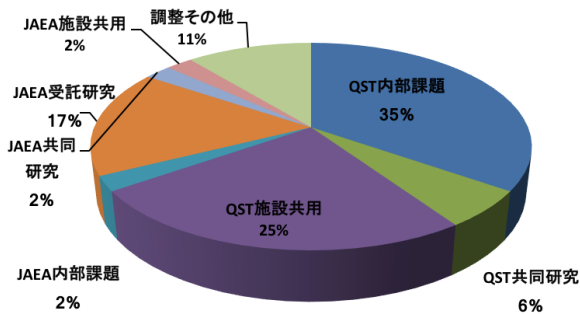


その他装置(木津地区)  
(合計ビームタイム:3125.5時間)

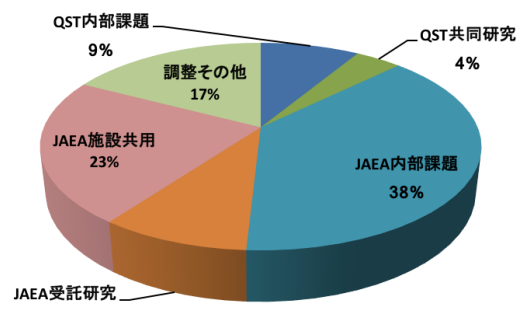


### ○放射光科学研究施設

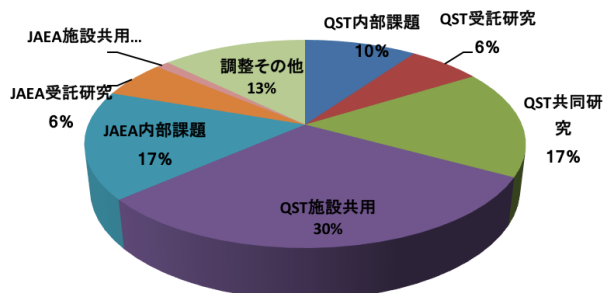
QST極限量子ダイナミクス I ビームライン(BL11XU)



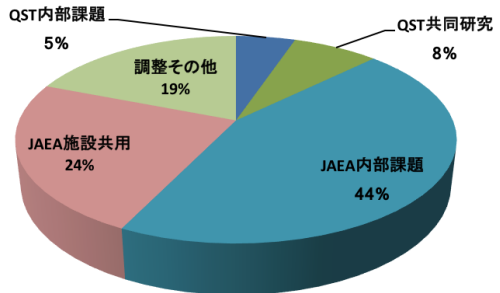
QST極限量子ダイナミクス II ビームライン(BL14B1)



JAEA重元素科学 I ビームライン(BL22XU)



JAEA重元素科学 II ビームライン(BL23SU)



※平成28年度SPring-8ユーザータイム:4152時間

# Research Highlights

# レーザーアブレーションのナノスケールスパレーションによる X線ニュートンリング形成

錦野 将元, 長谷川 登, 河内 哲哉, 末元 徹

光量子科学研究部 X線レーザー研究グループ

フェムト秒レーザーアブレーションを利用した加工では、固体中の電子と格子の衝突によるエネルギーの拡散時間（～10 ピコ秒）よりも十分にパルス幅が短いため、熱的な影響が従来手法と比較して著しく小さく、熱ダレの少ない新しいナノメートル級の精密加工技術として金属や半導体をはじめとして様々な材料への応用が注目されている [1, 2]。フェムト秒レーザーアブレーションによる精密加工の実現には、レーザーと物質の相互作用の基礎的なプロセスの理解が重要となり、これまでに複数のアブレーションダイナミクスの時間分解計測に関する研究が行われてきた [3, 4, 5, 6]。可視光（波長 620nm）をプローブ光として用いた Sokolowski-Tinten らの研究では、金属や半導体のフェムト秒レーザーアブレーション過程において、ニュートンリングが観測されている。このニュートンリングは、図 1(a) のようなアブレーションによって膨張した表面とアブレーションによって残ったサンプル表面との干渉によって生成されている [3, 4, 5, 6]。フェムト秒レーザーを照射したときに、薄い固体層が引っ張り応力によりサンプル表面から飛び出すようなアブレーションが起こる場合がある。このような現象はスパレーションと呼ばれ、アブレーション閾値程度のフルエンスでサンプルを照射したときに起こることが知られている。図 1(b) のようにスパレーション殻と固体サンプルの間の屈折率が一樣として考えた場合、ニュートンリングができるためのスパレーション殻表面からの反射と内部に透過してアブレーション面から反射する光の光路差は、 $2dsin\theta$  となる。

先行研究では、可視光プローブを用いた計測を行いナノ秒スケールでの  $m\mu$  オーダーのアブレーションによる膨張の様子を観察している。フェムト秒レーザーアブレーションは、微細（ナノメートル）、高速（電子・格子の相互作用時間：～10 ピコ秒）かつ長時間（格子が破壊され、移動する時間：ナノ秒）に渡る現象であり、更に可視光領域のプローブ光では空間分解能の制限や表面に発生するプラズマへの侵入長等の理由により、そのダイナミクスの実験的な理解が難しい現象でもある。これに対し 100 eV 付近の軟X線は、可視光よりも高い空間分解能を持ち、かつ硬X線と比較して侵入長が短いため、

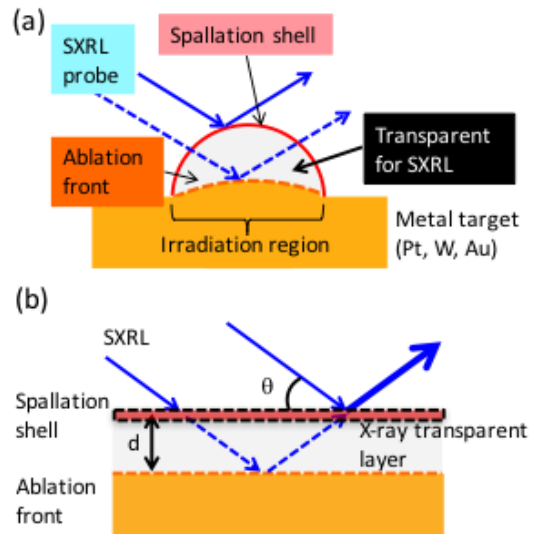


図 1 (a) Schematic view of interference between the reflections from the spallation shell and the ablation front, generating NRs. (b) Interference between two surfaces.

物質表面の微細構造の観測もしくは生成に最適な光源である。加えて、物質中の自由電子との相互作用が小さいため、プラズマに対する透過率が高く、固体表面の形状を直接観測することが可能であるなど、アブレーションを観測する上で際立った利点がある。我々は「シングルショット計測が可能な、波長 13.9 nm の軟X線レーザーを光源としたプローブシステムを開発し、フェムト秒レーザーアブレーション過程の時間・空間分解計測を行うことで、特にアブレーション閾値近傍におけるダイナミクスについての新たな知見を得た [7]。

指向性が高くシングルショット計測が可能な強度を有するパルス光源であることから、プローブ光源として適している軟X線レーザーを用いたフェムト秒レーザーポンプ・軟X線レーザープローブシステム [8] による軟X線反射計測を実施した。サンプル（厚さ 100 nm の蒸着膜）をパルス幅 80 fs のチタンサファイアレーザーで照射した。軟X線プローブ像は、Mo/Si 多層膜凹面ミ

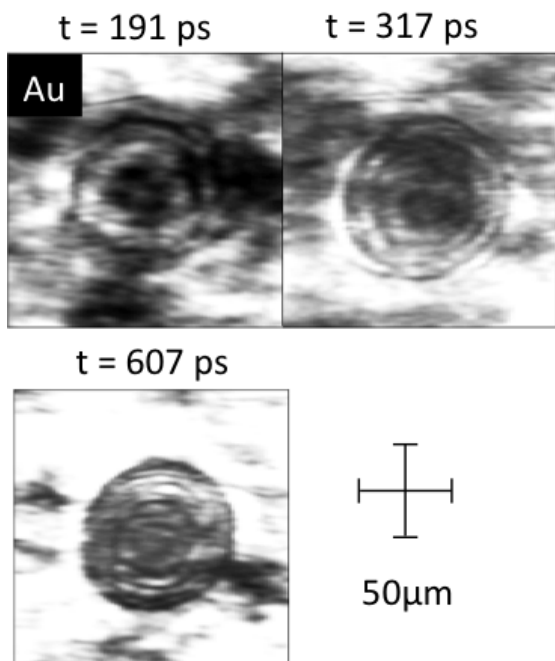


図2 Soft X-ray Newton's ring image of (a) Au at 191, 317, 607 ps and infinity. The contrast has been optimized to better visualize the characteristic features.

ラーにより、背面照射型 CCD カメラ上に約 20 倍の倍率で結像され、 $1.5 \text{ m}\mu$  の空間分解能を得た。

図2に金をサンプルとした場合のアブレーション面の軟 X 線反射像の観測結果を示す。照射強度のピーク値（照射中心位置での局所的な強度）は  $1.4 \text{ J/cm}^2$  とした。レーザー照射後から 191、317、607 ps 後の軟 X 線反射像であり、同心円状の明線が複数観測されている。同心円の間隔は一定ではなく、中央部に近づくにつれて広がっており、また時間の経過 ( $t = 200 \text{ ps} \sim 600 \text{ ps}$ ) とともにその本数も増加する。これは、アブレーション面の上方にドーム状のスパレーション膜が形成され、それぞれの面からの反射光の干渉により発生したニュートンリングであると考えられる。フェムト秒レーザーアブレーション過程におけるニュートンリングの観測については、可視領域のプロープ光 ( $400 \text{ nm}$ ) に関して報告例があるが、軟 X 線領域では初の観測例である。このニュートンリングは 700ps 後まで観測された後に観測されなくなり、最終的なアブレーション痕の黒い影が観察されるようになる。軟 X 線の反射率は面粗さに対して敏感であることから、ニュートンリングの位置と間隔 (1 つの間隔が  $20 \text{ nm}$  の高さに相当) 及び明度の時間変化を解析することで、スパレーション殻の形状に加えて、厚み、密度等の情報も得ることが可能である。図3は、ニュートンリングの位置と間隔から求めたスパレーション殻の時

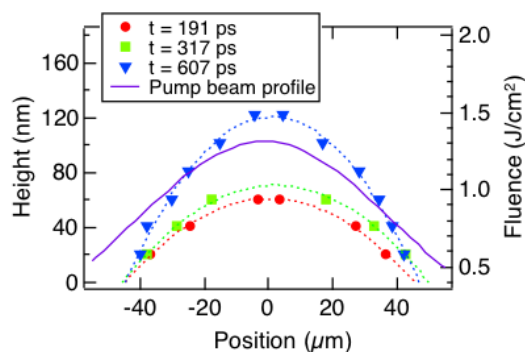


図3 Estimated spatial distribution of Au at 191, 317, and 607 ps by quadratic fitting of the position of Newton's rings and the distribution of the pump beam fluence.

間的膨張の様子である。各々の遅延時間におけるニュートンリングの位置に二次曲線でフィッティングを行っている。このグラフより約  $160 \text{ m/s}$  でスパレーション殻が膨らんでいる。また、実線は、照射したビームの強度分布を示しており、スパレーション殻の形状よりアブレーション閾値の照射フルエンスは約  $0.7 \text{ J/cm}^2$  である。

表面状態に敏感な軟 X 線プローブを用いる事で、フェムト秒レーザーアブレーションのスパレーション過程において、軟 X 線に対してビームスプリッターとして機能するほどに精度の高い薄膜が生成されることを明らかにした。この現象は、レーザーの局所的な照射強度に強く依存しており、アブレーションの制御や、過渡的な軟 X 線光学素子の生成としての応用も期待できる。

## 参考文献

- [1] S. K. Sundaram and E. Mazur, Nat. Material **1**, 217 (2002).
- [2] R. R. Gattas and E. Mazur, Nat. Photonics **2**, 219 (2008).
- [3] D. von der Linde, K. Sokolowski-Tinten, and J. Bialkowski, Appl. Surf. Sci. **109-110**, 1-10 (1997).
- [4] K. Sokolowski-Tinten et al., Phys. Rev. Lett. **81**, 224-227 (1998).
- [5] K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, A. Cavalleri, and D. von der Linde, Appl. Surf. Sci. **127-129**, 755-760 (1998).
- [6] D. von der Linde and K. Sokolowski-Tinten, Appl. Surf. Sci. **54-155**, 1-10 (2000).
- [7] M. Nishikino et al., AIP Advances **7**, 015311 (2017).
- [8] N. Hasegawa et al., Proc. of SPIE **8140**, 81400G (2011).

# レーザーを利用したコンクリートの健全性検査の高速化

長谷川 登、錦野 将元、三上 勝大、河内 哲哉

光量子科学研究部 X線レーザー研究グループ

現在のコンクリート構造物の点検作業は訓練を受けた作業員による手作業に委ねられており、近接目視・触診・打音等により健全性を診断している。コンクリート内部の欠陥を検出する方法の主流である打音法では、検査員がハンマーでコンクリートを叩いた際に発生する音の変化から健全性を診断している。本方式は、簡便かつ高い信頼性を持つが、接触式であるため検査には時間がかかる事に加え、検査員に危険もともなう。そこで、膨大な数のトンネルを定期的に検査するために、高速・非接触・遠隔操作が可能な新しい検査技術の開発が盛んに行われている。我々は、トンネル表面を覆う覆工コンクリート内部の検査をレーザーにより遠隔化する「レーザー欠陥検出法」[1, 2, 3]に着目し、社会実装に向けた本手法の高速化技術の開発を行っている。

「レーザー欠陥検出法」では、打音法における「打撃」と「音の検知」を2つのレーザーを用いることで遠隔・非接触で行う(図1)。「振動励起用レーザー」は打音検査におけるハンマーに相当し、遠隔でコンクリートに強い衝撃を与えることのできる高強度のパルスレーザーである。コンクリート表面を僅かにアブレーションさせることで効率良くコンクリートを振動させることが可能である。コンクリートの内部に欠陥がある場合には、打音検査と同様に、その振動に変化が生じる。「振動計測システム」は打音検査における耳に相当し、コンクリート表面の微細な振動をレーザー干渉計により、遠隔・非接触で検出する。振動しているコンクリート表面から反射してくる信号光の周波数の変調(ドップラー効果)を参照光と干渉させることで計測し、表面の振動を計測する[1, 2]。「レーザー打音法」とも言うべき本手法は、従来の打音法と高い互換性が期待できる。しかしながら現状での検査の速度は毎秒1回程度であり、その高速化が望まれている。我々は、レーザー技術総合研究所と共同で、高出力パルスレーザーの繰り返し性能とコンクリート表面振動の計測速度の向上を図り、模擬的な欠陥が埋め込まれたコンクリート供試体を対象として、検査速度25 Hzでの欠陥検知が可能であることを示した[4, 5, 6]。

図2に高速化したレーザー欠陥検出システムの概略を示す。検査速度は、太線枠で示した「振動励起用レーザー」、「走査装置(スキャナー)」、「振動計測システム」の動作速度によって決定されている。これらの装置につ

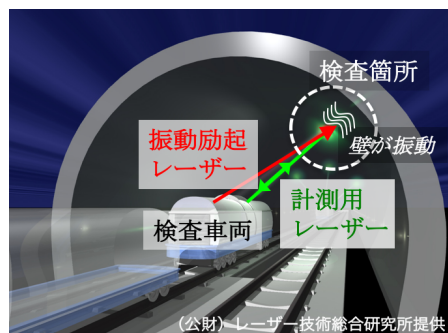


図1 「レーザー欠陥検出法」によるトンネル検査

いて高速動作化を行った。仮に検査速度が50 Hzに向上すれば、半径7 mのトンネルを220 mm間隔でスクリーニング検査すると仮定した場合、単純計算で1 kmのトンネルを3時間以内で検査可能となる。

今回開発した高速動作が可能な振動励起用レーザーの概略を図3(a)に示す。一般的に高出力高繰り返しレーザーでは、フラッシュランプの高速動作に伴う熱によりレーザーロッドの動径方向に熱分布(屈折率分布)が生じ、ロッドを通過した光が屈折し集光もしくは発散してしまう熱レンズ効果が問題となる。熱レンズ効果が顕著になると、レーザーの集光性能が低下し、コンクリートの加振が困難となる。本レーザーでは、各部にレーザー光の直径と広がり角を補正しつつ像を転送する像転送チューブを導入することで、熱レンズ効果を抑制した。発振器からの良好なビームパターンを転送することにより、増幅後においても発振器と同等の集光特性を得ることを可能とした(図3(b),(c))。本レーザーでは50 Hz動作時において最大出力1.2 Jが得られており、7 m先の集光スポットに全エネルギーの90%以上が集約される。

波長1064 nmの振動励起用レーザーと波長532 nmの振動計測用レーザーは、ダイクロイックミラーを用いて同じ光路上に結合される。結合された2つのレーザー光は、2軸のガルバノミラーによって7 m先に設置されたコンクリート供試体上に導かれる。ガルバノミラーには、高速・高精度駆動に加えて、コンクリート表面からの散乱光を効率良く計測するために大口径であることが求められる。軽量かつ高剛性のSiC基盤を用いること

で、通常の2倍以上の口径(50 mmφのビームに対応可能)を用いつつ、7 m先においてレーザー光を33 mm(5 mrad)移動させるのに必要な時間は、加速・減速時間も合わせて僅か5 ms(1 rad/s)である[7]。最大速度設定では220 mmの間隔を7 msで移動可能である[6]。振動計測システムにより、約7 m先のコンクリートの振動を計測するためには約20 msの時間を必要とするため、1箇所の計測に要する時間はレーザー光の移動と計測を合わせて25 msであり、最大40 Hzでの動作を可能とした。

開発した高速レーザー欠陥検出システムを用いて、コンクリート供試体を対象とした検査速度25 Hzでの欠陥検出試験を行った(図4)。コンクリート供試体には、模擬的な欠陥(厚さ5 mmの発泡スチロール)が表面から深さ10 mmの位置に埋め込まれている。図4(a)に、健全部位(緑線)及び模擬欠陥部位(赤線)において観測された振動スペクトルを示す。観測する振動周波数は、打音検査と同様に可聴領域である20 kHz以下とした。健全部位では、振動強度が弱く、かつ特徴的なスペクトルは観測されていない。これは、内部に特異的な構造が存在しないことを示している。欠陥部位では、約2 kHzの位置に鋭いピークが観測されている。これは、表面で生じた振動波が模擬欠陥により生じた境界(急激な密度の変化)で反射・干渉することで、特定の周波数の共振(卓越振動)が生じたことを示している。本システムでは卓越振動を検知することで、急激な密度の変化、即ち空隙等の内部欠陥を検知することが可能である。図4(b)に、コンクリート供試体のスキャン結果を示す。白い点線で囲った領域は、通常の打音検査により欠陥と判定された部位を示している。○はレーザー欠陥検出法による観測点を示しており、33 mm間隔で、7 x 7の49点の観測を行った。緑の領域が健全、赤の領域が欠陥と判定された部位であり、打音法による欠陥判定と良い一致を得ることに成功した。

「レーザー欠陥検出法」の高速化を行い、コンクリート供試体を対象として25 Hzの検査速度での欠陥検出に成功した。今回の試験結果は、実験室内において行われたものであるが、現在は本システムを屋外で運用するための防塵・防振対策を含めた開発を進めており、今後は「打音検査により検知された屋外の実際の欠陥」を計測することで、高速レーザー欠陥検出システムの検証を行うことを予定している。

## 謝辞

本研究の一部は、内閣府総合科学技術・イノベーション会議の「SIP インフラ維持管理・更新・マネジメント技術」(管理法人:JST)によって実施された。

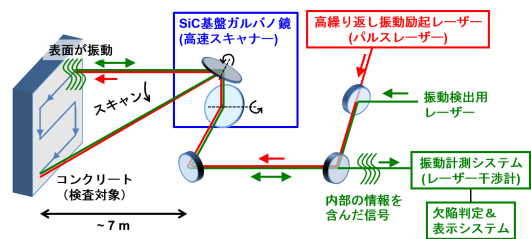


図2 高速レーザー欠陥検出システム

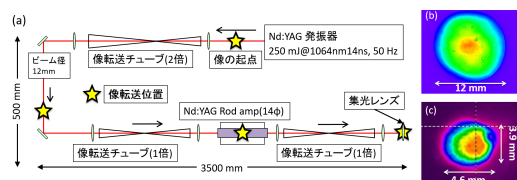


図3 (a) 振動励起用レーザー(50 Hz, 1J Nd:YAGレーザー)。(b) 増幅後のビームパターン。(c) 7 m先における集光パターン。

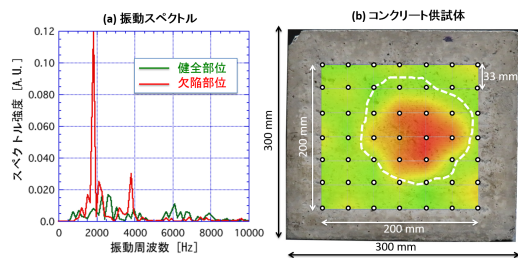


図4 (a) 振動スペクトル (b) 欠陥検出の結果

## 参考文献

- [1] 島田義則：検査技術, Vol.11, No.9, pp.8-14, 2006.
- [2] 篠田昌弘、他：RTRI REPORT Vol. 23, No. 12, Dec. 2009.
- [3] 御崎哲一：「レーザーを用いたトンネル覆工コンクリートの欠陥検出方法に関する研究」, 京都大学社会基盤工学博士論文, 2015.
- [4] 長谷川登：化学, Vol. 71, No. 3 pp.72-73, 2016.
- [5] 長谷川登、他：検査技術, 掲載予定
- [6] K. Mikami, et al.: LSSE8-3 invited, LSSE2015.
- [7] 北村俊幸、他：ILT Annual progress report, No.28, pp.36-38, 2016.

# レーザー-固体非線形相互作用の理論的研究

乙部 智仁

光量子科学研究部 超高速光物性研究グループ

近年、新たな短波長光源、固体物性観測手法として注目されている現象に固体中高次高調波発生 (HHG) がある [1]。固体 HHG は電子励起が関与すると考えられているが、発生過程がはっきりしておらずその解明が期待されている。一方、アト秒科学の発展により、過渡吸収分光による非線形超高速現象の解明が期待されている [2]。しかし実験結果は既存のモデルでは再現されず新たな物理解釈が重要とされてきた。

これら非線形かつ超高速な電子ダイナミクスの解明には新たな理論及び計算手法が必要となる。電子基底状態の記述は密度汎関数理論 (DFT) により計算することが可能である。一方電子ダイナミクスは時間依存密度汎関数理論 (TDDFT) [3] を用いることで記述でき、これまでに多くの非線形超高速現象の再現に成功している本研究では、固体中 HHG とアト秒パルスによる過渡吸収分光の物理過程解明を TDDFT に基づいた数値計算から明らかにした。

図 1 に TDDFT による  $\alpha$ -水晶内部の HHG 発生過程のシミュレーション結果を示した。レーザー波長は 800nm (1.55eV) とし、結晶の光学軸と偏光方向を一致させた。 $\alpha$ -水晶内部レーザー強度は  $8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  である。図 1(a) に与えたレーザー電場 (赤破線) とそれにより誘起される電子流密度 ( $J(t)$ ) (青実線) を示した。この電子流密度のスペクトルが発光に対応する。 $J(t)$  のフーリエ変換したものを図 1(b) に示した。横軸はレーザーの基本振動数で規格化された振動数である。

固体電子応答の原因はバンド内遷移とバンド間遷移があり、どちらの効果が支配的であるのかが重要な点とされている。図 2 に全過程を含んだ結果 (赤線) とバンド内遷移のみを考えた結果 (青) を示した。明らかに HHG におけるバンド内遷移の寄与は小さいことが見て取れる。

また、HHG スペクトルと  $\alpha$ -水晶のバンド構造の比較から HHG は伝導帯の下端にいる電子と価電帯の空孔の再結合により発生していることが明らかとなった。以上の結果は Physical Review B に掲載された [4]。

TDDFT を用いたアト秒 Pump-Probe 数値実験を行うことでレーザー電場サイクルより短い分光のシミュレートした。その結果、直線偏光したレーザー場中では非常に強い吸収率変動が起こることがこれまでに分かっ

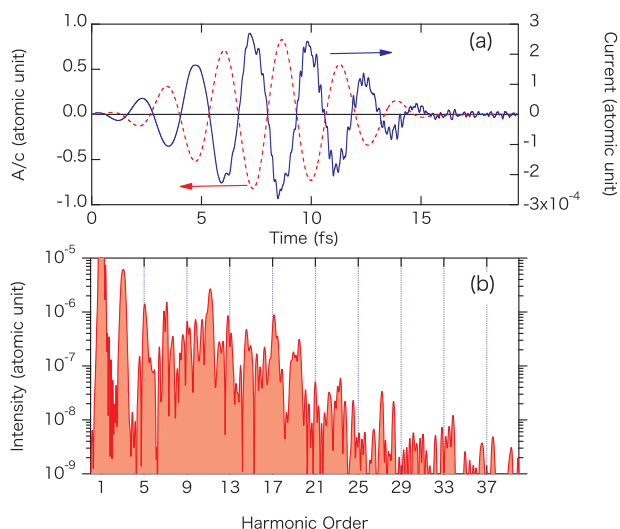


図 1 (a) レーザ電場と誘起される  $\alpha$ -水晶中の電子流密度。(b) 電子流密度のスペクトル。

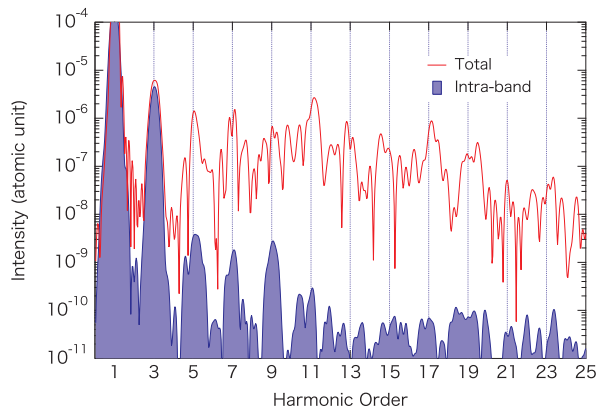


図 2 バンド内遷移のみを考えた計算 (青) と全ての過程を含んだ HHG に対する計算結果 (赤線)。

た [5]。今回、このシミュレーション及び理論を一般的楕円偏光に拡張し、より一般的な過渡吸収分光の理解と理論式導出を行った [6]

図 3 に TDDFT と理論計算の結果を比較した。Pump 光の電場強度は 10 MV/cm とし、ダイヤモンドの誘電関数の虚部の変化量を時間 (横軸) と Probe の振動数 (縦



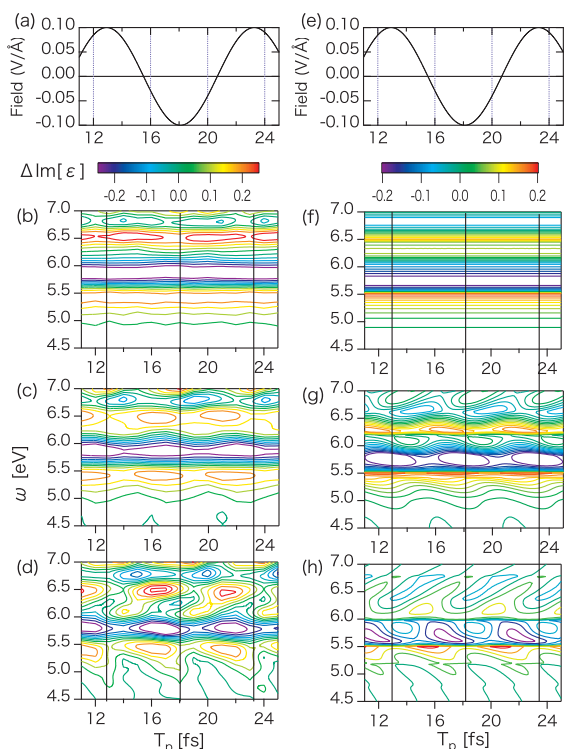


図3 (a),(e) 直線偏光の場合の Pump 光の電場波形。  
(b),(f) 円偏光。(c),(g) 楕円偏光。(d),(h) 直線偏光。

軸) の関数として 2 次元プロットしている。ダイヤモンドの計算上の光学バンドギャップは 5.5eV であり、その周辺のエネルギーでの変調を示している。図 3(b)-(d) は TDDFT による計算、図 3(f)-(h) は解析的理論式の計算結果である。直線偏光の時に顕著であった時間変化は楕円率が大きくなるに従い弱くなり、円偏光では完全に時間に依存しないことが分かる。また TDDFT による精密な計算と解析的計算式は定性的に非常によく一致しており、定量的にも大きな差は見られない。

今回導出した解析的理論式は Floquet 状態に対する時間分解分光に対応しており、様々な Floquet 状態間のエネルギーと位相の違いが図 3 のような時間依存性を発現させていることが分かった。この現象はアト秒過渡吸収実験 [7] により最近観測された。また京大との共同研究からテラヘルツ電場中にある励起子の過渡吸収実験でも同様の現象が確認された [8]。

本年度、TDDFT による数値実験により未解明の物理過程を明らかにし、実験との共同研究で実証することができた。これからは計算コードの高度化を行い磁性体や 2 次元物質といった新奇機能性材料の解析も実現していきたい。また、本研究で用いた計算手法はレーザー加工の初期過程の解明に最適なものである。様々な難加工物質の高効率加工手法開発への指針を探る研究も同時に進めていく予定である。

## 謝辞

This work is supported by JSPS KAKENHI (Grants No. 15H03674). Numerical calculations were performed on the supercomputer SGI ICE X at the Japan Atomic Energy Agency (JAEA).

## 参考文献

- [1] S. Ghimire, *et al*, Phys. Rev. Lett. **107**, 167407 (2011).
- [2] M. Schultze, *et al*, Nature **493**, 75 (2013)
- [3] E. Runge and E. K. U. Gross: Phys.Rev. Lett. **52** (1984) 997.
- [4] T. Otobe, Phys. Rev. B **94** 235152 (2016).
- [5] T. Otobe, Y. Shinohara, S. A. Sato, and K. Yabana, Phys. Rev. B **93**, 045124 (2016).
- [6] T. Otobe, Phys. Rev. B **94** , 165152 (2016) .
- [7] M. Lucchini, S. Sato, J. Herrmann, A. Ludwig, M. Volkov, L. Kasmi, Y. Shinohara, K. Yabana, L. Gallmann, and U. Keller, Science **353**, 916 (2016) .
- [8] K. Uchida, T. Otobe, T. Mochizuki, C. Kim, M. Yoshita, H. Akiyama, L. N. Pfeiffer, K. W. West, K. Tanaka, and H. Hirori, Phys. Rev. Lett. **117**, 277402 (2016).

