

ERATO 腰原非平衡ダイナミクスプロジェクト中間評価報告書

研究総括：

腰原 伸也 【東京工業大学フロンティア創造共同研究センター／教授】

研究体制：

分子動画観測グループ（高エネルギー加速器研究機構）

分子動画技術開発グループ（ローレンス・バークレー国立研究所）

非平衡強相関物質開発グループ（東京工業大学）

評価委員（あいうえお順、○は主査）：

相原 正樹 【奈良先端科学技術大学院大学／教授】

○雨宮 慶幸 【東京大学大学院新領域創成科学研究科／教授】

伊藤 正 【大阪大学大学院基礎工学研究科／教授】

宮野 健次郎 【東京大学先端科学技術研究センター／教授】

上記 4 名の評価委員は、事前にプロジェクトより配布された評価資料を精読し、2006 年 11 月 10 日に高エネルギー加速器研究機構（KEK）において、中間評価会を実施した。腰原研究総括やプロジェクトに参画する研究員が、プロジェクトの概要や研究成果の発表を行い、さらに評価委員との質疑応答が行われた。その後は、研究実施場所のサイトビジットも行われた。これらを元に、本中間評価報告書は作成されている。

総合評価：秀（Excellent）

1. 評価の概要

電子状態と格子構造との間にはたらく強い相互作用^{*}が内在する物質、すなわち強相関電子系物質の中には、光照射によって微視的領域が静的に安定な状態から非平衡状態へと変化すると、強い相互作用を介して、巨視的領域で電子状態、格子構造、さらには光電的機能に劇的な変化が誘起される可能性がある（光誘起相転移）。腰原伸也・東京工業大学教授を研究総括（以下、総括と略す）とする「ERATO腰原非平衡ダイナミ

* クーロン相互作用や電子-格子相互作用など。

クスプロジェクト」は、従来のエレクトロニクス材料に対して、このような機能を付与するような新規物質の探索を行うことを主な目的として、2003年11月に発足した。本プロジェクトの特長は、新たな物質の探索に留まらず、その評価を行うために必要な計測技術の開発も併せて実施することにあった。すなわち研究対象とする主な物質は、共役系高分子結晶や有機電荷移動錯体あるいはペロブスカイト型遷移金属酸化物など、協同的な電子-格子相互作用をあらわす多様な物質群であり、また計測技術については、シンクロトロン放射光 (Synchrotron Radiation ; SR) とフェムト秒レーザーを同期させて、固体中の原子スケールでの動的構造変化を時間分解で測定することが可能な動的構造観測技術 (分子動画技術) の開発などである。このような物性研究と装置開発研究の両側面を併せ持つ研究の枠組みは、ERATOという、我が国でも有数の基礎研究に関する大型研究開発投資でこそ為し得るものであり、また研究成果として得られる知見やノウハウ (シーズ) は、材料科学のみならず、光科学や加速器技術などの複数の研究分野にも波及しうるものであり、研究のコンセプトとしてもERATOに相応しいものであると言える。

同プロジェクトは上記の大きな2つの研究目標を達成するために、3つの研究グループ 分子動画観測グループ (高エネルギー加速器研究機構 ; KEK)、分子動画技術開発グループ (ローレンス・バークレー国立研究所 ; LBNL)、非平衡強相関物質開発グループ (東京工業大学) 一からなる研究体制を敷き、戦略目標である「情報処理・通信における集積・機能限界の克服実現のためのナノデバイス・材料・システムの創製」へ向けた研究を実施している。

