

SPring-8

SACLA

年報

2016年度



巻 頭 言



国立研究開発法人理化学研究所
放射光科学総合研究センター長 石川 哲也

事業仕分けからかなりの年月を経過したが、その影響はいまだに尾を引いている。国内外からの多面的な支援によって、仕分けで提案された破滅的な事態には至らなかったものの、様々な場面で効率化や経費節減を問われることが多くなっている。加えて、2011年3月に発生した東日本大震災とそれに続く福島原発問題によって、国中の原子力発電所がストップし、結果として電気料金の大幅な上昇を招くことになった。特に、SPring-8が電力供給を受けている関西電力株式会社は、全国的に見ても原子力発電への依存度が高く、それが止まった場合の火力発電等の代替手段でのコスト増は大きなものがあつた。そのころから、SPring-8/SACLAは、省エネルギーに役立つ様々な材

料や製品開発に利用されてはいるものの、施設運転自体の省エネルギー化をより一層進めることが大きな課題であるという認識が共有され、それに向けての様々な改善が進められている。

建設開始から二十余年を経過したSPring-8は、各種保守部品が製造中止の時期を迎え、本格的な老朽化対策が必要になってきている。根本的な老朽化対策が、全面改修であることは明白ではあつたが、わが国に第3世代放射光施設がSPring-8唯一であることから、学术界、産業界ともに長期シャットダウンを伴う全面改修に対する抵抗も大きく、このまま経過すると世界の趨勢から立ち遅れることも懸念されるようになってきた。そこで、日本放射光学会等とも連携し、日本にもう一つ第3世代放射光施設を整備した上で、長期シャットダウンを伴うSPring-8全面改修計画を進める方針を固めた。もう一つの放射光施設は、利用者の地域分布や地震災害等によるリスクを考慮すると、SPring-8からは離れた東日本に置くことが適当と考えられ、それに向けての議論が進められている。

全面改修は、かなり先の話だとしても、この二十年間の技術の進歩により、空調機器や電源機器は、新品に置き換えただけで数割程度の節電になることも珍しくない。このような工事により、ここ数年間は年明けにSPring-8の運転が止まり、利用者の皆様には大変なご不便をおかけしてきたが、これらの工事でも2016年度で一巡し、2017年度からは年明けの運転が復活する。加えてSACLAが完成したことにより、既存の入射器をSACLA線形加速器に置き換え、大幅な電力削減を行う可能性も見えてきた。全面改修時には、電子ビームエネルギーを現在の8 GeVから6 GeVに下げることが計画されている。アンジュレータ技術の進歩によって、6 GeVにしても現状と同様なエネルギー範囲の光が生成可能であり、他方で6 GeVにすることによって、更に大幅なエネルギー節減が可能になるためである。

SPring-8/SACLAの組み合わせという、世界でも極めてユニークな立場に立つことによって、些かの優位性を得ているとはいふものの、SPring-8単体で見るとかつての圧倒的な優位性は今や存在せず、放射光施設の先頭集団に飲み込まれつつある。この状況を打開することが喫緊の課題になりつつあるので、できるだけ早い機会に産官学の利用者の皆様と、次にあるべき姿の議論を始めていきたい。皆様の、日頃のご支援に篤く感謝するとともに、これからの議論への積極的な参加を期待している。



公益財団法人高輝度光科学研究センター
理事長 土肥 義治

財団法人理化学研究所は、渋沢栄一が総代となり総額2百万円を越す寄付を集めて1917年3月20日に設立されました。総裁には伏見宮貞愛親王、副総裁に渋沢栄一、初代所長に菊池大麓、副所長に桜井錠二、物理学部長に長岡半太郎、化学部長に池田菊苗が就任いたします。4月26日には皇室より毎年十万円ずつ計百万円が理研に下賜されることが伝達され、研究所は東京・駒込に設置されることになりました。天皇陛下、皇后陛下の両陛下臨席の下、2017年4月26日に東京国際フォーラムにおいて理研創立百周年記念式典が挙行されました。理研は、この百年間に財団法人、株式会社、特殊法人、独立行政法人、国立研究開発法人と姿を変えつつも、研究思想として「理研精神」を掲げて自然科学の総合研究所としてわが国を代表する研究機関であり続けたと思います。

ここで、理研百年を振り返り、理研精神を大学で実践した喜多源逸と真島利行の業績を紹介いたします。駒込に建物が完成すると物理学部と化学部との争いが激しくなり、理研は危機に直面します。危機にあたり、1921年に大河内正敏が所長に就任し、部制を廃止して主任研究員の名を冠した研究室制に改め、1922年に14研究室が発足します。長岡半太郎、池田菊苗、鈴木梅太郎、本多光太郎、真島利行、和田猪三郎、片山正夫、大河内正敏、田丸節郎、喜多源逸、鯨井恒太郎、高峰俊夫、飯盛里安、西川正治が主任研究員に就任して研究室運営を始めました。

喜多源逸は1946年までの25年間理研研究室を京都帝大工学部に置き、工業化学における京都学派と呼ばれる学風を築きました。喜多門下から、工業化学の小田良平、穴戸圭一、古川淳二、野崎一、鶴田禎二、繊維化学の桜田一郎、堀尾正雄、岡村誠三、燃料化学の児玉信次郎、福井謙一、新宮春男など錚々たる逸材が育ちました。喜多は優秀な人材を理研資金で研究生や嘱託として雇用するとともに、理研在外研究員として海外に留学させます。喜多の研究室運営は、基礎科学を重視するとともに、その成果を産業化につなげるという大河内の理研精神を反映したものでした。喜多は工業化学科の学生に理学部の化学、物理、数学を受講するよう勧めます。基礎科学を重視する研究環境のもとで、福井謙一は1981年のノーベル化学賞受賞につながるフロンティア軌道理論を創出します。また、喜多は1930年から京大化学研究所の所長を12年間務めて、フィッシャー・トロプシュ法による人造石油の工業化、合成繊維や合成ゴムの工業化などを主導いたしました。喜多が築いた学風は戦後も継承され、京大工学部の化学系教室は理研前理事長の野依良治を始め多くの逸材を輩出しています。

つぎに、ウルシやトリカブトなど天然物に含まれる色素、毒素、薬効成分の構造研究で著名な有機化学者の真島利行の偉業を述べます。真島は、1911年に東北帝大教授に就任してウルシオール研究を進め、1922年に理研内に真島研究室を開設します。仙台では本多光太郎とともに元旦も大学に出勤する研究の鬼であり、毎月上京しては理研に泊り研究室員を指導していたとのこと。その後、

1929年から東工大教授、1930年から北海道帝大教授、1932年から大阪帝大教授を兼務して、有機化学分野で多くの人材を育てました。東北大研究室から野副鉄男、赤堀四郎、藤瀬新一郎、理研研究室から小竹無二雄、黒田チカ、東工大研究室から星野敏雄、北大研究室から杉野目晴貞、阪大研究室から村上益雄、村橋俊介、金子武夫などの逸材が育ちました。真島門下の赤堀四郎、星野敏夫は特殊法人理研の理事長に就任しています。真島は、1939年に阪大産業科学研究所の初代所長になり基礎科学の成果を産業化する理研精神を実践し、1943年に大阪帝大の総長に就任いたしました。

このように、理研の主任研究員は、それぞれの研究分野において大学と強い連携を保ち、数多くの研究人材を育成するとともに、理研精神を実践して科学の進歩と社会の発展に貢献してきたと思います。わが国と国際社会の持続的発展のために、これからの百年においても理研のさらなる進化を期待しています。

目 次

1. 組織	1
2. 予算	2
3. 国際協力	3
4. 研究会・国際会議等	4
5. 広報活動	6
6. 安全管理	7
7. 施設管理	10

SPring-8

1. 施設運営の概況	
1-1 施設運転状況	15
1-2 利用研究状況	17
2. SPring-8の現状と高度化	
2-1 加速器	23
2-2 ビームライン	26
2-3 実験ステーション	
2-3-1 共用ビームライン	
BL01B1 XAFS	31
BL02B1 単結晶構造解析	33
BL02B2 粉末結晶構造解析	36
BL04B1 高温高圧	39
BL04B2 高エネルギーX線回折	41
BL08W 高エネルギー非弾性散乱	43
BL09XU 核共鳴散乱	45
BL10XU 高圧構造物性	48
BL13XU 表面・界面構造解析	50
BL14B2 産業利用Ⅱ	52
BL19B2 産業利用Ⅰ	54
BL20XU 医学・イメージングⅡ	56
BL20B2 医学・イメージングⅠ	58
BL25SU 軟X線固体分光	60
BL27SU 軟X線光化学	62
BL28B2 白色X線回折	65
BL35XU 高分解能非弾性散乱	67
BL37XU 分光分析	70
BL38B1 構造生物学Ⅲ	71
BL39XU 磁性材料	74

BL40XU	高フラックス	77
BL40B2	構造生物学Ⅱ	79
BL41XU	構造生物学Ⅰ	81
BL43IR	赤外物性	84
BL46XU	産業利用Ⅲ	86
BL47XU	光電子分光・マイクロCT	88
2-3-2	理研ビームライン	91
BL26B1/BL26B2	理研 構造ゲノムビームラインⅠ&Ⅱ	
BL32XU	理研 ターゲットタンパクビームライン	
BL45XU	理研 構造生物学ビームラインⅠ	
BL19LXU	理研 物理科学ビームラインⅡ	
BL44B2	理研 物質科学ビームライン	
BL17SU	理研 物理科学ビームラインⅢ	
BL29XU	理研 物理科学ビームラインⅠ	
BL43LXU	理研 量子ナノダイナミックスビームライン	
2-3-3	専用ビームライン	
日本原子力研究開発機構		
BL22XU	JAEA 重元素科学Ⅰ	101
BL23SU	JAEA 重元素科学ビームラインⅡ	105
量子科学技術研究開発機構		
BL11XU	QST 極限量子ダイナミックスビームラインⅠ	110
BL14B1	QST 極限量子ダイナミックスビームラインⅡ	117
兵庫県		
BL08B2	兵庫県 BM	121
BL24XU	兵庫県 ID	124
NSRRC (台湾ビームライン)		
BL12XU	NSRRC ID	128
BL12B2	NSRRC BM	131
物質・材料研究機構		
BL15XU	広エネルギー帯域先端材料解析	134
産業用専用ビームライン建設利用共同体		
BL16XU	サンビーム ID	136
BL16B2	サンビーム BM	140
大阪大学核物理研究センター		
BL33LEP	レーザー電子光	143
BL31LEP	レーザー電子光Ⅱ	145
大阪大学蛋白質研究所		
BL44XU	生体超分子複合体構造解析	147
フロンティアソフトマター開発専用ビームライン産学連合体		
BL03XU	フロンティアソフトマター開発産学連合ビームライン	150
東京大学		
BL07LSU	東京大学放射光アウトステーション物質科学	152

豊田中央研究所	
BL33XU 豊田ビームライン	155
京都大学	
BL28XU 革新型蓄電池実用化促進基盤技術開発ビームライン	158
電気通信大学	
BL36XU 先端触媒構造反応リアルタイム計測	161
2-4 制御	163
2-5 情報・ネットワーク	169
 3. 重点研究	
3-1 産業新分野支援課題	171
3-2 社会・文化利用課題	173
 4. 産業利用	175
 5. 委員会活動	178
 SACLA	
1. 施設運営の概況	
1-1 施設運転状況	185
1-2 利用研究状況	188
 2. SACLAの現状と高度化	
2-1 運転・加速器	190
2-2 ビームライン・実験ステーション	193
 3. 委員会活動	194
 付録	
・組織図	1
・年別査読有り論文発表登録数	2

1. 組織

大型放射光施設 SPring-8、X線自由電子レーザー施設 SACLA は、施設者である国立研究開発法人理化学研究所と、「特定先端大型研究施設の共用の促進に関する法律」に基づく登録施設利用促進機関である公益財団法人高輝度光科学研究センターによって、2016年度は運営された。

本)、フロンティアソフトマター開発専用ビームライン 産学連合体 (1本)、国立大学法人東京大学 (1本)、国立大学法人京都大学 (1本) 及び国立大学法人電気通信大学 (1本) が、SPring-8 に設置している専用ビームライン (計19本) を利用して、様々な放射光利用研究を実施した。

1. 国立研究開発法人理化学研究所

理研 放射光科学研究推進室

特定放射光施設 (SPring-8/SACLA) の施設者として、施設の整備、運転・維持管理等及び利用者への放射光・X線自由電子レーザー (以下、XFEL) の提供に責任を果たすとともに、放射光及びXFELを利用した新しい領域を開拓するための研究や、常に最善の放射光・XFELを発生・供給するための技術開発等を実施した。

2. 公益財団法人高輝度光科学研究センター

特定放射光施設の利用促進業務を行う登録施設利用促進機関として、利用者の選定や、利用者に対する情報支援・技術支援等の利用支援に係る業務を実施した。

3. 専用ビームライン設置者

国立大学法人大阪大学蛋白質研究所 (1本)、国立大学法人大阪大学核物理研究センター (2本)、産業用専用ビームライン建設利用共同体 (2本)、兵庫県 (2本)、国立研究開発法人物質・材料研究機構 (1本)、台湾・財団法人國家同步輻射研究中心 (2本)、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 (2本)、国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構 (2本)、株式会社豊田中央研究所 (1

2. 予算

2016年度の施設運営に係る予算について、特定放射光施設（SPring-8/SACLA）の施設者である国立研究開発法人理化学研究所に対し、施設の運転・維持管理等業務の実施に必要な「特定先端大型研究施設運営費等補助金」が国から交付された。