# 手のひらサイズの非侵襲血糖値センサー

山川 考一

量子生命科学研究部 レーザー医療応用研究グループ

2015年の国際糖尿病連合（IDF）の報告によると、日本国内で720万人、世界では4億1,500万人が糖尿病患者であるといわれており、これは世界の成人人口の8.8%を占める。今後患者数は更に増加すると予測されており、2035年には世界で5億9,190万人、10人に1人は糖尿病という時代がまもなく訪れようとしている。

糖尿病患者にとって、高血糖の状態が続くと様々な合併症のリスクが高まるため、患者は採血型自己血糖計（SMBG: Self-Monitoring of Blood Glucose）などを用いて、1日複数回血糖値を測定しなければならない。現在行われている血糖測定法は、指などを針で穿刺して採取した血液で測定を行わなければならない。患者は煩わしさとともに苦痛や精神的ストレス、更に感染症の危険を伴うなどの多くの問題をかかえている。また、穿刺針やセンサーチップ等の消耗品のコストが高く、年間約20万円/人の経済的負担を強いられている。そして糖尿病患者のみならず、病院等で日々患者の血糖測定を行う医療現場でも、採血にかかる負担を低減し、ひいては診断および治療のスピードアップ化のために非侵襲血糖値センサーに対する期待は大きい。

本研究では、先端固体レーザーと光パラメトリック発振（OPO）技術を融合することにより、手のひらサイズの高輝度中赤外レーザーを開発し、国際標準化機構（ISO）が定める測定精度を満たす非侵襲血糖測定技術を開発した。

図1に示すように、ともに指先程度の大きさのYb:YAG マイクロチップレーザーと光パラメトリック発振器（OPO）を新たに開発した。OPOは波長1.03  $\mu\text{m}$ で発振するYb:YAG レーザー光を、グルコースの吸収が大きな波長約9  $\mu\text{m}$ の中赤外レーザー光に変換する。これにより、手のひらサイズの中赤外レーザーを実現した。本中赤外レーザーは、従来までのニクロム線やセラミックヒーターなどの黒体放射と比較して約10億倍もの強い尖頭出力（キロワット級）を有しており、先行技術では得られなかった高い測定精度を実現することができる。中赤外レーザーから発生したレーザー光を被験者の指先などに対して局所的に照射すると、光子の一部は血中グルコース分子に吸収される。一方吸収されなかった光子は拡散反射され、中赤外光検出器で検出される。これにより、入射光と反射光との差分が血糖値とし

て算出される。



図1 Yb:YAG マイクロチップレーザー（左）、光パラメトリック発振器（右）、手のひらサイズの血糖値センサー（下）

被験者Aがグルコース水溶液を経口摂取した後の血糖値（侵襲法と非侵襲法で同時測定）の時間変化を図2に示す。血液に対してSMBGを用いて測定した場合の血糖値の時間変化と、中赤外レーザー光を人の指へ照射したときの中赤外レーザー光のグルコースによる吸収時間変化を示している。図2から明らかなように、時間と共に血糖値が上昇するのに伴い、グルコースの吸収によって中赤外レーザー光の強度が減少しているのが分かる。

また、更に時間が経つにつれ、血糖値が再び減少し始めると、グルコースによる吸収が弱まり、中赤外レーザー光の強度が再び増加していくのが分かる。なお、一回のレーザー照射時間はわずか5秒程度である。

4人の健常者A、B、C、Dに対して、日にちを変えて複数回、同様の経口ブドウ糖負荷試験を実施した。そしてこれまでと同様にSMBGでの測定値と規格化された光強度の変化とを比較し、図3に示すクラークエラーグリッド分析法によってデータを分析した。クラークエラーグリッド分析は、患者の現在の血中グルコースの推定値の臨床的正確さを、基準測定器において得られた血中グルコース値と比較して明確にするために、1987年に開発されたものである。なお、国際標準化機構（ISO）が

定める基準では、血糖値 75mg/dl 未満では  $\pm 15$ mg/dl 以内、75mg/dl 以上では  $\pm 20\%$  以内 (図 3 中の A ゾーン) に測定値の 95% 以上が入っていれば合格とされている。ここで全被験者の測定結果 (血糖値範囲 61~198 mg/dL) は、ほぼ全てが A ゾーンに収まっていることが分かる。すなわち、開発した非侵襲血糖値センサーを用いることにより、臨床的に十分な精度で血糖値を測定することができるといえる。今後はより幅広い血糖値範囲に対する有効性を示すために、糖尿病患者に対する臨床研究を予定している。

QOL 向上につながる。また、非侵襲の特長を生かして、会社や公共施設、ドラッグストアなどに設置して、採血なく手軽に健康状態をチェック出来れば、健常者の予防意識を高めて生活習慣病人口の増加を抑制し、ひいては医療費、介護費の削減も期待できる。更に、今後レーザー光源のさらなる小型化が進めば、装置を身につけたまま非侵襲で 1 日 24 時間、365 日の連続測定が可能になることも予測され、個人の生活習慣に見合った健康管理が実現でき、より質の高い生活が保障される社会も夢ではないと考えられる。

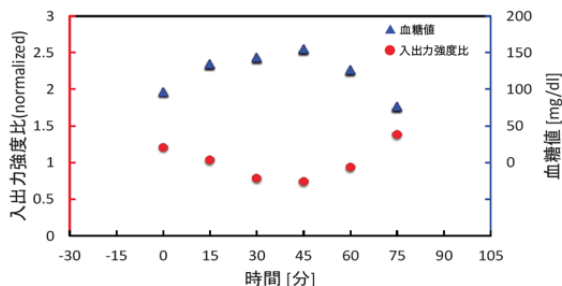


図 2 経口ブドウ糖負荷試験. 被験者 A の血液に対して SMBG を用いて測定した場合の血糖値の時間変化と、中赤外レーザー光を人の指へ照射したときの中赤外レーザー光のグルコースによる吸収時間変化を示している

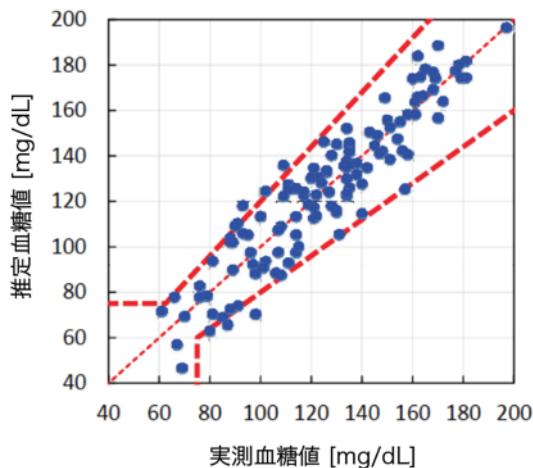


図 3 クラークエラーグリッド分析法. クラークエラーグリッド分析においては、正確な測定であると認められる範囲 (A ゾーン: 最も望ましい範囲)、その他 B ゾーンから E ゾーンまでの 5 つの領域に区分される. 図中の点線で囲まれた部分が A ゾーン

今回開発に成功した非侵襲血糖値センサーは、従来の採血型自己血糖値センサーに代わり、糖尿病患者が痛みを伴わず日常の血糖値管理ができるようになり、患者の

# 重イオン照射におけるトラックポテンシャルの 二次電子の運動への影響

森林 健悟

量子生命科学研究部 放射線 DNA 損傷研究グループ

重イオンと物質との相互作用の研究では、重イオンの軌道付近で二次電子（重イオンの衝突電離から生じる電子）が重要な役割を演じる。以前行われた二次電子の計測では、遅い二次電子が重イオンの軌道付近に作られるトラックポテンシャルによって捕獲されることが示唆された [1]。トラックポテンシャルとは、重イオンの軌道付近で分子イオンのクーロン相互作用で作られるポテンシャルのことである。これらの分子イオンもまた重イオンの衝突電離から作られる。シミュレーションを通してトラックポテンシャルの二次電子の運動への影響を研究したのでここに報告する。なお、本シミュレーションでは、従来のモデルよりも現実により近い状況をシミュレートすることを目指し、重イオン衝突で生じた二次電子の運動を取り扱った。

$Y_t$  を標的物質から生じる観測しうる二次電子の数、 $Y_a$  を標的中の原子から電離する電子の数、 $S_p$  をイオンの阻止能とすると、 $Y_a/S_p$  が異なった  $S_p$  値に対して一定であると予想されるにもかかわらず、 $S_p$  の増加とともに  $Y_t/S_p$  は激しく減少することが実験的に示されている [1]。このことは、 $S_p$  が増加すると二次電子がトラックポテンシャルに捕獲される量が増えることを示唆している。なお、 $Y_t$  にはトラックポテンシャルに捕獲された二次電子は含まれないことおよび  $Y_t$  がしばしば計測に使われることに留意する。絶縁体の標的に対して二体衝突近似 (BCA) がしばしば使用される。BCA モデルは標的中で散乱素過程を解くことにより、荷電粒子と原子の衝突を取り扱う。従来の BCA モデルでは、我々の知る限り、トラックポテンシャルは無視され、この無視によって、二次電子は重イオンの軌道付近から離れる一方で捕獲されないとされており、上記で述べた二次電子の計測結果は説明できない。本研究で開発したモデル [2, 3] は全ての個々の電子と個々の分子イオンとの間のクーロン相互作用を取り扱って、トラックポテンシャルを BCA モデルに取り入れた。これらのクーロン相互作用がトラックポテンシャルを作り出す。現在のスーパーコンピューターを用いても、このモデルを用いたシミュレーションは多くの時間とメモリーを費やすので、ここで使用するシミュレーションモデルは 21 世紀になって

可能となったものであると考えている。すなわち、コンピューターの急速な発展がこのシミュレーションを可能にした。

本報告では、 $S_p \sim n_m \sigma_{ion} E_{isa}$  と書けるので、 $S_p$  の代わりに  $n_m$ 、イオン電離衝突断面積 ( $\sigma_{ion}$ ) 及び二次電子の初期エネルギー ( $E_{is}$ ) を用いて二次電子の運動をシミュレートした。ここで、 $n_m$ 、 $E_{isa}$  は、それぞれ、分子の数密度、 $E_{is}$  の平均値を表す。 $n_m$  と  $\sigma_{ion}$  を 1 つのパラメータとして扱うため、イオン衝突電離の平均自由行程  $\tau (= 1/n_m \sigma_{ion})$  の関数としてトラックポテンシャルの二次電子への影響を調べる。 $E_{isa}$  に関しては入射重イオンのエネルギー ( $E_{ion}$ ) 及び標的に依存する。実験との比較のため、 $E_{ion}$  は 0.5 MeV/u とした。更に、 $E_{isa}$  依存性を調べるため、 $H_2O$ 、Ar、 $CH_4$ 、 $N_2$ 、 $O_2$  の様々な標的を取り扱った。

図 1(a) において様々な標的に対して  $\tau$  の関数として  $Y_t/Y_a$  を示した。シミュレーションでは、 $Y_t$  と  $Y_a$  は、それぞれ、トラックポテンシャルを考慮した場合と無視した場合の  $r \sim 10$  nm に二次電子が到着する数に相当する。ここで、 $r$  は重イオンの軌道からの距離を表す。 $r \sim 10$  nm でトラックポテンシャルの効果はほぼなくなることは確認済みである。図 1(a) から、 $Y_t/Y_a$  は、標的材料に、すなわち、 $E_{isa}$  に関係なく、ほとんど  $\tau^{0.5}$  に比例することが分かった [3]。

ここから、 $Y_t/Y_a$  と  $\tau$  の実験における関係を Kimura らの実験値 [1] を用いて議論する。この実験では、 $E_{ion} = 0.5$  MeV/u の  $H^+$ 、 $He^{2+}$ 、 $Li^{2+}$  を KCl 結晶の表面に入射させて、イオンの表面からの距離 ( $r_{ms}$ ) の関数として  $Y_t$  を、更に、イオンの電荷数の二乗の平均値  $\langle q^2 \rangle$  を観測した [1]。また、 $S_p \propto \langle q^2 \rangle$  の関係が成立すると仮定して、 $Y_t/S_p$  の代わりに  $Y_t / \langle q^2 \rangle$  を評価した。まず、 $H^+$  に対する  $He^{2+}$  と  $Li^{2+}$  イオンの  $Y_t / \langle q^2 \rangle$  の比  $R_{Yt} (A^{a+})$  を見積もった。ここで  $A^{a+}$  は  $He^{2+}$  または  $Li^{2+}$  のどちらかを表す。観測値 [1] から  $R_{Yt} (He^{2+})$  と  $R_{Yt} (Li^{2+})$  の両方とも  $r_{ms}$  に対して、ほぼ一定値であることが分かった。 $R_{Yt} (He^{2+})$  と  $R_{Yt} (Li^{2+})$  および  $R_{Yt} (H^+) (=1)$  を  $1 / \langle q^2 \rangle$  の関数として図 1(b) にプロットした。図 1(b) から  $R_{Yt} (A^{a+})$  は  $\langle q^2 \rangle^{-0.5}$

にほぼ比例することが分かった。

$S_p \propto \langle q^2 \rangle$ 、 $Y_a \propto S_p$  から  $\langle q^2 \rangle \propto Y_a$  となるので、 $A^{a+}$  のエネルギーが一定のとき  $R_{Y_t}(A^{a+}) = Y_t / \langle q^2 \rangle \propto Y_t / Y_a$  であることを意味し、更に、 $S_p \propto \langle q^2 \rangle$  の関係から、 $\tau \propto 1 / \langle q^2 \rangle$  の関係が成り立つ。標的が実験とシミュレーションで異なり、更に、シミュレーションで用いた  $E_{is}$  の分布は気体標的から得られたにもかかわらず、 $R_{Y_t}(A^{a+}) \propto Y_t / Y_a$  の関係から  $Y_t / Y_a$  は  $\tau^{0.5}$  に比例することが分かる。上述より、0.5 MeV/u で  $Y_t / Y_a \propto \tau^{0.5}$  の関係が実験結果からも提案することができ、シミュレーション結果の妥当性を確認できた。実験においては、液体標的よりも固体標的のほうが  $Y_t$  の測定は容易である。表面散乱実験から得られる測定値は、標的中の分子の運動は液体と固体で異なるにもかかわらず、液体でのトラックポテンシャルの二次電子への影響を理解するのに役に立つ。それは、 $Y_t / Y_a$  はイオンの照射後、10 fs までに一定になる一方で、液体中の分子は数 ps 経ってから動き出すことに由来する。すなわち、液体でも二次電子と分子の運動を別々に分けて取り扱うことができるからである。

標的の  $\sigma_{ion}$  や  $E_{is}$  分布が普及されれば、トラックポテンシャルを実験で、更に詳細に研究することができる。このようなデータが普及されており、簡単に測定できるような標的を議論すべきである。本報告では、 $q \leq 6$  を取り扱ったが、 $q$  の大きな値は材料科学で重要になるので、 $q$  の大きな値に対する原子分子データも必要となる。

本報告では実験、シミュレーションの両方から得られた重イオン照射におけるトラックポテンシャルの二次電子への影響を定量的に研究した。トラックポテンシャルの影響は主に  $\tau$  によって決定されることがわかった。更に、 $Y_t / Y_a$  と  $\tau$  の関係のシミュレーション結果は計測値と同じ傾向を示すことが分かった。本報告が原子物理や放射線物理の研究者に対して更に詳細なデータを計測する動機となることを望む。

## 謝辞

木村健二教授、土田秀次博士（京大）、赤松憲博士、ジェームスコーガ博士、鹿園直哉博士（量研）に有用な議論に対して感謝したい。本シミュレーションは原子力機構東海研のスーパーコンピュータ ‘PRIMERGY BX900’ を使用した。また、本研究は科学研究補助金（課題番号：25390131）のサポートの基に行った。

## 参考文献

- [1] K.Kimura, et al., Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **193**, 661 (2002).
- [2] K. Moribayashi, Phys. Rev. A **84**, 012702 (2011).
- [3] K. Moribayashi, J. Phys. Soc. Jpn. **86**, 024301 (2017).

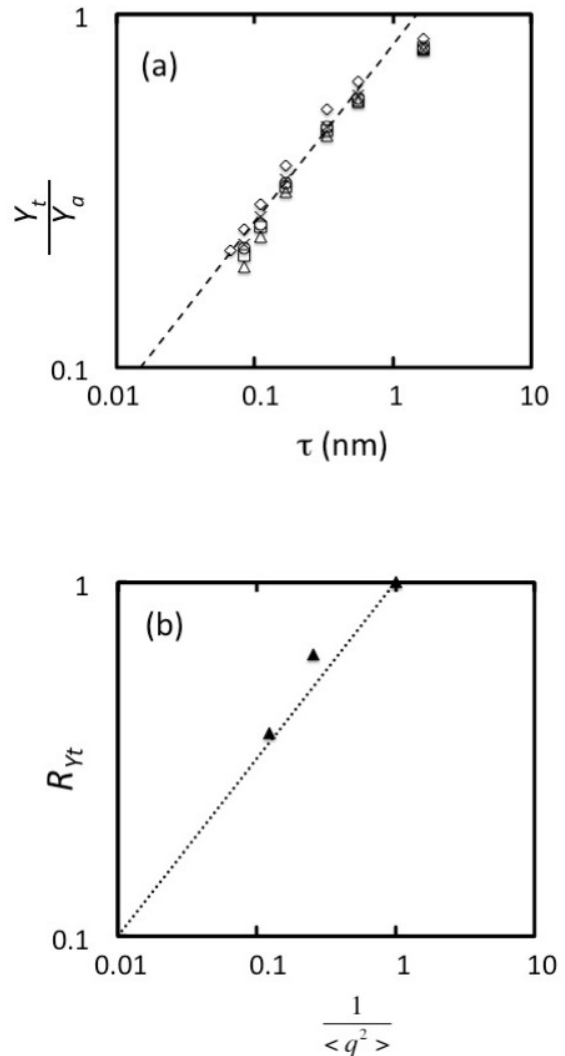


図1 (a)  $Y_t/Y_a$  と  $\tau$  の関係を示したシミュレーション結果。シミュレーションに使用した標的は  $H_2O$  ( $\diamond$ )、 $Ar$  ( $\square$ )、 $CH_4$  ( $\triangle$ )、 $O_2$  ( $\times$ )、 $N_2$  ( $\circ$ ) である。破線は  $Y_t/Y_a = \sqrt{\tau/\tau_0}$  を示し、 $\tau_0 = 1.5$  nm である。(b)  $R_{Y_t}$  ( $\blacktriangle$ で示す) と  $1/\langle q^2 \rangle$  との関係。点線は  $\langle q^2 \rangle^{-0.5}$  の増加関数を示す。

# 分子動力学シミュレーションによる DNA ミスマッチ修復タンパク質 MutS のミスマッチ DNA および正常 DNA の認識メカニズム解析

石田 恒、松本 淳

量子生命科学研究部 生体分子シミュレーショングループ

DNA ミスマッチ修復は DNA 複製、組換えなどで生じるミスマッチを修復することでゲノム安定を維持する。DNA ミスマッチ修復の欠陥があると、突然変異率や癌化が有意に増加する。DNA ミスマッチ修復は、原核生物由来の MutS (真核生物由来の MSH2-MSH6) がミスマッチ DNA に結合することで始まる。MutS-ミスマッチ DNA 複合体は、MutL 分子シャペロンや MutH エンドヌクレアーゼと相互作用することで、下流の修復過程を活性化する。MutS は低い結合能ながら正常 DNA に結合する。これは、MutS がミスマッチを見つけるために DNA 上を走査していることを示唆する。MutS は DNA の塩基-塩基ミスマッチ、対のない塩基、小さな挿入・欠失ループを認識し、効率的に結合する。MutS は正常 DNA に比べて約十から千倍程度ミスマッチ DNA に結合するが、MutS の DNA 結合によるミスマッチ DNA と正常 DNA の初期認識だけでは、世代別塩基対あたり  $10^{-6}$  から  $10^{-8}$  というミスマッチ修復過程の高効率性は説明できない。MutS の適度な結合能のわりに高い修復能を獲得しているのは、MutS の ATP アーゼ活性を用いてミスマッチ認識を検証し、下流の修復過程への移行を許可するためと考えられている。

MutS はホモ 2 量体として機能を発揮する (図 1)。それぞれのモノマー (MutS S1、S2 と呼ぶ) は 6 つの構造領域からなる: ミスマッチ認識領域 (アミノ酸残基 1-115)、コネクション領域 (アミノ酸残基 116-266)、コア領域 (アミノ酸 267-443, 504-567)、クランプ領域 (アミノ酸残基 444-503)、ヌクレオチド (ATP アーゼ) 結合領域 (アミノ酸残基 568-765)、ヘリックス-ヘリックス-スターン領域 (アミノ酸残基 766-800)。バクテリアの MutS はホモ 2 量体を形成するが、DNA に結合すると MutS 2 量体は対称性を失う。結晶構造では、それぞれのサブユニットは異なる立体構造をとり、MutS S1 のみがミスマッチ塩基と特別なコンタクトをしている。この MutS 2 量体の顕著な特徴はミスマッチ認識領域と ATP アーゼ領域の距離が約 60 Å もあることである。しかしながら、この 2 つの領域がどのような情報伝達メカ

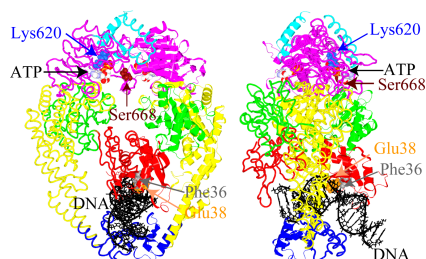


図 1 MutS-ミスマッチ DNA 複合体の初期構造。MutS S1 (右) と S2 (左) はそれぞれリボンおよびチューブモデルで示している。機能に重要なアミノ酸残基 Lys620, Ser668, Glu38, Phe36 は CPK モデル (それぞれ青、赤、茶、黄) で示している。ミスマッチ認識、コネクション、コア、クランプ、ATP アーゼ、ヘリックス-ヘリックス-スターン領域はそれぞれ、赤、緑、黄、青、紫、水色で、MutS に結合した DNA は黒のボール・スティックモデルで表示している。

ニズムを有しているのかはよく分かっていない。

どのように MutS がミスマッチ DNA を認識し、ATP を用いて DNA 修復反応を誘導するのかを理解するために、MutS (ヌクレオチド ADP、ATP の結合あり、なし) と DNA (ミスマッチ塩基対あり、なし) の複合体のダイナミクスを分子動力学シミュレーションを用いて解析した。それぞれの系は約 20 万原子で、全体として 3.75  $\mu$ s の分子動力学シミュレーションを実行した。このような大規模系を扱うため、MutS-DNA 複合体の構造変化解析には、研究室で開発した分子動力学シミュレーションシステムである SCUBA を用いた。DNA に関しては、正常 DNA の塩基対構造と MutS の DNA 認識部位が不安定な相互作用をすることが分かった。MutS に関しては、DNA 修復誘導に不可欠であるが、ATP アーゼ領域にある構造を持たないループが、ヌクレオチドが MutS に結合している (していない) ときには、ATP アーゼ領域のヌクレオチド結合部位に接近 (離れる) ことが分かった。このことは ATP 結合により、ATP アーゼ領域が構造を持たないループを用いて ATP アーゼ領

域の構造安定性を変えることを意味している。

異なる反応状態の MutS-DNA 複合体の全体的運動を理解するため、原子ゆらぎの主成分解析を実行した。この手法により、大きな生体分子（タンパク質や DNA）の生物学的に重要な運動は低振動モードの重ね合わせで表現できることが分かっている。しかしながら、MutS がもつ多くの領域が、互いにどのような協同的な運動をしているのかを定量的に理解するのは難しい。このように、単純に相関マトリクスから全体運動を解釈するのは簡単ではない。本研究では、ATP アーゼ領域と DNA が互いにどのように関連して運動しているのかを理解するために、低振動モードの原子運動を DynDom3D（英国、東アングリア大学および本研究室にて開発）を用いて解析した。DynDom3D による構造変化解析により、ヌクレオチド結合が ATP アーゼ領域を構造的に固くすること（図 2）、および DNA の大きな曲げ運動が高振動から低振動へシフトすることが分かった。二つのヌクレオチドが結合した MutS-ミスマッチ DNA 複合体では、DNA の低振動の曲げ運動が次の DNA 修復反応を誘導するスライディングクランプ形成を促すと考えられる。

更に、DNA ミスマッチ認識メカニズムを理解するために、MM-PBSA/GBSA 法を用いて結合自由エネルギーを求めた。これにより、MutS-正常 DNA 複合体が2つのヌクレオチドに結合すると、MutS と DNA の間に好ましくない相互作用が生じるため不安定化することが分かった。この場合、MutS は DNA から解離したり ATP 加水分解がおこるため、MutS はミスマッチ塩基探索を再開できると考えられる。反対に、2つのヌクレオチドが MutS-ミスマッチ DNA 複合体に結合すると構造が全体的に安定化するが、MutS S1 と S2 の間のクランプ領域同士の相互作用は不安定化することが分かった（図 3）。この相互作用は次の DNA 修復反応に必要なスライディングクランプ形成に寄与すると考えられる。

以上、MutS-DNA 複合体の系の様々なダイナミクスが異なる反応状態を認識するための分子スイッチとして働くことが分かった。ヌクレオチド結合による MutS-ミスマッチ DNA および MutS-正常 DNA 複合体のダイナミクス変化という分子スイッチ機構が次の DNA 修復反応、もしくは DNA 走査の違いを生むための本質をなしていると考えられる。これらの結果から、次の DNA 修復反応に対する MutS の機能メカニズムモデルを提唱した（図 4）；(a) MutS はミスマッチ DNA にも正常 DNA にも結合する。(b) 正常 DNA が MutS に結合した場合、MutS と DNA は原子揺らぎが大きくなり不安定化する。MutS は DNA から解離し、最初の反応状態に戻る。(c) ミスマッチ DNA が MutS に結合した場合、MutS と DNA の原子揺らぎは大きくなるが、安定状態を保持する。(d) 更に ATP が MutS-ミスマッチ DNA 複合体に結合すると、MutS のクランプ領域が不安定化する。これによりスライディングクランプが形成され、MutL および MutH と相互作用するようになることで次の DNA 修復反応に進む。

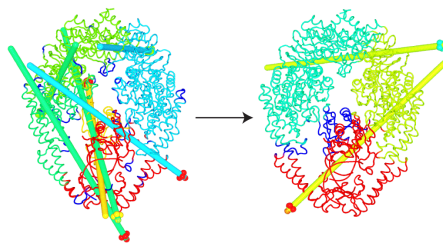


図 2 DynDom3D による解析された MutS-ミスマッチ DNA 複合体の運動変化（左：ATP なし、右（ATP あり）。矢印は ATP アーゼとミスマッチ認識領域の間の運動の関連性を示す。異なる運動領域は異なる色で示している。運動領域と判定されなかった領域は濃い青で示している。

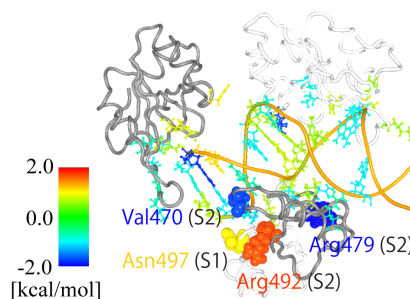


図 3 ATP 結合なし及びありの MutS-ミスマッチ DNA 複合体の相対的結合自由エネルギー成分の色別マップ。ATP 結合の方が安定化（不安定化）する領域を青（赤）で示した。MutS-ミスマッチ DNA 複合体の表示を簡単化するため、MutS のミスマッチ認識、クランプ領域および DNA のみを示している。

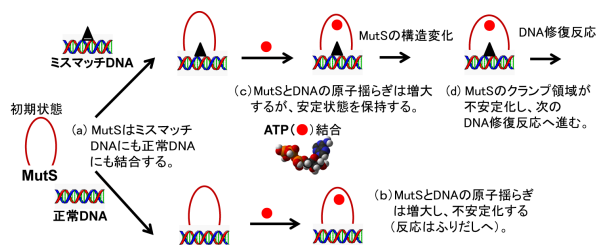


図 4 MutS 機能モデル (a) MutS のミスマッチ DNA および正常 DNA への結合 (b) MutS-正常 DNA 複合体への ATP 結合 (c) MutS-ミスマッチ DNA 複合体への ATP 結合 (d) 次の DNA 修復反応

不安定化する。これによりスライディングクランプが形成され、MutL および MutH と相互作用するようになることで次の DNA 修復反応に進む。

## 参考文献

[1] H. Ishida and A. Matsumoto, *Proteins* **84**, 1287-1303 (2016).

# 金触媒 GaAs 量子細線の構造多形形成メカニズム

高橋 正光

放射光科学研究センター コヒーレント X 線利用研究グループ

金などの金属液滴を触媒として成長する半導体量子細線は、次世代光・電子デバイスや高効率太陽電池などへの応用可能性とともに、その異方的な形状により、結晶成長の観点からも注目を集めている。III-V 族ナノワイヤについて、結晶成長の観点から興味深い現象の一つは構造多形の形成である。GaAs の安定な結晶構造はバルクの状態では閃亜鉛鉱構造 (ZB) であるが、ナノワイヤとして成長させるとウルツ鉱構造 (WZ) が形成されやすい。この現象には、成長中の局所的な条件の変化や非平衡状態の関与が推測される。したがって、構造多形の形成メカニズムの解明にはその場測定が必要である。

放射光施設 SPring-8 の量研機構ビームライン BL11XU において、MBE 成長その場 X 線回折を用いて実験を行った [1], [2]。X 線回折によれば、ピーク位置から閃亜鉛鉱構造とウルツ鉱構造は明瞭に区別される。また、ピーク間にも表面垂直方向に伸びる有限の散乱強度が観測され、積層欠陥の分布に関する情報が得られる。図 1 は、GaAs ナノワイヤの成長にともなう [1, L] 方向に沿った X 線回折プロファイルの変化のようすである。GaAs ナノワイヤは、はじめ閃亜鉛鉱構造の形成で始まり、成長開始後 120 秒ころから、ウルツ鉱構造が現れる [3]。

このような結晶構造の遷移を理解するため、熱力学的な核形成理論に基づく考察を行った。図 2 に示したように、ナノワイヤの先端部に半円形で近似される成長核が形成するとき、AuGa 触媒と GaAs 結晶内での Ga の化学ポテンシャルの差を  $\Delta\mu$ 、成長核の底面とナノワイヤ先端面の積層エネルギーを  $\sigma$ 、成長核の端面が形成するときのエネルギーの増加を  $\Gamma$  とすると、臨界核半径を越えて成長する安定な成長核が生成するために乗り越えるべきエネルギー障壁は、以下で与えられる：

$$\Delta G^* = \frac{\Gamma^2}{2\pi(\Delta\mu - \sigma)} \quad (1)$$

成長核が生成するとき、成長核の構造と、それまでのナノワイヤの結晶構造との関係によって、 $\sigma$  と  $\Gamma$  が異なるので、エネルギーバリアに違いがある。簡単のため、最近接の関係だけを考えると、成長核と基板の構造の組み合わせは、ZB/ZB, ZB/WZ, WZ/ZB, WZ/WZ の 4 通りである。それぞれの場合に、まず  $\sigma$  は、バルク中の

積層欠陥エネルギーを計算した文献 [4] の値を使うことができる。次に、 $\Gamma$  については、触媒液滴と結晶固体の界面における  $\gamma^{SL}$  と、触媒液滴と気相の界面における  $\gamma^{SV}$  に分けて、

$$\Gamma_i = 2\gamma^{SV} + \pi\gamma^{SL} \quad (2)$$

のように書かれる。 $\gamma^{SV}$  については、更に、成長核が形成される場所を考慮する必要がある。成長核が触媒内部で形成されるときは、 $\gamma^{SV}$  は (111) 面のステップエネルギー  $\gamma_{ZB}^{SV}$  に等しい。しかし、成長核が VLS 界面で形成される場合、ウルツ鉱構造の側面エネルギーは閃亜鉛鉱構造の側面エネルギーよりも小さいため、その分  $\gamma_{ZB}^{SV}$  よりも  $\gamma^{SV}$  は低下する。よって、成長核が VLS 界面で形成する割合を  $\chi$  とし、 $\Gamma$  は

$$\Gamma_i = 2\chi\gamma_i^{SV} + 2(1-\chi)\gamma_{ZB}^{SV} + \pi\gamma^{SL} \quad (3)$$

のように書かれる。以上のようにして、成長核の種類ごとに  $\sigma$  と  $\Gamma$  を決め、エネルギーバリアを求めると、それぞれの成長核が生成する確率を次のように計算できる。

$$p_i = \frac{Z_i \exp(-\Delta G_i^*/kT)}{\sum Z_i \exp(-\Delta G_i^*/kT)} \quad (4)$$

この確率にしたがってナノワイヤを原子層ごとに成長させていき、それからの X 線回折プロファイルを計算した。図 3 は、 $\gamma^{SV}$  の値が、 $\gamma_{ZB/ZB} = \gamma_{ZB/WZ} > \gamma_{WZ/ZB} = \gamma_{WZ/WZ}$  であるとして計算されたシミュレーションの結果である。すなわち、成長核の端面のエネルギーはナノワイヤの結晶構造とは関係なく、成長核自身が ZB か WZ かだけで決まると仮定している。成長条件を表す  $\Delta\mu$  の値を変えてみても、図 1 に示した測定結果とはまったく一致しない。実験結果を再現するためには、それまでの結晶構造を変化させるような成長核ができるとき、より高い端面エネルギーを与える必要がある。図 4 は、 $\gamma_{ZB/ZB} = \gamma_{ZB}^{SV} = 7.46\text{meV}/\text{\AA}$ 、 $\gamma_{WZ/WZ} = 2.98\text{meV}/\text{\AA}$  に対して、 $\gamma_{ZB/WZ} = \gamma_{WZ/ZB} = 10\text{meV}/\text{\AA}$  としたときのシミュレーション結果である。実験結果との一致が著しく向上していることが分かる。このことから、結晶構造を



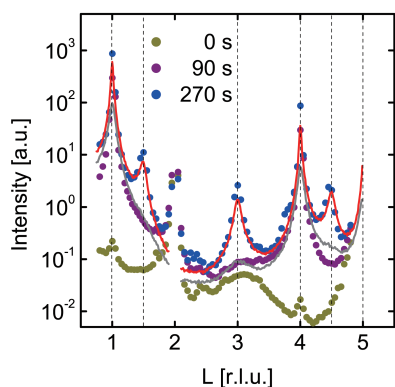


図1 GaAs ナノワイヤの成長にともなう X 線回折プロファイルの変化のようす

変化させるような成長核の形成には、10 meV/Å 程度のエネルギー損失があることが明らかとなった。

GaAs ナノワイヤの成長において形成される結晶構造が、成長段階が進むにつれて閃亜鉛構造からウルツ鉱構造に遷移していく理由を考察する。図4では、成長条件の変化が $\Delta\mu$ によるものと仮定し、触媒液滴の形状をあらわすを一定としている。この場合は、 $\Delta\mu$ の増大と共にウルツ鉱構造ができやすくなるが、測定された X 線回折プロファイルの変化をあまりよく再現できていない。そこで、 $\Delta\mu$ を一定値とし、 $\chi$ を

$$\chi = 1 - \exp(-n/150) \quad (5)$$

のように、ナノワイヤを構成する原子層  $n$  とともに 0 から 1 まで増加させることにすると、図1に実線で示したように、実験結果をよく説明する結果を得た。このことは、次のような成長過程を反映したのものとして理解することができる。ナノワイヤ成長前は、触媒液滴は平らな基板表面上に存在している。したがって、成長前は明らかに  $\chi = 0$  である。やがてナノワイヤが成長してくると、側面が発達し、 $\chi > 0$  の値をとるようになる。同様の考察により、成長時の基板温度や成長速度の構造多形への影響も理解することができた [5]。

III-V 族半導体ナノワイヤの形成メカニズムについて、放射光 X 線回折を用いたその場測定に基づき議論した。触媒液滴とナノワイヤの界面構造の原子レベルでの理解などが今後の課題である。

## 参考文献

- [1] M. Takahasi, et al., Jpn. J. Appl. Phys. **41**, 6247 (2002) .
- [2] M. Takahasi, J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 021011 (2013) .
- [3] M. Takahasi, M. Kozu, T. Sasaki and W. Hu, Cryst. Growth Des. **15**, 4979 (2015).

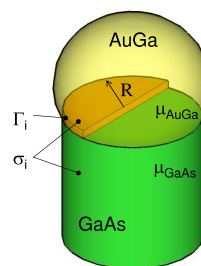


図2 ナノワイヤ先端に形成される成長核。

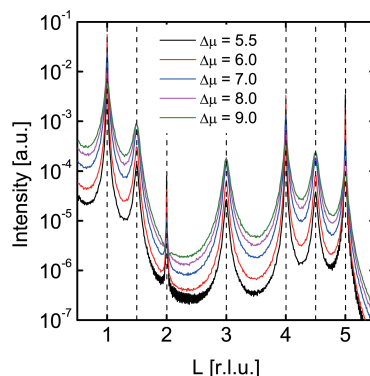


図3 X 線回折プロファイルのシミュレーション結果。  
 $\gamma_{ZB/ZB} = \gamma_{ZB/WZ} > \gamma_{WZ/ZB} = \gamma_{WZ/WZ}$  を仮定

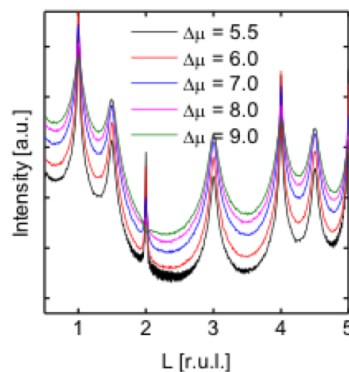


図4 X 線回折プロファイルのシミュレーション結果。  
 $\gamma_{ZB/WZ} = \gamma_{WZ/ZB} > \gamma_{ZB/ZB} > \gamma_{WZ/WZ}$  を仮定

- [4] C. Panse, D. Kriegner and F. Bechstedt, Phys. Rev. B **84**, 075217 (2011).
- [5] M. Takahasi, M. Kozu and T. Sasaki, Jpn. J. Appl. Phys. **55**, 04EJ04, 6878 (2016).