個々のグループや研究テーマに関する詳細な報告は次項で述べるが、この中間評価の段階において、プロジェクト研究への取り組みに対し最も高く評価すべきところは、KEK・PF-ARの専用ビームラインNW14に、SR光とフェムト秒レーザーを同期させた時間分解X線測定装置 (時間分解能 : 50-100 ピコ秒) を建設し、約2年半の間に本格運用にまで到達せしめたことである。こうしたアイデアは、放射光コミュニティでも以前から存在したものではあるものの、実現に至った例はこれまでに我が国にはなく、また放射光施設側ではなくユーザー側の立場にある腰原総括が、自身の研究ニーズおよびここ約15年に亘る予備的知見をもとに、約2年半の間にこのような装置開発を行ったことは高い評価に値する。現在国家基幹プロジェクトとして開発が進められている「X線自由電子レーザー」においては、2010年頃の本格運用の際、サブピコ秒オーダーのX線パルスを用いて時間分解の構造解析が可能であると予測されているが、本プロジェクトで開発した計測技術や今後得られる科学的知見は、その際に極めて重要な位置づけを担うと考えられる。

またプロジェクトの枠を超えて、KEKやレンヌ第1大学をはじめとした国内外機関との連携が上手く作用していることも、こうした成果がもたらされた要因の1つである。また、京都大学・矢持秀起教授 (有機電荷移動錯体) や大阪市立大学・橋本秀樹教授 (タンパク質) らとの協力関係は、物質開発の面から、プロジェクトの研究推進に寄

与するものであり、これらを総括する立場にある腰原総括の運営力もまた高く評価されるべきものである。研究テーマの進捗状況とも合わせて、プロジェクト全体に対する評価として、「秀」を与えることで評価委員の意見は一致した。

さて、約2年間の研究期間を残す同プロジェクトに対する提言も、ここに記しておきたい。装置開発研究に1つの大きなメドが立ったことを受けて、残る研究期間では、現時点までに開発した計測装置をもとにして、是非とも「物性研究」に軸足をおいたプロジェクト運営を期待したい。例えば、現在の装置における時間分解能のさらなる高度化も研究の選択肢として挙げられようが、むしろピコ秒よりも数桁長い時間領域にこそ相転移に関する重要な情報が含まれている可能性があり、立ち上げたビームラインを用いて成すべき研究課題は多く存在すると考えられる。

プロジェクトとして目指すべきサイエンスの新境地と、物質探索のクライテリアを打ち出すというバランスを考慮し、5年間という有限の研究期間を最大限に活かせるような今後の方策に期待したい。その際、必ずしも現在の対象物質群にとらわれない柔軟な発想や対外的な協力関係を新たに取り入れるなど、腰原総括の戦略的プロジェクト運営を期待したい。

2. 評価の詳細

(1) 分子動画観測グループ

本研究グループ（グループリーダー：足立伸一・KEK 助教授）は、つくば市にある KEK・PF-AR に設置され、プロジェクトの人員および研究費の多くが充当されている。その研究目的は、PF-AR にプロジェクト専用のビームライン NW14 を建設し、フェムト秒レーザー励起と SR 光を同期させることによって、時間分解 X 線測定を行うことである。

現在の間中評価までの段階で、計測技術を完成し（2005 年 10 月）、本格的稼働（2006 年初め）に至らしめたことは大いに評価されるべき点であり、同時にプロジェクト全体のアクティビティの高さを示す指標でもある。SR 光のユーザーである腰原総括が物質科学を背景として、KEK との協力関係を築き、短期間でビームラインを立ち上げたことは、我々評価委員のみならず、物質科学や放射光科学の分野の研究者が高く評価するところでもある。

現在は時間分解X線測定を開始し、例えば中性-イオン転移系 TTF-CA[†] 結晶において、2 量体化により反転対称性が破れ、強誘電的秩序が生じていくダイナミクスを、X 線散漫散乱により動的に観測するなどの研究を進めている。また橋本秀樹教授らとの共

[†] TTF-CA: tetrathiafulvalene-chloranil

同研究により、対象物質をタンパク質へと広げており、残る約2年間での研究成果には大いに期待したい。一方、装置開発の観点からは、パルスのX線源の汎用的装置として、国内外の多くの研究者の関心を既に呼びつつあり[‡]、成果の波及性が既に認められる。具体的なコメントを以下に述べる。