また、「特定先端大型研究施設の共用の促進に関する法律」に基づき、特定放射光施設の利用促進業務を行う登録施設利用促進機関である公益財団法人高輝度光科学研

究センターに対し、当該業務の実施に必要な「特定先端大型研究施設利用促進交付金」が国から交付された。

SPring-8/SACLAの運営に係る2016年度の政府予算額は、2015年度（145.0億円）を上回る149.5億円となった。

理研 放射光科学研究推進室

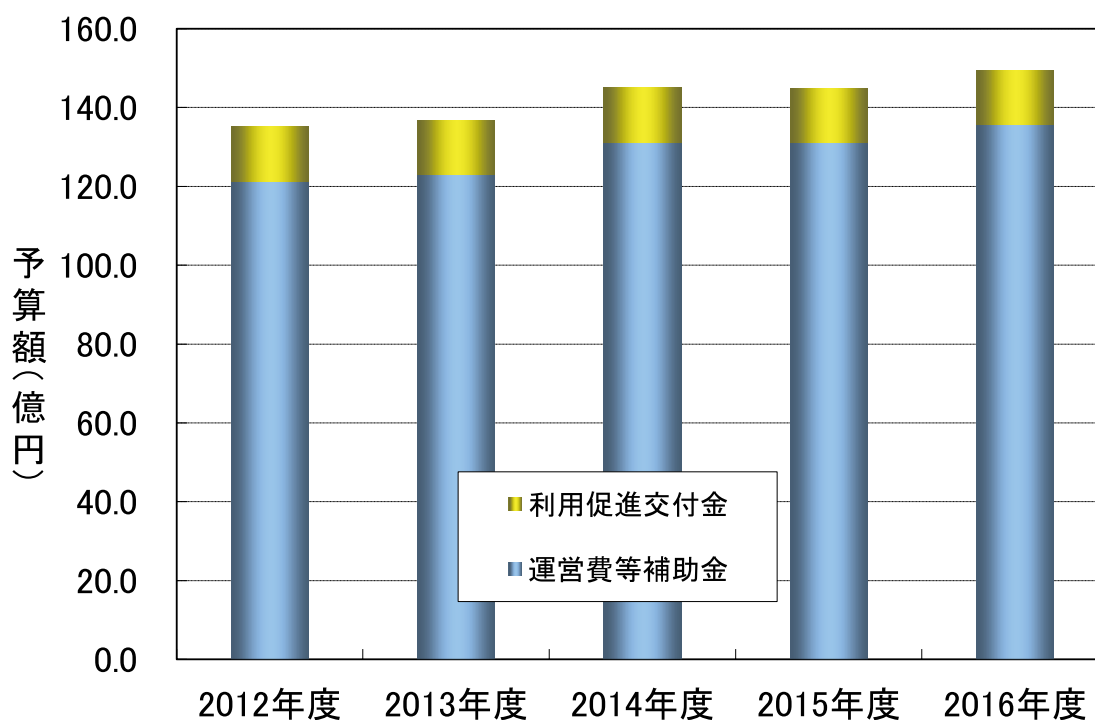


図1 過去5年間の予算推移

3. 国際協力

2016年度末時点で、海外の21機関と放射光科学及び 研究所間の情報交換、研究者の交流等を実施している。
XFELに係る協定・覚書を締結し、放射光研究の協力、 具体的な締結先を表1に示す。

表1 SPring-8/SACLAに係る国際協力協定・覚書

国 名	機関名	締結年	終了年
アメリカ	アルゴンヌ国立研究所先端光源 (APS) *1	1993	無期限
フランス	欧州放射光施設 (ESRF) *1		
アメリカ	アルゴンヌ国立研究所先端光源 (APS)	2006	2018
	ブルックヘブン国立研究所 (BNL)・国立放射光源 II	2009	2018
	ローレンスパークレー国立研究所	2004	無期限
カナダ	カナダ放射光施設 (CLS)	2012	2018
イギリス	ダイヤモンド放射光施設	2006	2021
	リバプール大学	2009	2019
ウクライナ	ウクライナ国立キエフ工科大学	2013	2019
オランダ	アイントホーフエン工科大学	2015	2018
スイス	ポール・シェラー研究所 (PSI)	2006	2018
スウェーデン	ルント大学・MAX IV 研究所	2014	2019
ドイツ	ドイツ電子シンクロトロン研究所 (DESY) (ヘルムホルツ協会)	2007	2019
	欧州 XFEL 施設	2015	2020
フランス	欧州放射光施設 (ESRF)	2006	2021
	SOLEIL 放射光施設	2013	2021
オーストラリア	オーストラリア放射光施設 (Australian Synchrotron)	2008	2018
	オーストラリア原子力科学技術機構	2011	2019
韓 国	浦項加速器研究所 (PAL)	2005	2020
タ イ	国立放射光センター	2006	2021
台 湾	国立放射光研究センター	2008	2018
中 国	中国科学院・応用物理研究所 (上海放射光源) (SINAP)	2011	2021

*1: SPring-8、APS、ESRF の3者による協定

また、2016年度には以下の3機関と協力協定を延長した。

1. SOLEIL 放射光施設 (Synchrotron SOLEIL/ フランス)
放射光科学に関する理研、JASRI との3者覚書が2016年6月で満了となり、締結期間を5年間延長した。

2. キエフ工科大学 (Kyiv Polytechnic Institute/ウクライナ)
コヒーレント X線利用の研究協力等に関する理研との覚書が2016年8月で満了となり、締結期間を3年間延長した。

3. 上海放射光源 (Shanghai Institute of Applied Physics / 中国)

放射光科学に関する理研、JASRI との3者覚書が2016年9月で満了となり、5年間の覚書を締結した。

理研 放射光科学研究推進室

4. 研究会・国際会議等

2016年度に理化学研究所（理研）及び高輝度光科学研究センター（JASRI）が主催あるいは共催した、SPRING-8/SACLAに関連した研究会及び国際会議は表1、2の通りである。

また、2016年9月14～16日にかけて第16回 APS-ESRF-SPRING-8-DESY 三極ワークショップがドイツ・ハンブルグのDESYで、2016年10月24～26日にかけて第8回XFEL5極ワークショップが韓国・浦項のPALでそれぞれ開催された。

1. SPRING-8シンポジウム2016(2016年8月29日～30日)

SPRING-8シンポジウム2016では、“放射光が解く環境・エネルギー問題”と題し、持続可能な社会の実現に向けた科学技術の挑戦について、基礎科学の探求から産業応用までの幅広い放射光の利活用についての講演が行われた。さらに、SPRING-8における新たな利用研究、

将来計画について施設側から発表が行われた。また、ポスター発表では、SPRUC研究会の研究報告とともに、SPRING-8の施設側からビームラインの現状および高性能化の報告、専用ビームライン、パワーユーザー/パートナーユーザー、長期利用課題による最新の研究成果等について発表が行われた。

参加者数は331名であり、2日間で110件の発表が行われた。

表1 理研及びJASRIの主催あるいは共催による会議等一覧

開催期間	会議名
2016/8/29-30	SPRING-8シンポジウム2016
2016/9/5-9/6	第8回日本放射光学会 放射光基礎講習会
2017/1/7-9	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

表2 SPRING-8セミナー

開催回	開催日	発表者名	所属	発表タイトル	担当者名
第250回	2016/7/13	Devashibhai Adroja	ISIS Facility, Rutherford Appleton Laboratory	Inelastic neutron scattering investigations of an anisotropic hybridization gap in the Kondo insulators: CeT ₂ Al ₁₀ (T=Fe, Ru and Os)	筒井 智嗣
第251回	2016/8/1	宝野 和博	物質・材料研究機構	Materials challenges for next generation high-density magnetic recording - media and readers	中村 哲也
第253回	2016/8/17	徳永 智春	名古屋大学	SOFC燃料極における炭素析出メカニズムの解明と水素生成用炭素触媒の可能性	櫻井 吉晴
第249回	2016/8/19	高橋有紀子	物質・材料研究機構	FePt-C媒体における円偏光誘起磁化反転	大河内 拓雄
第252回	2016/8/25	安藤 康伸	産業技術総合研究所	情報科学的手法のマテリアルシミュレーション解析への応用—スペクトル分類と複雑イオン拡散経路探索—	豊木 研太郎
		永田 賢二	産業技術総合研究所	ベイズ推論に基づくスペクトル分解	
第254回	2016/8/25	金子 耕士	日本原子力研究開発機構	高性能パルス中性子を活かしたEu化合物研究の新展開	水牧 仁一郎
第255回	2016/9/26	塩見淳一郎	東京大学	ナノスケールや界面における熱フォノン輸送—微視的な解析、測定、およびマテリアルズ・インフォマティクスへの展開—	水牧 仁一郎
第258回	2016/11/4	Keihan Tavakoli	SOLEIL	Introduction to SOLEIL with a focus to the latest activities in the engineering department in relation with instrumentations used in the beamlines and the storage ring	高橋 直
第256回	2016/11/7	Moritz Hoesch	Diamond Light Source	Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy at Diamond Light Source, the example of quasi-one dimensional Ti ₂ Mo ₆ Se ₆	木下 豊彦
第257回	2016/11/14	Alexander Rack	European Synchrotron Radiation Facility	The ESRF Upgrade Program EBS: new horizons for time-resolved X-ray imaging	上杉 健太郎
第259回	2017/1/11	Jozef Uličný	University of P.J. Šafárik	Toward an understanding of DNA architecture in living cells: from modeling to direct X-ray imaging	関口 博史
第260回	2017/2/15	中谷 健	日本原子力研究開発機構	J-PARC MLFの実験制御・データ管理システム	横田 滋
		鈴木 次郎	高エネルギー加速器研究機構	データ解析システムとNeXus	
第261回	2017/3/7	田口 武慶	リガク	ハイブリッド型多次元ピクセル検出器HyPixの開発	杉本 邦久 増永 啓康
		太田 昇	JASRI	ハイブリッド型多次元ピクセル検出器HyPix-3000の利用報告	
第262回	2017/3/23	Michael James	Australian Synchrotron	What's Brilliant and BR-GHT at the Australian Synchrotron	坂田 修身

2. 第8回日本放射光学会 放射光基礎講習会

(2016年9月5日～6日)

第8回日本放射光学会 放射光基礎講習会では、「初心者のための放射光科学入門 基礎から応用まで」という副題の通り、全体を基礎編と応用編に分けて開催した。基礎編においては、放射光を新たに利用して研究開発を始めようとしている学生・研究者に向けて、放射光の特性をフル活用するために必要な基礎知識を学べるコースとした。また、応用編では、放射光を利用した基礎・応用研究のホットな話題について、最前線で活動している研究者から紹介があった。

参加者は68名であり、2日間にわたって基礎編・応用編を合わせて9件の講義が行われた。

3. 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 (2017年1月7日～9日)

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では、2つの特別講演で始まり、SOR-RINGが2016年度分析機器・科学機器遺産に認定されたことを記念した特別講演が行われた。2日目からは企画講演と一般講演が行われた。企画講演では「次世代光源と期待されるサイエンス」、「IR/THz-FELの現状と今後の展望」、「キラリティー科学から低エネルギー回折限界光源への期待」、「産業界の分析ツールとしての放射光利用の在り方」の4件に200名前後の聴衆が集まり、活発な議論が行われた。

市民公開講座は、“見てみたいを叶える力「放射光」一解き明かされる生命の仕組みー”というテーマで開催され、SPring-8/SACLAを生命研究で活用している3名の研究者から講演があった。

また、例年開催期間中には、共催団体のユーザーコミュニティの会合が行われるが、2016年度の本会では「SLiT-Jユーザーコミュニティ (SLiT-JUC) 発足式」が開催された。

3日間で2件の特別講演、4つの企画講演に27件の発表、一般講演は9件の招待講演を含め口頭発表が127件、ポスター発表者244件、施設報告19件が行われ、参加者は689名であった。

理研 放射光科学研究推進室

5. 広報活動

2015年度に引き続き、イベントの開催及びプレスリリース等を通じて、大型放射光施設SPring-8及びX線自由電子レーザー施設SACLAの活動情報を発信した。

1. プレスリリース

SPring-8またはSACLAを利用した研究成果等をマスメディアに対して発信した。2016年度において、理研・JASRIを合わせた発表件数は45件であった。

理研 放射光科学研究推進室

2. 取材対応

SPring-8またはSACLAで行われ、理研及びJASRIが対応したマスメディアの取材は9件であった。

3. 一般見学

2016年度から一般見学の内容を見直した。15名以上の団体に対して、概要説明、施設紹介ビデオの視聴を含むSPring-8・SACLAの見学ツアーを実施し、373件6,648名の見学者を受け入れた。

また、兵庫県と連携して播磨科学公園都市内のPR館であるオプトピアにて、SPring-8及びSACLAを紹介するビデオ・パネル・VR等の展示を行い、見学者数は4,509名であった。

4. 施設公開

2016年5月1日に「歩いて知ろう。今年のSPring-8 & SACLAはオトナも楽しい。」をテーマとし、施設のスケールを体験しながら、普段は見ることのできない装置等を公開し、放射光科学を身近に感じることができるイベント・科学者講演会を実施。来場者数は2015年度を上回る5,864名であった。

5. 出張授業

出張授業は、理研またはJASRIの研究者などが小中高等学校に出向き、科学技術についての実験を含めた授業を行うもので、1999年度から実施している。

2016年度は、2016年7月1日に播磨高原東小学校、2016年11月25日に佐賀県鳥栖市内の中学校、2016年12月8日に利神小学校に研究者が出向き、講義を行った。