# 放射光を用いた高速原子 2 体分布関数 (PDF) 測定と 負の熱膨張材料研究への応用

綿貫 徹、町田 晃彦

放射光科学研究センター 高圧・応力科学研究グループ

原子 2 体分布関数 (PDF) 法は、不均質系や構造に乱れのある系など、理想的な結晶ではない物質・材料の構造解析に適している。ドーピングや置換を行っている物質系では、通常の X 線結晶解析で得られる平均化された単位胞の構造からは物性を説明することができず、局所構造歪や短距離秩序などの平均構造からのずれがその性質の鍵を握る場合がしばしば生じる。量研機構の装置ではこの PDF 測定を高速で行うことが可能であり [1]、まず、その紹介を行なう。

次に、負の熱膨張材料研究への応用例を紹介する。最近では、昇温によって体積収縮を起こす 1 次構造相転移を利用して、従来よりも大きな負の熱膨張係数を示す材料が開発されている [2]。ビスマス系ペロブスカイト酸化物  $\text{BiNiO}_3$  を母物質として、これにドーピングや部分置換を行うことによって、転移温度を調整するとともに、1 次相転移を幅広い温度で徐々に起こるようにして負の熱膨張を実現している。最近、 $\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x\text{NiO}_3$  について、置換効果を検証したところ、電荷秩序を伴う構造秩序化がナノ領域のみで起こることによって 1 次相転移が鈍化していることが分かった。即ち、マクロには電荷配列がランダムな電荷ガラス状態が出現していることが分かった [3]。

我々は、大型放射光施設 SPring-8 のビームライン BL22XU において、PDF の高速測定 [4] を行っている [1]。数 Å から 100 Å までにおよぶ距離スケールでの局所構造情報を、最速でサブ秒の X 線照射によって取得できる。PDF  $G(r)$  は実空間原子配列の自己相関関数の一種であり、例えば、Bi のまわりの特定の距離に酸素が配位していれば、その距離  $r$  で  $G(r)$  はピークを形成する。PDF は周期性とは無関係に定義・導出されるものであるため、通常の結晶解析では得られない局所構造情報が取得できる。

測定技術面では、PDF は散乱ベクトルが大きな高  $Q$  までの粉末 X 線全散乱データをフーリエ変換することによって得られる。BL22XU では、短波長高エネルギーの放射光 X 線を試料に照射し、試料からの X 線全散乱を大面積の 2 次元検出器で一度に検出することにより PDF の高速測定を可能としている (図 1)。入射 X 線には 70

keV ( $\lambda = 0.177\text{\AA}$ ) の単色 X 線を用い、検出面積 400 mm × 400 mm の 2 次元検出器 (イメージングプレートおよび時分割フラットパネル検出器) で受光することにより、高  $Q$  までの全散乱データ ( $Q_{max} = 27\text{\AA}^{-1}$ ) を取得する。実空間情報  $G(r)$  の分解能は  $\Delta r = 0.23\text{\AA}$  に至る。図 2 には、標準試料の Ni について、1 秒の X 線照射で得た PDF データを示す。PDF が幅広い距離範囲に渡って高精度に得られていることが分かる。

ビスマス系ペロブスカイト酸化物は新しいタイプの負の熱膨張材料である。負膨張の駆動力は電荷移動であり、従来のフォノン起源とは異なる新しい機構を持つ [2]。母物質  $\text{BiNiO}_3$  は高圧下で昇温によって体積が縮む 1 次相転移を起こす。体積の小さい相では、価数状態  $\text{Bi}^{3+}\text{Ni}^{3+}\text{O}_3$  をとるのに対して、体積の大きい相では Bi と Ni 間で電荷移動が起こり  $\text{Bi}_{0.5}^{3+}\text{Bi}_{0.5}^{5+}\text{Ni}^{2+}\text{O}_3$  となる。このとき Bi は  $\text{Bi}^{3+}$  と  $\text{Bi}^{5+}$  とに電荷分離を起こし、且つ、 $\text{Bi}^{3+}$  と  $\text{Bi}^{5+}$  との配列の秩序、つまり、電荷秩序が形成される。結晶構造は電荷秩序とともに低対称化し、斜方晶 (空間群:  $Pbnm$ ) から三斜晶 (空間群:  $P\bar{1}$ ) へと変化する [2]。

$\text{BiNiO}_3$  の Bi を Pb に部分置換した  $\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x\text{NiO}_3$  について置換効果を調査していたところ、一つの謎に突き当たった。Pb の置換量を増やし、 $x \leq 0.2$  の領域では 1 次転移が大幅に鈍化され、 $x = 0.25$  では 500 K 近傍で 50 K の温度範囲に渡って負の熱膨張が起こるようになる。この時、結晶構造が低対称化せず斜方晶 (空間群:  $Pbnm$ ) のままで格子体積の変化が起こっていることが結晶解析から示された。負の熱膨張を引き起こす電荷秩序が起こっていれば、結晶構造の対称性が変化するのが通例であるが、相反する結果が得られたのである [3]。

本研究では、ナノ領域の構造に鍵があると考え、 $\text{Bi}_{0.75}\text{Pb}_{0.25}\text{NiO}_3$  試料について PDF 解析を行った。その結果、ナノ領域では結晶構造の低対称化が起こり、局所的に電荷秩序が形成されていることが判明した。対称性が低下しない斜方晶モデル (空間群:  $Pbnm$ ) と、対称性が低下する三斜晶モデル (空間群:  $P\bar{1}$ ) のそれぞれについて、試料の PDF と比較したところ、 $r \leq 15\text{\AA}$  の領域で三斜晶モデルの方が良い一致を見せ、局所領域に

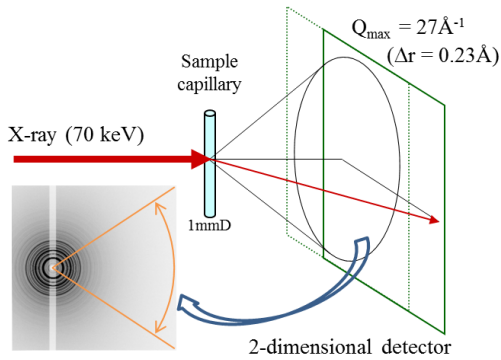


図1 SPring-8 BL22XUにおける高速PDF測定のご概念図

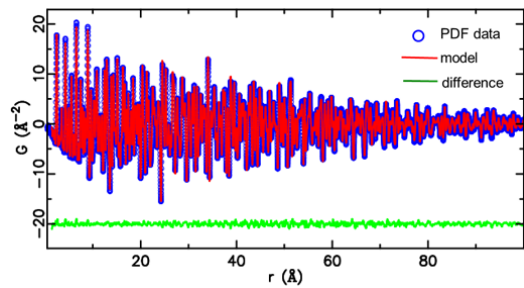


図2 標準試料 Ni 粉末について 1 秒の X 線照射から得られた PDF データ

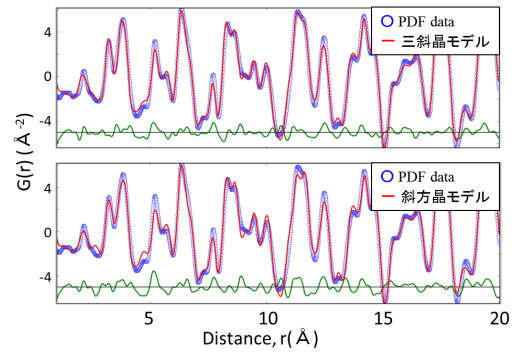


図3 Bi<sub>1-x</sub>Pb<sub>x</sub>NiO<sub>3</sub> の PDF データと三斜晶モデル (上図) および斜方晶モデル (下図) との比較。

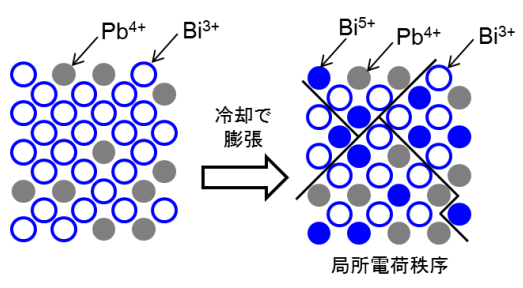


図4 Bi<sub>1-x</sub>Pb<sub>x</sub>NiO<sub>3</sub> の負の熱膨張前後の高温相と低温相における Bi の電荷配列の模式図。

おける対称性の低下が決定付けられた (図 3)。例えば、 $r \sim 2\text{\AA}$  付近の  $G(r)$  のピーク構造は Bi/Pb と隣接する酸素との間の距離を反映したもののだが、斜方晶モデルではダブルピークとなるところが、三斜晶モデルでは、単一ピークに近い構造となり、実際の試料の PDF をよく再現している。なお、電荷秩序に伴う Bi の電荷分離が起こっていることは、光電子分光などの実験からも確認されている [3]。

局所的には電荷秩序に伴う低対称化が起こる一方で、置換した Pb に障害されることにより電荷秩序はマクロには発達しない。結晶解析における高い対称性の結果は、マクロ平均構造を反映したものである。一つの電荷秩序の領域は  $15\text{\AA}$  程度、即ちユニットセル 2 つ分程度であり、これらがランダムに配列した構造となっている (図 4)。つまり、マクロの視点では、電荷配列がランダムな電荷ガラス状になっていることが判明した [3]。

謝辞

本稿の研究の一部は、光・量子融合連携研究開発プログラム「エネルギー貯蔵システム実用化に向けた水素貯蔵材料の量子ビーム融合研究」の支援を受けて行っている。負の熱膨張材料研究は東京工業大学応用セラミック研究所東研究室との共同研究である。

参考文献

- [1] H. Kim, K. Sakaki, H. Ogawa, Y. Nakamura, J. Nakamura, *et al.*, *J. Phys. Chem. C* **117**, 26543 (2013).
- [2] M. Azuma, W-t. Chen, H. Seki, M. Czapski, S. Olga, *et al.*, *Nature Communications* **2**, 347 (2011)
- [3] K. Nakano, K. Oka, T. Watanuki, M. Mizumaki, A. Machida, *et al.*, *Chem. Mater.* **28**, 6062 (2016).
- [4] P. J. Chupas, X. Qiu, J. C. Hanson, P. L. Lee, C. P. Grey and S. J. L. Billinge, *J. Appl. Crystallogr.* **36**, 1342 (2003).

# イリジウム添加による $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜の Morin 転移温度の制御

—斜入射 <sup>57</sup>Fe Mössbauer 分光による反強磁性薄膜の研究—

三井 隆也

放射光科学研究センター 磁性科学研究グループ

室温で垂直磁気異方性を示す  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜は、スピントロニクス素子の重要な構成要素と成ることが期待されている。この研究では、斜入射放射光 <sup>57</sup>Fe Mössbauer 分光法 (GISRMS) を  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 超薄膜におけるスピントロニック転移 (Morin 転移) の観測に適用し、Morin 転移温度が微量のイリジウムの添加により大きく上昇することを見出した。また、反強磁性秩序が不純物添加や薄膜化に対し十分安定であることも分かった。これらの結果は、GISRMS が様々な試料環境下における磁性薄膜の磁気特性を容易にかつ迅速に測定できる大変強力な実験手法であることを示す。

$\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は、 $T_N = 677$  °C という非常に高い反強磁性転移温度を持った磁性鉄酸化物である。バルクの  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ではスピントロニック転移が  $T_M \sim -10$  °C で起こり、Morin 転移と呼ばれる。 $T_M$  以下では磁気容易軸が六方晶の  $c$  軸に平行なのに対し、 $T_M$  以上では  $c$  面が磁気容易面になる [1]。また、 $T_M$  以上では Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用による弱強磁性が観測される。一方、磁気モーメントが膜面に垂直な  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜は近年のスピントロニクス素子における有望な構成要素である。Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は電場制御型の垂直スピン素子の候補物質であり、その Néel 温度を隣接した垂直磁気  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> が上昇させる可能性が指摘されているからである [2]。したがって、 $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の  $T_M$  を室温より大きく上昇させたいという要求が存在している。

Morin 転移は双極子-双極子相互作用と一イオン型の異方性の微妙な競合の結果である。様々な形態 (多結晶や単結晶、微粒子、薄膜) の  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> について Morin 転移の研究があり、 $T_N$  や  $T_M$ 、 $\Delta T_M$  (転移幅) が粒子サイズや結晶性に影響されることが示されている。 $T_M$  はまた、微量の不純物添加により容易に制御できる。0.1% 程度の Ti の置換は  $T_M$  を大きく減少させるのに対し、1% の Ir 置換は  $T_M$  を室温以上に上昇させる [3]。実際、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (0001) 基板上に製膜したイリジウム添加した“厚い”  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜 (150 nm 厚) の磁気モーメントが (0001) 膜面に室温で垂直であることが近年報告されている [4]。しかしながら、実用的には数 nm から数十 nm の  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜が必要とされており、こうした

超薄膜の  $T_M$  を実験的に確認する必要がある。

シンクロトロン放射光を用いた Mössbauer 分光法、特に <sup>57</sup>Fe 核モノクロメーターを用いたそれは、超薄膜の磁気特性を評価するのに極めて強力な手法である。直線偏光し、僅か 10 neV のバンド幅の <sup>57</sup>Fe-Mössbauer X 線は、純核回折を利用して生成される。その高輝度ビームを利用して、鉄基薄膜に対する斜入射放射光 Mössbauer 分光 (Grazing Incidence Synchrotron Radiation Mössbauer Spectroscopy: GISRMS) が可能になる [5]。この手法はフォトンイン-フォトンアウトの分光法であるため高温等の様々な実験環境下で実施できる。測定時間は同位体線源を用いた従来法と比べて格段に短い。ここでは  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 超薄膜の  $T_M$  に対するイリジウム添加の影響を 400 °C までの高温下での GISRMS を用いて調べた [6]。

イリジウム添加した  $c$  面配向エピタキシャル  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜 (20 nm 厚) は、 $c$  面 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 基板上に高周波マグネトロンスパッター法で製膜した [4]。酸化物膜を製膜するため、Ir-Fe 合金ターゲットを酸素アルゴン混合雰囲気下でスパッターする反応性スパッタリング法を用いた。合金ターゲットの組成は Fe:Ir = 99.9:0.1 であった。基板温度は製膜中 500 °C に保った。基板の大きさは  $19 \times 18 \times 0.4$  mm<sup>3</sup> であった。

GISRMS 実験は SPring-8 の BL11XU で行った。実験配置を図 1 に示す。挿入光源から出た入射 X 線は、前置モノクロメーターで約 2 eV まで単色化され、続いて高分解能モノクロメーターにより約 2.5 meV まで単色化される。最後に、<sup>57</sup>FeBO<sub>3</sub> (111) 単結晶の純核回折を利用して、バンド幅 15.4 neV の 14.4 keV (<sup>57</sup>Fe 核の共鳴エネルギー) の  $\pi$  偏光した <sup>57</sup>Fe-Mössbauer X 線が生成される [6]。イリジウム添加した  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜は真空電気炉の銅製ステージに置かれ、 $\pi$  偏光した入射ビームは電子の全反射臨界角 (0.19) より十分小さい  $\theta = 0.14$  で試料表面に入射された。X 線の侵入深さは 3.5 nm と計算される。この条件下では、反射強度は電子散乱により支配されており、斜入射 Mössbauer スペクトルはよく知られた“吸収型”のプロファイルとなる。イリジウム添加した  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜の  $T_M$  と  $T_N$  を評価するために、

27 °C から 400 °C までの温度範囲で Mössbauer スペクトルを測定した。真空は測定中は 13 Pa に保った。十分な統計のスペクトルを得るための測定時間は約 5 時間であった。

図 2 にイリジウム添加  $\alpha$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$  薄膜の Mössbauer スペクトルの温度依存性を示す。全てのスペクトルは一種類の磁気六重項スペクトルでフィット出来た。図 2 を一見して 27 と 100 °C のスペクトルに 4 本しかピークが無いことが分かる。 $^{57}\text{Fe}$ -Mössbauer 分光法には厳密な選択則があり、磁気六重項は四重項 ( $\Delta m = \pm 1$  遷移) と二重項 ( $\Delta m = 0$  遷移) に分けられる。ここで  $\Delta m$  は遷移に伴う鉄核スピンの磁気量子数の変化量である。 $\Delta m = \pm 1$  遷移は鉄磁気モーメント、したがって鉄核における有効磁場が X 線の磁場と垂直な時に許容であり、これに対し、 $\Delta m = 0$  遷移は鉄磁気モーメントが X 線の磁場と平行な時に観測される。したがってこの 2 つのスペクトルから鉄磁気モーメントが膜面に垂直であることが分かる。何故なら図 1 に示すように、 $\pi$  偏光した X 線の磁場は膜面に平行だからである。反対に、150 °C 以上のスペクトルは明瞭な 6 本線のスペクトルを示し、この結果は、鉄磁気モーメントが膜面に寝ていることを示している。つまり、 $T_M$  は -10 °C から僅か 0.1% のイリジウム置換で大きく上昇し、100 °C と 150 °C の間に移った訳である。

スペクトルのフィッティングから得られるパラメータは、内部磁場 ( $B_{hf}$ ) と四重極シフト (QS)、センターシフト (CS) の 3 つである。 $B_{hf}$  は鉄磁気モーメントの大きさの目安であり、六重項スペクトルの幅に比例する。図 2 を見ると分かるように、スペクトルの幅、したがって  $B_{hf}$  は温度上昇に伴って緩やかに減少している。この  $B_{hf}$  の温度依存性はバルクの  $\alpha$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$  とほぼ同じであり、また、400 °C での  $B_{hf}$  の値も 43.4 T と十分大きい。この結果から、反強磁性秩序は薄膜にしても 400 °C までは弱くなっていないことが分かる。この結論は、図 2 の全スペクトルが良く分解された磁気分裂パターンを示し、その線幅も細いことから補強される。

まとめると、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  (0001) 基板上に製膜した (0001) 配向した 0.1% イリジウム添加  $\alpha$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$  超薄膜についてその Morin 転移を高温下での GISRMS で調べた。この研究での重要な結論はイリジウム添加  $\alpha$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$  超薄膜は高い  $T_M$  ( $> 100$  °C) と高い  $T_N$  ( $< 400$  °C) を持っていることである。この結果は  $\alpha$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$  薄膜の実用化に対して前向きな結果と言える。更にこの研究では、GISRMS は非常に感度が高く、反強磁性試料の有用な磁気特性を簡便に取得できることを示した。したがって GISRMS は様々な試料環境下における超薄膜の研究に対し大変強力な実験手法と結論できる。

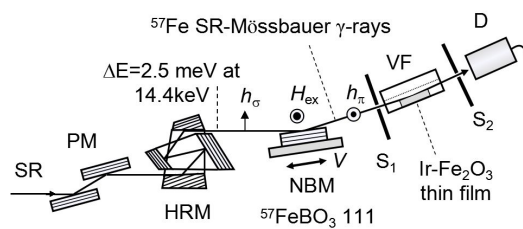


図 1  $^{57}\text{Fe}$ -GISRMS の実験配置図。SR: シンクロトロン放射光、PM: Si (111) 前置モノクロメーター、HRM: 高エネルギー分解能モノクロメーター、NBM:  $^{57}\text{FeBO}_3$  核モノクロメーター、Hex: NBM 用の 150 Oe の外場、VF: 真空電気炉、S1: スリット 1.0 mm 全開、S2: スリット 1.0 10 mm<sup>2</sup>、D: NaI(Tl) 検出器。 $h_i$  ( $i = \sigma, \pi$ ) は X 線の磁場ベクトル。NBM は  $\sigma$  偏光した放射光 X 線を  $\pi$  偏光した  $^{57}\text{Fe}$  Mössbauer X 線に変換する。

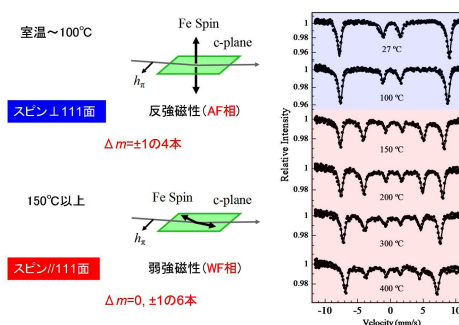


図 2 イリジウム添加した  $\alpha$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$  薄膜の斜入射放射光  $^{57}\text{Fe}$  Mössbauer スペクトルの温度変化。100 °C 以下ではスペクトルは 4 本線のみを示し、磁気モーメントが膜面に垂直なことを示している。150 °C 以上ではスペクトルは通常の 6 本線スペクトルを示し、磁気モーメントが膜面内にあることに対応している。

## 参考文献

- [1] F. J. Morin, Phys. Rev. **78**, 819 (1950).
- [2] Y. Kota, H. Imamura, and M. Sasaki, IEEE Trans. Magn. **50**, 2505404 (2014).
- [3] S. Krehula, et al., J. Alloys Compd. **545**, 200 (2012).
- [4] N. Shimomura, et al., J. Appl. Phys. **117**, 17C736 (2015).
- [5] T. Mitsui, et al., J. Synchrotron Radiat. **19**, 198 (2012).
- [6] T. Mitsui, et al., J. Phys. Soc. Jpn. **85**, 063601 (2016).

# 超伝導体 PrFeAsO<sub>0.7</sub> におけるスピン - 軌道励起の 共鳴非弾性 X 線散乱研究

野村 拓司<sup>1)</sup>, 原田 慈久<sup>2)</sup>, 丹羽 秀治<sup>3)</sup>, 石井 賢司<sup>1)</sup>,  
石角 元志<sup>4)</sup>, 社本 真一<sup>5)</sup>, I. Jarrige<sup>6)</sup>

<sup>1)</sup> 放射光科学研究センター

<sup>2)</sup> 東大物性研, <sup>3)</sup> 筑波大, <sup>4)</sup> CROSS, <sup>5)</sup> 原子力機構, <sup>6)</sup> ブルックヘブン国立研

最近、固体における様々な励起を観測する強力な手段として、共鳴非弾性 X 線散乱 (RIXS) が発達してきた。特に、遷移金属の吸収端における RIXS は、遷移金属化合物における相関の強い d 電子の電子ダイナミクスを研究する有用な方法となっている。本研究で採用する L 吸収端の RIXS では、2p 電子が遷移金属 d バンドに遷移させられるが、2p 軌道は強いスピン軌道相互作用によって  $j = 1/2$  二重項と  $j = 3/2$  四重項に分裂しているの、遷移させられた電子は一般にスピンについて分極している。それ故に、d バンド上に磁気的な励起を誘起することが可能である。通常の RIXS 実験のように入射および放出 X 線がともに線形に偏光している場合、スピンと軌道を合わせた全角運動量は保存しなければならないので、d 電子系の軌道角運動量も変化させられる。こうして、留意すべきことは、L 吸収端 RIXS ではスピン反転励起と非対角的な軌道の励起といった電子励起が可能であることである [ここで、終状態で励起されている電子とホールの軌道が同じものを (異なるもの) を対角的 (非対角的) な軌道の励起と呼んでいる。]

L 吸収端 RIXS は多くの銅酸化物、特に銅酸化物高温超伝導体に適用され磁気と軌道の励起を観測することに成功してきた。一方で、我々の知る範囲では L 吸収端 RIXS は鉄ニクタイトや鉄カルコゲナイドに対してこれまで殆ど実施されてこなかった。鉄系超伝導体では、第一原理電子構造計算によれば、鉄 d 軌道の各々がフェルミエネルギー (EF) 近傍の状態密度 (DOS) の主要な部分を占めている。それ故に、低エネルギーの電子励起は原理的に銅酸化物高温超伝導体 (ここでは、Cu-d( $x^2 - y^2$ ) 軌道のみが EF 近傍で支配的である) のそれとは著しく異なっている。特に、Fe-d(yz) と d(xz) 軌道が関与した軌道揺らぎが鉄ニクタイトにおける超伝導に重要な役割を果たしていると示唆されている。このことから、これらの物質における軌道の励起を L 吸収端 RIXS を用いて研究することが必要となる。本レポートでは、典型的な鉄系超伝導体で PrFeAsO<sub>0.7</sub> に対する L 吸収端 RIXS の研究について説明する。[1]

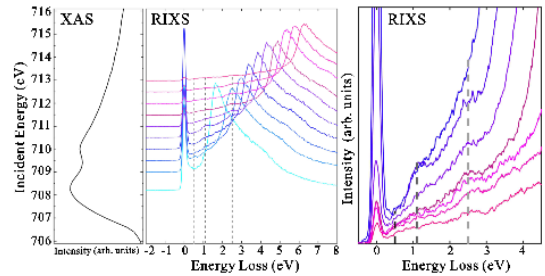


図 1 TFY で測定した Fe-L<sub>3</sub> XAS スペクトル (最左図) と吸収端を横断するいくつかの入射エネルギーで測定された PrFeAsO<sub>0.7</sub> の RIXS スペクトル (中央図)。最右図は PrFeAsO<sub>0.7</sub> の RIXS スペクトルの低エネルギー部分をオフセットなしで拡大したものである。

RIXS スペクトルは SPring-8 のビームライン BL07SU の X 線分光器 HORNET にて集積した。エネルギー解像度は Fe-L<sub>3</sub> 端で 230 meV で、これは分解能としては  $E/\Delta E \approx 3000$  である。X 線吸収スペクトル (XAS) は全蛍光収量法 (TFY) で測定した。試料は、いわゆる 1111 系に属しており、ZrCuSiAs 型構造に結晶化し、空間群 P4/nmm で特徴づけられる正方晶系である。この試料では、最適ドーパ量は電子ドーパ量が 0.6 で、 $T_c$  は 42 K となる。散乱実験の配置は弾性散乱ピークの強度を最小化するように選んだ。分光器のアームの角度は、水平散乱面にある入射 X 線に対して 90 度の角度に配置し、入射 X 線の偏光方向は常に水平方向、つまり、 $\pi$  偏光になるように配置した。全てのデータは室温で観測した。PrFeAsO<sub>0.7</sub> に対し、L<sub>3</sub> 端を横断するようにいくつかの入射エネルギー  $E_{inc}$  の X 線で観測した RIXS スペクトルを図 1 に示している。縦軸のオフセットは XAS スペクトルのエネルギー軸に合わせている。RIXS スペクトルは  $E_{inc} = 708$  eV に対して 1.5 eV 付近に顕著な構造を示し、それは  $E_{inc} = 713$  eV で ~ 6.5 eV まで移動する。これは、典型的な蛍光の振る舞いで、鉄ニクタイトだけでなく、金属鉄やその他の鉄化合

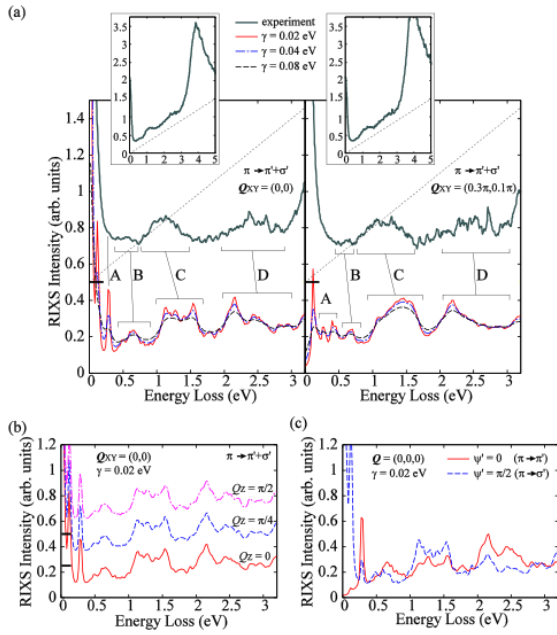


図2 (a) 観測された RIXS 構造を計算結果と比較。左右のパネルは X 線の面内の運動量変化が  $Q_{xy} = (0,0)$  と  $(0.3\pi, 0.1\pi)$  の場合に対応する。(b) 面間の運動量変化  $Q_z$  への依存性の計算結果。 $Q_z = \pi/4$  と  $\pi/2$  に対する基底線は上下にずらしている。(c) 放出 X 線偏光方向への依存性の計算結果。

物でも観測される。このピークは  $3d_{5/2} \rightarrow 2p_{3/2}$  遷移の蛍光に対応する  $La_1$  放出線であると考えられる。この蛍光線が高エネルギーにずれると、低エネルギーの裾の 0.5 eV、1-1.5 eV、2-3 eV 付近に構造が現れる。これらは入射エネルギーに依存しない励起エネルギーを持っている。これらの構造はとても小さいが、1111 鉄系超伝導体において鉄 L 吸収端 RIXS の励起を初めて明瞭に観測できたことが重要である。

RIXS スペクトルの低エネルギー部分をオフセットなしで拡大したものが、図1の最右図である。PrFeAsO<sub>0.7</sub> に対してははっきりとラマン的な構造の存在が確認される。これらの構造を解釈するために理論計算を実施した。計算の枠組みは最先端の第一原理電子構造計算を基礎にして構築されたものである [2]。理論計算の RIXS スペクトルを図2に示す。そこでは、実験結果との比較も行っている。図2で実験で観測された構造 B、C、D が計算によってうまく再現されている。ここで、電子間クーロン相互作用として中相関  $U=3$  eV を仮定したが、この値は、他の理論研究とも整合する値である。理論計算と実験結果との整合に基づいて、微視的なレベルでこれらの構造がどの鉄 d 軌道間の電子励起に対応しているのかわかるにすることができる。更に、我々の計算によれば、1 マグノン励起とスピン反転を伴う軌道の励起が 0.5 eV 以下の低励起エネルギーで現れるべきことが

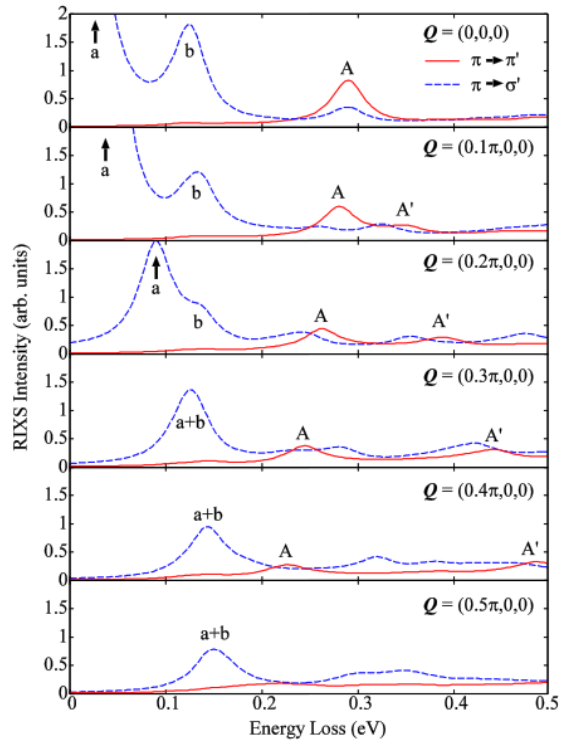


図3 低エネルギー RIXS スペクトルの X 線運動量変化への依存性 (計算結果)。X 線運動量変化  $Q$  は [100] 方向に沿って変化させている。

分かる。またそれらは、X 線の運動量変化について、分散を持つべきことが示される (図3)。これらの低エネルギーの励起は今回の実験では分解能の限界によって観測できなかった。これらの低エネルギーの RIXS スペクトルのピークは、これまで実験で観測されたことがないような波数空間における特徴的な分離と合流の振る舞いを示すことが予想される。実験装置のさらなる進歩によって、これらの低エネルギーでの特徴的な振る舞いが観測され、鉄ニクタイト高温超伝導の対形成メカニズムを明らかにする手がかりが得られるものと期待される。

## 参考文献

- [1] T. Nomura, Y. Harada, H. Niwa, K. Ishii, M. Ishikado, S. Shamoto, and I. Jarrige, Phys. Rev. B **94**, 035134 (2016).
- [2] T. Nomura, J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 094704 (2015).

# Formation of x-ray Newton's rings from nanoscale spallation shells of metals in laser ablation

Masaharu Nishikino, Noboru Hasegawa, Tetsuya Kawachi and Tohru Suemoto

X-ray Laser Group, Department of Advanced Photon Research

The dynamical processes of laser-induced irreversible phenomena such as laser ablation have been attracting considerable attention for microfabrication (cutting, boring, welding, etc.) using ultra-short laser pulses [1],[2]. Femtosecond (fs) laser processing can be applied to micro- and nanometer fabrication of various materials, including metals, semiconductors, and insulators. To realize and improve precision microfabrication techniques using fs laser pulses, a deep understanding of the fundamental processes of laser-matter interaction is important.

Several studies on time-resolved imaging of fs laser ablation have been performed using various materials to understand the relevant ablation dynamics [3]-[6]. During fs laser ablation of metals and semiconductors, transient interference fringes of Newton's rings (NRs) were observed by Sokolowski-Tinten [3]-[6] using a visible ( $\lambda \sim 620$  nm) probe. Refs. [3]-[6] attribute the NRs to the interference between the reflected probe pulses from the thin layer of the spallation shell and the remaining sample surface, as shown in Fig. 1(a).

When a solid sample is excited with an ultra-short pulse laser, a thin film is peeled off by the tensile stress wave and detached from the sample surface. This phenomenon is known as the "spallation" in laser ablation at an irradiation fluence around the ablation threshold. Assuming a refractive index of unity for the space between the spallation shell and the substrate, the optical path difference between the two reflected beams is defined as  $2dsin\theta$ , as in Fig. 1(b).