まず「物質」の観点からは、本プロジェクトが興味の対象とする強相関電子系物質は波動関数が局在する傾向を持つので、空間的な電子密度分布変化を実時間で直接観測することが可能となれば、光誘起相転移に関する重要な知見を得ることが出来る。これは通常の半導体や金属と本質的に異なる点であり、強相関係の電子密度のダイナミクスの観測に着目した点は的を射たものである。次に「装置」の観点からは、50-100 ピコ秒の時間分解能からすると、光誘起相転移の初期過程のダイナミクスを直接追跡するのは、たとえ多少の時間分解能の向上がなされたとしても、困難であることが予想される。しかしながら相転移に特有なユニバーサルな時間変化は、むしろ長時間の振る舞いに反映されるので、現有のシステムで十分に観測が可能である。またこのシステムは、現在の時間分解能でも、光誘起相転移のみならず、多種多様な光励起状態のダイナミクスを実時間で解明する上で強力な研究手段となるであろう。

以上の観点から我々評価委員としては、「装置開発研究」と「物性研究」の両側面を担ってきたところから、今後は、是非とも「物性研究」を主軸としたスタンスを貫いて欲しいし、それが立ち上げたビームラインを最大限に活用する道でもあると考える。腰原総括からは、強相関係の絡む物性研究を実施していく意欲が感じられるが、それだけに限定することなく、例えば現在進めているタンパク質の他に新たな物質群を対象にすることも選択肢の1つであると考えられる。物質科学や生化学、その他の研究分野にも広く訴えるような研究成果が、このビームラインから出てくることを期待している。外部との有機的連携による「選択と集中」により、約5年間のプロジェクトで、大きな成果を得ることを期待している。

(2) 分子動画技術開発グループ

本研究グループは、板谷治郎グループリーダーが2005年1月より米国カリフォルニア州・バークレーのLBNLに派遣されるかたちで運営されている。同グループの研究目的は、従来のSR光では得られない高い時間分解能（サブピコ秒からフェムト秒）の実験技術と、非平衡ダイナミクスを誘起する新しい実験法の開発、およびLBNLのALS（Advanced Light Source）にあるフェムト秒X線ビームラインを用いた超高速X線回折実験の実施である。この中では、LBNLのSchoenlein博士やOxford大学のCavalleri博士らの協力関係が大きい。

[‡] プロジェクトからの報告によると、2006年8月の段階で、9つの研究機関（国内2、国外7）からの希望が出てきている。

光誘起相転移の初期の時間変化はピコ秒以下の超高速であることが、最近さまざまな物質で確認されており、フェムト秒の時間分解能をもつ X 線ビームラインを用いた超高速 X 線回折・分光実験の実施は重要である。PF-AR の 50-100 ピコ秒時間分解能の装置と併用することで、相補的な知見が得られる可能性があり、適切な選択であると言える。

LBNLビームラインの移設と高度化のための工事や実験再開の遅れなどは予想外であったが[§]、プロジェクト期間における今後の研究取り組みに関しては、現地での時間分解能向上のための研究において得たノウハウが、どのようにPFビームライン（分子動画像観測グループ）にフィードバックされるのか、またフェムト秒X線パルスを得るためのレーザーサイミング技術が、今後の我が国のX線研究でどのような位置づけを占めるのか等に関して、今後の検討が必要である。また、高強度テラヘルツ波の発生に関する研究は、テラヘルツ波をプローブ光ではなくポンプ光として用いることを主な目的としたものであるが、本プロジェクトの中での位置づけを明確にして進める必要がある。この点における腰原総括の戦略的なプロジェクト運営に大きく期待したい。

（3）非平衡強相関物質開発グループ

腰原総括自身がグループリーダーを兼務するかたちで進められる本グループは、光誘起で光電特性や誘電性が制御可能な有機電荷移動錯体や、光キャリア効果を示す量子常誘電体（ペロブスカイト型遷移金属酸化物）などといった物質の新規開拓が中心的課題となっている。このグループにおいては、京都大学の矢持秀起教授や斎藤軍治教授、東京工業大学応用セラミックス研究所の伊藤満教授らとの協力関係で研究が進められている。