6. イベント・展示会への出展

2016年度は「G7神戸保険大臣会合開催記念 ひょうご

KOBE医療健康フェア」(2016年9月8日～11日)、「第9回サイエンスフェアin兵庫」(2017年1月29日)等にパネル出展を行い、SPring-8/SACLAの普及活動に努めた。

6. 安全管理

1. 要約

大型放射光施設の利用・運転計画に適合するよう、SPring-8/SACLAについて第39次(2016年4月21日許可)及び第40次(2016年10月13日許可)変更許可申請を行った。

施設内及びSPring-8/SACLAサイト周辺の環境放射線モニタリングを実施し、法令限度を十分に下回っていることを確認した。

放射線業務従事者の管理においては、従事者登録された約6,750人に対して、教育及び個人被ばく管理等を実施した。

化学薬品、高圧ガス、生物系実験、クレーン、レーザー等においても関連法令を順守し適切に管理を行った。

2. 放射線安全管理

2-1 概要

2016年度の公的検査は、原子力規制庁によるSPring-8/SACLAの立入検査(2017年1月20日受検)があり、放射線管理が適正に実施されていることが確認された。また、サイト内の各加速器・施設においても放射線管理上の問題はなかった。

2-2 許認可申請

2016年度中に変更許可申請した変更内容は下記の通りである。

[SPring-8 / SACLA]

第39次変更許可申請

(申請日:2016年3月3日、許可日:2016年4月21日)

1. 線型加速器のLIBT出射の廃止
2. シンクロトロン蓄積運転の廃止
3. シンクロトロン(蓄積リング)放射光ビームラインに係る変更(BL05SS、BL24XU)
4. 密封線源の追加、削除および使用方法の一部記述変更
5. BL1専用直線加速器の性能変更

第40次変更許可申請

(申請日:2016年9月15日、許可日:2016年10月13日)

1. シンクロトロン(蓄積リング)放射光ビームラインに係る変更(BL05SS、BL32B2、BL36XU)
2. SACLA加速器からBL1に導くルートの廃止

第41次変更許可申請

(申請日:2017年3月24日、許可日:2017年4月20日)

1. シンクロトロン(蓄積リング)放射光ビームラインに係る変更(BL19LXU)
2. 密封放射性同位元素の追加
3. 放射化物保管設備の新設(SACLA組立調整室)
4. 放射化物保管容器の追加(北管理棟)

2-3 放射線安全委員会等の開催

大型放射光施設(SPring-8)放射線安全会議(第22回及び第23回)を開催した。これらの会議では、SPring-8/SACLAの第40次及び第41次の変更許可申請について審議され了承された。

2-4 施設検査・定期検査等

定期検査、定期確認及び施設検査:なし

立入検査:原子力規制庁による立入検査を2017年1月20日に受検し、放射線管理が適正に実施されていることが確認された。

2-5 放射線モニタリング等

SPring-8/SACLAの全加速器(放射光ビームラインを含む)は、年2回の定期測定、積算線量計及び放射線モニタリングシステムにより定常監視を実施し、放射線環境が法令の基準内であることを確認した。

SPring-8/SACLAにおける、通常、人が立ち入る管理区域の放射線量は、蓄積リング棟実験ホール中のビームラインハッチの定期測定について、最大値3.0 $\mu\text{Sv/時}$ の線量が測定されたが、放射光ユーザーなどの作業する場所では1.0 $\mu\text{Sv/時}$ 未満(BGレベル)であった。他の測定点においても定格換算値で法令限度1 mSv/週 (評価時間:40時間/週)を十分に下回っていた。

SPring-8/SACLAの定常運転時における管理区域境界線量の定期測定結果は、全点において1.0 $\mu\text{Sv/時}$ 未満であり、定格換算値で法令限度1.3 mSv/3月 (評価時間:520時間/3月)を十分に下回っていた。

環境放射線(能)測定による事業所境界の最大値は、線量率測定の結果が0.05 $\mu\text{Sv/時}$ 、積算線量の結果が0.05 mSv/3月 であり、法令限度0.25 mSv/3月 (評価時間:2,184時間/3月)を十分に下回っていた。また、年4回の周辺環境測定で、SPring-8/SACLAの運転がサイト周辺の放射線環境に影響しないことを確認した。

2-6 放射線業務従事者管理及び入退室管理

2016年度の放射線業務従事者総数を表1に示す。表1のとおり、放射光ユーザーは約70%を占める。また、一時立入り者数を表2に示す。

表1 2016年度全放射線業務従事者数

事業所名	SPring-8 / SACLA
男 (人)	5,874 (4,072)
女 (人)	871 (740)
計 (人)	6,745 (4,812)

() 内は放射光ユーザー数

表2 2016年度一時立入り者数*

事業所名	SPring-8 / SACLA
一時立入り者数 (人)	9,023

*: 延べ数

2-7 特例区域の設定

2016年度運転停止時に以下の通り特例区域を設定した。また、表3にその期間中に入域した作業員数を示す。〔SPring-8〕

- ①, ② 蓄積リング棟実験ホール (付属施設Wを含む)、
収納部天井、保守通路、中尺ビームライン実験施設、
長尺ビームライン実験施設、豊田ビームライン実験
棟、LEPS2実験棟

〔SACLA〕

- ③ SACLA実験研究棟実験ホール、相互利用実験施設

表3 2016年度特例区域作業員数

設定期間	SPring-8 (人)	SACLA (人)
① 8/1 ~ 8/31	51	—
② 12/22 ~ 3/24	153	—
③ 12/21 ~ 1/30	—	30
計 (人)	204	30

2-8 個人被ばく管理

放射線業務従事者のうち、事業所内で業務を行う職員等には、個人線量計を1ヵ月毎に貸与、回収し線量測定を行った。

また、共用ユーザー等の短期滞在者には、その滞在期間毎に個人線量計を貸与、回収し線量測定を行った。その他の外部機関に所属する常駐者については、滞在する月毎に個人線量計を貸与、回収し線量測定を行った。2016年度にSPring-8/SACLAで行った線量測定結果は、

全放射線業務従事者について検出下限未満であった。

3. 化学薬品の安全管理

特定化学物質及び有機溶剤に関する作業環境測定を実施 (年2回) し、適切な作業環境であることを確認した。また、化学薬品の取扱い時に使用する局所排気装置について定期自主検査を実施し、必要な性能を維持していることを確認した。

取扱いを許可された麻薬・覚せい剤・向精神薬は、法令等に従い適切に管理を行った。2016年度中に実施した化学関係の許可申請・届出は、下記の通りである。

(1) 許可申請

- 2016年10月28日 麻薬研究者免許申請書
2016年11月9日 覚せい剤研究者指定申請書
2017年1月5日 麻薬研究者免許証返納届および覚せい剤指定証返納届

(2) 届出

- 2016年11月9日 平成28年度麻薬年間届
2016年12月15日 覚せい剤年間報告書
2017年2月16日 平成28年度向精神薬試験研究施設設置者年間届出書

4. 生物実験

4-1 遺伝子組換え実験安全委員会

2016年度は下記委員会を開催し、新規、継続、変更課題含め11件の審査を行い許可した。

- 2016年4月1日 第46回遺伝子組換え実験委員会 (持ち回り)
2016年4月13日 第47回遺伝子組換え実験委員会 (持ち回り)
2016年8月10日 第48回遺伝子組換え実験委員会
2016年8月22日 第49回遺伝子組換え実験委員会 (持ち回り)
2016年11月17日 第50回遺伝子組換え実験委員会 (持ち回り)
2017年3月16日 第51回遺伝子組換え実験委員会

4-2 動物実験委員会

2016年度は下記委員会を開催し、新規課題15件の審査を行い許可した。

- 2016年8月2日 第48回動物実験委員会
2016年11月17日 第49回動物実験委員会 (持ち回り)
2017年3月20日 第50回動物実験委員会

兵庫県動物愛護センターによる実験動物の飼養・保管施設に係る立入り検査が2017年3月15日に実施され、

問題ないことが確認された。

5. 高圧ガスの保安管理

2016年度における高圧ガスの保安管理状況は、下記の通りである。

(1) 届出

2016年 6月14日 第二種貯蔵所位置等変更届
2016年 8月 9日 第二種貯蔵所位置等変更届
2016年 9月15日 第二種貯蔵所位置等変更届
2016年12月 7日 第二種貯蔵所位置等変更届
2017年 3月15日 第二種貯蔵所位置等変更届
2016年 8月 9日 高圧ガス保安技術管理者等届書

(2) 許可申請

2016年 5月10日 高圧ガス製造施設軽微変更届書

(3) その他

・保安会議

2016年8月26日に高圧ガス保安会議を開催し、高圧ガスの保安管理状況を報告。各製造施設の状況を確認し共有化を図った。

・貯蔵状況

2017年3月届出時点での蓄積リング棟の高圧ガス貯蔵状況は、ボンベ数512本、貯蔵量2,338.42 m³。最大貯蔵能力に対する貯蔵割合は、95.83%であった（2016年度3月届出時点でのボンベの数は、514本（2,340.67 m³、96.02%）。

6. 課題安全審査

2016B期課題安全審査を2016年6月に、2017A期課題安全審査を2017年1月に、その他産業利用第2期課題、成果専有時期指定課題、緊急課題、測定代行課題、インハウス課題等を行い、合わせて約2,900件の安全審査を行った。

7. 緊急時対応

SPring-8/SACLAには、常勤職員や業務委託先の従業員が勤務するほか、国内外の研究機関や企業に所属する実験ユーザー、客員研究員、研修生等の非常勤職員も多く訪れている。このため、2016年度は地震発生時の連絡通報・運用体制及び通報基準該当時の連絡系統について、マニュアルの再確認を行った。また、構内に事業所を置く機関との合同防災訓練を9月9日（救急の日）に実施し、実際に119番通報を行い、梯子車や救急車が出動する実践的な訓練を実施した。

理研 播磨事業所 安全管理室
JASRI 安全管理室
理研 播磨事業所 研究支援部

7. 施設管理

1. はじめに

施設の運転・維持管理業務の目的は、SPring-8/SACLAの運転及びビームラインにおける利用実験、並びに実験施設における設備・機器を安全・安定、且つ高い信頼性を確保することにより、研究者が研究に専念できる環境を実現することにある。

施設設備の運転保守においては、施設全体を安定且つ良好な状態に維持できるよう24時間体制で管理を実施するとともに、一元的且つ効率的な運用に努めた。

維持管理においては、電気設備・冷却設備・実験排水設備・建築設備・空調衛生設備等について、今後5年間程度にわたる設備の精密点検並びに日常点検計画の策定を行うとともに、これに基づく点検・整備の確実な実施、老朽化・経年劣化等の対処など、計画的な取り組みにより、良好な研究環境を実現した。

2. 光熱水管理

2-1 電気

電気は、関西電力株式会社より供給されており、受電電圧は77 kV、契約電力は産業用電力33,500 kW、業務用電力1,700 kW、合計35,200 kWである。2016年度の電力使用量は、187 GWhであった。

最大電力については、夏季や節電要請期間中のデマンド監視を強化するとともに空調機の運転制御等により、契約電力を超過しないよう管理を行った。

また、研究の高度化・多様化に向けた電源の高品質化、安定性の向上について、研究者をはじめとして関係する機関・部署の要望に対応した。

(図1、表1参照)

2-2 上下水道

水道水（市水）は、播磨高原広域事務組合上下水道事業所より、上郡（千種川）水系から供給されており、2016年度の水道水使用量は262 km³、また下水道排出量は109 km³であった。

(図2、図3、表2、表3参照)

2-3 ガス

ガスは、大阪ガス株式会社西播磨ステーションより都市ガス（13A）の供給を受けており、2016年度の都市ガス使用量は248 km³であった。

(図4、表4参照)

表1 電力使用量

単位：GWh

	2012年度	2013年度	2014年度	2015年度	2016年度
特 別 高 圧	188.5	179.0	188.6	179.4	180.4
業 務 用	6.6	6.0	6.0	6.0	6.8
SPring-8全体	195.1	185.1	194.6	185.4	187.2
増 減 (±)	3.5	-10.0	9.6	-9.2	1.7

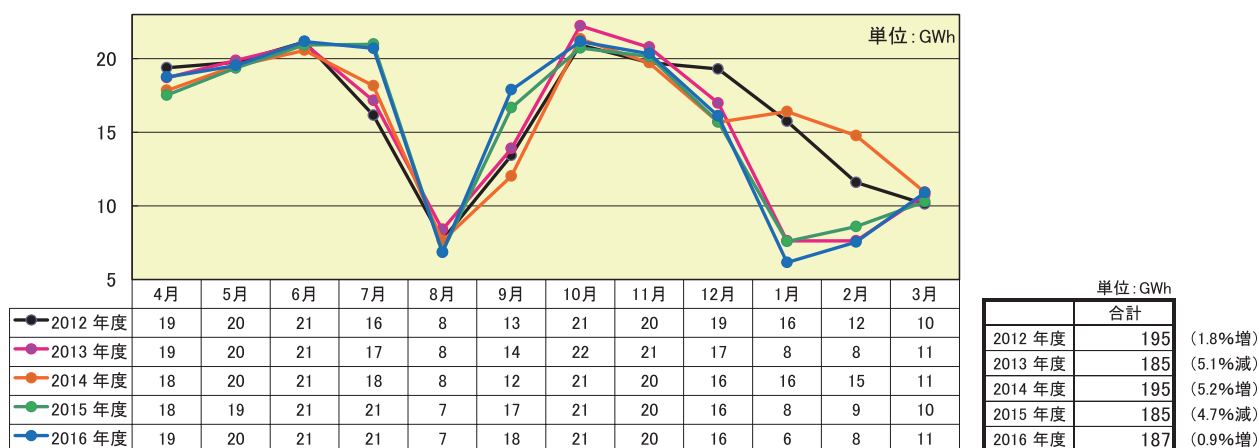


図1 電力使用量の推移（播磨地区全体）

表2 水道水使用量

単位: km³

	2012年度	2013年度	2014年度	2015年度	2016年度
共用施設	232.6	201.7	214.0	191.4	196.4
独自施設	65.5	72.3	68.4	68.1	66.0
SPring-8全体	298.1	274.0	282.4	259.5	262.4
増減(±)	7.0	-24.1	8.4	-22.9	2.9