In a previous experiment [4], an optical laser was used to probe the spallation dynamics. The structure of NRs resulting from the formation of a dome with the spallation shell is observed on the nanosecond time scale and micrometer depth scale. However, the optical probe cannot survey regions where the plasma density exceeds the critical density. Therefore, the dynamics of fs laser ablation in the very early time stages remain unknown.

In contrast to optical light probes, soft x-ray probes have a higher spatial resolution due to the 40 times shorter wavelength, and can penetrate and diagnose the inside of the high-density electron plasma because the critical density for propagation is proportional to  $\lambda^{-2}$ . Since soft x-rays around 100 eV have the shortest penetration depth for solids and their reflectivity critically depends on the atomic density and roughness of the interface, soft x-rays are the most suitable

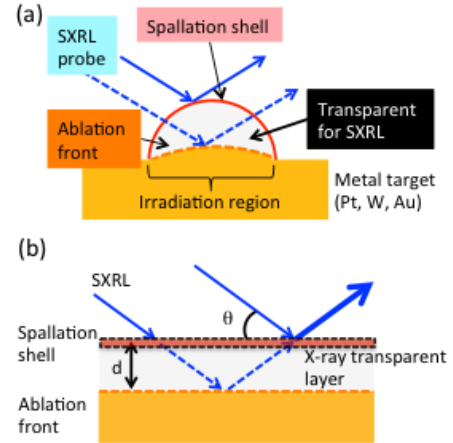


Figure 1: (a) Schematic view of the interference between the reflections from the spallation shell and the ablation front, generating NRs. (b) Interference between two surfaces.

for observing solid surface morphology. The initial stages of the femtosecond (fs) laser ablation process of gold were observed by a single-shot soft x-ray imaging technique [7].

The x-ray reflection images were observed by the fs-laser pump and XRL probe imaging system [8]. The accuracy of the fs laser probe timing is less than 3 ps according to the real-time monitoring system. A highly coherent soft XRL with a wavelength of 13.9 nm (89.2 eV) was used as probe beam. The output of the XRL beam is sufficient to obtain an x-ray reflection image in a single-shot event. The pulse width of the XRL was about 7 ps full width at half maximum (FWHM). The metal samples were 100-nm-thick films evaporated on fused silica substrates. The XRL probe beam had a grazing angle of  $20^\circ$  for the sample surface in the experimental setup. The x-ray reflection image was transferred by a molybdenum/silicon (Mo/Si) multi-layered spherical mirror with a magnification factor of 20 and obtained by an x-ray CCD camera. A Ti:Sapphire laser with 80 fs pulses (FWHM) and a central wavelength of 795 nm was used as pump beam. The linearly polarized pumping laser pulse was focused by a lens onto the sample surface at a nearly normal incidence.

The irradiation profile has a Gaussian distribution,



and the focal spot diameter (FWHM) on the sample surface is about  $100\ \mu\text{m}$ . The peak fluence of irradiance is  $1.4\ \text{J}/\text{cm}^2$ . The time-evolution of the surface shape was obtained by varying the delay time between the pump fs laser beam and the probe XRL beam with an optical delay stage. The sample was laterally shifted for every shot to get a fresh surface. The temporal resolution of the x-ray imaging system was determined by the length of the soft x-ray pulse. Although the x-ray pulse width is longer than that of the fs pump source, it is sufficient to observe an individual laser ablation event. Thus, we observed single-shot reflection images with an x-ray CCD camera using an x-ray reflectometer.

Figure 2, which depicts typical soft x-ray images with concentric rings in the fs laser ablation region, shows the temporal evolution of the x-ray reflection image of Au at 317 and 607 ps after  $1.4\ \text{J}/\text{cm}^2$  fs laser irradiation. All the x-ray images are approximately triply expanded in the horizontal direction to compensate for the distortion arising from the x-ray grazing incidence. Several concentric bright rings appear inside the dark circular structure of a crater, and the number of concentric rings increases with the delay time from  $t =$  about 200 to 700 ps. The bright rings become narrower toward the edge, and the space between the outer rings is also smaller than that at the central part of the crater. Since these characteristics are very similar to those reported for the Newton's rings in the visible region [3]-[5], the observed rings are definitely assigned to Newton's rings, which, to the best of our knowledge, is the first observation in the soft x-ray region.

From the pattern of the concentric rings, the spallation shell seems to have a dome-like structure. Beyond a delay of 700 ps, the concentric rings disappear, and the dark shadow of the laser-ablated crater finally appears. The generation of NRs may be attributed to the interference between the soft x-rays reflected by the spallation shell and the ablation front behind it, as shown in Fig. 1. The distance between the two surfaces is obtained from the fringe position of NRs. When the outermost ring is defined as the first ring, as in the case of a dome structure on the laser-ablated sample surface, the interference condition is calculated as  $m\lambda = 2d\sin\theta$ . Under this condition, a one-period fringe shift corresponds to a height of 20.3 nm for an incident grazing angle of  $20^\circ$ . Figure 3 shows the temporal evolution of the estimated lateral profiles of the spallation shell dome as deduced from the NRs together with their quadratic fitting curves. The edges of the quadratic fits are connected to the observed crater edge position at 45 micrometers. The pump beam profile is also shown in Fig. 3. The ablation threshold is estimated to be about  $0.7\ \text{J}/\text{cm}^2$ . The spallation speed of the expansion shell at the center position is estimated to be approximately 160 m/s.

In conclusion, we observed direct images of soft x-ray NRs originating from a nanoscale spallation shell dome and deduced the mechanism of NR generation, which involves a very thin, smooth spallation shell

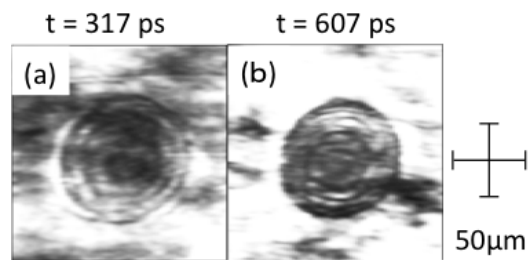


Figure 2: Soft X-ray Newton's ring image of Au at (a) 317 and (b) 607 ps and infinity. The ring structure is recognized in the pattern of the whole image.

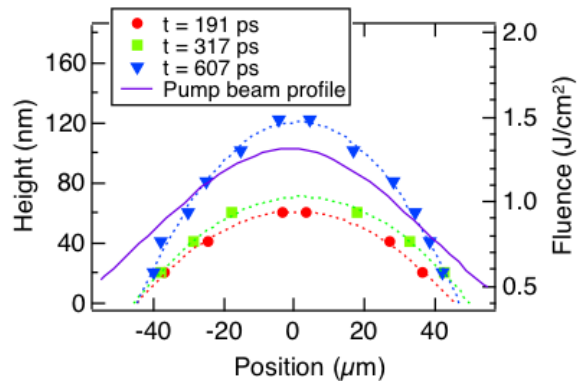


Figure 3: Estimated spatial distribution of Au at 191, 317, and 607 ps by quadratic fitting of the position of Newton's rings and the distribution of the pump beam fluence.

that breaks away from the sample surface.

## References

- [1] S. K. Sundaram and E. Mazur, *Nat. Material* **1**, 217 (2002).
- [2] R. R. Gattas and E. Mazur, *Nat. Photonics* **2**, 219 (2008).
- [3] D. von der Linde, K. Sokolowski-Tinten, and J. Bialkowski, *Appl. Surf. Sci.* **109-110**, 1-10 (1997).
- [4] K. Sokolowski-Tinten et al., *Phys. Rev. Lett.* **81**, 224-227 (1998).
- [5] K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, A. Cavalleri, and D. von der Linde, *Appl. Surf. Sci.* **127-129**, 755-760 (1998).
- [6] D. von der Linde and K. Sokolowski-Tinten, *Appl. Surf. Sci.* **54-155**, 1-10 (2000).
- [7] M. Nishikino et al., *AIP Advances* **7**, 015311 (2017).
- [8] N. Hasegawa et al., *Proc. of SPIE* **8140**, 81400G (2011).

# High-speed remote inspection method for diagnosis of the defects inside lining concrete using laser technologies

Noboru Hasegawa, Masaharu Nishikino, Katsuhiro Mikami and Tetsuya Kawachi

X-ray Laser Group, Department of Advanced Photon Research

The current mainstream method of inspecting the defects inside concrete is a Hammering test, where the concrete is diagnosed by the change of sound when an examiner knocks on the concrete with a hammer. The Hammering test is a simple and highly reliable method; however, it requires a long inspection time and is dangerous because it is a contact-type inspection. Development of remote and high-speed inspection method is in progress. In this study, we have improved the Laser hammering method (LHM), which is a new inspection method, to make the Hammering test remote and automated using laser technologies.

A schematic of LHM is shown in figure 1. Two laser systems, a hammering laser and laser vibrometer, are used for the remote sensing of the defects inside lining concrete. The hammering laser is equivalent to a hammer in the Hammering test. It is a high-power pulse laser, which can cause a concrete wall to vibrate remotely via surface ablation. A laser vibrometer is equivalent to the examiner's ears, and measures the slight vibration of the concrete surface. The surface vibration is measured by frequency modulation (Doppler shift) of the light reflected from the vibrated surface using the laser interferometer [1],[2]. The scheme of LHM has been developed and shown effective in the inspection of defects inside a lining concrete by the West japan railway company (JR West), Railway technical research institute (RTRI), and Institute for laser technology (ILT) [3]. The results of LHM are highly compatible with those of Hammering test, because the scheme and measurement frequency range of vibrations are the same in both. However, the repetition rate of measurement by LHM was approximately 1 Hz, the same as Hammering test. Improvement in the inspection speed is required for practical use. We have improved the inspection speed of LHM in collaboration with ILT by developing a high-power pulse laser with high-repetition rate and a high-speed laser vibrometer with high-speed scanning unit. We have succeeded in demonstrating the inspection of a simulated defect inside the concrete sample by using high-speed LHM at 25 Hz [4]-[7].

A schematic of a high-speed LHM system is shown in figure 2. The inspection speed of the LHM is limited in the following terms: repetition rate of hammering laser, scan speed of scan unit, and measurement rate of laser vibrometer with ruling engine for defect. In this study, these devices were improved. In a sim-

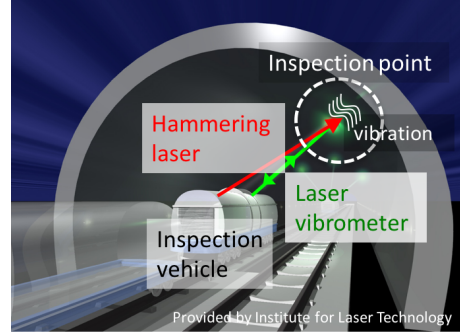


Figure 1: Inspection of the defects inside the tunnel lining concrete by Laser Hammering Method (LHM).

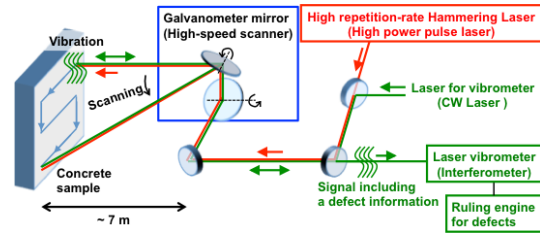


Figure 2: High-speed inspection system for defects in concrete.

ple estimation, if the inspection speed is improved to 50 Hz, screening examination will be possible every 220 mm over a 1 km length tunnel with a 7 m radius in less than 3 h.

A schematic of the high repetition-rate hammering laser is shown in figure 3(a). The hammering laser requires the following characteristics: a pulse of less than  $1 \mu\text{s}$  with output energy larger than 1 J, which is enough to cause the concrete wall to vibrate by the reaction of surface ablation, focusing ability at more than 7 m away from its position for remote sensing, simple layout for outdoor use, low running cost, and high repetition-rate (50 Hz). We have developed the flash lamp pumped Nd:YAG laser with a 1064 nm wavelength with simple layout as the maintenance-free hammering laser. In a high repetition-rate and high power laser, wave-front distortion by the thermal lens effect generated from thermal distribution in Nd:YAG rod creates serious problems in terms of focusing ability and laser-induced damage for optics.

In this laser, the good focusing ability of the wave front at the position near the oscillator is transferred to each position (star marks in figure 3(a)) by the image tubes. By the adjustment of the image tube lens pairs, the thermal lens effect was reduced to not affect the performance of the laser (figure 3(b)). At under 50 Hz operation, an output energy of 1.2 J was obtained, and more than 90 % of the energy remained concentrated in a focal spot at a position 7 m away from focal lens (figure 3(c)).

The Nd:YVO<sub>4</sub> CW laser was used as a laser vibrometer, at 532 nm wavelength, and combined with the hammering laser via the dichroic mirror. Each laser was transferred to the sample concrete surface 7 m away by galvanometer mirrors (high-speed scanning unit). Lightweight and high-stiffness SiC based large aperture (50 mm) optics were used in the Galvanometer mirrors for high-speed and highly precise drive, along with efficient measurement of scattered laser light from the concrete surface. The time required for moving a laser beam 33 mm (5 mrad) at a position of 7 m ahead was only 5 ms (= 1 rad/s), including acceleration and deceleration time [8]. Under the maximum speed setting, a time of 7 ms is required for 220 mm of movement. A time of approximately 20 ms is required to measure the vibration of the sample 7 m ahead of the laser's position, and the total time of measurement for one point was 25 ms. Therefore the measurement of over 25 Hz was enabled.

The results of a 25 Hz inspection of the concrete sample by high-speed LHM are shown in figure 4. A simulated defect (Styrofoam of thickness 5mm) was set inside the concrete sample at a depth of 10 mm. Figure 4(a) shows the vibration spectra at the position of without (green line) and with (red line) defect. The frequency range of measurement was smaller than 20 kHz, the same as that of a human's ear. At the 'without defect' position, vibration signal was weak and almost flat, showing there was no specific structure. On the other hand, a strong peak of the spectrum at 2 kHz frequency was observed at the position with a defect. It shows a resonant wave between the vibration wave, which occurred at the surface, and reflected wave from the density gap inside the concrete (= defect). Using a high-speed LHM system, the observation of this strong peak of spectrum was used for diagnosis of defects. The results of defect visualization inside the concrete sample are shown in figure 4(b). The domain surrounded by a white dotted line shows the defect diagnosed by traditional Hammering test, and white circles show the inspection points by LHM. The red area shows the defect diagnosed by LHM, proving we have successfully obtained good agreement between the results of LHM and Hammering tests.

We have improved the inspection speed of LHM for remotely sensing defects inside lining concrete. Remote inspection with a 25 Hz repetition rate succeeded in identifying and visualization a simulated defect in a concrete sample.

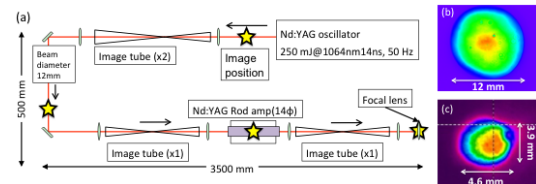


Figure 3: (a) Schematic of hammering laser (50 Hz, 1J Nd:YAG laser). (b) Beam pattern at the output position of Nd:YAG rod. (c) Focusing pattern at the position 7 m away from focal lens.

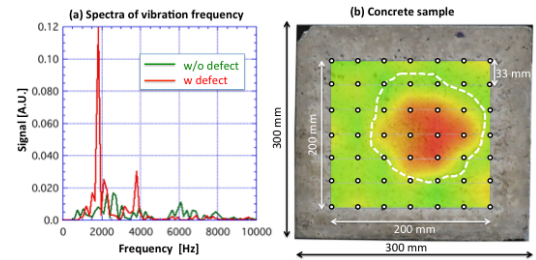


Figure 4: (a) Vibration frequency spectra. (b) Inspection result of the concrete sample.

## Acknowledgement

This work was supported by Development of high-specification non-destructive inspection method for infrastructure constructions with laser technology (representative: Dr. Katsumi Midorikawa in RIKEN) in Council for Science, Technology, and Innovation, "Cross-ministerial Strategic Innovation Promotion Program (SIP), Infrastructure Maintenance, Renovation, and Management." (funding agency: JST)

## References

- [1] Y. Shimada: Inspection engineering, Vol. 11, No. 9, pp. 8-14, 2006.
- [2] M. Shinoda et al.: RTRI REPORT Vol. 23, No. 12, Dec. 2009.
- [3] N. Misaki: Doctoral thesis, Department of Civil and Earth Resources Engineering, Kyoto Univ. 2015.
- [4] N. Hasegawa: CHEMISTRY, Vol. 71, No. 3, pp.72-73, 2016.
- [5] N. Hasegawa et al: Inspection engineering, vol. 22 No. 3, pp.57-61 2017.
- [6] K. Mikami, et al.: LSSE8-3 invited, LSSE2015.
- [7] <https://www.jaea.go.jp/02/press2015/p16011101/>
- [8] T. Kitamura et. al: ILT Annual progress report, No. 28, pp.36-38, 2016.

# Theoretical study on the laser-matter nonlinear interaction

Tomohito Otake

Ultrafast Dynamics Group, Department of Advanced Photon Research

Recently, a high-order harmonic generation (HHG) in the solid state has attracted great interests as a new short wavelength light source and an observation method of the physical properties [1]. Although HHG in a solid is of interest in electronic excitations, details of the physical process are unclear. On the other hand, due to the development of attosecond science, transient absorption spectroscopy is expected to clarify the nonlinear ultrafast phenomena [1]. However, a new physical interpretation is important as prior models have not reproduced the experimental results.

New theories and numerical approach are needed to elucidate these nonlinear and ultrafast electronic dynamics. The description of the electronic ground state can be calculated by density functional theory (DFT). On the other hand, the electronic dynamics can be described by time-dependent density functional theory (TDDFT) [3], which has successfully reproduced many nonlinear ultrafast phenomena. In this study, we present numerical calculations for HHG in solid and transient spectroscopy by an attosecond light pulse.

Figure 1 shows the numerical result for HHG in  $\alpha$ -quartz when the laser wavelength is set to 800 nm. The laser intensity in the  $\alpha$ -quartz is assumed to be  $8 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>. We set the polarization direction parallel to the optical axis. The applied electric field (red-dashed line) and the induced electronic current (blue line) are shown in Fig. 1(a), while Fig. 1(b) presents the Fourier transformation of the current corresponding to HHG.

To understand HHG in solids, it is important to elucidate the contribution of the inter- and intra-band transitions. Figure 2 shows HHG by the full calculation (red line) and the intra-band transition (blue-filled). The contribution of the intra-band transition is clearly a minor effect. From the comparison between HHG spectrum and the band structure, HHG is attributed to the recombination between electrons around the bottom of the conduction band and holes. The above results are reported in Physical Review B [4].

We studied numerical pump-probe transient spectroscopy using TDDFT and analytical theory. Our results showed an intense subcycle modulation of the optical properties under an intense linear polarized laser [5]. In this study, we extend the theory to elliptic polarized lasers [6].

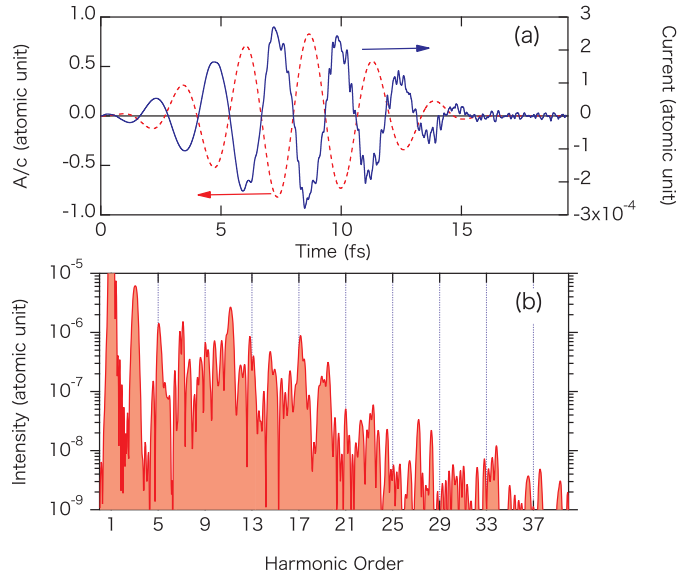


Figure 1: (a) Laser field and the induced current. (b) Spectrum of the electronic current.

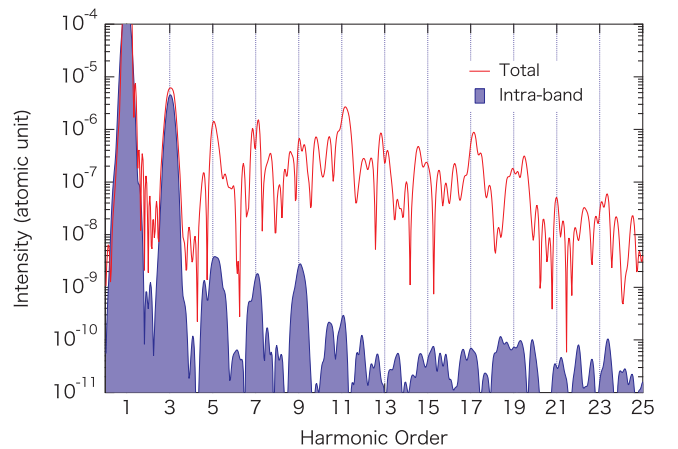


Figure 2: (a) Laser field and the induced current. (b) Spectrum of the electronic current.

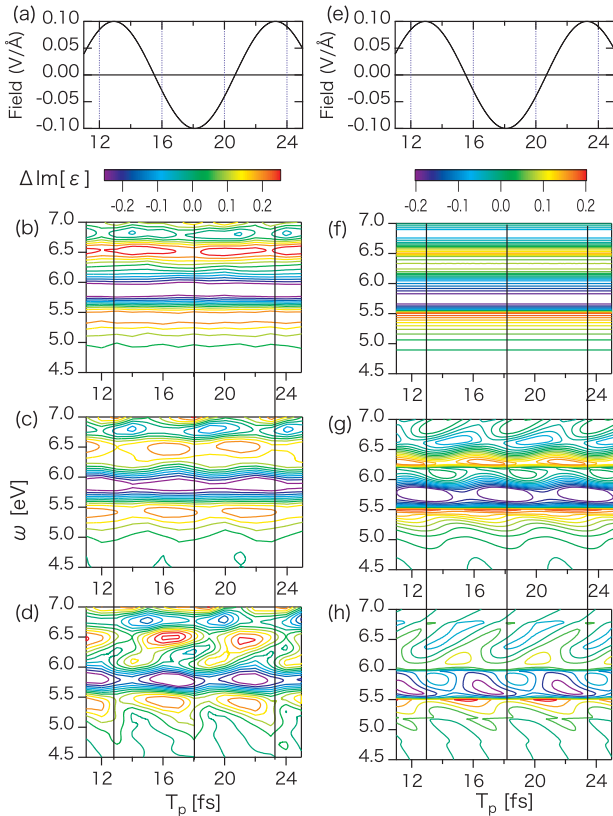


Figure 3: Polarization dependence in transient spectroscopy. (a) and (e): Electric field of the linearly polarized pump. (b) and (f): Circular polarization. (c),(g) Elliptic polarization. (d) and (h): Linear polarization

Figure 3 shows the results by TDDFT (left panels) and analytical theory (right panels) for diamond. Panels (a) and (e) show the linear polarized pump laser field, where the vertical solid lines represent the peak of the electric field. The modulation of the imaginary part of the dielectric function is shown as the contour plot in panels (b)-(d) and (f)-(h). In our calculations, the optical band gap is 5.6 eV. The intense subcycle modulation under a linear polarized laser (panels (d) and (h)) becomes weaker as the ellipticity increases. Of particular note is that the time-dependence disappears in the circularly polarization case ((b) and (f)). The analytical theory shows a good qualitative agreement with TDDFT.

The derived analytic formula corresponds to the response of the Floquet states. Therefore, the subcycle transient spectroscopy can be understood as the response of the many Floquet states (Dressed states), including their phase at the probe time. This effect has been observed experimentally by attosecond spectroscopy [7]. A similar effect has been found in transient spectroscopy of the excitonic state under a terahertz field [8].

We elucidated the physical processes in HHG and transient spectroscopy by numerical simulations. Some experiments indicated a laser induced subcycle modulation. We would like to extend the program

to explore new functional materials. Our numerical method is also suitable to study the initial state of laser processing. We are planning to explore the development of a new efficient processing method.

## Acknowledgement

This work was supported by JSPS KAKENHI (Grant No. 15H03674). Numerical calculations were performed on the supercomputer SGI ICE X at the Japan Atomic Energy Agency (JAEA).

## References

- [1] S. Ghimire, *et al*, Phys. Rev. Lett. **107**, 167407 (2011).
- [2] M. Schultze, *et al*, Nature **493**, 75 (2013)
- [3] E. Runge and E. K. U. Gross: Phys. Rev. Lett. **52** (1984) 997.
- [4] T. Otobe, Phys. Rev. B **94** 235152 (2016).
- [5] T. Otobe, Y. Shinohara, S. A. Sato, and K. Yabana, Phys. Rev. B **93**, 045124 (2016).
- [6] T. Otobe, Phys. Rev. B **94** , 165152 (2016) .
- [7] M. Lucchini, *et al*, Science **353**, 916 (2016) .
- [8] K. Uchida, T. Otobe, *et al*, Phys. Rev. Lett. **117**, 277402 (2016).

# Palm-size Blood Glucose Sensor

Koichi Yamakawa

Laser Medical Applications Group, Department of Quantum Beam Life Science

Diabetes mellitus affects more than 415 million people worldwide, and the number is increasing. According to the World Health Organization (WHO), more than 80% of diabetes-related deaths occur in low- and middle-income countries, making this disease a global challenge. True non-invasive glucose measurement procedures are presently unavailable to diabetic patients. There have been many different approaches without useful results. We propose a new concept to measure the glucose level non-invasively based on a high-power mid-infrared laser. To date, a precision of  $\pm 20\%$  has been achieved in the glucose concentration range from 60 mg/dL to 180 mg/dL using in vivo monitoring, which meets the requirements of the ISO 15197 standard.

Light from a pulsed optical parametric oscillator pumped by a Q-switched microchip Yb:YAG laser (see Fig. 1) with a tuning range between 8-10  $\mu\text{m}$  was focused onto a human finger (see Fig. 2). Laser light was maintained incident to the skin at a peak power of less than 1 kW. Backscattered light from the skin was coupled directly to a commercial photodetector. Since the newly developed microchip Yb:YAG laser has a high heat capacity, the repetition rate of the laser pulses is very high (100 pulses in one second), and no more than six seconds are necessary, providing a fast testing experience. Our uniquely designed micro-cavity Optical Parametric Oscillator produces very short duration pulses, which realize a one billion higher intensity than that of black body radiation. These pulses are large enough to penetrate into the skin layer and be absorbed by glucose molecules in blood at a sufficient resolution.

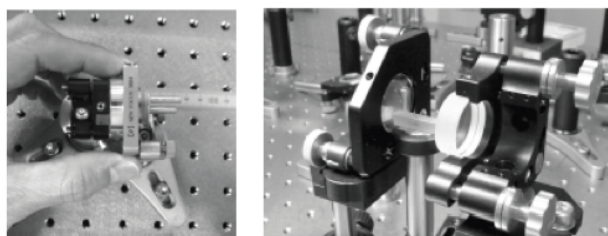


Figure 1: Microchip Yb:YAG laser (left), optical parametric oscillator (right).

The glucose concentration in blood of healthy volunteers was modulated using a standard oral glucose tolerance test (OGTT), as shown in Fig. 3. The nu-

merical values for a subject's blood glucose concentration level were obtained using a commercial electrochemical meter prior to the optical experiment.

A precision of  $\pm 20\%$  in the glucose concentration range from 61 mg/dL to 198 mg/dL by in vivo monitoring meets the requirements of the ISO 15197 standard; 100% of the measured values with a real blood glucose level above 75 mg/dL are in the  $\pm 20\%$  range, and 100% of the values below 75 mg/dL are in the  $\pm 15$  mg/dL range (Fig. 4).



Figure 2: Palm-Size Blood Glucose Sensor.

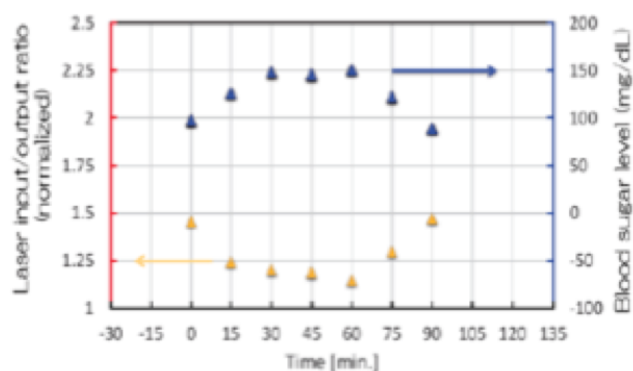


Figure 3: Oral glucose tolerance test.

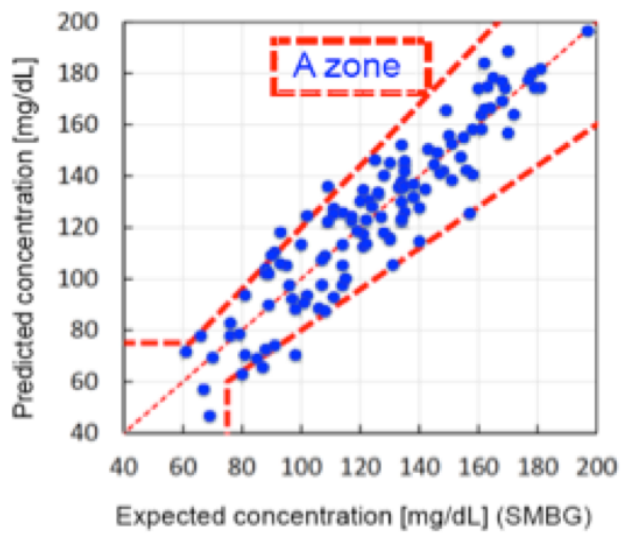


Figure 4: Clark error grid analysis.

# Effect of Track Potentials on the Movement of Secondary Electrons Due to Irradiation of Heavy Ions

Kengo Moribayashi

Radiation DNA damage study Group, Department of Quantum Beam Life Science

In studies on the interactions between heavy ions and matter, secondary electrons (produced from incident ion impact ionization of molecules) play an important role in the region near the ion trajectory. Previous measurements [1] of the secondary electrons indicate that slow secondary electrons are trapped by the track potential formed near the incident ion trajectory. Here the track potential is defined as the potential originating from the Coulomb interactions with molecular ions near the incident ion trajectory. These molecular ions are also created from the impact ionization of an incident ion in the target. We report the effects of the track potential on the motion of secondary electrons through a simulation study where this motion induced by heavy irradiation is treated more realistically than previous conventional models.

Suppose that  $Y_t$  is the yield of the secondary electrons emitted from target materials,  $Y_a$  is that of the electrons ionized from atoms (or molecules) in the target materials, and  $S_p$  is the stopping power of an incident ion. It was found that  $Y_t/S_p$  decreases sharply with increasing  $S_p$  in the measurements [1], although  $Y_a/S_p$  should remain almost constant over different  $S_p$  values. This indicates that larger number of the secondary electrons is trapped by the track potential with increasing  $S_p$ . It should be noted that the secondary electrons trapped by the track potential are not included in  $Y_t$ , and that  $Y_t$  has often been employed in the measurements.

For an insulator target, the binary collision approximation (BCA) is often employed. Here, the BCA model treats a single collision between an incident particle and an atom in the target material by solving scattering elementary processes. In the conventional BCA, the track potential has been ignored, to our knowledge. In these simulations, secondary electrons diverge from the ion trajectory and are not trapped because the track potential is neglected. This is contradictory to the previous measurements [1]. In our model [2],[3], we incorporate the track potential into the BCA model by treating the Coulomb interaction between all individual electrons and all individual molecular ions. These Coulomb interactions are the origins of the track potential. We believe that our simulation model has become possible in the 21st century because a lot of times and memories are required to execute these simulations using our model even when employing cutting-edge super computers. The rapid

progress of computers leads us to develop this model.

Since  $S_p \sim n_m \sigma_{ion} E_{isa}$ , our simulations used  $n_m$ , ion impact ionization cross section ( $\sigma_{ion}$ ), and initial energies of the secondary electrons ( $E_{is}$ ) in place of  $S_p$ , where  $n_m$  and  $E_{isa}$ , are the number density of molecules and the average value of  $E_{is}$ , respectively. We studied the effect of the track potentials on the motion of secondary electrons as a function of the mean free path between ion impact ionization events  $\tau = 1/n_m \sigma_{ion}$ . On the other hand,  $E_{isa}$  depends on the incident ion energies ( $E_{ion}$ ) and the target material. For the comparison with the experiments [1],  $E_{ion}$  was taken to be 0.5 MeV/u. Furthermore, to study the dependence of  $E_{isa}$ , we employed various targets of H<sub>2</sub>O, Ar, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>, and O<sub>2</sub>.

Figure 1(a) shows  $Y_t/Y_a$  as a function of  $\tau$  for various targets. In our simulations,  $Y_t$  and  $Y_a$  correspond to the number of secondary electrons that arrive at  $r \sim 10$  nm while considering and ignoring the track potential, respectively, where  $r$  is the distance from the heavy ion trajectory. We confirm that the effect of the track potential almost disappears at  $r \sim 10$  nm. We have found that  $Y_t/Y_a$  is nearly proportional to  $\tau^{0.5}$  regardless of the target material [3] (Fig. 1(a)).