腰原総括らは、有機電荷移動錯体をはじめとする種々の物質で、世界に先駆けて「光誘起相転移」を提唱している。特に(EDO-TTF)₂PF₆は、標準的な金属状態の特徴とされるドルーデ成分が見られない特異な金属状態であり、その電子状態と物性を解明することは重要である。一般に 1/4 充填系における電荷秩序に関係した絶縁体金属転移は、クーロンパラメータ（特に最近接サイト間のクーロン相互作用）、最近接及び第 2 近接サイト間のホッピングの大きさのバランス、および電子-格子相互作用などの僅かな変化により、その電子状態や物性が大きな影響を受ける。大変複雑で、そのメカニズムを明らかにするのは容易ではないが、ここから新たな知見が生まれることを期待する。

また、Ba_{1-x}Ca_xTiO₃の巨大な圧電効果は、例えば有害な鉛（Pb）を含まないと言う点からも、応用研究にも波及しうるものとして大いに注目されるが、そのメカニズムは未だ明らかではない。常誘電-強誘電相転移温度が高濃度のカルシウム（Ca）置換の場合も殆ど影響を受けないのかなど、今後解明すべき問題が多い。また誘電分散の精密な

[§] プロジェクトからの報告によれば、2006 年度中には、150 フェムト秒前後の軟X線パルスが、これまでよりも 5 桁程度高い光量として得られる見込みである。

測定により、デバイ型からどの程度ずれるかなどの基本的な検討は未だなされておらず、何らかの対応が求められる。

同グループの今後に対する提言としては、「サイエンス」という観点からは、光誘起相転移という現象をより明確に打ち出すためにも、熱的な相転移との違いや、単なる非線形光伝導との違いなどを更に明確にする必要がある。また、研究を効率的に推進し、的を射た方針を打ち立てるためには、理論的側面からのサポートが不可欠である。一方、「材料」という観点からは、例えば強誘電体のドメイン反転などは、時間分解 X 線装置と分光研究の組み合わせが最も威力を発揮でき、なおかつ社会的インパクトが大きい対象と考えられる。自前あるいは他グループと共同で、簡単な予備実験データを示すだけで、このプロジェクトのポテンシャルや存在意義を効果的に示すことが出来ると思われる。その意味で、強相関係物質だけに限定せず、応用物理や電子工学、金属工学などの広い視点から、このプロジェクトの意義をアピールする姿勢を期待したい。

(4) プロジェクト運営に対して

上述のように、これまでの装置開発研究における順調な進展は、腰原総括のプロジェクト運営能力の高さの表れであり高く評価できる。また物質開発などを中心に、国内外の研究グループとの連携も多く取られていることも、プロジェクト運営を効果的なものにしていく。

今後、「X 線自由電子レーザー」利用への将来展開も視野に入れ、現有のシステムを最大限に活用し、強相関係物質をはじめとして、さまざまな物質の物性評価に威力を発揮するかたちを整えることにより、本プロジェクトの意義がさらに高まることを期待する。さらに、本プロジェクトが引き続き他の研究グループを触発し、また連携することにより、今後の2年間、プロジェクト全体が更に進展することを期待する。

一方、プロジェクト内においては、グループ間のより有機的な連携を強化することを期待する。非平衡強相関係物質開発グループを中心に創成される物質が、分子動画観測グループへフィードバックされ、サイエンスとして、および機能材料の可能性としてのクライテリアをより有効的に打ち出せるのか、また分子動画技術グループでの超短パルス X 線技術やテラヘルツ波発生技術が、どのような形で分子動画観測グループへフィードバックされるのかと言った点を考慮して、プロジェクト運営を行うことを期待する。

以上、今後のプロジェクトを進めるにあたり、本報告書における提言が有効活用されれば幸甚である。

以上