表3 下水道排出量

単位: km³

	2012年度	2013年度	2014年度	2015年度	2016年度
SPring-8全体	131.5	101.0	109.0	101.0	108.9
増減(±)	15.5	-30.5	8.0	-8.0	7.9

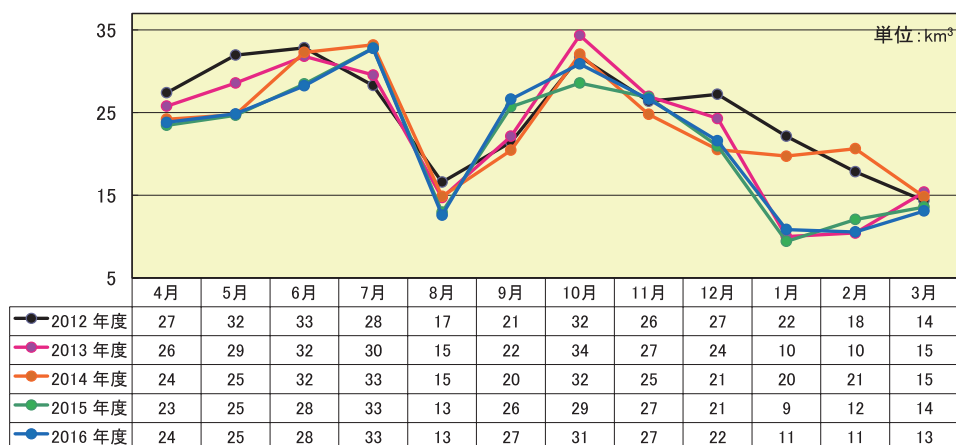


図2 水道水使用量の推移 (播磨地区全体)

	合計	
2012年度	298	(2.4%増)
2013年度	274	(8.1%減)
2014年度	282	(3.0%増)
2015年度	260	(8.1%減)
2016年度	262	(1.1%増)

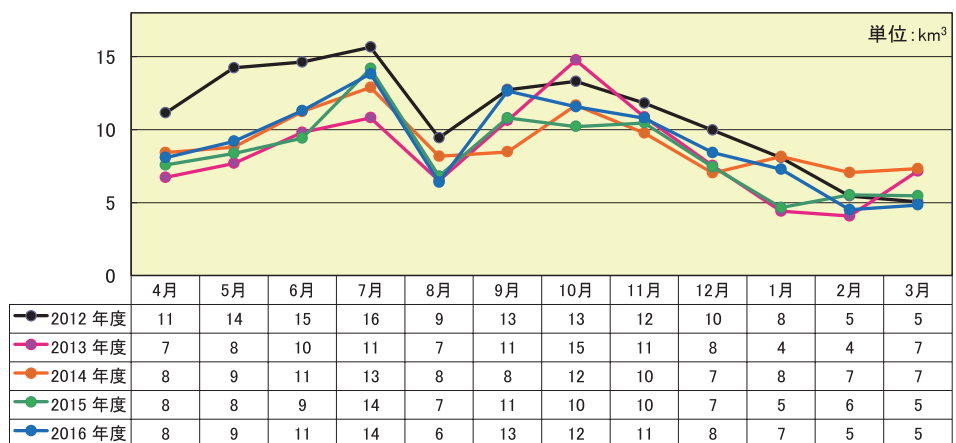


図3 下水道排出量の推移 (播磨地区全体)

	合計	
2012年度	132	(13.3%増)
2013年度	101	(23.2%減)
2014年度	109	(7.9%増)
2015年度	101	(7.4%減)
2016年度	109	(7.8%増)

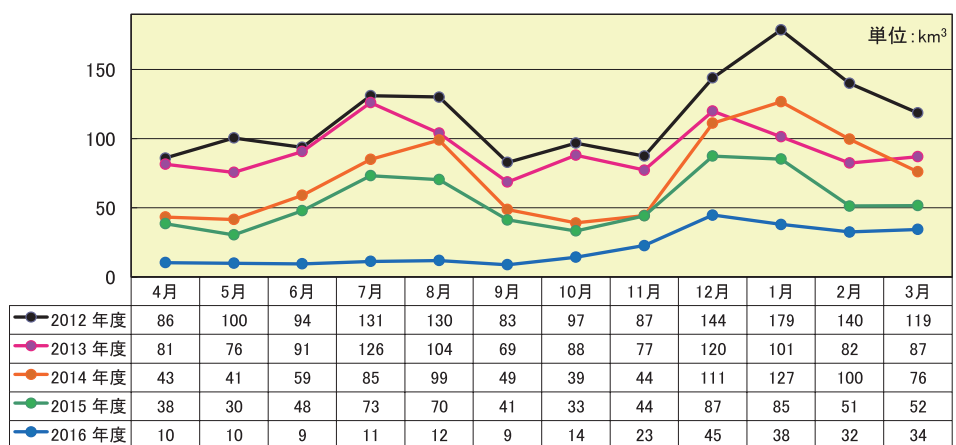


図4 都市ガス使用量の推移 (播磨地区全体)

	合計	
2012年度	1,389	(2.1%増)
2013年度	1,102	(20.7%減)
2014年度	873	(20.8%減)
2015年度	654	(25.1%減)
2016年度	248	(62.1%減)

表4 都市ガス使用量

[単位: km³]

	2012年度	2013年度	2014年度	2015年度	2016年度
共用施設	709.1	445.0	294.8	261.4	222.5
独自施設	680.1	657.0	578.3	392.5	25.2
SPring-8全体	1389.2	1102.0	873.1	653.9	247.7
増減(±)	27.9	-287.2	-228.9	-219.2	-406.2

2-4 省エネルギー

二酸化炭素（CO₂）の排出抑制及び省エネルギー化に向けた取り組みとして、2016年度に実施した対策は以下のとおりである。

(1) 中長期計画に基づく工事の実施

- 1) 動力棟の熱源機器を更新し、部分負荷運転に対応して効率的に動作するモジュールチラーを4台、水冷チラーを1台設置した。
- 2) 蓄積リング棟A・B・Cブロックにおいて、トップラナー機器であるパッケージエアコン（室外機108台、室内機216台）に更新した。
- 3) 放射光普及棟及び食堂棟の一部において、LED照明に更新した。
- (2) 節電及び電気需要の平準化に資する施策
 - 1) 安全衛生や保安上の問題が無い範囲において、照明の間引きを実施した。
 - 2) 中央管理棟に設置されているエレベーターの間引き運転（2台の内1台を停止）を実施した。
 - 3) 各研究室・居室を対象として、無人となっている部屋の消灯・個別空調の停止等を実施した。
 - 4) 「排水処理施設棟外壁及び屋上防水改修工事」、「RI実験棟外壁及び防水改修工事」及び「生物系特殊実験施設外壁及び防水改修工事」において、遮熱効果が期待出来る塗料やシート防水を採用し、外壁や屋上に施工することにより建築面からの省エネ対策を実施した。
 - 5) 蓄積リング棟実験準備室系外調機を24時間停止させることにより、CO₂を50トン削減した。
 - 6) 入射系及び蓄積リング棟マシン冷却設備の運転について、長期点検調整期に停止させることで、CO₂を年間3,424トン削減した。
 - 7) 蓄積リング棟の実験ホール系空調機器、マシン収納部系外調機・排風機・ファンコイルユニット、RI実験棟の実験ホール系空調機について、長期点検調整期間に運転台数を間引くことで、CO₂を年間1,221トン削減した。
 - 8) 中尺ビームライン実験施設研究棟外調機を夜間19時～朝7時まで停止することで、CO₂を年間15トン削減した。
 - 9) L3・L4トンネル照明を夏期の長期点検調整期間に間

引くことで、CO₂を年間5トン削減した。

- 10) 研究交流施設付属施設、グラウンドの夜間照明・空調を停止した。

- 11) 各棟のオフィス・研究室で対応可能な節電策を実施した。

(3) 省エネ法に基づく提出書類

1) 「定期報告書」

2016年度のエネルギー使用量及び実施した措置、エネルギーの使用に係わる原単位の推移等について報告を行った。

2) 「中長期計画書」

今後5年間のエネルギー使用の合理化策として、動力棟の熱源機器更新や蓄積リング棟A・B・Cブロックエアコン更新等について報告を行った。

2-5 環境保全

「環境の保全と創造に関する条例」に基づき、兵庫県農政環境部環境管理局温暖化対策課に特定物質排出抑制措置結果報告書及び計画書を提出した。

3. 設備の運転保守・維持管理

3-1 設備の運転保守

加速器運転計画に基づく年間、月間作業実施計画を作成し、実験施設の運用に支障をきたさないよう運転・保守を実施した。

- (1) 中央設備監視装置による定常監視（交替勤務による24時間体制）と現場巡視点検を併用することにより、安定した施設の運用に努めた。
- (2) 老朽化・経年劣化に伴う機器・設備のトラブル発生頻度が増加していることから、年間計画、月間計画に基づく周期点検及び現場巡視点検の精度見直しを行い、確実に実施した。

発見された問題点については、発生原因の究明を踏まえて迅速に修繕を行い、研究活動への影響を最小限にするよう努めた。

3-2 維持管理

(1) 電気設備

電気設備の定期点検は、法令及び理化学研究所播磨事業所自家用電気工作物保安規程に従って行われ、安全確保及び正常な機能を維持することにより、電力の安定供給を図ることを目的としている。

年1回の全停電を伴う法定点検作業は、8月に理化学研究所及び量子科学技術研究開発機構、日本原子力研究開発機構、兵庫県立大学（高度産業科学技術研究所・放射光ナノテクセンター）、豊田ビームライン実験棟を含めて、約500人の作業員と施設管理を担うスタッフで実施

した。

作業の実施にあたっては、事前に関係部署との打ち合わせを行い、実施計画書による作業内容の確認、操作手順、体制及びチェックシートの確認、事故・災害の防止並びに作業品質の確保を図り、安全に実施した。

また、電気主任技術者を講師とし、電気工作物保安規程に基づく安全教育研修を開催した。

(2) 装置冷却設備

加速器付帯設備としてビームの精度、安定度に直接かわる重要設備であり、運用中に設備が停止する事態を回避するため、定期保全を含めた点検・修繕に関する年間計画及び中期計画を策定し、機能の維持を図った。

(3) 実験排水処理施設

年間計画に基づき、実験排水処理施設点検・水質自動分析計定期点検・原水水質モニター排水自動分析装置定期点検等を実施し、設備の安定運用を図った。

(4) 電話設備

故障を未然に回避し、トラブル発生時の早期復旧やセキュリティ対策を確実にを行うため、メーカーサポートの終了に合わせて、構内電話設備用ネットワークスイッチ4台を交換した。また、10年以上前に販売中止となり部品の入手が困難となった固定電話機300台の交換を実施した。

(5) 建築設備

年間計画に基づく定期点検の他、老朽化・経年劣化に伴う修繕を実施した。2016年度は、RI実験棟・中央管理棟・中尺ビームライン実験施設等における漏水部、及び各建屋の建具・塗装・内装等の修繕を実施し、建築設備としての機能回復を図った。

(6) 空調・衛生設備

年間計画に基づく定期点検の他、老朽化、経年劣化に伴う発錆・腐食・劣化等により機能の低下が認められた場合には、修繕により機能回復を図った。また、ビーム運転に係わる熱源設備、空調設備等については予防保全を実施し、計画的に機能の維持を行った。

4. 老朽化対策・機能改善

4-1 特高第一変電所主変圧器等更新工事

経年劣化対策、及び光学実験の安定化を目的として主変圧器に電圧変動抑制機能を追加するため、特高第一変電所内に設置されている主変圧器の設備更新、既存高圧配電系統のバックアップ等を実施した。

4-2 特高第一変電所ガス遮断器等更新工事

経年劣化対策として、特高第一変電所内に設置されているガス遮断器、及び高圧進相コンデンサ等の設備更新を実施した。

4-3 特高第一変電所高圧配電盤等更新工事

経年劣化対策として、特高第一変電所内に設置されている高圧配電盤、及び特別高圧監視盤等の設備更新を実施した。

4-4 動力棟熱源機器更新工事（Ⅱ期）

既設熱源機器の更新により、部分負荷運転に対応して効率的に動作するモジュールチラーを4台、水冷チラーを1台設置し、同時に省エネルギー化を実現した。

4-5 蓄積リング棟A・B・Cブロックエアコン更新工事

A・B・Cブロック準備室にあるパッケージエアコンについて、室外機108台・室内機216台の更新を行い、高効率タイプを採用して、省エネルギー化を同時に図った。

4-6 長尺ビームライン実験施設パッケージエアコン更新工事

経年劣化対策として、長尺ビームライン実験施設に設置されているパッケージエアコンの更新（室外機13台、室内機25台）を実施し、安定的な研究環境を確保するとともに、省エネルギー及びフロン漏えい対策を併せて行った。