Hereafter we discuss the experimental relation of  $Y_t/Y_a$  with  $\tau$  using the measurement results obtained by Kimura et al. [1]. They measured  $Y_t$  as a function of the distance from the surface ( $r_{ms}$ ) and the mean square of final charge states,  $\langle q^2 \rangle$ , in the scattering of H<sup>+</sup>, He<sup>2+</sup>, and Li<sup>2+</sup> on the surface of a KCl crystal at  $E_{ion} = 0.5$  MeV/u. They also estimated  $Y_t/\langle q^2 \rangle$  instead of  $Y_t/S_p$  under the assumption of  $S_p \propto \langle q^2 \rangle$ . We introduced the ratios of  $Y_t/\langle q^2 \rangle$  for He<sup>2+</sup> and Li<sup>2+</sup> ions to that for protons, which are referred to as  $R_{Y_t}(A^{a+})$  in this report, where  $A^{a+}$  corresponds to either He<sup>2+</sup> or Li<sup>2+</sup>. From the measurements [1], both  $R_{Y_t}(\text{He}^{2+})$  and  $R_{Y_t}(\text{Li}^{2+})$  are almost constant over the range of rms. The constant values of  $R_{Y_t}(\text{He}^{2+})$  and  $R_{Y_t}(\text{Li}^{2+})$  are plotted with  $R_{Y_t}(\text{H}^+) = 1$  as a function of  $1/\langle q^2 \rangle$  in Fig. 1(b). From Fig. 1(b),  $R_{Y_t}(A^{a+})$  is approximately proportional to  $1/\langle q^2 \rangle^{0.5}$ , indicating that  $R_{Y_t}(A^{a+})$  is proportional to  $Y_t/Y_a$  for  $A^{a+}$  at a fixed ion energy because  $S_p \propto \langle q^2 \rangle$  and  $Y_a \propto S_p$ .

From the relation  $S_p \propto \langle q^2 \rangle$ , the relation  $\tau \propto 1/\langle q^2 \rangle$  is satisfied. Considering that  $R_{Y_t}(A^{a+}) \propto Y_t/Y_a$ ,  $Y_t/Y_a$  should also be approximately proportional to  $\tau^{0.5}$  under the measurement conditions,



although different targets are employed between the measurement and our simulations. The distribution of  $E_{is}$  employed here is obtained from gas target experiments. As described above, we also suggest the relation  $Y_t/Y_a \propto \tau^{0.5}$  at 0.5 MeV/u from the experimental results.

It is much easier to measure  $Y_t$  for solid targets than for liquid targets. Although the mobility of molecules considerably differs between solid and liquid targets, the measurement data obtained from surface scattering experiments are useful for understanding the effect of the track potential on secondary electrons in liquid targets for the following reasons. We have found that  $Y_t/Y_a$  is almost fixed until 10 fs after the irradiation of an ion. On the other hand, molecules in liquid targets start to move after a few pico-seconds. This may mean that we can treat the motion of the secondary electrons and the molecules separately.

To study the track potential in more detail, atomic and molecular data such as  $\sigma_{ion}$  and  $E_{is}$  according to the targets are required. We should discuss better targets in which such atomic and molecular data are available. Although we treat  $q \leq 6$  in this report, larger values of  $q$  are important in materials science. Thus, the atomic and molecular data for ions with larger values of  $q$  are necessary.

In summary, we report a qualitative study of the effect of the track potential on the trajectories of secondary electrons due to heavy ion irradiation and compare the effect of the track potential obtained from measurements with that obtained from our simulations. The effect of the track potential is mainly determined by  $\tau$ . Our simulation results for  $Y_t/Y_a$  vs.  $\tau$  show the same tendency as the measurement data. We hope that this report motivates scientists in the fields of atomic physics and radiation physics to measure data in more detail.

## Acknowledgements

We wish to thank Prof. K. Kimura, Dr. H. Tsuchida (Kyoto Univ.), Dr. K. Akamatsu, Dr. J. Koga, and Dr. N. Shikazono (QST) for their useful discussions. We used the super-computer ‘PRIMERGY BX900’ in JAEA. This work was supported by JSPS KAKENHI Grant Number 25390131.

## References

- [1] K. Kimura, et al., Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **193**, 661 (2002).
- [2] K. Moribayashi, Phys. Rev. A **84**, 012702 (2011).
- [3] K. Moribayashi, J. Phys. Soc. Jpn. **86**, 024301 (2017).

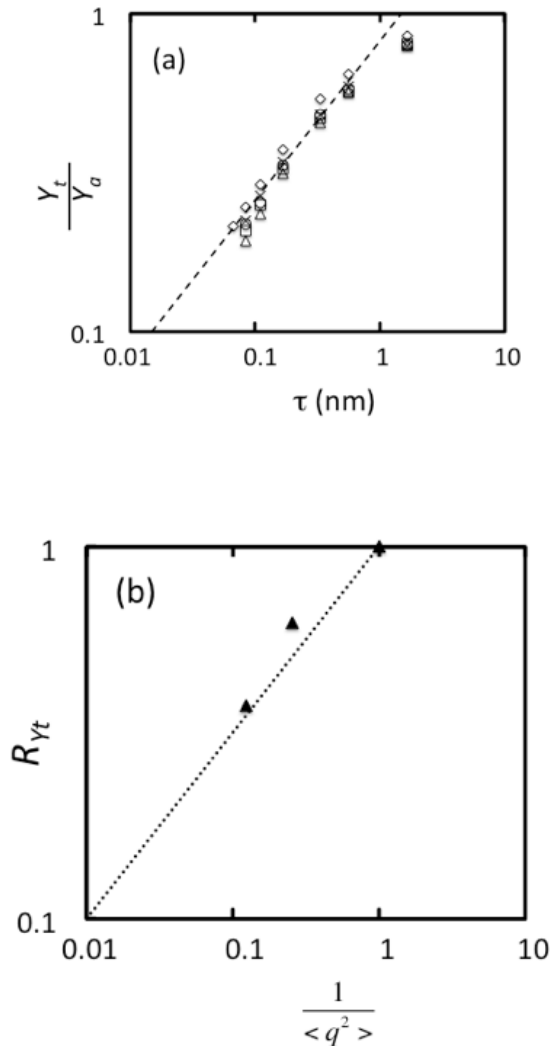


Figure 1: (a)  $Y_t/Y_a$  vs.  $\tau$  for our simulations. Targets treated in our simulations are  $\text{H}_2\text{O}$  ( $\diamond$ ), Ar ( $\square$ ),  $\text{CH}_4$  ( $\triangle$ ),  $\text{O}_2$  ( $\times$ ), and  $\text{N}_2$  ( $\circ$ ). Dashed line shows  $Y_t/Y_a = \sqrt{\tau/\tau_0}$  with  $\tau_0 = 1.5$  nm. (b)  $R_{Y_t}$  (shown by  $\blacktriangle$ ) vs.  $1/\langle q^2 \rangle$ . Dotted line shows a function increasing according to  $\langle q^2 \rangle^{-0.5}$ .

# The role of the DNA mismatch repair protein MutS in verifying mismatched and homoduplex DNAs as indicated by molecular dynamics simulations

Hisashi Ishida and Atsushi Matsumoto

Molecular Modeling and Simulation Group, Department of Quantum Beam Life Science

DNA mismatch repair (MMR) maintains genome stability by repairing mismatches that arise from errors in DNA replication and recombination. Defects in MMR result in a significant increase in both spontaneous mutation rate and cancer susceptibility. MMR is initiated by the binding of prokaryotic MutS (eukaryotic MSH2-MSH6) to the mismatched DNA. The MutS-mismatched DNA complex interacts with the MutL molecular chaperonin and the MutH endonuclease to activate downstream repair events.

MutS binds to matched (homoduplex) DNA with low affinity, which suggests that it stays on the DNA to scan for mismatches. MutS recognizes and efficiently binds to base-base mismatches, unpaired bases, and small insertion/deletion loops in DNA duplexes. MutS binds to the mismatched DNA about 10 to 1,000-fold more strongly than to homoduplex DNA. However, this initial discrimination between mismatched and homoduplex DNAs based on DNA binding affinity does not explain the high efficiency of the DNA mismatch repair process. The rate of mismatch occurrence is  $10^{-6}$  to  $10^{-8}$  per base pair per generation. It is thought that such high efficiency can be achieved in spite of the moderate binding affinity because the ATPase activity of MutS plays a role in kinetic proofreading to verify mismatch recognition and the authorization of the downstream repair events.

MutS functions as a homodimer (Fig. 1). Each monomer subunit, referred to as MutS S1 and S2 in this study, consists of six distinct structural domains. An outstanding feature of the MutS dimer is a large separation of  $\sim 60$  Å between the mismatch-recognition and ATPase domains. However, the mechanism by which these two domains communicate with each other is not fully understood.

In order to understand how MutS recognizes mismatched DNA and induces the DNA repair response using ATP, the dynamics of the MutS complexes, either bound to ADP and ATP, or not, and DNA, with either matched or mismatched base pairs, were investigated using molecular dynamics simulations. The total number of atoms in each system was  $\sim 200,000$ , and the total duration of the simulation was  $3.75 \mu\text{s}$ .

To deal with such a large system, we used SCUBA, a special molecular dynamics simulation program which was developed at our laboratory, to analyze

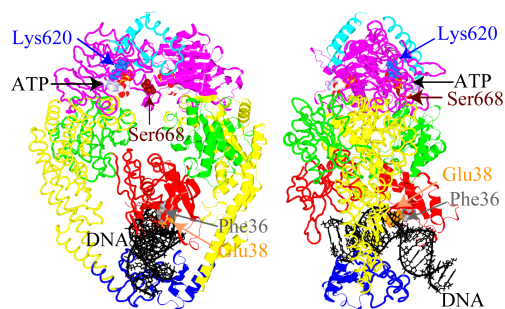


Figure 1: The MutS-mismatched DNA complex in the initial structure. MutS S1 and S2 are shown in ribbon and tube models, respectively. The functionally important residues, Lys620, Ser668, Glu38, and Phe36 are shown in the CPK model in blue, red, brown and yellow, respectively. The mismatch-recognition, connection, core, clamp, ATPase, and the helix-turn-helix (HtH) domain are shown in red, green, yellow, blue, purple, and light blue, respectively. The DNA bound to MutS is shown in black as a ball and stick model.

the conformational changes that occur in MutS-DNA complexes. First, the structure of the base pairs within the homoduplex DNA which interact with the DNA recognition site of MutS was disturbed intermittently, indicating that the homoduplex DNA was unstable. As for MutS, the disordered loops in the ATPase domains, which are thought to be necessary for DNA repair induction, were close to the nucleotide-binding sites in the ATPase domains when the nucleotides were bound to MutS, and farther away from the same sites when nucleotides were not bound to MutS. This movement suggests that the ATPase domains change their structural stability upon ATP binding using the disordered loop.

To understand the global movements of the MutS-DNA complexes in different states, we carried out principal component analysis (PCA) of the atomic fluctuations. It is known that the most significant motions of a large biological molecule, either protein or DNA, are represented as a combination of low-frequency modes within the principal component modes. However, it is difficult to understand quantitatively how many of these regions move collec-

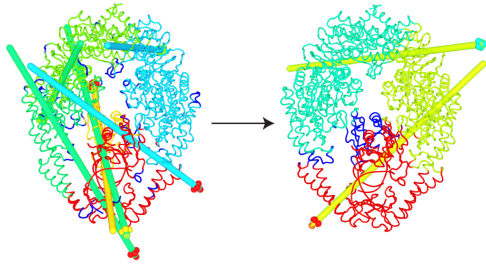


Figure 2: The change in the dynamics of the MutS-mismatched DNA complex were analyzed using DynDom3D, starting with the absence of ATP (from without ATP (left) to with ATP (right)). The arrows show the relationship in dynamics between the ATPase and mismatch-recognition domains. The dynamic domains are shown in different colors. The regions that were not recognized as dynamic domains are shown in blue.

tively among them and in which direction these regions move. Global movements may therefore not be well-represented by the correlation matrix. In this study, the atomic movement at each mode was analyzed using DynDom3D, which was developed at the University of East Anglia and in our laboratory, to understand how the ATPase domain of MutS and the DNA to which MutS binds are dynamically related to each other. Conformational analysis using DynDom3D showed that nucleotide binding changed modes, which have structurally solid ATPase domains (Fig. 2), and caused the large bending motion of the DNA from higher to lower frequencies. In the MutS-mismatched DNA complex bound to two nucleotides, the bending motion of the DNA at low frequency modes may play a role in triggering the formation of the sliding clamp for the subsequent DNA-repair reaction step.

Moreover, the binding free energies were calculated to elucidate the mechanism of the DNA mismatch-recognition using MM-PBSA/GBSA methods. MM-PBSA/GBSA indicated that the MutS-homoduplex DNA complex bound to two nucleotides was unstable because of the unfavorable interactions between MutS and DNA. These interactions presumably trigger either ATP hydrolysis or the separation of MutS and DNA so that MutS can continue searching for mismatch base-pairs. In contrast, the MutS-mismatched DNA complex bound to two nucleotides was stable on the whole, but the interaction between the clamp domains of MutS S1 and S2 was unfavorable (Fig. 3). This interaction may work to form the sliding clamp, which is required for the subsequent DNA repair reaction.

Consequently, the specific dynamics of the MutS-DNA complex work as a molecular switch to distinguish between different states. The changes in the dynamics of the MutS-mismatched DNA and the MutS-homoduplex DNA complexes in response to nucleotide binding acting as a molecular switch would be essen-

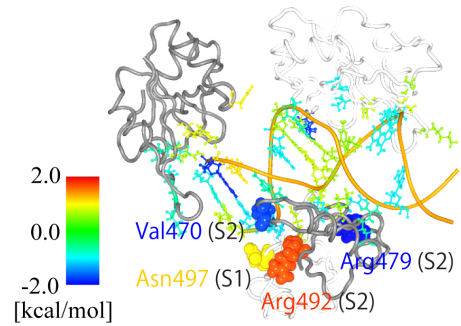


Figure 3: The decomposed relative binding free-energies between the MutS-mismatched DNA complex without ATP and MutS-mismatched DNA complex with ATP are mapped on the initial structure of the MutS-mismatched DNA complex by color. Only the mismatch-recognition and clamp domains of MutS and the DNA are shown for the sake of simplicity.

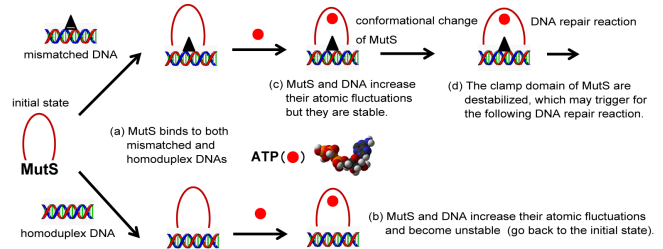


Figure 4: Schematic representation of a model of MutS for (a) MutS bound to mismatched and homoduplex DNAs, (b) MutS-homoduplex DNA complex bound to ATP, (c) MutS-mismatched DNA complex bound to ATP, and (d) the subsequent DNA repair reaction.

tial for MutS to either form the sliding clamp or continue scanning the DNA.

Based on our results, we propose a model for the function of MutS for the DNA repair reaction (Fig. 4). According to this model, (a) MutS binds both mismatched and homoduplex DNAs, and (b) when homoduplex DNA binds to MutS, MutS and DNA increase their atomic fluctuations and become unstable. This would facilitate the DNA dissociating from MutS and a return to the initial state of the single MutS. (c) When mismatched DNA binds to MutS, MutS and DNA increase their atomic fluctuations but maintain the stable state. (d) When ATP binds to the MutS-mismatched DNA complex, the clamp domain of MutS becomes unstable. This unstable clamp domain may trigger the following DNA repair reaction by forming the sliding clamp, which slides on the DNA and interacting with MutL and MutH.

## References

- [1] H. Ishida and A. Matsumoto, *Proteins* **84**, 1287-1303 (2016).

# X-ray diffraction study of polytype formation in Au-seeded GaAs nanowires

Takahasi Masamitsu

Coherent X-ray Research Group, Synchrotron Radiation Research Center

Recently, semiconductor nanowires have attracted much attention due to the increased interest in the growth mechanisms of such extremely anisotropic structures and their potential technological applications. Nanowires of III-V semiconductors show polytypes, including the 4H and wurtzite (WZ) structures in addition to the zincblende (ZB) structure that is the most stable in the bulk. The polytypism found in III-V semiconductor nanowires has been discussed in relationship to growth kinetics as well as the structural stability in equilibrium. Thus, in situ measurements are essential for understanding the mechanisms of polytype formation.

Experiments were performed at the synchrotron radiation beamline 11XU at SPring-8 using a molecular beam epitaxy chamber integrated with a surface x-ray diffractometer [1],[2]. X-ray diffraction is a well-established technique to identify crystal structures. In the present work, the X-ray diffraction profile along a reciprocal lattice rod extending to the surface normal direction was measured to evaluate the stacking faults and the average lengths of the ZB or WZ segments.

Figure 1 shows the evolution of the measured X-ray diffraction profiles along (1, -1,  $L$ ) during the growth of Au-assisted GaAs nanowires on GaAs(111)B. The growth of GaAs nanowires was initiated by the formation of the ZB structure, which was characterized by an increase in intensity at  $L = 1$  and 4. After 120 s, the WZ peaks showed up at  $L = 1.5, 3.0$  and 4.5 [3].

To understand the growth mechanism of Au-seeded GaAs nanowires, we performed simulations based on a classical nucleation theory. For a two dimensional semicircular nucleus formed on the top facet of a nanowire (Fig. 2), the energy barrier for the formation of a nucleus larger than the critical radius is given by

$$\Delta G^* = \frac{\Gamma^2}{2\pi(\Delta\mu - \sigma)}, \quad (1)$$

where  $\Delta\mu$  is the the difference of the chemical potential of Ga between the catalyst droplet and the crystal,  $\sigma$  is the stacking energy of the nucleus on the GaAs(111)B surface and  $\Gamma$  is the energy cost of the edge of the nucleus.

The energy barrier for the nucleation depends on the crystal structures of the nucleus and the nanowires. Considering up to the nearest neighbors, there are four possible stacking sequences, ZB on ZB,

ZB on WZ, WZ on ZB and WZ on WZ. In each case, first-principles calculations for the bulk [4] can be applied to the evaluation of the stacking energy,  $\sigma$ . The edge energy,  $\Gamma$ , can be divided into two terms (the solid-liquid interface,  $\gamma^{\text{SL}}$ , and the solid-vapor interface,  $\gamma^{\text{SV}}$ ), expressed as

$$\Gamma_i = 2\gamma^{\text{SV}} + \pi\gamma^{\text{SL}} \quad (2)$$

The term  $\gamma^{\text{SV}}$  can be subdivided, depending on where the nucleus is formed. For the nuclei formed inside the catalyst droplets,  $\gamma^{\text{SV}}$  is equal to the step energy of the (111) surface,  $\gamma_{\text{ZB}}^{\text{SV}}$ , while it can be lower than  $\gamma_{\text{ZB}}^{\text{SV}}$  for the nucleus formed at the VLS interface since the surface energy of the side facet of nanowires is lower for the WZ structure than for the ZB structure. Hence, the edge energy can be written by

$$\Gamma_i = 2\chi\gamma_i^{\text{SV}} + 2(1 - \chi)\gamma_{\text{ZB}}^{\text{SV}} + \pi\gamma^{\text{SL}}, \quad (3)$$

using the probability,  $\chi$ , that a nucleus is formed at the VLS interface.

Now that the energy barrier,  $\Delta G_i$ , can be calculated for each stacking, the probability of the formation of stacking  $n$  is obtained by

$$p_i = \frac{Z_i \exp(-\Delta G_i^*/kT)}{\sum Z_i \exp(-\Delta G_i^*/kT)} \quad (4)$$

Following these stacking probabilities, we simulated the growth of 500 nanowires and calculated corresponding X-ray diffraction profiles.

Figure 3 shows the simulations for  $\gamma_{\text{ZB}/\text{ZB}} = \gamma_{\text{ZB}}^{\text{SV}} = 7.46 \text{ meV}/\text{\AA}$ ,  $\gamma_{\text{WZ}/\text{WZ}} = 2.98 \text{ meV}/\text{\AA}$  and  $\gamma_{\text{ZB}/\text{WZ}} = \gamma_{\text{WZ}/\text{ZB}} = 10 \text{ meV}/\text{\AA}$ . The higher solid-vapor interface energy for the heterogeneous combination of a nucleus and the nanowire crystal,  $\gamma_{\text{WZ}/\text{ZB}}$  and  $\gamma_{\text{ZB}/\text{WZ}}$ , than that for the congeneric combination,  $\gamma_{\text{ZB}/\text{ZB}}$  and  $\gamma_{\text{WZ}/\text{WZ}}$ , originates from the kinks on the side facets caused by the switching between ZB and WZ. Now let us discuss why the ZB GaAs preferentially grows during the initial stage of the growth and the WZ GaAs appears after a delay. In the simulation shown in Fig. 3,  $\Delta\mu$  was varied and  $\chi$  was kept constant. In this case, however, agreement between the measured and simulated profiles through the entire growth process was not satisfactory although increase of  $\Delta\mu$  enhances the formation of WZ. This suggests that the change of  $\chi$  is more critical for the ZB to WZ transition during growth than the change of  $\Delta\mu$ . To confirm

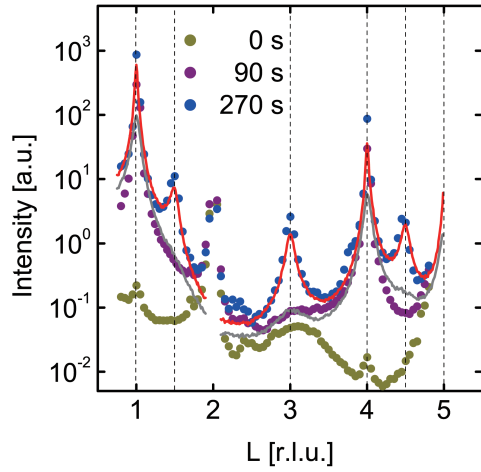


Figure 1: evolution of measured X-ray diffraction profiles along  $(1, -1, L)$  during the growth of Au-assisted GaAs nanowires

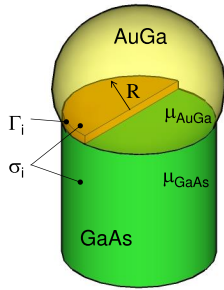


Figure 2: Nuclei formed at the top facet of a nanowire.

this observation, a simulation was performed with  $\chi$  changing as

$$\chi = 1 - \exp(-n/150) \quad (5)$$

during the growth of nanowires, where  $n$  is the number of atomic layers in the nanowire. As shown by solid lines in Fig. 1, this simulation well reproduced the experimental results. Thus, the following growth mechanism is inferred. At the beginning of the nanowire growth, the nucleation site is limited to the substrate surface. Thus,  $\chi$  should be zero. With the progress of growth, the side walls of nanowires develop and  $\chi$  starts to increase. Effects of growth temperature and growth rate on polytypes can be accounted for by this growth model as well [5].

The growth process of Au-seeded GaAs nanowires was investigated by in situ X-ray diffraction. The growth process is well understood on the basis of the classical nucleation theory. Further studies based on atomistic view will be important because the interfacial structure between the catalyst droplet and the nanowire crystal is critically influential on the nanowire growth.

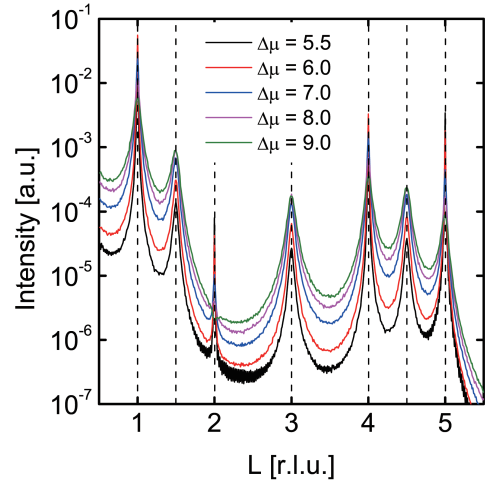


Figure 3: Simulated X-ray diffraction profiles for  $\gamma_{ZB/WZ} = \gamma_{WZ/ZB} > \gamma_{ZB/ZB} > \gamma_{WZ/WZ}$ . The value of  $\chi$  was kept constant at unity.

## References

- [1] M. Takahasi, et al., Jpn. J. Appl. Phys. **41**, 6247 (2002).
- [2] M. Takahasi, J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 021011 (2013).
- [3] M. Takahasi, M. Kozu, T. Sasaki and W. Hu, Cryst. Growth Des. **15**, 4979 (2015).
- [4] C. Panse, D. Kriegner and F. Bechstedt, Phys. Rev. B **84**, 075217 (2011).
- [5] M. Takahasi, M. Kozu and T. Sasaki, Jpn. J. Appl. Phys. **55**, 04EJ04, 6878 (2016).

# Rapid-acquisition pair distribution function analysis and its application on negative thermal expansion materials

Tetsu Watanuki, Akihiko Machida

High Pressure Science and Stress Research Group, Synchrotron Radiation Research Center

Atomic pair distribution function (PDF) analysis is a powerful tool to investigate the local structure of non-ideal crystalline materials containing structural disorder or inhomogeneity. It is applicable to doped materials and partially substituted ones. The physical properties of these materials often depend on the local structure such as local distortions or the short-range order instead of the averaged structure, which can be obtained from crystal structure analysis. Here we introduce our rapid-acquisition PDF measurement system [1].

Additionally, we apply it to study negative thermal expansion (NTE) materials. Recently new types of NTE materials exhibiting large NTE coefficients have been developed utilizing the first-order structural phase transition with large volume collapse upon heating. These materials show a large, gradual volume shrinkage upon heating in a certain temperature range [2]. NTEs have been realized by doping or partial substitution of the mother material of  $\text{BiNiO}_3$ , which changes the original first-order phase transition to a gradual transition and affects the tuning of the transition temperature.

To investigate the substitution effect, we studied  $\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x\text{NiO}_3$ . We found that the local charge order due to local structural ordering occurs via the transformation into the larger volume phase upon cooling, and that a macroscopically glassy charge distribution appears by the Pb substitution for Bi. This results in smearing of the discontinuous volume change of the first order transition [3].

We developed the rapid-acquisition PDF measurement [4] system in BL22XU at SPring-8 [3]. This system allows local structural information to be acquired in a range from several Å to approximately 100 Å by exposing a specimen to a sub-second x-ray in the most rapid case. PDF of  $G(r)$  is a kind of autocorrelation function of the atomic arrangement. For example, in the case where Bi ions are coordinated by oxygens,  $G(r)$  forms a peak when  $r$  is the characteristic Bi-O distance in the material. Because the definition and the derivation of PDF are independent of the periodicity of the atomic arrangement, PDF analysis can be used to investigate the local structure.

X-ray PDFs are experimentally obtained by a sine Fourier transformation of the total scattering data of powder specimens. A rapid-acquisition PDF measurement is available at BL22XU using a high-energy

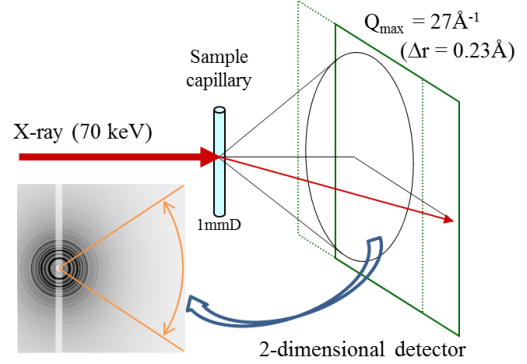


Figure 1: Schematic illustration of the rapid-acquisition PDF measurement system in BL22XU at SPring-8.

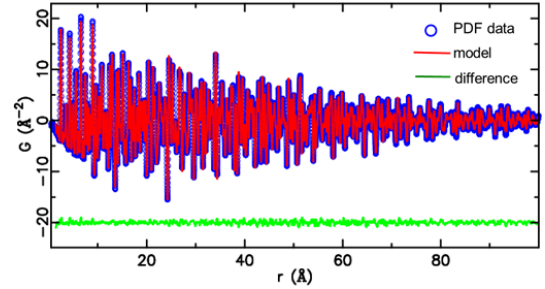


Figure 2: PDF data of the standard sample of Ni powder obtained by a one-second x-ray exposure.

short-wavelength synchrotron x-ray beam and a large area two-dimensional detector (Fig.1). The sample is irradiated with an incident x-ray at a 70-keV energy (wavelength  $\lambda = 0.177 \text{ \AA}$ ), and the scattered x-ray signals are collected by an imaging plate or a time-resolved flat panel detector with an area size of  $400 \text{ mm} \times 400 \text{ mm}$ . The  $Q$  range of the obtained total scattering data reaches as high as  $Q_{\max} = 27 \text{ \AA}^{-1}$ , indicating that the spatial resolution of  $G(r)$  reaches  $\Delta r = 0.23 \text{ \AA}$ . Figure 2 shows the PDF data of the standard sample of Ni powder obtained by a one-second x-ray exposure. High precision PDF data that covers wide  $r$  range is quickly acquired.

Recently, new types of NTE materials have been developed using bismuth-based perovskite oxides. The driving force of the NTE of these compounds is char-

acterized by an intermetallic charge transfer, which differs from the typical case involving a phonon-driven mechanism [2]. The mother compound of  $\text{BiNiO}_3$  undergoes a first-order structural phase transition at high pressure. A large volume expansion occurs upon cooling across the phase boundary. The smaller volume phase of the valence state of  $\text{Bi}^{3+}\text{Ni}^{3+}\text{O}_3$  is transformed into the larger volume phase of  $\text{Bi}_{0.5}^{3+}\text{Bi}_{0.5}^{5+}\text{Ni}^{2+}\text{O}_3$  by an intermetallic charge transfer between Bi and Ni, which is accompanied by Bi charge disproportionation. A charge ordered state appears in the larger volume phase due to structural ordering of  $\text{Bi}^{3+}$  and  $\text{Bi}^{5+}$  coupled with a change in the coordination geometry of Bi surrounded by oxygens. The crystal structure changes from an orthorhombic one (space group:  $Pbnm$ ) to a triclinic one (space group:  $P\bar{1}$ ) due to the charge order accompanied by symmetry breaking [2].

An anomaly was discovered during the investigation into the substitution effects by  $\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x\text{NiO}_3$ . When the Pb concentration  $x$  exceeds 0.2, the discontinuity of the transition is drastically smeared. Consequently, NTE appears with a gradual transition in the temperature range of 50 K to around 500 K when  $x = 0.25$ . Surprisingly, crystal structure analysis indicates that the orthorhombic crystal symmetry is maintained before and after the transition [3]. This result is contrary to the typical case in which symmetry breaking occurs when a certain structural order appears.

Because we speculated that the local structure is key to the anomaly, we performed PDF analysis of  $\text{Bi}_{0.75}\text{Pb}_{0.25}\text{NiO}_3$ . The results show that the symmetry breaking of the crystal structure and the charge order microscopically occur across the transition upon cooling. We examined two kinds of local structural models: an orthorhombic structure (space group:  $Pbnm$ ) and a triclinic one (space group:  $P\bar{1}$ ). The latter model better reproduces the observed PDF than the former, especially below  $r \sim 15 \text{ \AA}$  (Fig.3), indicating that symmetry breaking occurs locally. A remarkable difference between the two models appears in their  $G(r)$  profiles around  $r \sim 2 \text{ \AA}$ , reflecting the coordination geometry of Bi/Pb surrounded by oxygens. The single peak structure of the observed  $G(r)$  is well reproduced by the triclinic model, but it differs from the double peak structure of the orthorhombic one. Additionally, a hard x-ray photoemission spectroscopy measurement confirmed the charge disproportionation of Bi [3].

It is concluded that a short-range charge order accompanied by symmetry breaking of the local structure appears via the transformation into the larger volume phase of  $\text{Bi}_{0.75}\text{Pb}_{0.25}\text{NiO}_3$ , whereas the long-range order does not grow due to the obstruction of the substituent Pb. The results of the crystal structure analysis reflect the absence of long-range ordering. The correlation of the short-range order is only  $\sim 15 \text{ \AA}$ , which is approximately twice the length of the c-axis of the unit cell. Each area of the short-range charge order arranges randomly and forms the macroscopic glassy charge distribution (Fig.4) [3].

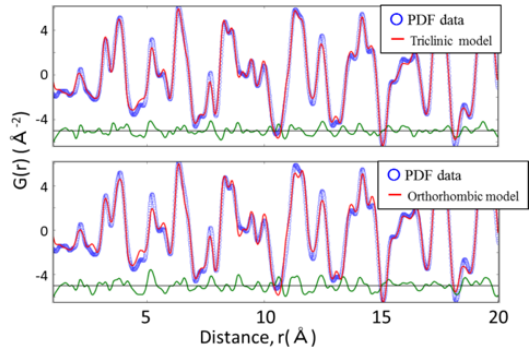


Figure 3: Observed (blue circles), calculated (red line), and difference (green line) PDF of  $\text{Bi}_{0.75}\text{Pb}_{0.25}\text{NiO}_3$  with the triclinic (upper panel) and the orthorhombic (lower panel) structural models.

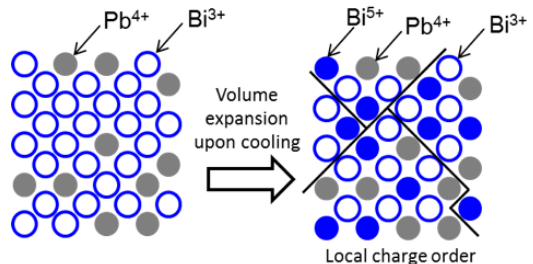


Figure 4: Illustration of the Bi/Pb arrangement with their valence states of the smaller volume phase (left figure) and the larger volume phase (right figure) of  $\text{Bi}_{0.75}\text{Pb}_{0.25}\text{NiO}_3$ .

## Acknowledgement

This work is partially supported by the Photon and Quantum Basic Research Coordinated Development Program from the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology of Japan. The NTE study is a collaboration with the Azuma laboratory of the Tokyo Institute of Technology.

## References

- [1] H. Kim, K. Sakaki, H. Ogawa, Y. Nakamura, J. Nakamura, *et al.*, *J. Phys. Chem. C* **117**, 26543 (2013).
- [2] M. Azuma, W-t. Chen, H. Seki, M. Czapski, S. Olga, *et al.*, *Nature Communications* **2**, 347 (2011)
- [3] K. Nakano, K. Oka, T. Watanuki, M. Mizumaki, A. Machida, *et al.*, *Chem. Mater.* **28**, 6062 (2016).
- [4] P. J. Chupas, X. Qiu, J. C. Hanson, P. L. Lee, C. P. Grey and S. J. L. Billinge, *J. Appl. Crystallogr.* **36**, 1342 (2003).

# Enhancement of the Morin transition temperature in an $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin film by iridium doping -grazing incidence <sup>57</sup>Fe Mössbauer spectroscopy

Takaya Mitsui

Magnetism Research Group, Synchrotron Radiation Research Center

$\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> is a magnetic iron oxide that exhibits a very high transition temperature to the antiferromagnetic (AF) state of  $T_N = 677$  °C. The spin-flop transition at  $T_M \sim -10$  °C has been reported for bulk  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and is called the Morin transition, which is where the magnetic easy axis parallel to the hexagonal *c*-axis ( $< T_M$ ) turns into the *c*-plane ( $> T_M$ ) [1]. Weak ferromagnetism is observed above  $T_M$  due to the Dzyaloshinskii-Moriya interaction. An  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin film with magnetic moments perpendicular to the film plane is a promising component in current spintronic devices because it may increase the Néel temperature of the adjacent Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> film [2], which is a candidate material in electric-controlled perpendicular spin devices. Accordingly, a high demand for increasing  $T_M$  much higher than room temperature exists.

The Morin transition results from the subtle competition between the dipole-dipole interactions and the single-ion-type anisotropy. Numerous studies have investigated the Morin transition in  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> of various forms, such as polycrystals, single crystals, nanoparticles, and thin films; it is shown that  $T_N$ ,  $T_M$ , and  $\Delta T_M$  (transition width) are influenced by particle size and crystalline quality.  $T_M$  is also easily controlled by a small amount of impurities in the matrix. A Ti substitution on the order of 0.1% significantly reduces  $T_M$ , while 1% doping of Ir markedly increases  $T_M$  above room temperature [3]. Actually, it has been recently reported that the magnetic moments in a “thick” Ir-doped  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> film (150-nm thick) grown on an Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (0001) substrate are perpendicular to the (0001) film plane at room temperature [4]. For practical applications, however,  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin films with thicknesses of several nm to several tens of nm are required. Consequently,  $T_M$  of those ultrathin films must be experimentally confirmed.

Synchrotron-radiation-based Mössbauer spectroscopy using a <sup>57</sup>Fe nuclear Bragg monochromator is one of the most suitable techniques for evaluating the magnetic properties of ultrathin films at high temperatures. Linearly polarized <sup>57</sup>Fe Mössbauer radiation with about a 10 neV bandwidth is generated utilizing a pure nuclear Bragg diffraction. A highly collimated synchrotron radiation beam makes it possible to perform grazing-incidence synchrotron-radiation Mössbauer spectroscopy (GISRMS) for

iron-based thin films [5]. Since this is a photon-in photon-out spectroscopy, experiments in various sample environments such as at high temperatures can be carried out. The acquisition time is significantly short in GISRMS compared to conventional Mössbauer spectroscopy with a radioactive source. Here the impact of Ir-doping on  $T_M$  in an  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ultrathin film is demonstrated by means of GISRMS at high temperatures up to 400 °C [6].

A (0001) *c*-plane-oriented epitaxial Ir-doped  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin film (20 nm thick) was fabricated on a *c*-plane Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> substrate by radio-frequency magnetron sputtering [4]. Oxygen reactive sputtering was used to deposit oxide films by sputtering an Ir-Fe alloy target in an Ar and O<sub>2</sub> mixed gas atmosphere. The atomic composition of the target was Fe:Ir = 99.9:0.1. The substrate temperature was kept at 500 °C during deposition. The substrate dimensions were 19 × 18 × 0.4 mm<sup>3</sup>.

A GISRMS experiment was carried out at BL11XU of SPring-8. The experimental setup is schematically illustrated in Fig.1. Incident x-rays from a planar undulator were first monochromatized by the pre-monochromator down to about 2 eV, and were monochromatized again by a high-resolution monochromator down to 2.5 meV. A  $\pi$ -polarized <sup>57</sup>Fe Mössbauer radiation at 14.4 keV (the nuclear resonance energy of <sup>57</sup>Fe) with an extremely narrow bandwidth of 15.4 neV was finally generated utilizing a pure nuclear Bragg reflection of a <sup>57</sup>FeBO<sub>3</sub> (111) monochromator with a grazing angle geometry [5]. The Ir-doped  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin film was placed on a copper stage in a vacuum furnace, and the  $\pi$ -polarized beam was incident on the film surface at an angle  $\theta = 0.14$ , well below the critical angle of the electronic total reflection (0.19). The estimated x-ray penetration depth was 3.5 nm.

In this condition, the total reflection is governed by scattering from electrons. Hence, the grazing-incidence Mössbauer spectrum indicates a familiar “absorption” profile. To evaluate  $T_M$  and  $T_N$  in the Ir-doped  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin film, the Mössbauer spectra were measured in the temperature range from 27 °C to 400 °C. The vacuum level was kept at 13 Pa during the measurements. The acquisition time was typically 5 h to obtain a spectrum with sufficient statistics.



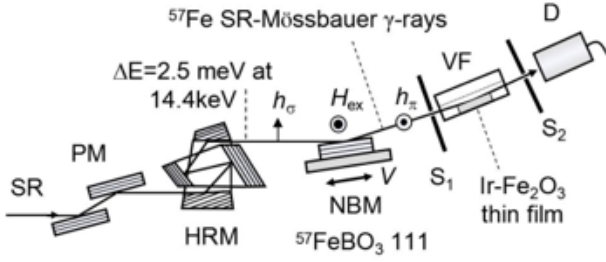


Figure 1: Experimental setup for  $^{57}\text{Fe}$ -GISRMS. SR: synchrotron radiation, PM: Si (111) premonochromator, HRM: high-energy-resolution monochromator that consists of nested two channel-cut crystals of Si 511 and Si 975 reflections, NBM:  $^{57}\text{FeBO}_3$  nuclear Bragg monochromator near the Néel temperature,  $H_{ex}$ : external magnetic field of 150 Oe for NBM, VF: vacuum furnace, S1: slit  $1.0 \text{ mm} \times \text{full open}$ , S2: slit  $1.0 \times 10 \text{ mm}^2$ , D: NaI(Tl) detector.  $h_i$  ( $i = \sigma, \pi$ ) is the magnetic unit vector of x-rays. NBM converts the  $\sigma$ -polarized SR x-rays into the  $\pi$ -polarized  $^{57}\text{Fe}$  SR Mössbauer x-rays.

Figure 2 shows the Mössbauer spectra of the Ir-doped  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  thin film measured at several temperatures. All spectra are fitted using a magnetic sextet. At a first glance, the most striking feature is that the spectra at 27 and 100 °C show only the four lines (Fig.2). There is a strict selection rule in  $^{57}\text{Fe}$ -Mössbauer spectroscopy. A magnetic sextet is classified into a quartet ( $\Delta m = \pm 1$  transition) and a doublet ( $\Delta m = 0$  transition), where  $\Delta m$  is the difference of the magnetic quantum number of Fe nuclear spin through the transition. The  $\Delta m = \pm 1$  transitions are allowed when the Fe magnetic moment (the effective field) at the Fe nucleus is perpendicular to the magnetic field of x-rays, whereas the  $\Delta m = 0$  transitions are observed when the Fe magnetic moment is parallel to the magnetic field of x-rays. Hence, these two spectra provide direct evidence that the Fe magnetic moments are perpendicular to the film plane because the magnetic field of the  $\pi$ -polarized x-rays is parallel to the film plane, as shown in Fig.1. In contrast, the spectra above 150 °C show a clear magnetic sextet pattern. The results indicate that the Fe magnetic moments lie in the film plane above 150 °C. Therefore, 0.1% Ir-doping considerably increases  $T_M$  from -10 °C to between 100 and 150 °C.

The parameters extracted from the fitting of  $^{57}\text{Fe}$  Mössbauer spectrum are the hyperfine field ( $B_{hf}$ ), the quadrupole shift ( $QS$ ), and the center shift ( $CS$ ).  $B_{hf}$  is a measure of the magnitude of the Fe magnetic moment and is approximately proportional to the width of a sextet pattern. As seen in Fig.2, the width of the spectra, and thus  $B_{hf}$  gradually decreases upon heating. The temperature dependence of  $B_{hf}$  (not shown) is similar to that of bulk  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ , and  $B_{hf}$  at 400 °C is large enough (43.4 T). Hence, the magnetic order is not vulnerable up to 400 °C even in the ultrathin

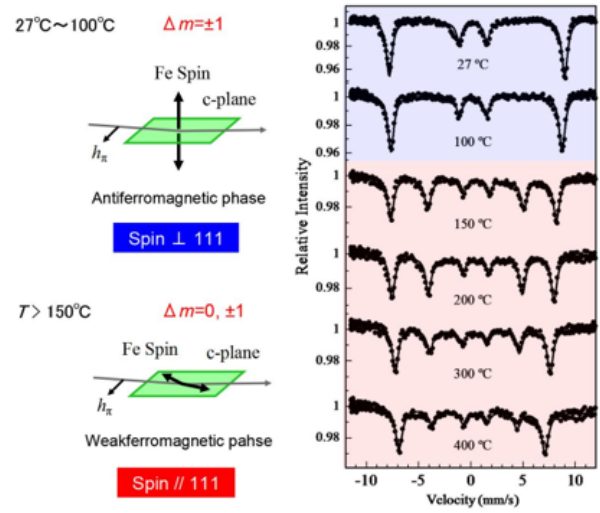


Figure 2: Temperature dependence of the grazing incidence  $^{57}\text{Fe}$  synchrotron Mössbauer spectra of the Ir-doped  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  thin film. Below 100 °C, the spectra show only lines, indicating that the magnetic moments are perpendicular to the film plane, whereas the spectra show normal magnetic sextet patterns above 150 °C, indicating that the magnetic moments lie in the film plane.

film state. This is also supported by the fact that all the spectra in Fig. 2 show well-resolved magnetically split patterns with narrow line widths.

In summary, a GISRMS study of the Morin transition in the (0001)-oriented 0.1% Ir-doped  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  ultrathin film deposited on the  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (0001) substrate was conducted at high temperatures. An Ir-doped  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  ultrathin film has high  $T_M$  ( $> 100 \text{ C}$ ) and high  $T_N$  ( $> 400 \text{ °C}$ ). This is a quite positive result for practical applications of  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  thin films. Additionally, GISRMS is highly sensitive and easily collects valuable magnetic properties of antiferromagnets. GISRMS is, therefore, a very powerful technique to investigate ultrathin magnetic films in various sample environments

## References

- [1] F. J. Morin, Phys. Rev. **78**, 819 (1950).
- [2] Y. Kota, H. Imamura, and M. Sasaki, IEEE Trans. Magn. **50**, 2505404 (2014).
- [3] S. Krehula, et al., J. Alloys Compd. **545**, 200 (2012).
- [4] N. Shimomura, et al., J. Appl. Phys. **117**, 17C736 (2015).
- [5] T. Mitsui, et al., J. Synchrotron Radiat. **19**, 198 (2012).
- [6] T. Mitsui, et al., J. Phys. Soc. Jpn. **85**, 063601 (2016).

# Resonant inelastic x-ray scattering study of spin-orbital excitations in superconducting $\text{PrFeAsO}_{0.7}$

T. Nomura<sup>1)</sup>, Y. Harada<sup>2)</sup>, H. Niwa<sup>3)</sup>, K. Ishii<sup>1)</sup>, M. Ishikado<sup>4)</sup>, S. Shamoto<sup>5)</sup>, I. Jarrige<sup>6)</sup>

<sup>1)</sup>Synchrotron Radiation Research Center

<sup>2)</sup>ISSP, Univ. of Tokyo, <sup>3)</sup>Univ. of Tsukuba, <sup>4)</sup>CROSS, <sup>5)</sup>JAEA, <sup>6)</sup>BNL

Recently, resonant inelastic x-ray scattering (RIXS) has emerged as a powerful technique to observe various elementary excitations in solids. Particularly, RIXS at the transition-metal absorption edges is useful to study the electron dynamics of strongly correlated  $d$  electrons in transition-metal compounds. In  $L$ -edge RIXS, which we adopt in the present study, the  $2p$  electrons are promoted to the transition-metal  $d$  bands. Since the  $2p$  states split into  $j = 1/2$  doublets and  $j = 3/2$  quartets due to the strong spin-orbit coupling, the promoted electrons are polarized in spin in general. Therefore, magnetic excitations can be induced within the transition-metal  $d$  bands. When both the incoming and outgoing x-rays are linearly polarized, as observed in typical RIXS experiments, the orbital angular momentum of the  $d$ -electron system can also change in the final state since the total angular momentum of the spin and the orbital is conserved. Thus,  $L$ -edge RIXS can detect electronic excitations such as single-spin-flip excitations and off-diagonal orbital excitations. [We refer to excitations where the orbital states of the excited electron and hole are the same (different) in the final state as diagonal (off-diagonal) orbital excitations.]

$L$ -edge RIXS has indeed been widely applied to a number of copper oxides, particularly to the high- $T_c$  superconducting copper oxides, resulting in successful observations of magnetic and orbital excitations. On the other hand, fewer  $L$ -edge RIXS studies have been performed for iron pnictides or chalcogenides, to our knowledge. In iron-based superconductors, first-principles electronic structure calculations strongly indicate that each Fe- $d$  orbital occupies a significant part of the density of states (DOS) near the Fermi energy ( $E_F$ ). It is, therefore, expected that the nature of the low-energy electronic excitations differs significantly, in principle, from that of the high- $T_c$  cuprate superconductors, in which only the Cu- $d_{x^2-y^2}$  orbital is dominant near  $E_F$ . In particular, it has been suggested that orbital fluctuations involving the Fe- $d_{yz}$  and  $-d_{xz}$  orbitals play a key role in inducing the pairing in iron pnictides. This calls for a study of the low-energy orbital excitations in these materials using  $L$ -edge RIXS. In this report, we explain an  $L$ -edge RIXS study for a typical iron-based superconductor  $\text{PrFeAsO}_{0.7}$  [1].

The RIXS spectra were collected at the beamline

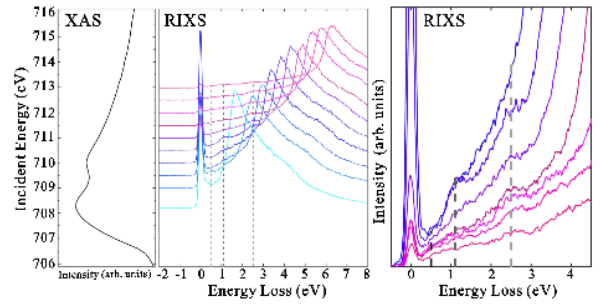


Figure 1: Fe- $L_3$  XAS spectrum measured in the total fluorescence yield mode (left panel) and RIXS spectra measured for a few incident energies across the edge (center panel) on  $\text{PrFeAsO}_{0.7}$ . The vertical offset of the RIXS spectra matches their respective incident energies along the XAS spectrum energy axis. The vertical dashed lines indicate the energy loss of the Raman-type features. X-ray momentum transfer is  $Q \approx (0, 0, 1.4\pi)$ . Close-up of the low-energy portion of the RIXS spectra of  $\text{PrFeAsO}_{0.7}$  without a vertical offset (right panel).

BL07SU and the x-ray emission spectrometer HORNET at SPring-8, Japan. The total energy resolution for the RIXS measurements is  $\sim 230$  meV at the Fe- $L_3$  edge, which corresponds to a resolving power  $E/\Delta E \approx 3000$ . The x-ray absorption spectroscopy (XAS) spectra were measured in the total-fluorescence-yield (TFY) mode. The sample belongs to the so-called 1111 family, which crystallizes in the ZrCuSiAs-type structure in the tetragonal space group  $P4/nmm$ . In this sample, the optimal electron doping of 0.6 yields a  $T_c$  of 42 K. RIXS spectra measured on  $\text{PrFeAsO}_{0.7}$  at a few incident x-ray energies  $E_{\text{inc}}$  across the  $L_3$  edge are shown in Fig. 1. The vertical offset of the RIXS spectra is scaled to the energy axis of the XAS spectrum. The RIXS spectra display a salient feature around the 1.5 eV energy loss at  $E_{\text{inc}} = 708$  eV, which tracks the incident energy up to  $\sim 6.5$  eV at  $E_{\text{inc}} = 713$  eV. This behavior is typical of fluorescence, and is observed not only in iron pnictides, but also in Fe metal and other iron compounds. We assign this peak to the  $L\alpha_1$  emission line, which corresponds to the  $3d_{5/2} \rightarrow 2p_{3/2}$  fluorescent decay. As the fluorescence disperses to higher-energy losses,

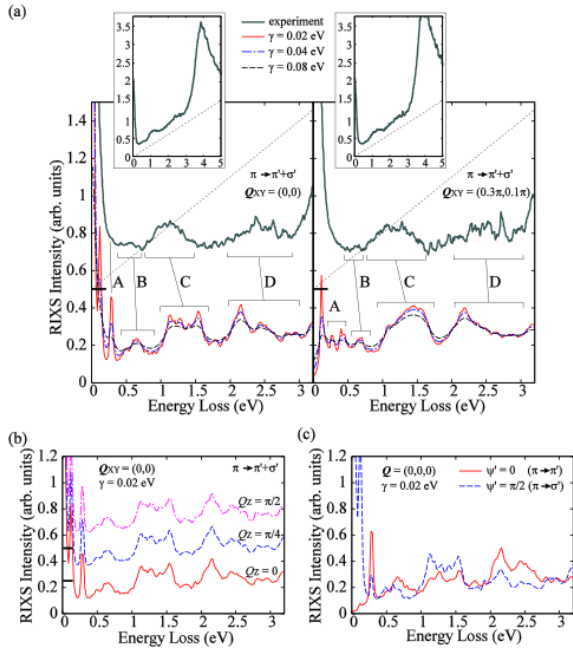


Figure 2: (a) Assigning the observed RIXS features to the calculated ones. Left and right panels show the results at in-plane momentum transfers  $Q_{XY} = (0,0)$  and  $(0.3\pi, 0.1\pi)$ , respectively. Thick horizontal bar and the dotted slope represent the baseline and the subtracted linear background of the experimental data, respectively. Insets show the subtracted linear background and the experimental curve before subtraction.  $\gamma$  is the broadening factor. (b) Calculated dependence on the out-of-plane momentum transfer  $Q_Z$ . Baselines for  $Q_Z = \pi/4$  and  $\pi/2$  are vertically shifted for clarity. (c) Calculated dependence on the outgoing x-ray polarization. In every panel, the incident x-ray is  $\pi$  polarized ( $\psi = 0$ ), and the incident x-ray energy is set to  $\omega = 710.5$  eV. In (a) and (b), curves of the spectra averaged for  $\psi' = 0$  and  $\pi/2$  ( $\pi'$ - and  $\sigma'$ - polarizations) are drawn.

weak features appear in its low-energy loss tail and remain at a fixed energy loss upon increasing in the incident energy, around 0.5, 1-1.5, and 2-3 eV. We note that while the RIXS features are very weak, such a clear observation of Fe  $L$ -edge RIXS excitations in a 1111 Fe-based superconductor has not been previously reported in the literature to our knowledge. A close-up of the low-energy portion of the RIXS spectra without a vertical offset is shown in the right panel of Fig. 1. The presence of well-defined Raman-type features in the  $\text{PrFeAsO}_{0.7}$  data is confirmed.

To interpret these features, we carried out theoretical calculations using the previously constructed framework on the basis of a state-of-the-art first-principles electronic structure calculation [2]. Figure 2 compares the theoretical RIXS spectra to the experimental ones. The experimental features denoted as B, C, D are well captured by the calculation. Here we assume a moderate strength of the electron-electron Coulomb interaction,  $U = 3$  eV. This value agrees well with other theoretical studies. Based on the

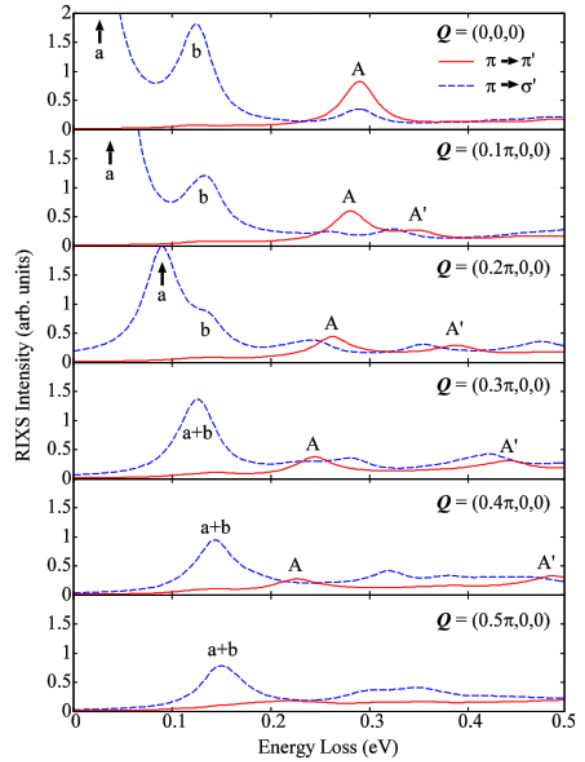


Figure 3: Calculated dependence of the low-energy RIXS spectra on x-ray momentum transfer  $Q$  along the  $[100]$  direction. Incident x-ray is  $\pi$  polarized. Features a and b are actively excited when the polarization directions of the incoming and outgoing x-rays are perpendicular to each other ( $\pi \rightarrow \sigma'$ ). These features are attributed to magnetic excitations with spin flipping.

agreement with theory, we can assign the features to electron orbital excitations among Fe-d orbitals at a microscopic level. Furthermore, our calculation suggests that single-magnon excitations and spin-flipped orbital excitations should appear at low excitation energies below 0.5 eV, which are dispersive with respect to the x-ray momentum transfer (Fig. 3). These excitations are not observed in the present experiment likely due to the limited energy resolution and excitation damping. Remarkable splitting and merging of the lower-energy RIXS peaks in the momentum space are predicted, which have yet to be experimentally observed. We believe that further advances in instrumentations will enable us to observe these characteristic spectral behaviors at low energies and obtain a crucial clue to elucidate the pairing mechanism in the iron-pnictide high- $T_c$  superconductivity.

## References

- [1] T. Nomura, Y. Harada, H. Niwa, K. Ishii, M. Ishikado, S. Shamoto, and I. Jarrige, *Phys. Rev. B* **94**, 035134 (2016).
- [2] T. Nomura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **84**, 094704 (2015).



# Publication List

## Publication List

### Original Papers

1. Projection imaging with directional electron and proton beams emitted from an ultrashort intense laser-driven thin foil target, M. Nishiuchi, I. W. Choi, H. Daido, T. Nakamura, A. S. Pirozhkov, A. Yogo, K. Ogura, A. Sagisaka, S. Orimo, I. Daito, S. V. Sergei, J. H. Sun, S. K. Lee, T. J. Yu, T. M. Jeong, I. J. Kim, S. W. Kang, K. H. Pae, Y. Oishi and J. Lee, *Plasma Phys. Control. Fusion* **57(2)**, 025001-1 - 025001-9 (2017).
2. Boosting laser-ion acceleration with multi-picosecond pulses, A. Yogo, K. Mima, N. Iwata, S. Tosaki, A. Morace, Y. Arikawa, S. Fujioka, T. Johzaki, Y. Sentoku, H. Nishimura, A. Sagisaka, K. Matsuo, N. Kamitsukasa, S. Kijima, H. Nagatomo, M. Nakai, H. Shiraga, M. Murakami, S. Tokita, J. Kawanaka, N. Miyanaga, K. Yamanoi, T. Norimatsu, H. Sakagami, S. Bulanov, K. Kondo and H. Azechi, *Scientific Reports* **7**, 42451 (2017).
3. Gapless quantum spin liquid of the kagome-lattice antiferromagnet, T. Sakai, H. Nakano, *Polyhedron* **126**, 42-44 (2017).
4. P-V-T relation of the Fe-H system under hydrogen pressure of several gigapascals, H. Saito, A. Machida, H. Sugimoto, T. Yagi and K. Aoki, *Journal of Alloys and Compounds* **706(5)**, 520-525 (2017).
5. Formation of novel transition metal hydride complexes with ninefold hydrogen coordination, S. Takagi, Y. Iijima, T. Sato, H. Saito, K. Ikeda, T. Otomo, K. Miwa, T. Ikeshoji and S. Orimo, *Scientific Reports* **7**, 44253 (2017).
6. 放射光X線の回折・分光で解明する SrIrO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> 超格子の電子状態, 和達 大樹, 山村 周玄, 石井 賢司, 鈴木 基寛, 池永 英司, 松野 丈夫, X線分析の進歩 **48**, 215-223 (2017).
7. Efficiency of radiation-induced base lesion excision and the order of enzymatic treatment, I. Shiraishi, N. Shikazono, M. Suzuki, K. Fujii and A. Yokoya, *International journal of radiation biology* **93(3)**, 295-302 (2017).
8. 2D hybrid analysis: Approach for building three-dimensional atomic model by electron microscopy image matching, A. Matsumoto, N. Miyazaki, J. Takagi and K. Iwasaki, *Scientific reports* **7**, 377 (2017).
9. 放射光光電子分光で観た酸素分子による Ni(001) 表面酸化膜形成の反応機構, Y. Teraoka and Y. Iwai, 電気学会論文誌 C **137(3)**, 394-399 (2017).
10. Crystal structure of the overlapping dinucleosome composed of hexasome and octasome, D. Kato, A. Osakabe, Y. Arimura, Y. Mizukami, N. Horikoshi, K. Saikusa, S. Akashi, Y. Nishimura, S. Y. Park, J. Nogami, K. Maehara, Y. Ohkawa, A. Matsumoto, H. Kono, R. Inoue, M. Sugiyama and H. Kurumizaka, *Science* accepted (2017).
11. ナクレオソーム中におけるヒストンテールの特性とアセチル化の影響, J. Ikebe, S. Sakuraba and H. Kono, 生物物理 **57-2**, 330 (2017).
12. Channel-specific photoelectron angular distribution in laboratory and molecular frames for dissociative ionization of methanol in intense ultraviolet laser fields, Shinichi Fukabori, Motoyoshi Nakano, Kaoru Yamauchi and Ryuji Itakura, *Chemical Physics Letters* **672**, 7-12 (2017).
13. Towards a novel laser-driven method of exotic nuclei extraction – acceleration for fundamental physics and technology, M. Nishiuchi, Y. Sakaki, T. Esirkepov, K. Nishio, T. A. Pikuz, A. Ya. Faenov, I. Yu. Skobelev, R. Orlandi, A. Pirozhkov, A. Sagisaka, K. Ogura, M. Kanasaki, H. Kiriyama, Y. Fukuda, H. Koura, M. Kando, T. Yamauchi, Y. Watanabe, S. V. Bulanov, K. Kondo, K. Imai and S. Nagamiya, *Plasma Physics Reports* **42(4)**, 327-337 (2016).
14. High-efficiency gamma-ray flash generation via multiple-laser scattering in ponderomotive potential well,

- Z. Gong, R. H. Hu, Y. R. Shou, B. Qiao, C. E. Chen, X. T. He, S. S. Bulanov, T. Esirkepov, S. V. Bulanov and X. Q. Yan, *PHYSICAL REVIEW E* **95**(1), 013210 (2017).
15. Relativistic mirrors in laser plasmas (analytical methods), S. V. Bulanov, T. Esirkepov, M. Kando and J. Koga, *Plasma Sources Sci. Technol.* **25**(5), 053001 (2016).
  16. Crystal-Site-Selective Spectrum of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> Obtained by Mössbauer Diffraction, Shin Nakamura, Takaya Mitsui, Kosuke Fujiwara, Naoshi Ikeda, Masayuki Kurokuzu and Susumu Shimomura, *Journal of the Physical Society of Japan* **86**, 023706-1-023706-4 (2017).
  17. Recent Activities on Heavy Ion Inertial Fusion in Japan, T. Kikuchi, J. Hasegawa, K. Horioka, Y. Iwata, W. Jiang, S. Kawata, K. Kondo, Y. Oguri, K. Okamura, M. Okamura, T. Sasaki, K. Takahashi and K. Takayama, *Nuclear Fusion* (2017).
  18. Precision Measurement of Delbrück Scattering via Laser Compton Scattered  $\gamma$ -rays, J. Koga and T. Hayakawa, *Journal of Physics: Conference Series* **688**, 012050-4 (2017).
  19. Generation of femtosecond  $\gamma$ -ray bursts stimulated by laser-driven hosing evolution, Yong Ma, Liming Chen, Dazhang Li, Wenchao Yan, Kai Huang, Ming Chen, Zhengming Sheng, Kauhisa Nakajima, Toshiaki Tajima and Jie Zhang, *Scientific Reports* **6**, 30491 (2017).
  20. Generation of 20 kA electron beam from a laser wakefield accelerator, Y.F.Li, D.Z.Li, K. Huan, M.Z.Tao, M.H.Li, J.R.Zhao, Y.Ma, X.Guo, J.G.Wang, M.Chen, N.Hafz, J.Zhang and L.M.Chen, *Physics of Plasmas* **24**, 048702, (2017).
  21. Resonantly Enhanced Betatron Hard X-rays from Ionization Injected Electrons in a Laser Plasma Accelerator, K. Huan, Y.F.Li, D.Z.Li, L.M.Chen, M.Z.Tao, Y.Ma, J.R.Zhao, M.H.Li, M.Chen, M.Mirzaie, N.Hafz, T. Sokollik, Z.M.Sheng and J.Zhang, *Scientific Reports* **6**, 27633 (2016).
  22. Infrared Spectroscopic and Computational Studies on Li<sub>4</sub>FeH<sub>6</sub> with High Gravimetric Hydrogen Density, Takahiro Ogata, Toyoto Sato, Shigeyuki Takagi, Hiroyuki Saito, Yuki Iijima, Biswajit Paik and Shinichi Orimo, *Materials Transactions* **58**(2), 157-159 (2017).
  23. High-dynamic-range cross-correlator for shot-to-shot measurement of temporal contrast, R. Kon, M. Nishiuchi, K. Kiriya, K. Ogura, M. Michiaki, Y. Sakaki, M. Kando and K. Kondo, *Japanese Journal of Applied Physics* **56**, 012701-1 - 012701-6 (2017).
  24. High dynamic range multi-channel cross-correlator for single-shot temporal contrast measurement, R. Kon, M. Nishiuchi, K. Kiriya, K. Ogura, M. Michiaki, Y. Sakaki, M. Kando and K. Kondo, *Journal of Physics: Conference Series* **717**, 012103-1-012103-4 (2016).
  25. Dzyaloshinsky-Moriya Interaction and the Ground State in S=3/2 Perfect Kagome Lattice Antiferromagnet KCr<sub>3</sub>(OH)<sub>6</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> (Cr-Jarosite) Studied by X-Band and High-Frequency ESR, S. Okubo, R. Nakata, S. Ikeda, N. Takahashi, T. Sakurai, W.-M. Zhang, H. Ohta, T. Shimokawa, T. Sakai, K. Okuta, S. Hara and H. Sato, *Journal of the Physical Society of Japan* **86**(2), 024703-1-024703-6 (2017).
  26. Ground State Phase Diagram of the Bond-Alternating S=2 Quantum Spin Chain with the XXZ and On-Site Anisotropies -Symmetry Protected Topological Phase versus Trivial Phase-, K. Okamoto, T. Tonegawa and T. Sakai, *Journal of the Physical Society of Japan* **85**(6), 063704-1-063704-4 (2016).
  27. Formation of x-ray Newton's rings from nano-scale spallation shells of metals in laser ablation, M. Nishikino, N. Hasegawa and T. Kawachi, *AIP Advances* **7**(1), 015311 (2017).
  28. Controllable Laser Ion Acceleration, Shigeo Kawata and Sergey Bulanov, *Journal of Physics: Conference Series* **691**, 012021-8 (2016).
  29. X-ray spectral diagnostics of laser harmonic generation in the interaction of relativistic femtosecond laser pulses with clusters, Ya. Faenov, E. Oks, E. Dalimier, I.Yu. Skobelev, S. A. Pikuz, T.A. Pikuz, I. A. Zhvaniya, Y. Fukuda, A. Andreev, J. Koga, Y. Sakaki, H. Kotaki, A. Pirozhkov, Y. Hayashi, T. Kawachi, M. Kando, K. Kondo, A. Zhidkov and R. Kodama, *Quantum Electronics* **46**(4), 338-341 (2016).