4-7 生物系特殊実験施設外壁及び屋上防水改修工事

経年劣化対策として、生物系特殊実験施設の外壁クラック及び屋上防水の改修工事を実施し、漏水等により電子顕微鏡等の装置へ影響が及ぶことのないよう対策を行った。

4-8 研究交流施設（C・D棟）改修工事

実験ユーザー等が一時滞在する研究交流施設では、老朽化に伴い漏水等の被害が発生していた。このため、C棟（5階建・60室）及びD棟（3階建・36室）の大規模改修を行い、外壁の全面改修や防水改修、塗装改修、内装改修を実施した。これにより、建屋の機能改善や室内環境の改善を図ることが可能となり、利用者が快適に宿泊・滞在できる施設となった。

4-9 東門アスファルト舗装道路改修工事

東門からSACLAへ通じる構内道路において、アスファルト舗装の劣化（亀裂・沈下・陥没等）を改善するための改修工事を行った。また、ICカードを利用して入構可能な門扉を新たに設置し、徒歩及び自転車通勤する職員の利便性向上と適正な入構管理を実現した。

5. 環境保全への取り組み

5-1 産業廃棄物

(1) 産業廃棄物の処分実績

事業活動に伴い排出される廃棄物は、主に実験機器・OA機器等の金属くず、梱包材・フィルター等の廃プラスチック、排水処理時の汚泥である。実験廃液や施設の維持管理に利用されている鉛バッテリーなど、毒性や危険性を有する廃棄物については「特別管理産業廃棄物」として回収のうえ保管管理を行い、また、感染性はないが、外見上、医療廃棄物と見分けがつかない注射針やメスについても、同様に「特別管理産業廃棄物」として回収・保管管理を行った。これらの廃棄物は専門の業者に処分を委託した。

実験に供された動物については、一般廃棄物に該当するが、尊い命に慰霊の精神をもって対応するため、自治体への手続きを経た後に動物霊園へ埋葬した。

廃棄物の分別や管理を適正に行うためには、職員やユーザー等の十分な理解と協力が不可欠となる。このため、廃棄物の廃棄方法に関する説明会を開催するとともに、スタッフ向けホームページ等を活用し、廃棄手続きの案内や不適切な取扱い事例の安全衛生情報への掲載を行うなど、理解増進活動を行った。

産業廃棄物の処分量推移を表5、表6、表7に示す。

表5 普通産業廃棄物 処分量推移

[単位：kg]

	2012年度	2013年度	2014年度	2015年度	2016年度
汚 泥	15,227	28,546	58,845	16,015	23,505
廃 油	3,872	11,251	1,820	4,193	7,080
廃 アルカリ	341	560	412	879	570
廃 酸	287	776	365	466	191
廃プラスチック	14,439	15,225	16,900	30,131	27,346
木 く ず	6,420	8,799	6,697	7,149	5,370
金 属 く ず	67,103	87,161	69,256	206,606※	132,772
ガラスくず	2,256	1,333	903	739	1,126
が れ き 類	957	2,188	68	1,569	982

※コンクリート遮蔽壁（鉄板で覆われたもの）を処分したため、金属くずが例年より増加している。

5-2 環境分析

実験で発生した廃液（特別管理産業廃棄物を含む）や、施設の維持管理に使用される薬液の不適切な取り扱いによって環境が汚染されることのないよう、環境保全に向けた取り組みが重要となっている。

2012年の水質汚濁防止法改正に伴い、汚染の有無を把握する目的で、定期的の実験排水及び施設周辺の環境水（8カ所）並びに土壌の分析（10カ所）を実施している。これまで問題となるような分析結果は出ておらず、2016年度も汚染は確認されていない。

理研 播磨事業所 研究支援部
理研 播磨事業所 安全管理室

表6 特別管理産業廃棄物 処分量推移

[単位：kg]

	2012年度	2013年度	2014年度	2015年度	2016年度
廃 酸	863	2,440	580	276	2,488
廃 アルカリ	74	120	58	31	18
廃 油	605	1,359	471	1,051	403
汚 泥	50	1,590	267	221	198
感染性廃棄物	130	29	7	9	3
P C B 等	—	100	—	—	—

表7 一般廃棄物（実験動物） 処分量推移

[単位：kg]

	2012年度	2013年度	2014年度	2015年度	2016年度
実 験 動 物	725	594	516	636	499

1. 施設運営の概況

1-1 施設運転状況

1. はじめに

2016年度のSPring-8の加速器の運転状況については以下の通りである。なお、2016年度より統計を蓄積リング運転時間から加速器運転時間に変更した。理由は、Top-up運転が基本運転パターンであり、その運転には入射器をフル活用する必要があるため、入射器の調整も含めた加速器運転時間を施設の運転時間の目安とするためである。

2. 運転期間・運転モード

2016年度の運転期間及び各サイクルのユーザータイムの運転モード（フィリング）を図1に示す。

2-1 サイクル数

2016年度は合計7サイクルの運転を実施した。

2-2 サイクルの構成

各サイクルはユーザータイム、マシン及びビームライン立上げ調整期間（ビーム調整）、マシンスタディ・ビー

ムラインスタディで構成している。

2-3 運転停止期間

蓄積リングは、4～5月の運転停止の他に夏期点検調整期間、冬期点検調整期間があり、この期間中、加速器やビームラインに関わる点検等の作業及びユーティリティ設備の各種保守点検作業等を実施した。

また、特高第一変電所関連設備竣工から約20年がたち、老朽化が進んできていることから、冬期点検調整期間では、(II期) 工事として主変圧器等の更新工事を実施した。

2-4 マシン及びビームライン立上げ調整期間

（ビーム調整）

マシン及びビームライン立上げ調整期間は、点検調整期間中に新規に設置された機器や既設の改造等を行った機器の調整を実施するための期間で、ユーザーへの放射光の提供は行わなかった。

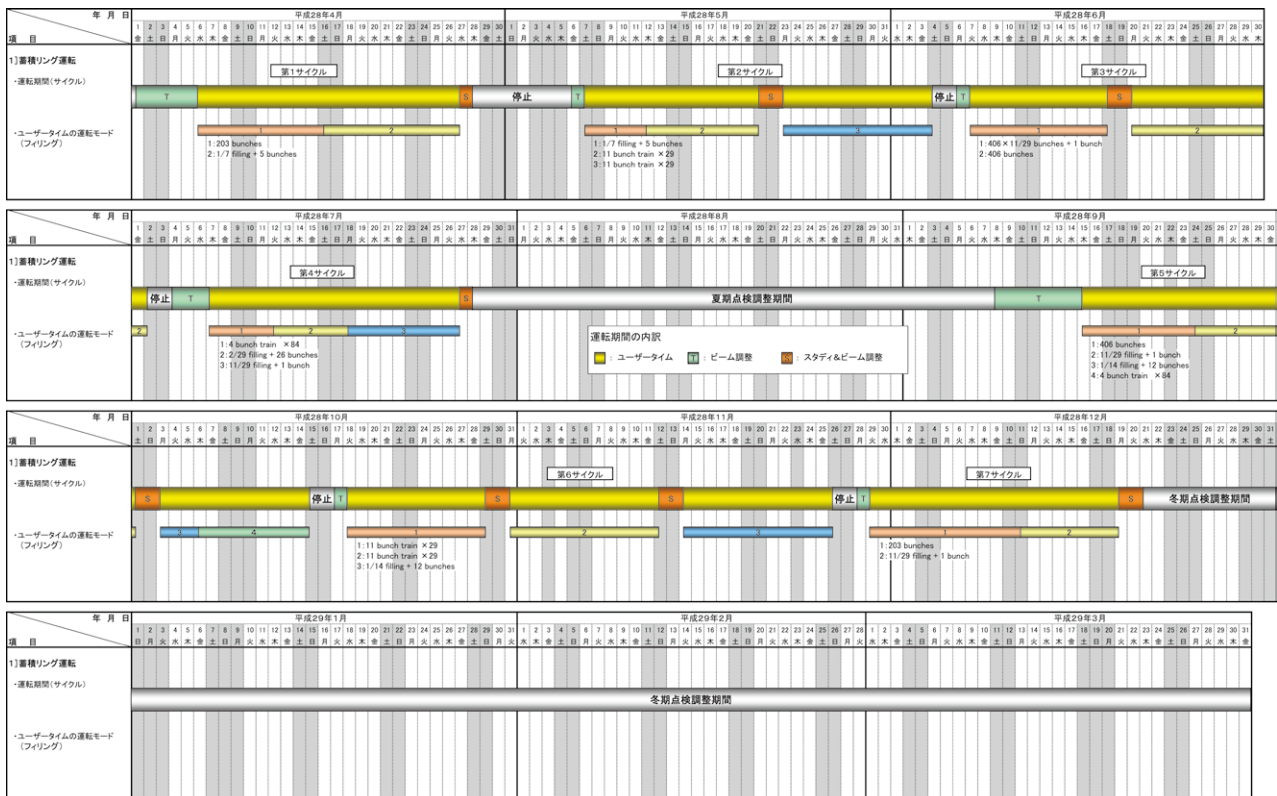


図1 2016年度 SPing-8運転実績（期間・モード）

2-5 運転条件等

ユーザータイム中の蓄積リングの運転エネルギーは 8 GeV、蓄積電流は 100 mA で実施している。トップアップ運転時のビーム入射は、電流値優先モードで行い、マルチバンチの入射間隔を 2 ～ 3 分毎、セベラルバンチの入射間隔を 20 ～ 40 秒毎のトップアップ入射で実施した。

運転時間総計（加速器）

4,951 時間 41 分

（内訳）

(1) スタディ・装置調整等	799 時間 41 分
(2) ユーザータイム	4,125 時間 28 分
(3) ダウンタイム	23 時間 06 分
(4) フィリング変更	3 時間 26 分
(5) 総運転時間に対するダウンタイムの割合	約 0.47%

3. 運転時間

2016 年度の運転実績（運転時間）を以下に示す。

理研 放射光科学研究推進室

表 1 2016 年度 SPring-8 運転実績（運転時間）

サイクル	総運転時間	利用運転時間	ダウンタイム	フィリング変更	スタディ・調整時間等	運転モード
16-1	648:49	502:25	1:05	0:30	144:49	203 bunches 1/7-filling + 5 bunches
16-2	698:31	623:00	0:35	0:25	74:31	1/7-filling + 5 bunches 11 bunch train × 29 11 bunch train × 29
16-3	625:19	548:49	3:11	0:00	73:19	406 × 11/29-bunches + 1 bunch 406 bunches
16-4	575:40	475:30	3:27	1:03	95:40	4 bunch train × 84 2/29 filling + 26 bunches 11/29-filling + 1 bunch
16-5	887:44	664:33	6:29	0:58	215:44	406 bunches 11/29-filling + 1 bunch 1/14-filling + 12 bunches 4 bunch train × 84
16-6	962:10	833:46	6:14	0:00	122:10	11 bunch train × 29 11 bunch train × 29 1/14-filling + 12 bunches
16-7	553:28	477:25	2:05	0:30	73:28	203 bunches 11/29-filling + 1 bunch
合計時間	4951:41	4125:28	23:06	3:26	799:41	

1-2 利用研究状況

1. 2016年度の利用統計

2016年度の利用期間は2016A期(2016.4～7)と2016B期(2016.9～12)である。表1に2016年度の各種統計データを示す。表中の「共用施設」には共用ビームライン26本の他に、ビームタイムの一部が共同利用に供された理研ビームライン8本および加速器診断ビームライン1本、計9本の該当分を含む。専用施設(専用ビームライン)は、2015年度と同数の19本が稼働した。

2. 供用開始から2016年度までの利用推移

1997年10月にSPring-8の供用が開始され、1年を2つの利用期(A期、B期)に区切って利用研究が実施されている。表2に第1回から第38回利用期の放射光利用期間と放射光利用時間実績を示す。利用期は運転期間に合わせて区切られており、第3回(1999A期)から第19回(2007A期)までは年度を跨いでいる。そのため、利用期としての放射光利用時間にはばらつきがあるが、年度としては平滑化されている。

表1 2016年度の統計

利用期		2016A	2016B	備考
利用期間		2016.4-2016.7	2016.9-2016.12	
利用運転時間		2,150	1,976	実績時間
共用施設	応募課題数	907	977	実施課題には非応募課題(PX-BL課題、1年課題、長期利用課題および新分野創成利用課題の2期目以降、並びにパートナーユーザー課題)が含まれる
	採択課題数	699	637	
	実施課題数	738	719	
	成果専有(一般課題)実施課題数	42	47	実施課題数の内数
	成果専有(一般課題)シフト数	128.125	161.875	1シフト=8時間
	時期指定課題数	6	10	実施課題数の内数
	時期指定課題のシフト数	17.75	31.5	1シフト=8時間
	測定代行課題数	32	48	実施課題数の内数
	測定代行課題のシフト数	14.25	22	1シフト=8時間
	延べ利用者数	5,174	4,824	
専用施設	実施課題数	301	298	
	成果専有課題数	13	13	実施課題数の内数
	成果専有課題のシフト数	26.75	26.25	1シフト=8時間
	延べ利用者数	3,130	2,985	
ユニークユーザー数		4,736		
当該年度はじめて利用したユーザー数(内数)		1,808		過去5年間施設利用来所がなかった者数

表2 共同利用期間(第1回～第38回)

利用期	放射光利用期間	放射光利用時間 実績(時間)	利用期	放射光利用期間	放射光利用時間 実績(時間)
第1回:1997B	1997年10月8日-1998年3月27日	1,286	第20回:2007B	2007年9月20日-2008年2月25日	2,140
第2回:1998A	1998年4月1日-1998年11月06日	1,702	第21回:2008A	2008年4月5日-2008年8月1日	2,231
第3回:1999A	1998年11月11日-1999年7月2日	2,585	第22回:2008B	2008年10月8日-2009年3月12日	1,879
第4回:1999B	1999年9月27日-1999年12月24日	1,371	第23回:2009A	2009年4月5日-2009年7月28日	1,927
第5回:2000A	2000年2月3日-2000年6月14日	2,051	第24回:2009B	2009年10月6日-2010年2月23日	2,087
第6回:2000B	2000年10月5日-2001年1月31日	1,522	第25回:2010A	2010年4月5日-2010年7月28日	1,977
第7回:2001A	2001年2月8日-2001年6月26日	2,313	第26回:2010B	2010年10月7日-2011年2月22日	2,094
第8回:2001B	2001年9月13日-2002年2月6日	1,867	第27回:2011A	2011年4月7日-2011年7月28日	2,131
第9回:2002A	2002年2月14日-2002年7月9日	2,093	第28回:2011B	2011年10月2日-2012年2月03日	1,927
第10回:2002B	2002年9月19日-2003年2月12日	1,867	第29回:2012A	2012年4月3日-2012年7月14日	1,972
第11回:2003A	2003年2月14日-2003年07月08日	2,246	第30回:2012B	2012年10月2日-2013年2月07日	2,184
第12回:2003B	2003年9月18日-2004年2月20日	1,844	第31回:2013A	2013年4月3日-2013年7月17日	1,837
第13回:2004A	2004年2月26日-2004年7月13日	2,095	第32回:2013B	2013年10月3日-2013年12月20日	1,571
第14回:2004B	2004年9月23日-2004年12月24日	1,971	第33回:2014A	2014年4月8日-2014年7月23日	1,768
第15回:2005A	2005年4月11日-2005年8月1日	1,880	第34回:2014B	2014年10月2日-2015年2月16日	2,290
第16回:2005B	2005年9月22日-2005年12月19日	1,818	第35回:2015A	2015年4月6日-2015年7月25日	2,053
第17回:2006A	2006年3月2日-2006年7月21日	2,202	第36回:2015B	2015年9月19日-2015年12月20日	1,981
第18回:2006B	2006年9月19日-2006年12月18日	1,587	第37回:2016A	2016年4月6日-2016年7月27日	2,150
第19回:2007A	2007年3月2日-2007年7月19日	2,448	第38回:2016B	2016年9月15日-2016年12月19日	1,976

備考

- ・第3回(1999A)利用期は年度区切りから運転点検期間区切りへの変更のため利用期間が長い(1998Bという名称の期はなし)
- ・第14回(2004B)利用期は蓄積リング標台風被害の復旧のため1,2,3月の運転なし。
- ・第32回(2013B)利用期は蓄積リング標熱源機器更新工事のため1,2,3月の運転なし。
- ・第36回(2015B)利用期は蓄積リング標変電所関連設備更新工事のため1,2,3月の運転なし。
- ・第38回(2016B)利用期は蓄積リング標変電所関連設備更新工事のため1,2,3月の運転なし。

図1に、これまでの各利用期に共用施設と専用施設で実施された利用研究課題数および延べ利用者数を、8時間を1シフトとした利用シフト数合計と共に示す。実施された利用研究課題のうち、成果専有課題として実施された課題の実施シフト数の推移を図2に示す。成果専

有課題は1999B期から実施されている。共用施設の成果専有利用は一般課題と割増料金が必要な時期指定課題(2007B期以降は測定代行が含まれる)に分けて示す。図3に、年度ごとのユニークユーザー数を、当該年度に初めてSPring-8を利用したユーザーの数と過去に利用し

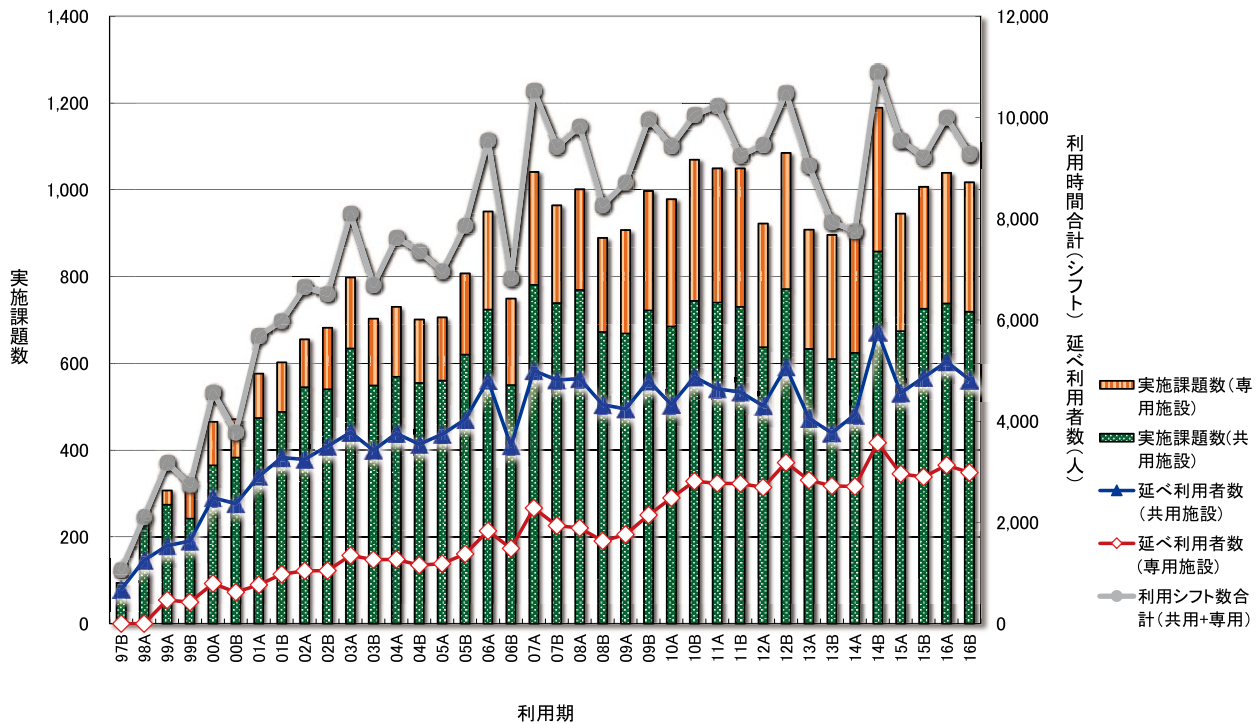


図1 共用施設および専用施設の利用実績の推移

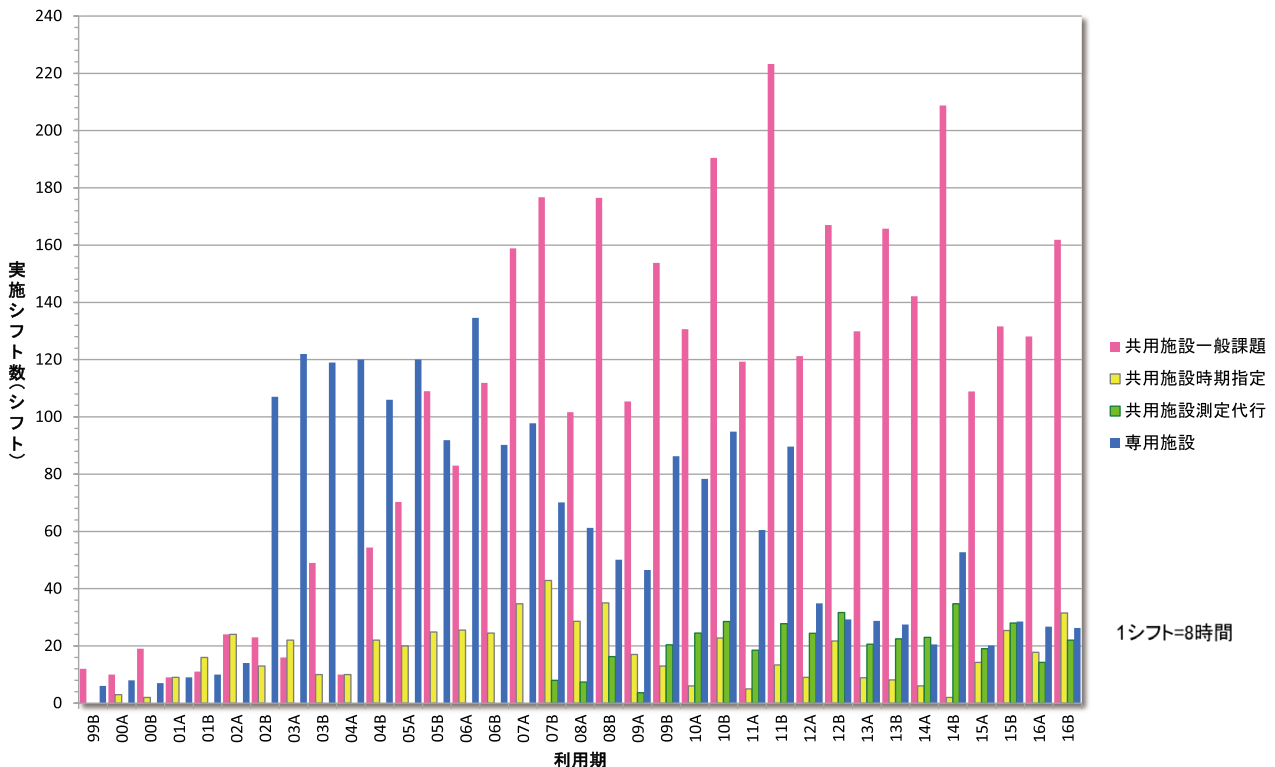


図2 成果専有課題実施シフト数の推移

たことがあるユーザー数に分けて示す。この値は、2011年度までは当該年度のSPring-8の放射線従事者登録のための安全教育受講者数であり、共用施設と専用施設の利用の区別がない正味のSPring-8ユーザー数である。2012年度以降は、SACLAの供用開始に伴い算出方法を変更し、SPring-8/SACLAそれぞれにおいて施設利用のために来所した延べユーザー数を元に正味のユーザー数を算出するとともに、過去5年間に一度も当該来所がなかったユ

ーザーを新規ユーザーと定義を改めた。

3. 利用研究課題の推移

3-1 共用施設

供用開始の1997B期から2016年度の2016B期までの各利用期の応募および採択課題数の実績を、採択率および共用施設での延べ利用シフト数（1シフト＝8時間）と共に図4に示す。採択率は70%前後で推移している。な