30. Ultrahigh-contrast kilojoule-class petawatt LFEX laser using a plasma mirror, Yasunobu Arikawa, Sadaoki Kojima, Alessio Morace, Shohei Sakata, Takayuki Gawa, (Akito Sagisaka, Koichi Ogura, Alexander Pirozhkov, Masaharu Nishikino, Kiminori Kondo), *Applied Optics* **55(25)**, 685-6857 (2016).
31. Development of Stable Seed Pulses for Optically Synchronized Optical Parametric Chirped-Pulse Amplifier Pumping, Yasuhiro Miyasaka, Hiromitsu Kiriya, Maki Kishimoto, Michiaki Mori, Masaki Kando and Kiminori Kondo, *レーザー研究* **45(2)**, 108-111 (2017).
32. ボロン-K 発光分光計測のための高回折効率広角ラミナー型回折格子, M. Koike, T. Hadano, R. Ukita, H. Sasai, *X線分析の進歩* **48** (2017).
33. Development of Micro-structured Fluorescent Plates for High-resolution Imaging, Takuro Sakai, Riyo Yasuda, Hiroshi Iikura and Masahito Matsubayashi, *Proc. Int. Symp. on Radiation Detectors and Their Uses*, (2017).
34. Glassy distribution of  $\text{Bi}^{3+}\text{Bi}^{5+}$  in  $\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x\text{NiO}_3$  and negative thermal expansion induced by intermetallic charge transfer, Kiho Nakano, Kengo Oka, Tetsu Watanuki, Masaichiro Mizumaki, Akihiko Machida, Akane Agui, Hyunjeong Kim, Jun Komiyama, Takashi Mizokawa, Takumi Nishikubo, Yuichiro Hattori, Shigenori Ueda, Yuki Sakai and Masaki Azuma, *Chemistry of Materials* **28(17)**, 6062-6067 (2016).
35. Evaluation of a flat-field grazing incidence spectrometer for highly charged ion plasma emission in soft x-ray spectral region from 1 to 10 nm, ThanhHung Dinh, Yoichi Yamamoto, Masahiko Ishino and Masaharu Nishikino, *Review of Scientific Instruments* **87(12)**, 123106-1 - 123106-7 (2016).
36. Coherent X-ray beam metrology using 2D high-resolution Fresnel-diffraction analysis, M. Ruiz-Lopez, A. Faenov, T. Pikuz, N. Ozaki, A. Mitrofanov, B. Albertazzi, N. Hartley, T. Matsuoka, Y. Ochante, Y. Tange, T. Yabuuchi, T. Habara, K. A. Tanaka, Y. Inubushi, M. Yabashi, M. Nishikino, T. Kawachi, S. Pikuz, T. Ishikawa and R. Kodama, *Journal of Synchrotron Radiation* **24**, 196-204 (2017).
37. X-ray coherent mirage: Generation of phase-matched coherent point source in plasma media by propagated X-ray laser seeded beam, Y. Faenov, T. A. Pikuz, M. Ishino and M. Nishikino, *Laser and Particle Beams* **34(3)**, 402-411 (2016).
38. First-Principles Molecular Dynamics Analysis of Ligand-Free Suzuki – Miyaura Cross-Coupling in Water Solvent: Oxidative Addition Step, Teruo Hirakawa, Yuta Uramoto, Daisuke Mimura, Atsuya Takeda, Susumu Yanagisawa, Takashi Ikeda, Kouji Inagaki and Yoshitada Morikawa, *The Journal of Physical Chemistry B* **121(1)**, 164-173 (2017).
39. Numerical demonstration of high-Z doping scheme on ignition-relevant scale implosion, Takashi Shirotto, Naofumi Ohnishi, Atsushi Sunahara, Shinsuke Fujioka and Akira Sasaki, *Physics of Plasmas* **23(12)**, 122705 (2017).
40. Characteristics of the soft X-ray emission from laser-produced highly charged platinum plasmas, Hiroyuki para, Goki Arai, Yoshiki Kondo, Thanh-Hung Dinh, Pdraig Dunne, Gerry O’Sullivan, Takeo Ejima, Tadashi Hatano, Weihua Jiang, Masaharu Nishikino, Akira Sasaki and Atsushi Sunahara, *Applied Physics Express* **9(6)**, 066201 (2016).
41. Efficiency of radiation-induced base lesion excision and the order of enzymatic treatment, Iyo Shiraishi, Naoya Shikazono, Masao Suzuki, Kentaro Fuji and Akinari Yokoya, *International Journal of Radiation Biology*, (2016).
42. Thermoelastic properties of liquid Fe-C revealed by sound velocity and density measurements at high pressure, Yuta Shimoyama, Hidenori Terasaki, Satoru Urakawa, Yusaku Takubo, Soma Kuwabara, Shunpachi Kishimoto, Tetsu Watanuki, Akihiko Machida, Yoshinori Katayama and Tadashi Kondo, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth* **121(11)**, 7984-7995 (2016).
43. Effects of growth temperature and growth rate on polytypes in gold-catalyzed GaAs nanowires studied by in situ X-ray diffraction, Masamitsu Takahashi, Kozi Miwa and Takuo Sasaki, *Japanese Journal of Applied Physics* **55(4S)**, 04EJ04 (2016).



44. O<sub>2</sub> 分子衝突で誘起される Ru(0001) 表面の吸着 O 原子の拡散, Makoto Takahashi, Tetsuya Ariga and Yuden Teraoka, 電気学会論文誌 A **136(7)**, 462-463 (2016).
45. Valence-band electronic structure evolution of graphene oxide upon thermal annealing for optoelectronics, Hisato Yamaguchi, Shuichi Ogawa, Daiki Watanabe, Hideaki Hozumi, Yongqian Gao, Goki Eda, Cecilia Mattevi, Takeshi Fujita, Akitaka Yoshigoe, Shinji Ishizuka, Lyudmyla Adamska, Takatoshi Yamada, Andrew M. Dattelbaum, Gautam Gupta, Stephen K. Doorn, Kirill A. Velizhanin, Yuden Teraoka, Mingwei Chen, Han Htoon, Manish Chhowalla, Aditya D. Mohite and Yuji Takakuwa, *Physica Status Solidi A: Applications and Materials Science* **213(9)**, 2380-2386 (2016).
46. Investigation of segregation during oxidation of Ni-Cu alloy by in situ photoelectron spectroscopy, Takashi Doi, Yoshitaka Nishiyama, Akitaka Yoshigoe and Yuden Teraoka, *Surface and Interface Analysis* **48(7)**, 685-688 (2016).
47. Initial oxidation behavior of Ni<sub>3</sub>Al (210) surface induced by supersonic oxygen molecular beam at room temperature, Y. Xu, J. Sakurai, Y. Teraoka, A. Yoshigoe, M. Demura and T. Hirano, *Appl. Surf. Sci.* **391**, 18-23 (2017).
48. Laser ion acceleration from mass-limited targets with preplasma, K. V. Lezhnin, F. F. Kamenets, T. Esirkepov, S. V. Bulanov, O. Klimo, S. Weber and G. Korn, *Physics of Plasmas* **23(5)**, 053114-11 (2016).
49. Radiation pressure acceleration: The factors limiting maximum attainable ion energy, S. S. Bulanov, E. Esarey, C. B. Schroeder, S. V. Bulanov, T. Esirkepov, M. Kando, F. Pegoraro and W. P. Leemans, *Physics of Plasmas* **23(5)**, 056703-13 (2016).
50. Explosion of relativistic electron vortices in laser plasmas, K. V. Lezhnin, F. F. Kamenets, Timur Esirkepov, Sergey Bulanov, Y. J. Gu, S. Weber and G. Korn, *PHYSICS OF PLASMAS* **23(9)**, 093116-7 (2016).
51. Characterization of polycrystalline tungsten surfaces irradiated with nitrogen ions by X-ray photoelectron spectroscopy, Y. Kamiura, K. Umezawa, Y. Teraoka and A. Yoshigoe, *Materials Transactions* **57(9)**, 1609-1614 (2016).
52. Magnetic reconnection: from MHD to QED, Sergey Bulanov, *PLASMA PHYSICS AND CONTROLLED FUSION* **59**, 014029-14 (2017).
53. Effect of track potentials on the movement of secondary electrons due to irradiation of heavy ions, Kengo Moribayashi, *J. Phys. Soc. Jpn.* **86(2)**, 024301-1-024301-5 (2017).
54. Design of a prototype split-and-delay unit for XFEL pulses, and their evaluation by synchrotron radiation X-rays, Jun'ya Sakamoto, Kenji Owada, Masahiko Ishino, Junichiro Mizuki, Masami Ando and Kazumichi Namikawa, *Journal of Synchrotron Radiation* **24**, 95-102 (2017).
55. Nitride-MBE system for in situ synchrotron X-ray measurements, Takuo Sasaki, Fumitaro Ishikawa, Tomohiro Yamaguchi and Masamitsu Takahashi, *JAPANESE JOURNAL OF APPLIED PHYSICS* **55(5)**, 05FB05 (2016).
56. Study of optical emission during spallative ablation induced by soft x-ray laser pulses, Masahiko Ishino, Masaharu Nishikino, Noboru Hasegawa, Mitsuru Yamagiwa and Tetsuya Kawachi, *Springer Proceedings in Physics* **169**, 405-409 (2016).
57. Radiation-induced clustered DNA lesions: Repair and mutagenesis., Evelyne Sage and Naoya Shikazono, *Free radical biology & medicine*, (2016).
58. Structure determination of molecules in an alignment laser field by femtosecond photoelectron diffraction using an X-ray free-electron laser, S. Minemoto, T. Teramoto, H. Akagi, T. Fujikawa, T. Majima, K. Nakajima, K. Niki, S. Owada, H. Sakai, T. Togashi, K. Tono, S. Tsuru, K. Wada, M. Yabashi, S. Yoshida and A. Yagishita, *Scientific Reports* **6**, 38654-1-9 (2016).
59. Local and collective magnetism of EuFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>, J. Pellicciari, K. Ishii, M. Dantz, X. Lu, D. McNally, V. N.

- Strocov, L. Xing, X. Wang, C. Jin, H. S. Jeevan, P. Gegenwart, T. Schmitt, *Physical Review B* **95**(11), 115152 (2017).
60. Narrow-band photon beam via laser Compton scattering in an energy recovery linac, T. Akagi, A. Kosuge, S. Araki, R. Hajima, Y. Honda, T. Miyajima, M. Mori, R. Nagai, N. Nakamura, M. Shimada, T. Shizuma, N. Terunuma and J. Urakawa, *Physical Review Accelerators and Beams* **19**, 114701 (2016).
61. Decomposition of powerful axisymmetrically polarized laser pulses in underdense plasma, Nobuhiko Nakanii, Tomonao Hosokai, Naveen C. Pathak, Shinichi Masuda, Alexei G. Zhidkov, Hiroki Nakahra, Kenta Iwasa, Yoshio Mizuta, Naoki Takeguchi, Takamitsu P. Otsuka, Keiichi Sueda, Junpei Ogino, Hirotaka Nakamura, Michiaki Mori, Masaki Kando and Ryosuke Kodama, *Physical Review E* **94**(6), 063205-1-063205-6 (2016).
62. Explosive nucleosynthesis study using laser driven gamma-ray pulses, T. Hayakawa, T. Nakamura, H. Kotaki, M. Kando and T. Kajino, *Quantum Beam Science* **1**(1), 3-1 - 3-12 (2016).
63. Effects of radiation reaction in the interaction between cluster media and high intensity lasers in the radiation dominant regime, Natsumi Iwata, Hideo Nagatomo, Yuji Fukuda, Ryutaro Matsui and Yasuaki Kishimoto, *PHYSICS OF PLASMAS* **23**, 063115-1-063115-17 (2016).
64. Development of Mössbauer diffractometer by using nuclear resonant scattering at SPring-8 BL11XU, Shin Nakamura, Takaya Mitsui, Kosuke Fujiwara, Naoshi Ikeda, Yasuhiro Kobayashi and Susumu Shimomura, *Hyperfine Interactions* **237**, 157-1-157-9 (2016).
65. Si-APD linear-array x-ray detector with 10-100  $\mu$  m spatial and sub-nanosecond time resolution, S. Kishimoto, T. Mitsui, R. Haruki, Y. Yoda, S. Shimazaki, M. Saito, M. Ikeno and M. Tanaka, *AIP Conf. Proc.* **1741**, 040034-1-040034-4 (2016).
66. Magnetic and spin transitions in wüstite: A synchrotron Mössbauer spectroscopic study, Maki Hamada, Seiji Kamada, Eiji Ohtani, Takaya Mitsui, Ryo Masuda, Tatsuya Sakamaki, Nanami Suzuki, Fumiya Maeda and Masahide Akasaka, *Physical Review B* **93**, 155165-1-155165-6 (2016).
67. High-Pressure-Hydrogen-Induced Spin Reconfiguration in GdFe<sub>2</sub> Observed by <sup>57</sup>Fe-Polarized Synchrotron Radiation Mössbauer Spectroscopy with Nuclear Bragg Monochromator, Takaya Mitsui, Yasuhiko Imai, Naohisa Hirao, Takahiro Matsuoka, Yumiko Nakamura, Kouji Sakaki, Hirotoshi Enoki, Naoki Ishimatsu, Ryo Masuda and Makoto Seto, *Journal of the Physical Society of Japan* **85**, 123707-1-123707-5 (2016).
68. Observation of Enhancement of the Morin Transition Temperature in Iridium-Doped  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Thin Film by <sup>57</sup>Fe-Grazing Incidence Synchrotron Radiation Mössbauer Spectroscopy, Takaya Mitsui, Ko Mibu, Makoto Seto, Masayuki Kurokuzu, Satya Prakash Pati, Tomohiro Nozaki and Masashi Sahashi, *Journal of the Physical Society of Japan* **85**, 063601-1-063601-4 (2016).
69. Observation of Flux-Grown  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Single Crystal at the Morin Transition by <sup>57</sup>Fe Synchrotron Radiation Mössbauer Diffraction, Takaya Mitsui, Shin Nakamura, Naoshi Ikeda, Kosuke Fujiwara, Ryo Masuda, Yasuhiro Kobayashi and Makoto Seto, *Journal of the Physical Society of Japan* **85**, 054705-1-054705-5 (2016).
70. Single-atom response of helium atoms to pulses from an EUV free-electron laser - implications for the subsequent development of superfluorescence, J. Harries, C. Ohae, S. Kuma, K. Nakajima, T. Togashi, Y. Miyamoto, N. Sasao, H. Iwayama, M. Nagasono and M. Yabashi, *Physical Review A* **94**, 063416-1-063416-9 (2016).
71. Probing electron correlation through radiative lifetime measurements upon inner-valence photoionization of Ne and Ar, N. Suzuki, S. Kosugi, Y. Ito, N. Inoue, T. Nagoshi, N. Kuze, J. Harries, J. P. Sullivan, T. Nagata, E. Sokell and F. Koike, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **49**(14), 145002-145002 (2016).
72. High-harmonic generation in alpha -quartz by electron-hole recombination, Tomohito Otobe, *Physical Review B* **94**, 235152-1-235152-6 (2016).

73. Multi-Scale Simulation for Transient Absorption Spectroscopy under Intense Few-Cycle Pulse Laser, Tomohito Otobe, *Photonics* **3**(4), 63-1-63-9 (2016).
74. Atomic displacements and lattice distortion in the magnetic-field-induced charge-ordered state of SmRu<sub>4</sub>P<sub>12</sub>, Takeshi Matsumura, Shinji Michimura, Toshiya Inami, Kengo Fushiya, Tatsuma D. Matsuda, Ryuji Higashinaka and Yuji Aoki, *Physical Review B* **94**, 184425 (2016).
75. THz pulse generation using a contact grating device composed of TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> thin films on LiNbO<sub>3</sub> crystal, Fumiko Yoshida, Keisuke Nagashima, Masaaki Tsubouchi, Momoko Maruyama and Yoshihiro Ochi, *Journal of Applied Physics* **120**, 183103-1-183103-5 (2016).
76. Subcycle optical response caused by dressed state with phase-locked wave functions, K. Uchida, T. Otobe, T. Mochizuki, C. Kim, M. Yoshida, H. Akiyama, L. N. Pfeiffer, K. W. West, K. Tanaka and H. Hirori, *Physical Review Letters* **117**(27), 277402-1-277402-5 (2017).
77. A polymerization-based method to construct a plasmid containing clustered DNA damage and a mismatch, Momoko Takahashi, Ken Akamatsu and Naoya Shikazono, *Analytical Biochemistry* **510**, 129-135 (2016).
78. Electronic Structure of Pt and Pt-Co Nanoparticles with O<sub>2</sub> and O<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O Adsorption Revealed by In Situ XAFS and Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy, Yitao Cui, Yoshihisa Harada, Tatsuya Hatanaka, Naoki Nakamura, Masaki Ando, Toshihiko Yoshida, Eiji Ikenaga, Kenji Ishii, Daiju Matsumura, Rui Li and Masaharu Oshima, *ECS Transactions* **72**(8), 131-136 (2016).
79. Mineralogical characterization of radioactive particles from Fukushima soil using  $\mu$ -XRD with synchrotron radiation, Satoko Motai, Hiroki Mukai, Tetsu Watanuki, Kenji Owada, Tatsuo Fukuda, Akihiko Machida, Chisaki Kuramata, Ryosuke Kikuchi, Tsuyoshi Yaita and Tohsihiro Kogure, *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences* **111**(5), 305-312 (2016).
80. Investigation of the ionization balance of bismuth-to-tin plasmas for the extreme ultraviolet light source based on a computer-generated collisional radiative model, Akira Sasaki, Atsushi Sunahara and Katsumobu Nishihara, *AIP advances* **6**(10), 105002 (2016).
81. Valence State in CeIrIn<sub>5</sub> at High Magnetic Fields of up to 42 T, Yasuhiro H. Matsuda, Taku T. Terashima, Koichi Kindo, Ryoma Tsunoda, Riki Settai, Naomi Kawamura, Masaichiro Mizumaki and Toshiya Inami, *Journal of the Physical Society of Japan* **85**(11), 115001 (2016).
82. Mechanism of relativistic Doppler reflection from a photo-induced moving plasma front studied by terahertz time-domain spectroscopy, Nanase Kono, Ryuji Itakura and Masaaki Tsubouchi, *Physical Review B* **94**(15), 155205 (2016).
83. Time-resolved dynamical Franz-Keldysh effect produced by an elliptically polarized laser, Tomohito Otobe, *Physical Review B* **94**, 165152-1-165152-5 (2016).
84. First-principles-based simulation of interlayer water and alkali metal ions in weathered biotite, Takashi Ikeda, *The Journal of Chemical Physics* **145**(12), 124703 (2016).
85. In Situ X-Ray Diffraction Study of the Oxide Formed on Alloy 600 in Borated and Lithiated High-Temperature Water, Masashi Watanabe, Toshio Yonezawa, Takahisa Shobu, Ayumi Shiro and Tetsuo Shoji, *CORROSION* **72**(9), 1155-1169 (2016).
86. Resonant inelastic x-ray scattering study of entangled spin-orbital excitations in superconducting PrFeAsO<sub>0.7</sub>, T. Nomura, Y. Harada, H. Niwa, K. Ishii, M. Ishikado, S. Shamoto and I. Jarrige, *Physical Review B* **94**, 035134-1-035134-9 (2016).
87. Incident-energy-dependent spectral weight of resonant inelastic x-ray scattering in doped cuprates, Kenji Tsutsui and Takami Tohyama, *Physical Review B* **94**(8), 085144 (2016).
88. Small-angle neutron scattering study of specific interaction and coordination structure formed by monoacetyl-substituted dibenzo-20-crown-6-ether and cesium ions, Ryuhei Motokawa, Tohru Kobayashi, Hitoshi Endo, Takashi Ikeda, Tsuyoshi Yaita, Shinichi Suzuki, Hirokazu Narita, Kazuhiro Akutsu and

- William T. Heller, *Journal of Nuclear Science and Technology* **53(8)**, 1205-1211 (2016).
89. Mechanism for verification of mismatched and homoduplex DNAs by nucleotides-bound MutS analyzed by molecular dynamics simulations, Hisashi Ishida and Atsushi Matsumoto, *Proteins* **84(9)**, 1287-1303 (2016).
  90. Spotting the difference in molecular dynamics simulations of biomolecules, Shun Sakuraba and Hidetoshi Kono, *The Journal of Chemical Physics* **145(8)**, 074116 (2016).
  91. Chemical and orbital fluctuations in Ba<sub>3</sub>CuSb<sub>2</sub>O<sub>9</sub>, Yusuke Wakabayashi, Daisuke Nakajima, Yuki Ishiguro, Kenta Kimura, Tsuyoshi Kimura, Satoshi Tsutsui, Alfred Q. R. Baron, Kouichi Hayashi, Naohisa Happo, Shinya Hosokawa, Kenji Owada and Satoru Nakatsuji, *Physical Review B* **93(24)**, 245117 (2016).
  92. Distinct Roles of Histone H3 and H2A Tails in Nucleosome Stability, Li Zhenhai and Hidetoshi Kono, *Scientific Reports* **6**, 31437 (2016).
  93. High energy photon emission from wakefields, D. M. Farinella, C. K. Lau, X. M. Zhang, J. K. Koga, S. Taimourzadeh, Y. Hwang, K. Abazajian, N. Canac, T. Ebisuzaki and P. Taborek, *PHYSICS OF PLASMAS* **23(7)**, 073107-1-073107-10 (2016).
  94. Simple synchronization technique of a mode-locked laser for Laser-Compton scattering Gamma-ray source, Michiaki Mori, Atsushi Kosuge, Hiromitsu Kiriya, Ryoichi Hajima and Kiminori Kondo, *Review of Scientific Instruments* **87(6)**, (2016).
  95. On some theoretical problems of laser wake-field accelerators, Sergey Bulanov, Esirkepov Timur, Yukio Hayashi, Hiromitsu Kiriya, James Kevin Koga, Hideyuki Kotaki, Michiaki Mori and Masaki Kando, *Journal of Plasma Physics* **82(905820308)**, 1-55 (2016).
  96. Plasma-Mirror frequency-resolved optical gating for simultaneous retrieval of a chirped vacuum-ultraviolet waveform and time-dependent reflectivity, Ryuji Itakura, Takayuki Kumada, Motoharu Nakano and Hiroshi Akagi, *High Power Laser Science and Engineering* **4**, e18 (2016).

## Proceedings

1. High-order harmonic generation by relativistic plasma singularities, A. Pirozhkov, T. Zh. Esirkepov, T. A. Pikuz, A. Ya. Faenov, K. Ogura, Y. Hayashi, H. Kotaki, E. N. Ragozin, D. Neely, H. Kiriya, J. Koga, Y. Fukuda, A. Sagisaka, M. Nishikino, T. Imazono, N. Hasegawa, T. Kawachi, H. Daido, Y. Kato, S. V. Bulanov, K. Kondo and M. Kando, *Springer Proceedings in Physics* (2017).
2. Chemical States Analysis of Trace-boron by using an Improved SEM-SXES, M. Terauchi, H. Takahashi, M. Takakura, T. Murano, M. Koike, T. Imazono, T. Nagano, H. Sasai and M. Koeda, *Microscopy & Microanalysis* **22(S3)**, 414-415 (2016).
3. 超短パルス軟X線レーザープローブによるフェムト秒レーザーアブレーション初期過程の解明, N. Hasegawa, M. Nishikino, Y. Minami, M. Baba, N. Onishi, A. Ito, T. Kawachi and T. Suemoto, 第85回レーザー加工学会講演論文集, 179-182 (2017).
4. Development of a flat-field spectrometer with a wideband Ni/C multilayer grating in the 1-3.5 keV range, T. Imazono, *AIP Conference Proceedings* **1741**, 040044-1 - 040044-4 (2016).
5. Experimental evaluation of a method to enhance the diffraction efficiency by overcoating diamond-like carbon (DLC) on soft X-ray laminar-type gratings, T. Imazono, M. Koike, T. Nagano, H. Sasai, H. Ogami, S. Kuramoto, M. Terauchi, H. Takahashi, S. Notoya, T. Murano and E. M. Gullikson, *AIP Conference Proceedings* **1741**, 040043-1 - 040043-4 (2016).
6. Limitation of the plasma channel due to the frequency blueshift, H. Kotaki, Y. Hayashi, M. Mori, M. Kando, J. Koga and S. V. Bulanov, *Journal of Physics: Conference Series* **688**, 012054-1 - 012054-4 (2016).
7. 手のひらサイズの非侵襲血糖値センサー, K. Yamakawa, 第11回フォトニクスポリマー研究会講座講演要旨集

- , 13-16 (2017).
8. Development of CdTe pixel detectors combined with an aluminum Schottky diode sensor and photon-counting ASICs, H. Toyokawa, C. Saji, M. Kawase, S. Wu, Y. Furukawa, K. Kajiwara, M. Sato, T. Hirano, A. Shiro, T. Shobu, A. Suenaga and H. Ikeda, *Journal of Instrumentation* **12**, (2017).
  9. 手のひらサイズの非侵襲血糖値センサーの開発, Koichi Yamakawa, Makoto Aoyama, Yutaka Akahane and Kanade Ogawa, レーザー学会第 495 回研究会報告 11-14 (2016).
  10. レーザー駆動粒子加速とその医療応用への可能性, Yuji Fukuda, 医学物理 **36(Sup. 2)**, 40-49 (2016).
  11. Laser-matter interaction in cluster medium in the radiation dominated regime, Natsumi Iwata, Yasuaki Kishimoto, F. Wu and Yuji Fukuda, *Journal of Physics: Conference Series* **688**, 012038-1-012038-5 (2016).
  12. Development of the compact furnace for the in-situ observation under ultra-high temperature by synchrotron x-ray surface diffraction, Masahiro Yoshida, Yasunori Kutsuma, Daichi Dohjima, Kenji Owada, Toshiya Inami, Noboru Ohtani, Tadaaki Kaneko and Junichiro Mizuki, *Materials Science Forum* **858**, 505-508 (2016).
  13. Enhancement of diffraction efficiency of laminar-type diffraction gratings overcoated, Masato Koike, Takashi Imazono, Tetsuya Nagano, Hiroyuki Sasai, Yuki Oue, Zeno Yonezawa, Satoshi Kuramoto, Masami Terauchi, Hideyuki Takahashi, Satoshi Notoya and Takanori Murano, *AIP Conference Proceedings* **1741**, 040045-1-040045-4 (2016).
  14. Recent Developments and Operational Status of the Compact ERL at KEK, T. Obina, M. Adachi, S. Adachi, T. Akagi, M. Akemoto, (M. Mori), *Proceedings of the 7th International Particle Accelerator Conference*, 1835-1838 (2016).
  15. DC Photoemission Gun Upgrade at the Compact ERL, Nobuyuki Nishimori, Ryoichi Hajima, Riyoji Nagai, Yosuke Honda, Tsukasa Miyajima, Takashi Uchiyama, Masahiro Yamamoto and Michiaki Mori, *Proceedings of the 7th International Particle Accelerator Conference*, 3944-3946 (2016).

## Awards

1. 兵庫県立大学 学生優秀賞受賞  
坂口 知輝 (兵庫県立大学、2017 年 3 月 22 日)
2. 学生発表優秀賞受賞  
「相対論的透明化領域におけるクラスター内無衝突衝撃波による 290 MeV 準単色プロトン加速」  
松井 隆太郎 (日本物理学会、領域 2、2017 年 3 月 20 日)
3. 2015 Highly Cited Article 受賞 (Journal of the Physical Society of Japan)  
坂井 徹 (Physical Society of Japan、2016 年 4 月 1 日)
4. 平成 28 年度科学技術分野の文部科学大臣表彰科学技術賞  
「電子顕微鏡用軟 X 線発光分析システムの開発育成」  
小池 雅人 (文部科学省、2016 年 4 月 20 日)
5. レーザー学会業績賞・論文賞 (解説部門) 受賞  
「フェムト秒レーザーアブレーションにより固体表面に自己組織的に形成するナノ周期構造」  
宮坂 泰弘 (一般社団法人レーザー学会、2016 年 5 月 31 日)
6. ハンス・アルヴェーン (Hannes Alfvén) 賞受賞  
「高温プラズマ物理研究における大型次世代装置の開発への実験的、理論的貢献」  
ブラノフ セルゲイ (European Physical Society、2016 年 7 月 4 日)
7. 優秀ポスター賞受賞  
「時分割その場局所構造観察による温度・圧力非平衡下における LaNi<sub>4.5</sub>Al<sub>0.5</sub> の水素化過程の研究」  
前島 尚行 (日本金属学会「水素化物に関わる次世代学術・応用展開研究会」、2016 年 10 月 28 日)

8. 波紋 President Choice 受賞  
「fcc Fe 中の重水素原子のサイト占有状態」  
齋藤 寛之、町田 晃彦（日本中性子科学会、2016 年 12 月 1 日）
9. Excellent Poster Award 受賞  
福田 祐仁（The 12th International Workshop on Ionizing Radiation Monitoring、2016 年 12 月 4 日）
10. Editor's choice 受賞（Journal of the Physical Society of Japan）  
「Crystal-Site-Selective Spectrum of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> Obtained by Mössbauer Diffraction」  
三井 隆也（Physical Society of Japan、2017 年 1 月 30 日）

# Activities of The Kids' Science Museum of Photons

# きつづ光科学館ふおとんの活動

## 概要

2016年4月、国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構（量研）が発足し、関西光科学研究所（関西研）は日本原子力研究開発機構から量研に移管された。これにともない、きつづ光科学館ふおとも量研の下で直営化されることとなり、4月より新しく副館長を迎え新体制のもとでスタートを切った。

2015年度と比較すると、4月を除き、各月毎の入館者数は大きく増加し、夏休みイベントでは66%増に至るとともに、2016年度年間入館者数は39,522人となった（2015年度年間入館者数は25,189人）。増加の主な要因としては、低学年児童にも興味・関心の高い工作実験を毎月実施したこと、映像上映回数を増やしたこと、5年間休止していたレーザーラボを2016年6月より再開するとともに、これまでの演示実験中心の内容から、研究（者）を見（魅）せることを主眼とした内容にリニューアルしたこと、SNSサイトを通じてイベントの案内を拡大したことなどが考えられる。

2016年7月には開館15周年を迎え、2017年1月29日に開館以来の総入館者数として60万人を達成し、記念式典を行った。

## 2016年度の活動

### 入館者状況

平日は主に幼児連れの方や、学校、自治体による団体見学の利用が中心であり、土・日・祝日や夏休みなどには多くのご家族に利用いただいている。2017年1月29日、開館以来の総入館者数として60万人を達成、記念品及び花束贈呈による記念式典を行った（1/29日における2016年度の累積入館者数は34,006人）。



図1 科学館来館者60万人記念式典（2017年1月29日）

### 主な行事

#### ○ 2016年

5月3～5日	ゴールデンウィークフェスティバル
6月12日	ふおとん父の日
7月10日	15周年記念（ふおとんくんの誕生会）
7月30日～8月13日	奈良教育大学特別展
7月30日～8月21日	ふおとん工作夏祭り
9月17～19・22日	ハロウィン 1st
10月9・10・23日	ハロウィン 2nd
11月19・20・23日	クリスマス親子工作 1st
12月3・4・17・18・23～25日	クリスマス親子工作 2nd
12月3～23日	つくばエキスポセンター全国ジュニア発明展（巡回展示）



○ 2017 年

1 月 4～9・14・15・21・22・28・29 日 新年親子工作  
 1 月 29 日 科学館来館者 60 万人記念式典  
 2 月 4・5・11・12 日 バレンタイン親子工作  
 3 月 4・5・11・12・18～20・25・26 日 親子工作さくらさくら

**事業内容（実験・工作・映像）**

(1) レーザーラボ

2016 年 6 月より、Nd:YAG レーザーや He-Ne レーザー、分光器等を用いた光及びレーザーに関するライブ実験を 5 年ぶりに再開した。通常スケジュール、(午前) 11:40～12:00 (午後) 13:30～13:50\*、15:00～15:20\*\*に加え、団体見学者用に適宜実施した。2016 年度の観覧者数は 5,440 人。

\*13:30～13:50 のコーナーは 10 月まで実施。

\*\*15:00～15:20 のコーナーは 9 月から実施。



図 2 レーザーラボ

1) 実施実績

年 月	実施日数	実施回数	観覧者数	累積観覧者数
2016 年 4 月	-	-	-	-
5 月	-	-	-	-
6 月	8 日	12 回	244 人	244 人
7 月	17 日	30 回	557 人	801 人
8 月	19 日	52 回	1,672 人	2,473 人
9 月	14 日	35 回	644 人	3,117 人
10 月	14 日	30 回	503 人	3,620 人
11 月	13 日	22 回	413 人	4,033 人
12 月	14 日	24 回	236 人	4,269 人
2017 年 1 月	17 日	28 回	412 人	4,681 人
2 月	14 日	26 回	391 人	5,072 人
3 月	15 日	27 回	368 人	5,440 人
年度合計	145 日	286 回	5,440 人	-

(2) 光と影の体験教室

光の三原色と影の関係を用いた、光の足し算と引き算に関する体験教室を、2016 年 10 月のイベント (ハロウィン 2nd) 時に、当館としては初めて試行し、2017 年 2 月からは通常メニューとして、開館日の (午前) 10:30～11:00 に実施している。2016 年度の観覧者数は 263 人。



図 3 光と影の体験教室

1) 実施実績

年 月	実施日数	実施回数	観覧者数	累積観覧者数
2016年4月	-	-	-	-
5月	-	-	-	-
6月	-	-	-	-
7月	-	-	-	-
8月	-	-	-	-
9月	-	-	-	-
10月	2日	4回	97人	97人
11月	-	-	-	97人
12月	-	-	-	97人
2017年1月	-	-	-	97人
2月	9日	9回	65人	162人
3月	8日	8回	101人	263人
年度合計	19日	21回	263人	-

### (3) サイエンスクラブ

2016年8月10日、木津川市立中学校生（4名参加）に対し、光の反射、屈折、散乱、分散、干渉、回折、偏光といった光の基本的な性質について講義を行うとともに、偏光板や光の三原色調光装置を用いた観察を行った。また、光の速度を計測する実験では、実際に、パルスレーザー発生装置、ビームスプリッター、ミラー、フォトダイオード、オシロスコープからなる計測系を組み、分岐した光の光路長と到達時間の差から光の速度を測定した。



図4 サイエンスクラブ

### (4) 工作教室

主に小学生を対象とした工作教室をマルチホールとロビーにおいて開催した。通常、マルチホールでは、(午前) 10:30~11:00 (午後) 15:00~15:30、ロビーでは随時実施している。

#### 1) 工作教室実績

年 月	実施日数		マルチホール工作		ロビー工作
	マルチ	ロビー	実施回数	参加者数	参加者数
2016年4月	-	19日	-	-	880人
5月	14日	20日	31回	392人	2,063人
6月	15日	20日	26回	203人	1,136人
7月	21日	23日	41回	391人	1,954人
8月	21日	21日	64回	668人	4,496人
9月	18日	20日	27回	234人	1,329人
10月	15日	20日	26回	306人	1,003人
11月	14日	20日	25回	232人	685人
12月	18日	18日	32回	551人	608人
2017年1月	20日	20日	36回	206人	932人
2月	18日	19日	33回	225人	1,040人
3月	19日	23日	37回	304人	1,324人
年度合計	193日	243日	378回	3,712人	17,450人

(5) 映像コンテンツの上映

光の映像ホール(ドーム型全天周映像ホール)において、通常スケジュール、(午前)11:10~11:30(午後)14:00~14:30、15:40~16:00に加え、団体見学者用に適宜、下記のコンテンツから2~3作品の上映を行った。2016年度の観覧者数は21,905人。

1) 上映実績

年 月	上映日数	上映回数	観覧者数	累積観覧者数
2016年4月	19日	33回	697人	697人
5月	20日	36回	1,773人	2,470人
6月	22日	42回	1,487人	3,957人
7月	23日	56回	2,379人	6,336人
8月	21日	67回	5,014人	11,350人
9月	21日	47回	2,263人	13,613人
10月	19日	48回	1,583人	15,196人
11月	20日	42回	1,313人	16,509人
12月	15日	36回	698人	17,207人
2017年1月	20日	53回	1,627人	18,834人
2月	20日	43回	1,385人	20,219人
3月	21日	52回	1,686人	21,905人
年度合計	241日	555回	21,905人	-