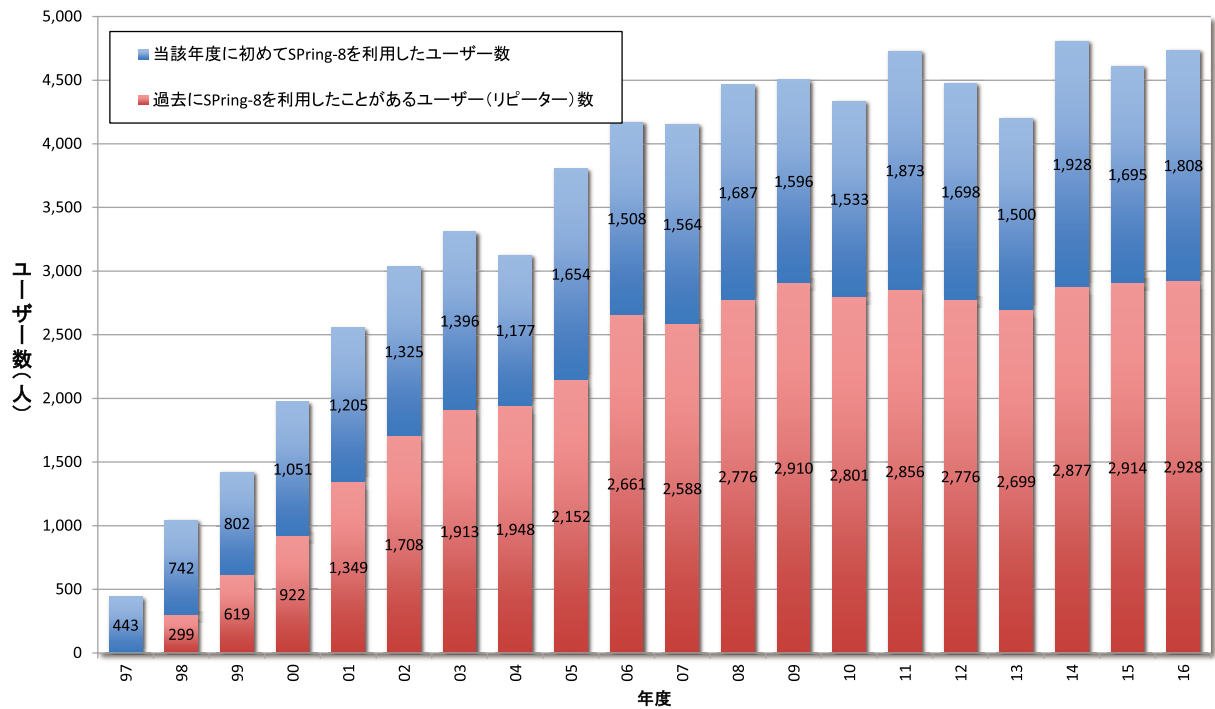


図3 年度ごとのユニークユーザー数

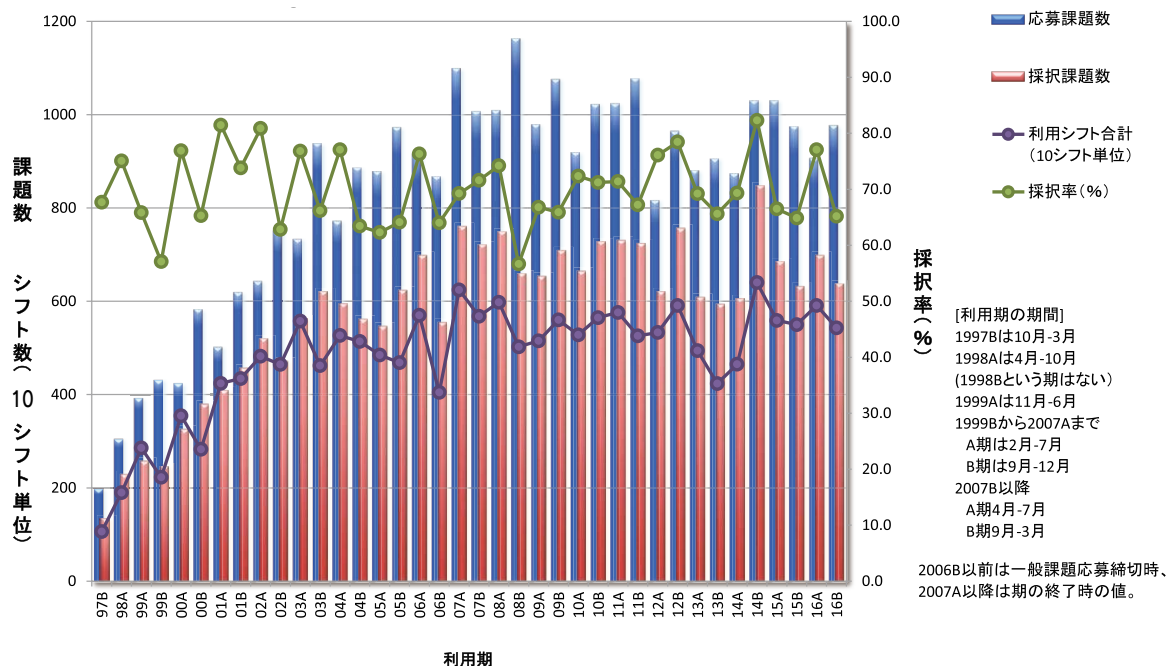


図4 SPing-8共用施設の応募・採択課題数の推移実績

お、図1に示した実施課題のうち共用施設の課題には図4の採択課題の他に、PX-BL課題、1年課題、長期利用課題、新分野創成利用課題、及びパートナーユーザー課題

が含まれる。共用施設における実施課題の実験責任者の所属機関別分類の推移を図5に示す。図6に、共用施設における研究分野別分類の推移を示す。2005A期以前は

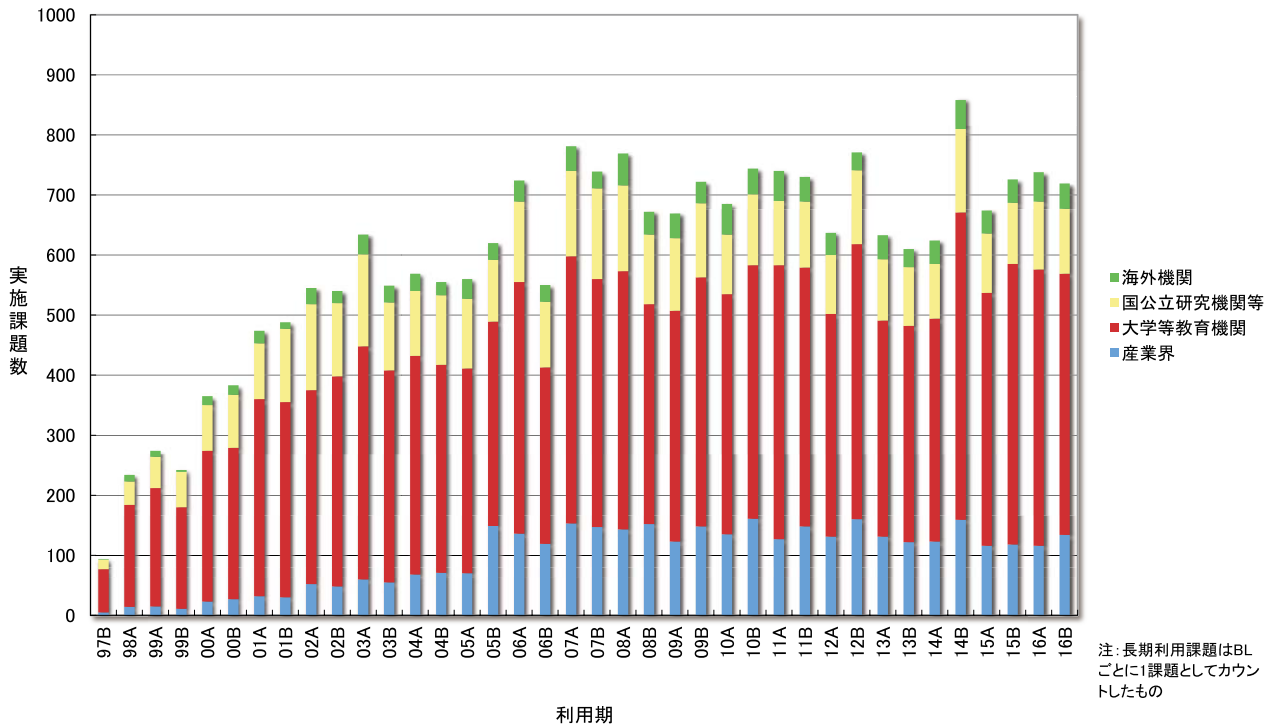


図5 所属機関別実施課題数（共用施設）の推移

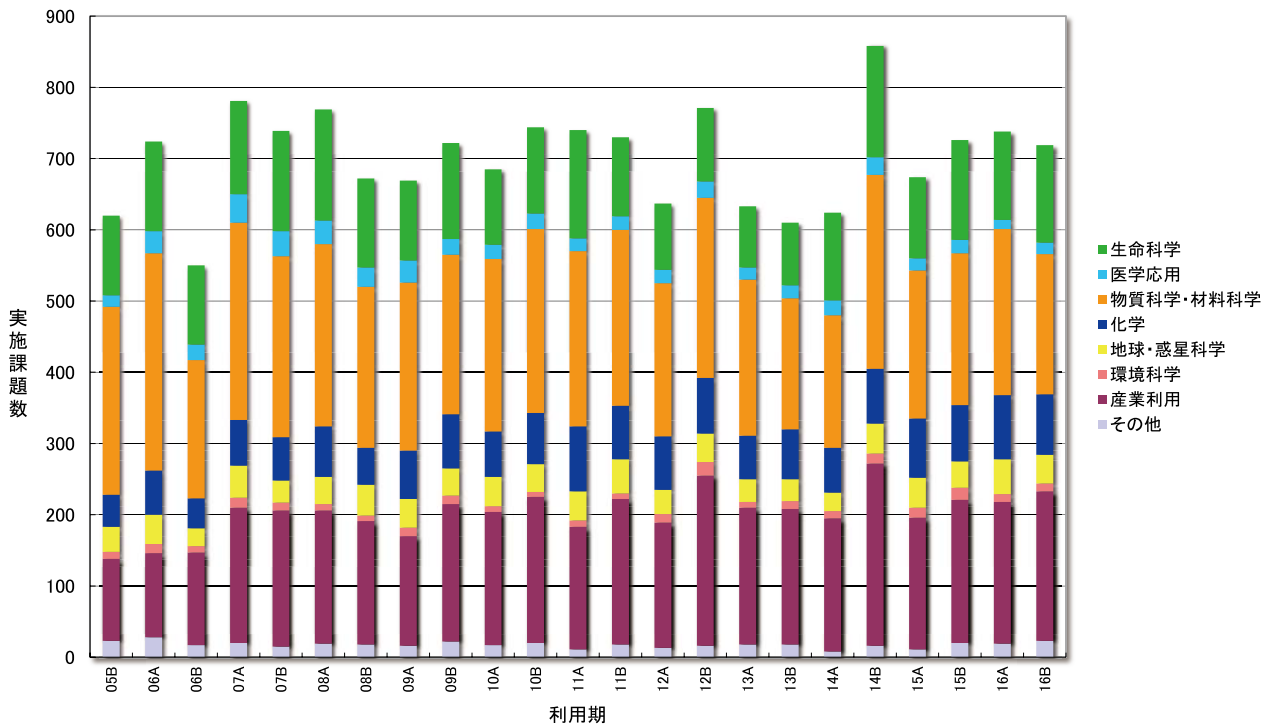


図6 研究分野別実施課題数（共用施設）の推移

このカテゴリでの統計を取っていない。課題が多い分野は物質科学・材料科学、産業利用、生命科学である。共用施設における課題種の変遷を図7に示す。これまでSPring-8の利用を促進するためのさまざまな施策が講じられてきている。

3-2 専用施設

専用施設における2006B期から2016B期までの実施課

題の実験責任者の所属機関別分類の推移を図8に、また実施課題の研究分野別分類の推移を図9に示す。

4. パートナーユーザー

パートナーユーザーとは、共用ビームラインおよび測定技術を熟知し、放射光科学・技術の学術分野の開拓が期待できる研究者であり、以下の項目のいずれも満たすユーザーを指す。