2) 映像コンテンツ

○ブラックホールの謎 (25分)

ブラックホールや太陽系外惑星などを電磁波の旅で探る。

○きつづ光アカデミ - ひかりの世紀 (35分)

光に潜むたくさんの『なぜ?』をふおとんくんといっしょに解き明かす。

○今日の星空 (15分)

今日の木津川市の星空を紹介する。

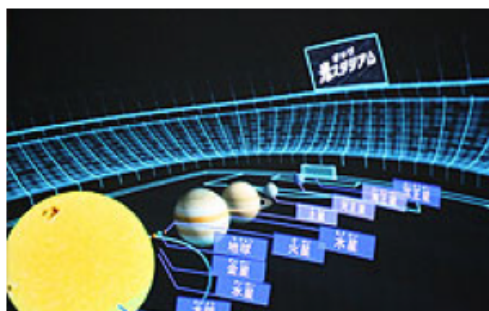
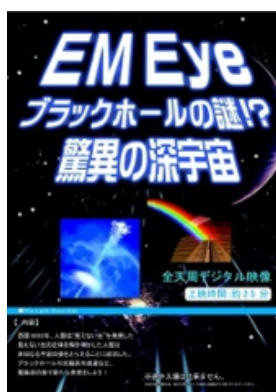


図5 映像コンテンツ

その他の活動

(1) (公財) 日本科学技術振興財団「青少年のための科学の祭典」2016 全国大会出展

7月30~31日、経営企画部広報課と連携し、科学技術館において、学生、生徒、一般を対象として、光の不思議を探るための簡易分光器工作実験などで出展、好評を博した。(来場者数350名、全入場者数16,601名)

(2) 博物館実習生・科学館研修（インターシップ）の受入れ

8月11日～16日、博物館（学芸員）実習生として、奈良女子大学より学生3名の受入れを行った。

(3) 理科教育支援活動

7月28日、木津川市教育委員会からの要請に応じ、関西研で実施された小中学校教員161名（木津川市教育委員会管内）の教員研修において、企画運営等支援を行った。また、12月5日には、地元の中学校（木津川市立木津南中学校）1年生全体240名に対する派遣講座において、「食品に隠された化学のエネルギー」「盲斑を探せ！」等、化学及び生物分野における理科科目の体験実験を中心とした学習支援等を行った。

(4) イベント等案内

SNSサイト、「Dokka お出かけ探検隊」ならびに「いこーよ子供とお出かけ情報」にイベントちらしの掲載を依頼するとともに、近隣市町村の小学校に新規学習映像の案内をFAXにて送信した。

## 入館者数の推移 (2016年4月1日～2017年3月31日)

	開館日数	入館者数	
		月別	累計
2016年4月	22日	1,608人	1,608人
5月	21日	3,628人	5,236人
6月	22日	2,390人	7,626人
7月	23日	4,309人	11,935人
8月	21日	8,257人	20,192人
9月	22日	3,668人	23,860人
10月	21日	3,654人	27,514人
11月	21日	2,186人	29,700人
12月	18日	1,955人	31,655人
2017年1月	20日	2,351人	34,006人
2月	20日	2,443人	36,449人
3月	23日	3,073人	39,522人
年度合計	254日	39,522人	-

### 月別及び累積入館者数分布

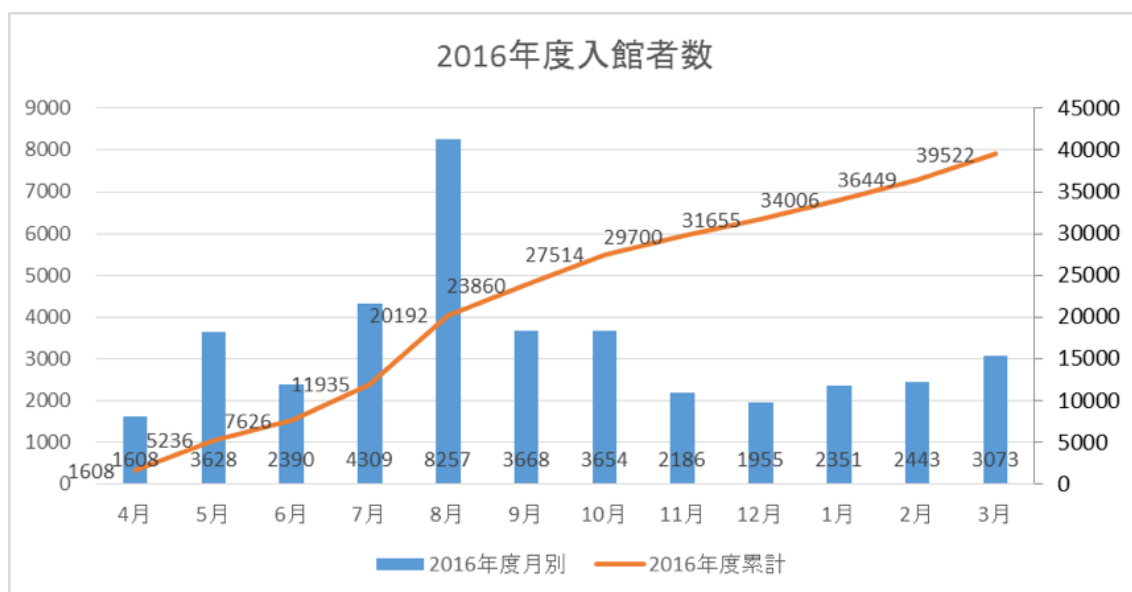


図6 2016年度入館者数



# Appendix

## 共同研究課題、施設共用課題

### 1) 光量子科学研究施設

#### 【共同研究課題】

共同研究先	共同研究課題名	担当研究グループ
日本原子力研究開発機構	原子核フロンティアツールを目指したレーザー駆動重イオンビームに関する研究	高強度レーザー科学研究グループ
日本原子力研究開発機構	中性子散乱による生体高分子のダイナミクス解析に関する研究	生体分子シミュレーショングループ
日本原子力研究開発機構 理化学研究所 レーザー技術総合研究所	レーザーを活用した高性能・非破壊劣化インフラ診断技術の研究開発	X線レーザー研究グループ
日本原子力研究開発機構 九州大学	高効率フェムト秒レーザーアブレーションに関する基礎研究	X線レーザー研究グループ
理化学研究所	レーザー駆動重粒子線の高品質化を目指したターゲット開発に関する研究	高強度レーザー科学研究グループ
理化学研究所	テラヘルツパルス光源による高分子高次構造の制御	超高速光物性研究グループ
理化学研究所	パッキング最適化計算に基づくタンパク質結晶内分子配座の予測と改良	生体分子シミュレーショングループ
エヌ・ティ・ティ・アドバンステクノロジ株式会社	高耐力軟X線光学素子に関する基礎研究	X線レーザー研究グループ
宇都宮大学、広島大学	水の窓高輝度軟X線発生に関する基礎研究	X線レーザー研究グループ
核融合科学研究所 東北大学	分子動力学シミュレーションを用いたフェムト秒レーザーアブレーションに関する研究	X線レーザー研究グループ
京都大学	高強度レーザーとクラスターとの相互作用に関する研究	高強度レーザー科学研究グループ
京都大学	高強度光電場による固体電子ダイナミクスに関する基礎研究	超高速光物性研究グループ
近畿大学	高強度超高速レーザーを用いた化学物質の構造解析及び反応制御に関する基盤技術開発	超高速光物性研究グループ
レーザー技術総合研究所 慶應義塾大学	レーザーを活用した整形外科インプラント設置強度評価機構の開発	X線レーザー研究グループ
神戸大学	固体飛跡検出器の応答特性に関する研究	高強度レーザー科学研究グループ



東京学芸大学	リラクサー強誘電体のドメイン形成に関する研究	X線レーザー研究グループ
東京大学	生体分子シミュレーションシステムを用いた生体分子機能の解明研究	生体分子シミュレーショングループ
奈良先端大学院大学	有機マイクロキャビティを用いた強結合状態の観測と制御に関する基盤技術開発	超高速光物性研究グループ
兵庫県立粒子線医療センター	粒子線照射計測・制御に関する研究	高強度レーザー科学研究グループ
北海道大学	超高速レーザーを用いた共役系有機化合物の光解離反応制御に関する基盤技術開発	超高速光物性研究グループ
(株)OK ファイバーテクノロジー	配管内アクセスによるレーザー溶接システムの開発	X線レーザー研究グループ
(株)島津製作所	先端軟X線光学素子の基礎研究及び技術開発	X線レーザー研究グループ
(株)島津製作所 東北大学	極端紫外線領域の低入射角高効率回折格子の開発	光子科学研究所
大阪大学	ステージングレーザー電子加速に関する研究	高強度レーザー科学研究グループ
大阪大学	高強度テラヘルツパルス光源による新規物質創成と新規物性発現に関する研究	超高速光物性研究グループ
大阪大学	レーザー駆動粒子線加速に関する研究	高強度レーザー科学研究グループ
大阪大学	レーザーセラミックス接合に関する基礎研究	超高速光物性研究グループ

### 【施設共用課題】

#### 平成 28 年度前期施設共用課題

課題番号	利用区分	施設装置	利用課題
2016A-E32	公開	X線レーザー実験装置	超短パルスレーザープラズマ X線源を用いたダブルパルス照射による基板表面励起加工過程の調査に関する研究

#### 平成 28 年度後期施設共用課題

課題番号	利用区分	施設装置	利用課題
2016B-K01	公開	X線レーザー 実験装置	高耐性軟X線光学素子に関する基礎研究
2016B-K02	公開	X線レーザー 実験装置	EUV用レジスト材料のX線照射パルス幅依存性に関する研究

## 2) 放射光科学研究施設

### 【共同研究課題】

共同研究先	共同研究課題名	担当研究グループ
日本原子力研究開発機構	高圧プレス装置を用いた高圧物性研究	高圧・応力科学研究 グループ
日本原子力研究開発機構	ダイヤモンドアンビル回折計を用いた高 圧物性研究	高圧・応力科学研究 グループ
日本原子力研究開発機構	XAFS測定装置を用いた機能性材料のオペ ランド観察	高圧・応力科学研究 グループ
日本原子力研究開発機構	$\alpha$ 型回折計を用いた機能性材料の研究	高圧・応力科学研究 グループ
日本原子力研究開発機構 東北大学	放射光を利用した新規水素化物探索とそ の評価	高圧・応力科学研究 グループ
岡山理科大学	流体圧力媒体を用いた大容量高圧発生技 術の開発	高圧・応力科学研究 グループ
日本原子力研究開発機構	大型回折計を用いた物質材料評価研究	磁性科学研究グルー プ
日本原子力研究開発機構	XAFS測定による分子・物質の構造的な研究	磁性科学研究グルー プ
日本原子力研究開発機構 東北大学 総合科学研究機構	銅酸化物超伝導体における電荷秩序と電 荷励起の研究	磁性科学研究グルー プ
広島大学、埼玉大学	極低温磁場中共鳴X線回折による磁場誘 起相転移の研究	磁性科学研究グルー プ
京都大学	同位体特定による局所状態解明のための 先進的メスbauer分光法の開発研究	磁性科学研究グルー プ

兵庫県立大学	反応性ガスクラスタライオンビームと光電子分光法を組み合わせた新規遷移金属化合物の開発	磁性科学研究グループ
日本原子力研究開発機構	廃炉及び福島環境復興のための技術開発	量子シミュレーション研究グループ

### 【施設共用課題】

関西研では 2012 年度より文部科学省のナノテクノロジープラットフォーム事業を受託しており、放射光科学研究施設を成果公開型課題で利用する外部研究者に対して、特に専用ビームラインにおける研究支援を強化している。課題は年 2 回、SPring-8 を運営する公益財団法人高輝度光科学研究センターの一般課題募集時期（5 月および 11 月）に合わせて募集している。

### 平成 28 年度前期施設共用課題

課題番号	利用区分	施設装置	利用課題
2016A-E01	公開	放射光メスbauer分光装置	新規放射光メスbauer回折装置を用いた鉄化合物のナノ局所構造の研究(3)
2016A-E03	公開	表面 X 線回折計	GaInN 分子線エピタキシー成長におけるひずみ緩和過程のその場 X 線回折測定
2016A-E04	公開	共鳴非弾性 X 線散乱装置	Ir L <sub>3</sub> 端の共鳴非弾性 X 線散乱で観察する超伝導体 Ir <sub>1-x</sub> Pt <sub>x</sub> Te <sub>2</sub> の電荷変調
2016A-E05	公開	共鳴非弾性 X 線散乱装置	Pt, PtCo 単結晶表面オペランド条件における水酸基・酸素結合状態の解明
2016A-E06	公開	表面 X 線回折計	RF 窒素プラズマを用いた酸化物表面窒化処理の XRD その場観察
2016A-E07	公開	共鳴非弾性 X 線散乱装置	部分蛍光収量法を用いた範囲拡張 EXAFS 法の実施可能性の検討
2016A-E08	公開	放射光メスbauer分光装置	多核種メスbauer装置による Ni ナノ粒子及びその MOF 複合体の研究
2016A-E16	公開	ダイヤモンドアンビルセル回折計	鉄系超伝導体 FeSe における 4GPa 超の高圧下構造相転移の圧力依存性測定
2016A-E17	公開	ダイヤモンドアンビルセル回折計	励起子絶縁体 Ta <sub>2</sub> NiSe <sub>5</sub> の高圧低温下における結晶構造の解明

2016A-E18	公開	大型 X 線回折計	フェムト秒レーザーピーニング処理した摩擦攪拌接合部の非破壊残留応力測定
2016A-E19	公開	ダイヤモンドアンビルセル回折計	新規ペロブスカイト化合物 $\text{PbCoO}_3$ の圧力誘起電荷分布変化の観察
2016A-E20	公開	単色 X 線実験用高温高圧プレス装置	高圧下における Fe-FeS 二成分系融体の密度測定と部分モル体積の決定
2016A-E21	公開	大型 X 線回折計	軽水炉用構造材料オーステナイト系ステンレス鋼の表面酸化皮膜への微量金属元素の影響
2016A-E22	公開	単色 X 線実験用高温高圧プレス装置	Fe-Ni-S 液体の密度・音速における圧力効果の解明
2016A-E23	公開	ダイヤモンドアンビルセル回折計	ナノ構造を利用した Mg 系材料の水素放出メカニズム解明
2016A-E31	非公開	大型 X 線回折計	積層鋼板の圧縮残留応力測定
2016A-Exx	非公開	大型 X 線回折計	高周波焼き入れによるバルブ内部の残留応力評価

平成 28 年度後期施設共用課題

課題番号	利用区分	施設装置	研究課題
2016B-H01	公開	放射光メスバウアー分光装置	新規放射光メスバウアー回折装置を用いた鉄化合物のナノ局所構造の研究(4)
2016B-H02	公開	放射光メスバウアー分光装置	Ir 置換した酸化鉄薄膜の高温条件下における放射光メスバウアー分光
2016B-H03	公開	共鳴非弾性 X 線散乱装置	ナトリウムイオン二次電池正極材料のナトリウム組成変化に伴うサイト選択 XAFS 測定
2016B-H04	公開	共鳴非弾性 X 線散乱装置	部分蛍光収量法を用いた範囲拡張 EXAFS 法の実施可能性の検討 2
2016B-H05	公開	表面 X 線回折計	放射光 X 線を用いた格子不整合 III-V 族化合物半導体混晶のリアルタイム構造解析

2016B-H06	公開	表面 X 線回折計	高効率スピン偏極注入に適したハー フメタリック MnAs 薄膜の初期成長 機構の解明
2016B-H07	公開	単色 X 線実験用高温高圧プレス装置	Fe-Ni 融体の音速・密度に与える同時 固溶した硫黄と珪素の効果
2016B-H09	公開	ダイヤモンドアンビルセル回折計	軽元素に包埋した量子ドットの二体 分布関数を用いた構造解析
2016B-H10	公開	ダイヤモンドアンビルセル回折計	励起子絶縁体候補物質 $\text{TiSe}_2$ の高圧低 温相における結晶構造の解明
2016B-H12	公開	ダイヤモンドアンビルセル回折計	ガス吸蔵用 MOF の構造解析
2016B-H13	公開	ダイヤモンドアンビルセル回折計	鉄系超伝導体 $\text{Fe}(\text{Se},\text{S})$ 純良単結晶にお ける圧力下電子相図の解明
2016B-H14	公開	大型 X 線回折計	フェムト秒レーザーピーニング処理し たレーザー溶接継手内部の残留応力 測定
2016B-H15	公開	大型 X 線回折計	放射光 X 線表面回折法による SiC 上 グラフェンの表面及び界面構造の解 明
2016B-H16	公開	大型 X 線回折計	放射光による缶用鋼板の曲げ加工に 伴う深さ分解残留応力測定 (2)
2016B-H18	非公開	大型 X 線回折計	鋼板内部の歪・応力非破壊解析

## 関西光科学研究所でのシンポジウム・セミナー・ワークショップ等

関西光科学研究所（木津地区、播磨地区）では、各種シンポジウム、セミナー、ワークショップ、研究会を開催している。また、研究所として参加した会合についても主なものを記載する。

1	22-27-May-2016	奈良春日野国際フォーラム（奈良県奈良市）	主催：量研関西光科学研究所、原子力機構、光産業創成大学院大学
	The 15th International Conference on X-Ray Lasers (第15回X線レーザー国際会議)		
2	5-September-2016	研究社英語センター（東京都新宿区）	主催：中性子産業利用推進協議会、茨城県中性子利用促進研究会、(一財)総合科学研究機構(CROSS 東海)、SPRING-8 ユーザー協同体、JAEA 微細構造解析プラットフォーム、NIMS 微細構造解析プラットフォーム、QST 微細構造解析プラットフォーム
	平成28年度第1回残留ひずみ・応力解析研究会／文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業微細構造解析プラットフォーム第1回放射光利用研究セミナー		
3	5-6-September-2016	東京大学（本郷キャンパス、東京都文京区）	主催：日本放射光学会（共催機関として参加）
	平成28年度ナノテクノロジープラットフォーム第1回放射光設備利用講習会		
4	24-25-November-2016	千里ライフサイエンスセンター（大阪市）	主催：量研、大阪大学
	光・量子ビーム科学合同シンポジウム 2016		
5	7-9-January-2017	神戸芸術センター（神戸市）	主催：日本放射光学会（共催機関として参加）
	第30回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム		
6	16-17-January-2017	SPRING-8（兵庫県播磨科学公園都市）	主催：量研量子ビーム科学研究部門 研究企画室（播磨）
	未来ラボ「先端量子機能材料研究グループ」キックオフミーティング		
7	17-February-2017	東京国際展示場（東京都江東区）	主催：文部科学省ナノテクノロジープラットフォームセンター(物質・材料研究機構／科学技術振興機構)（共催機関として参加）
	文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム第15回ナノテクノロジー総合シンポジウム（JAPAN NANO 2017）		
8	23-24-February	SPRING-8（兵庫県播磨科学公園都市）	主催：量研関西光科学研究所 放射光科学研究センター、原子力機構 物質科学研究センター 放射光エネルギー材料研究ディビジョン、QST 微細構造解析プラットフォーム、JAEA 微細構造解析プラットフォーム

	JAEA-QST 放射光科学シンポジウム 2017/文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業微細構造解析プラットフォーム放射光利用技術セミナー		
9	8-March-2017	研究社英語センター（東京都新宿区）	主催：中性子産業利用推進協議会、茨城県中性子利用促進研究会、SPring-8 ユーザー協同体、JAEA 微細構造解析プラットフォーム、NIMS 微細構造解析プラットフォーム、QST 微細構造解析プラットフォーム（共催機関として参加）
	平成 28 年度第 2 回残留ひずみ・応力解析研究会／文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業微細構造解析プラットフォーム第 2 回放射光利用研究セミナー		
10	16-March-2017	関西学院大学大阪梅田キャンパス	主催：量研関西光科学研究所放射光科学研究センター、SPRUC コヒーレント X 線物質科学研究会
	文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業京大微細構造解析プラットフォーム平成 28 年度第 2 回地域セミナー		
11	27-March-2017	京都大学宇治おうばくプラザ	主催：京都大学微細構造解析プラットフォーム最先端構造観察・計測共用拠点（共催機関として参加）
	文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業京大微細構造解析プラットフォーム平成 28 年度第 2 回地域セミナー		

### KPSI セミナー (Kansai Photon Science Institute Seminar)

関西光科学研究所（木津地区）では国内外の著名な研究者をお招きして学術的に最先端の専門的なセミナーを開催している。今年度は合計 18 回のセミナーを開催し、21 名の講師によるセミナーを開催した。開催にあたっては KPSI Web サイトやメーリングリストを活用し、QST 内外に開催案内を行っている。また、報告についても Web サイト活用している。

Web サイト：<http://www.kansai.qst.go.jp/kpsi-en/seminar-2017k02.html?btnG+=Seminar>

1	4-April-2016	Prof. Hideaki Takabe (高部英明)	Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf (HZDR), Germany
	欧州の高繰り返しレーザー (1~10PW 級) と XFEL の現状と研究の展開		
2	11-May-2016	Dr. Nobuhiko Nakanii (中新信彦)	High-Intensity Laser Science Group, KPSI, QST, Japan
	Development of repeatable electron source using laser wakefield acceleration and its applications		
3	11-May-2016	Dr. Kotaro Kondo (近藤康太郎)	High-Intensity Laser Science Group, KPSI, QST, Japan
	パルスパワー・レーザーを用いたプラズマ物理・加速器科学研究		
4	16-May-2016	Prof. David Neely	Rutherford Appleton Laboratory/ University of Strathclyde, UK
	Studies of fast electrons emitted in intense laser-solid interaction experiments		
5	30-May-2016	Prof. E.N. Ragozin	P.N. Lebedev Physical Institute, Russia
	Broadband high-resolution imaging spectrometers for the soft X-ray range		
6	2-June-2016	Dr. Kohei Otomo, Dr. Ryosuke Kawakami, Prof. Tomomi Nemoto (大友康平、川上良介、根本知己)	Research Institute for Electronic Science, Hokkaido University, Japan
	Improvements of two-photon excitation microscopy by utilizing novel techniques		
7	21-June-2016	Prof. Junji Watanabe (渡辺純二)	Department of Physics, Osaka University, Japan
	Quantum and classical behaviors of fluctuations in light scattering		
8	30-June-2016	Dr. Julien Fuchs	LULI, École Polytechnique, France.
	Intense laser pulses and strong magnetization as tools for investigating astrophysical phenomena		
9	30-June-2016	Dr. Sophia Chen	LULI, École Polytechnique, France.
	What would you do with $10^{22}$ W/cm <sup>2</sup> laser intensities?		



10	7-July-2016	Prof. Masaaki Sakakura (坂倉政明)	Graduate School of Engineering, Kyoto University, Japan
	Stress dynamics of ultra-short pulsed laser processing inside transparent materials		
11	3-August-2016	Prof. Pisin Chen	Kavli Institute, Stanford University, USA/ National Taiwan University, Taiwan
	Accelerating Plasma Mirrors to Investigate Black Hole Information Loss Paradox		
12	25-August-2016	Prof. Kazuo A. Tanaka (田中和夫)	Osaka University, Japan/ ELI-NP, Bucharest, Romania
	Osaka Univ. to ELI-NP ( Osaka University to Extreme Light Infrastructure - Nuclear Physics)		
13	30-August-2016	Dr. Yoriko Wada (和田資子)	Ultrafast Dynamics Group, QST, KPSI, Japan
	Spectroscopic studies on the molecular complex with polyyne and iodine molecules		
14	27-October-2017	Dr. Masahiro Okamura (岡村昌宏)	Brookhaven National Laboratory, USA
	Laser ion source at Brookhaven National Laboratory		
15	2-November-2016	Dr. Di Luo	Molecular Modelling and Simulation Group, KPSI, QST, Japan
	Molecular Dynamics Simulations, as a Tool to Understand Human Telomeric DNA G-quadruplexes		
16	30-November-2016	Dr. A. Amani Eilanlou	Center for Advanced Photonics, RIKEN, Japan
	Development of a thin disk ring oscillator for intra-cavity high-order harmonic generation		
17	6-December-2016	Prof. Masahiro Katoh (加藤政博)	Institute for Molecular Science, Japan
	Twisted Photons radiated from Free Electrons		
18	12-December-2016	Dr. Nanase Kono (河野七瀬)	Ultrafast Dynamics Group, QST, Japan
	Mechanism of relativistic Doppler reflection of THz light from photo-induced carriers		
19	19-December-2016	Prof. Kiyotomo Kawagoe (川越清以)	Graduate School of Science, Kyushu University, Japan
	International Linear Collider の物理・測定器と計画の現状		
20	19-December-2016	Prof. Tohru Takahashi (高橋徹)	Graduate School of Advanced Sciences of Matter, Hiroshima Univ. Japan
	International Linear Collider 加速器		
21	24-March-2017	Prof. Kazumichi Namikawa (並河一道)	Tokyo Gakugei University, Japan
	Evolution of Mezzoscopic Domains in Ferroelectric BaTiO <sub>3</sub> and Relaxer Ferroelectrics PMN-PT Observed by Soft X-ray Lasers		

### QST 播磨セミナー

関西光科学研究所（播磨地区）では国内外の著名な研究者をお招きして学術的に最先端の専門的なセミナーを開催している。

1	15-June-2016	Prof. Shigemi Sasaki (佐々木茂美)	Hiroshima University, Japan
	円偏光アンジュレーターの高次光が運ぶ光の軌道角運動量		
2	25-October-2016	Prof. Toru Sakai (坂井徹)	University of Hyogo, Japan
	2016年ノーベル物理学賞の三氏の業績についての解説		

### S-Cube (スーパーサイエンスセミナー)

関西光科学研究所では中学高校生を中心に一般の方に光科学についての理解を深めていただくことを目的に、第一線の研究者による講義「S-Cube (エスキューブ：スーパーサイエンスセミナー)」を開講している。

今年度は合計 8 回 (第 177 回～第 185 回) 開催し、研究の楽しさ体験や参加者と研究者との交流を行うことができた。また、開催に際しては案内を KPSI Web サイト等で行ってきたことにより一般参加 (市民) もあり、デモ実験等含めた本セミナーをけいはんな地域の方にも体験いただいた。

Web サイト：<http://www.kansai.qst.go.jp/s-cube-0.html?btnG=S-Cube>

178	03-June-2016	講師：森林 健悟 放射線 DNA 損傷研究グループ	84 人参加
	テーマ：光と放射線のおはなし		
179	10-June-2016	講師：永島 圭介 超高速光物性研究グループ	80 人参加
	テーマ：光の反射と屈折のおはなし		
180	08-July-2016	講師：加道 雅孝 研究企画室 (木津駐在)	18 人参加
	テーマ：運命は有限の速度を持つのか		
181	23-August-2016	講師：村上 洋 放射線 DNA 損傷研究グループ	23 人参加
	テーマ：光と電子は大の仲良し ～光物性研究入門～		
182	10-November-2016	講師：坪内 雅明 超高速光物性研究グループ	39 人参加
	テーマ：暮らしの中の光 ～「波長」で理解しよう		
183	02-February-2017	講師：坪内 雅明 超高速光物性研究グループ	83 人参加
	テーマ：暮らしの中の光 ～「波長」で理解しよう		
184	23-Frbruary-2017	講師：長谷川 登 X 線レーザー研究グループ	20 人参加
	テーマ：レーザーでコンクリートの健全性の検査を遠隔・高速で行う		
185	24-February-2017	講師：今園 孝志 X 線レーザー研究グループ	42 人参加
	テーマ：光、色々		

## 施設公開・出展・アウトリーチ活動

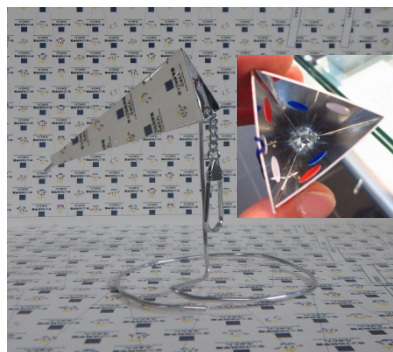
関西光科学研究所では、研究所公開（年間2回：播磨地区1回（毎年4月ごろ）、木津地区1回（毎年10月ごろ）や研究成果のわかり易い公表、光科学の基礎についての出前授業、科学啓発イベント等への出展を積極的に進めている。

ここでは主なものを記載する（「きつつ光科学館ふおとん」、S-cube（スーパーサイエンスセミナー）については別記する）

1	1-May-2016	SPring-8（兵庫県播磨科学公園都市）	主催：理化学研究所放射光科学総合研究センター
	第24回 SPring-8/SACLA 施設公開「今年のSPring-8/SACLA はオトナも楽しい」		
2	1-3-June-2016	国立京都会館及びけいはんなオープンイノベーションセンター（KICK）（京都府精華町）	主催：京都スマートシティエキスポ運営協議会
	京都スマートシティエキスポ2016 出展		
3	2-3-June-2016	ANA クラウンプラザホテル神戸（神戸市）	主催：公益社団法人新化学技術推進協会
	第5回 JACI/GSC シンポジウム 参加		
4	23-24-June-2016	桜山公園（兵庫県姫路市）	主催：姫路科学館
	平成28年度桜山公園まつり「科学の屋台村」出展		
5	3-6-July-2016	SPring-8（兵庫県播磨科学公園都市）	主催：兵庫県立大学大学院物質理学研究科・生命理学研究科、関西学院大学大学院理工学研究科、東京大学放射光連携研究機構、岡山大学大学院自然科学研究科、大阪大学・光科学連携センター・蛋白質研究所・核物理研究センター、（公財）高輝度光科学研究センター、理化学研究所 放射光科学総合研究センター、日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター、量子科学技術研究開発機構 放射光科学研究センター
	第16回 SPring-8 夏の学校 開催		
6	12-13-July-2016	科学技術館（東京都千代田区）	主催：公益財団法人日本科学技術振興財団
	青少年のための科学の祭典 出展		
7	30-31-July-2016	SPring-8（兵庫県播磨科学公園都市）	主催：量子ビーム科学研究部門 高崎量子応用研究所、同東海量子ビーム応用研究センター、関西光科学研究所放射光科学研究センター
	生物学・光源・物性研究者による量子生物学合宿勉強会 開催		

8	4-6-August-2016	インテックス大阪（大阪市）	夏休み 宿題・自由研究 大作戦事務局
	夏休み 宿題・自由研究 大作戦 2016 出展		
9	2-September-2016	姫路・西はりま地場産業センター（兵庫県姫路市）	主催：兵庫県立大学産学連携・研究推進機構、兵庫県企業庁、兵庫県企画県民部科学振興課
	兵庫県立大学第3回放射光産業利用支援講座 兵庫県立大学高度産業科学技術研究所放射光先端分析研究センター発足記念～ 中小・中堅企業のための初級講座～		
10	7-9-September-2016	幕張メッセ国際展示場（千葉市）	主催：量子ビーム科学研究部門 研究企画室（播磨）
	JASIS2016（第4回）（分析展2016（第54回）/科学機器展2016（第39回）出展		
11	13-October-2016	播磨高原東中学校（兵庫県たつの市）	主催：量子ビーム科学研究部門 研究企画室（播磨）
	高原東中学校出前授業		
12	13-October-2016	けいはんなプラザ（京都府精華町）	主催：公益財団法人関西文化学術研究都市推進機構
	第11回けいはんなビジネスメッセ出展		
13	19-October-2016	兵庫県たつの市立龍野西中学校（兵庫県たつの市）	主催：西播磨地区中学校教育研究会 理科部会
	西播磨地区中学校理科教育研究会 招待講演		
14	23-October-2016	関西光科学研究所（木津地区、京都府木津川市）	主催：関西光科学研究所
	関西光科学研究所施設公開（木津地区）		
15	10-12-November-2016	けいはんなプラザ（京都府精華町）	主催：けいはんな情報通信フェア 実行委員会
	けいはんな情報通信フェア2016出展		
16	19-20-November-2016	グランフロント大阪（大阪市）	主催：けいはんな情報通信フェア2016実行委員会、公益財団法人関西文化学術研究都市推進機構
	けいはんな体感フェア2016「～来て、見て、感じて・・・学研都市のテクノロジー」出展		

きつづ光科学館ふとんの主な工作の紹介



ダイヤモンドスコープ



父の日ステンドシール工作



15周年記念と七夕



コスモレジン



バットポラライザー



グラススコープ



フォトンライダー



クリスタルスコープ



トワイライトレジン



キラキラツリー



クリスマススノーレジン



カラフルスーパーボール



ドリームスコープ



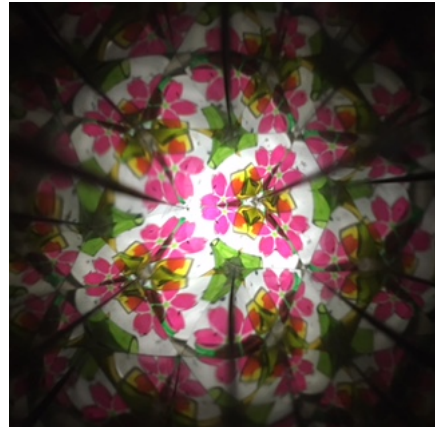
バレンタインレジ



バレンタインスコープ



さくらレジ



さくら万華鏡



くらげのさんぽ



くものさんぽ





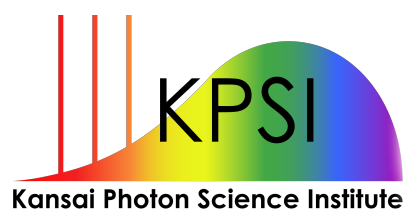
Kansai Photon Science Institute

National Institutes for  
Quantum and Radiological Science and Technology

8-1-7 Umemidai Kizugawa-city Kyoto, 619-0215 JAPAN

© COPYRIGHT KPSI QST, 21-June- 2017

QST-M-3



**Kansai Photon Science Institute**  
**Quantum Beam Science Research Directorate**  
**National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology**

8-1-7, Umemidai, Kizugawa-shi, Kyoto 619-0215, Japan  
<http://www.kansai.qst.go.jp/kpsi-en/index.html>