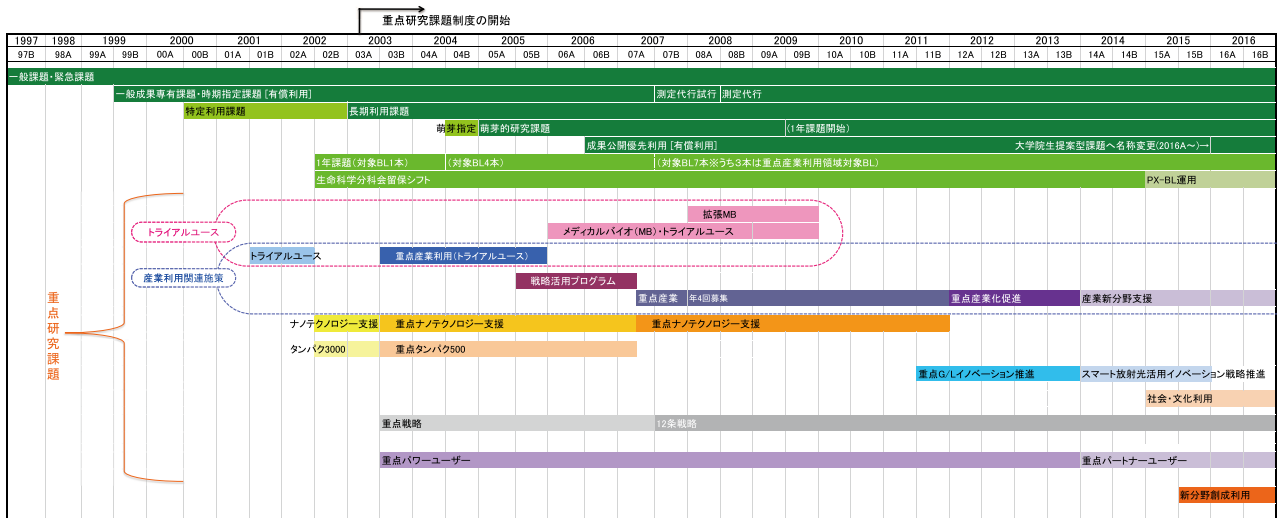


図7 共用ビームラインにおける課題種の変遷

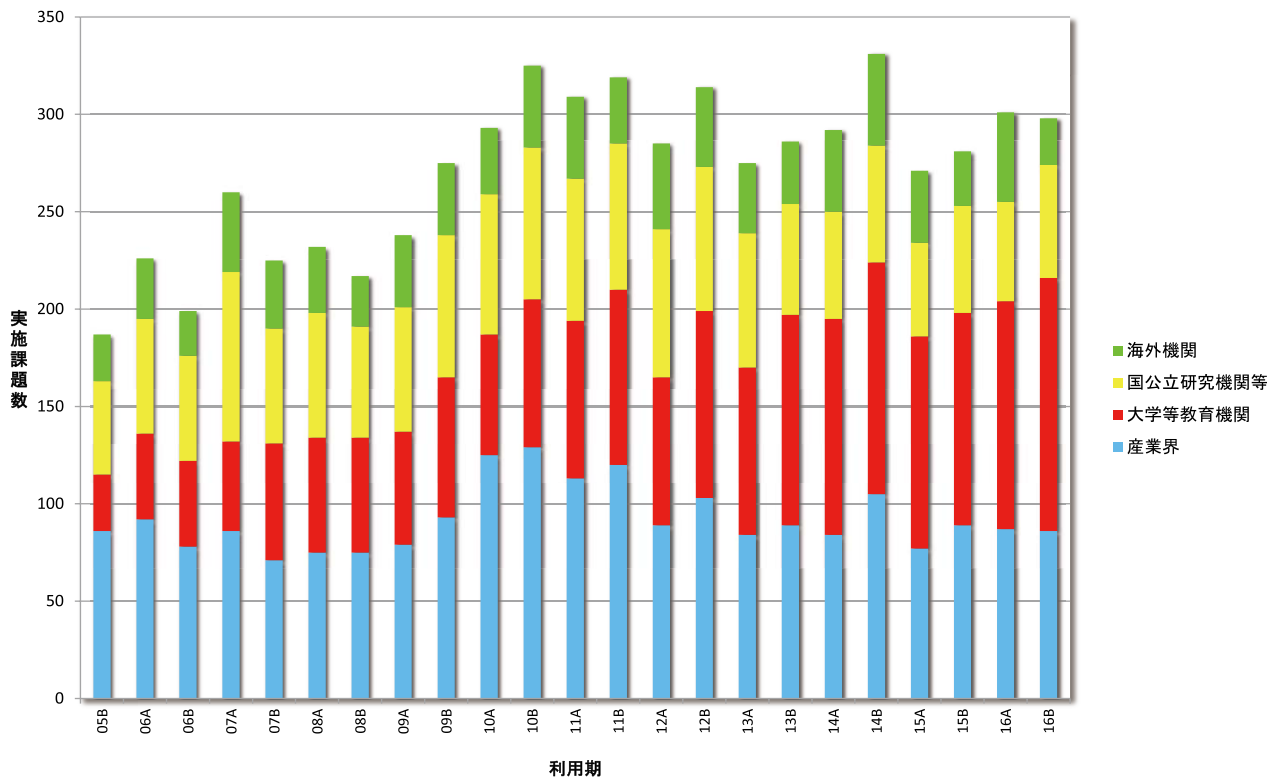


図8 所属機関別実施課題数（専用施設）の推移

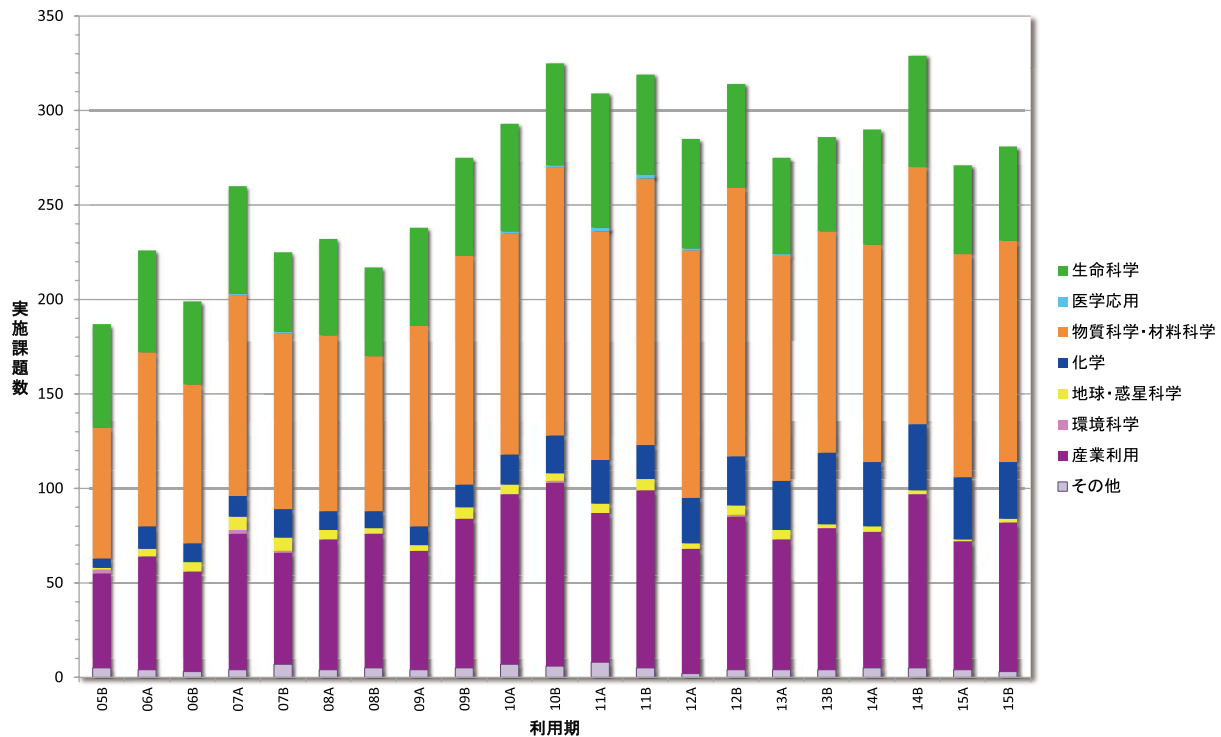


図9 研究分野別実施課題数（専用施設）の推移

表3 2015年度パートナーユーザー 一覧

	ビームライン	パートナーユーザー	内 容
1	BL02B1 (単結晶構造解析)	氏名: Bo Iversen 所属: University of Aarhus 期間: 2014-2017年度*	研究テーマ: Application of synchrotron radiation in materials crystallography 装置整備: 構造ダイナミクス分析基盤整備と先導的活用 利用研究支援: 当該装置を用いた利用実験の支援
2	BL25SU (軟X線固体分光)	氏名: 白土 優 所属: 大阪大学 期間: 2014-2017年度*	研究テーマ: スピントロニクスデバイスを基盤としたナノ計測技術の開発と物質・材料研究への展開 装置整備: 軟X線ナノビームラインの整備と先導的活用 利用研究支援: 当該装置を用いた利用実験の支援
3	BL10XU (高圧構造物性)	氏名: 廣瀬 敬 所属: 東京工業大学 期間: 2014-2017年度*	研究テーマ: 極細X線ビームを使った超高压高温下の物性測定 装置整備: 安定高温高圧実験ステーション整備と先導的活用 利用研究支援: 当該装置を用いた利用実験の支援
4	BL02B2 (粉末結晶構造解析)	氏名: 森吉 千佳子 所属: 広島大学 期間: 2015-2016年度	研究テーマ: 粉末・多粒子X線回折による高速構造計測基盤の構築 装置整備: 迅速オペランド構造計測ステーションの整備 利用研究支援: 当該装置を用いた利用実験の支援
5	BL04B1 (高温高圧)	氏名: 入舩 徹男 所属: 愛媛大学 期間: 2015-2016年度	研究テーマ: 大容量高圧装置を活用した地球および関連物質の高温高圧物性研究の推進 装置整備: 超音波測定システムおよび単色X線光学系の高度化 利用研究支援: 当該装置を用いた利用実験の支援
6	BL20XU (医学・イメージング)	氏名: 戸田 裕之 所属: 九州大学 期間: 2015-2016年度	研究テーマ: 構造材料の4Dイメージング技術およびその周辺解析技術の高度化 装置整備: マイクロCTの多元イメージング技術の高度化 利用研究支援: 当該装置を用いた利用実験の支援
7	BL43IR (赤外物性)	氏名: 佐々木 孝彦 所属: 東北大学 期間: 2016-2017年度	研究テーマ: 強相関電子系分子性物質の赤外顕微イメージング分光による電荷ダイナミクスの研究 装置整備: 赤外ビームラインの整備と先導的活用 利用研究支援: 当該装置を用いた利用実験の支援

*: 指定期間（当初2年間）を延長

- 1) ビームライン実験設備の開発及び高度化への協力
- 2) 上記高度化等に関連した、先導的な放射光利用の実施及び当該利用分野の拡大・推進
- 3) 上記高度化等に関連した、利用者支援

※パートナーユーザーの指定期間は原則2年間

(審査委員会が必要と認めた場合には最長5年間まで延長可)

パートナーユーザー制度は2014年度より従来のパワー

ユーザー制度の名称および一部運用を変更した形で導入され、パートナーユーザーの協力等を求める募集対象ビームラインを示したうえで応募のあったユーザーについて委員会で審査しパートナーユーザーに指定する。2016年度のパートナーユーザーを表3に示す。

理研 放射光科学研究推進室

2. SPring-8の現状と高度化

2-1 加速器

1. 運転の概況

図1に過去5ヵ年度の運転時間の推移を示す。2016年度のSPring-8 加速器総運転時間は4951.7時間であった。この時間には、加速器立ち上げ調整時の入射器系加速器の先行運転なども含まれている。2016年度の蓄積リングの運転時間は4941.1時間、この内4125.5時間（蓄積リング運転時間の83.4%）がユーザータイムに充てられた。2016年度の計画ユーザータイム4152 時間に対して利用率としては99.4% となり、ほぼ2015年度と同じ高い水準であった。

トラブルによりユーザータイムを停止しなければならなかった時間（ダウンタイム）は計画ユーザータイムの0.56%に当たる23.1時間であり、17回のビームアポートあるいは計画外のビーム廃棄が発生した。また、ユーザータイム中のバンチ運転（フィリング）モード変更のため、3.4時間（7回）を再入射に費やした。ダウンタイムの内、復旧までの時間が1時間を超えたトラブルが7回（ビームライン：3回、電磁石：2回、地震：1回、瞬時電圧低下：1回）あり、そのうちの主なものとして、9月18日の瞬時電圧低下（4時間17分）、7月17日の偏向電磁石冷却水ホースからの漏水（3時間27分）、10月

21日の鳥取県中部の地震（2時間53分）、11月6日のBL31LEPトラブル（2時間26分）があった。

SPring-8では、積分輝度と光源強度の安定維持のため利用実験中も随時電子ビームを入射するトップアップ運転を行っている。入射器のトラブルなどによるトップアップ運転の中断は極めて少なく、ユーザータイム中のトップアップ入射継続率（トップアップ目標電流値99.5 mAに対し ± 0.1 mAの範囲にある時間割合）は99.6%に達しており、ユーザー運転時間の計画達成率同様に極めて高い安定度にてトップアップ運転が行われた。

バンチ運転モードでは、3種のセベラルバンチモード（等電流バンチ等間隔フィリングモード）と5種のハイブリッドバンチモード（高電流孤立バンチと低電流バンチトレインからなるフィリングモード）が、利用運転のため用意されている。2016年度の利用運転時間に占める割合は、セベラルバンチモードが58.4%（2015年度は56.8%）、ハイブリッドバンチモードが41.6%（2015年度は43.2%）であった。セベラルバンチモードでは、203個の等電流のバンチを等間隔に配置するモード（Aモード）での運転が、第1、第3、第5並びに第7サイクルで予定されていたが、ビーム不安定性抑制装置（BBFシステム）の不調によりビームが不安定となる問題が発生したため、第3サイクル及び第5サイクルでは、Aモードに替えて、406個の等電流のバンチを等間隔に配置する代替モードにて運転を行った。BBFシステムの再調整を実施し、第7サイクルでは本来のAモードで運転を行った。また、ハイブリッドバンチモードでは、全周の11/29に配置された低電流バンチトレインの対向に1個の5 mA孤立バンチを配置するモード（Hモード）において、バンチトレイン部を従来の連続バンチから6バンチ間隔のバンチ列に替えた運転が第3サイクルに実施されたが、ビーム寿命の減少等のため予定していた節電モードのRF加速電圧14.4 MVではトップアップ運転を維持することが困難となり、RF加速電圧を16 MVに上げる対応を行った。第4サイクル以降のHモードは、バンチトレイン部を従来の連続バンチに戻して運転を行った。

SPring-8を光源として安定に運転し高い利用率を保つ上で、BBFシステムの信頼性向上と、利用ニーズを満たすバンチ運転モードとビーム寿命並びに入射効率に関係する運転条件との見極めが、今後の運転における最優先課題として浮かび上がってきたと考えられる。

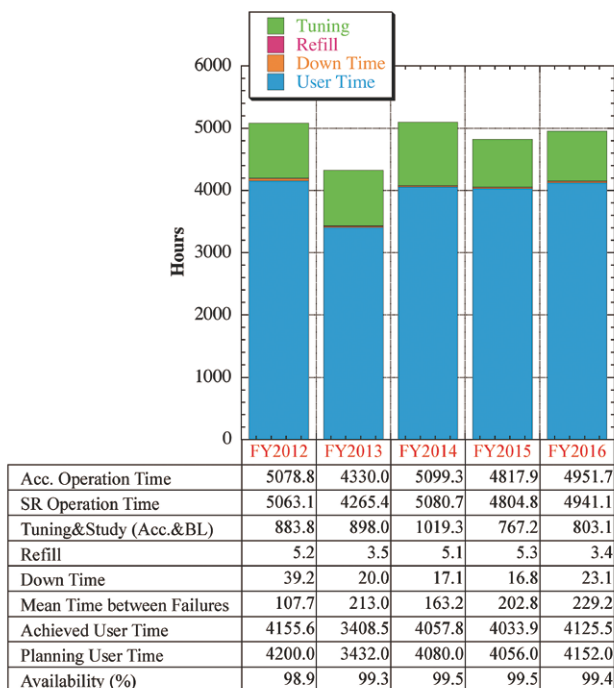


図1 過去5ヵ年度の運転時間の推移

以下に、各加速器（線型加速器、ブースター・シンクロトロン、蓄積リング）の概況を示す。

2. 線型加速器の概況

2004年9月からSPRING-8蓄積リングとNewSUBARUの両方同時のTop-up運転が始まり、現在も継続されている。NewSUBARUでは1 GeVでのトップアップ運転のほか1日1または2回の入射を行い、1.5 GeVまで加速し利用に供している。1.5 GeV運転は週に1、2回程度である。近年のTop-up運転では短寿命のフィリングパターンが増え、入射の頻度が増加している。その対応としてSy/NSの2 Hz高速切替を2013年度から実施している。これら機器の高信頼性を確保するため、通常のメンテナンスに加え、機器の老朽化対策を順次行っている。

2016年度はプロファイルモニタ用カメラシステムの一部更新、冷却水流量の変動をモニターする流量計の増設及びデータベースへの取り込み等を行った。

2016年度における線型加速器総運転時間は4951.7時間であった。図2にトップアップ運転を開始した2005年からの運転統計を示す。2008年に電子銃バイアス回路のトラブルによる突出してダウンタイムの長いサイクルがあったが、機器の改良を繰り返した結果、漸次フォールトが減少しているのが分かる。2012年度までは装置の改良の結果、順調に減少していったが、近年は中断増加の傾向にある。これは中断原因が多岐にわたっており、各種部品の老朽化によるものであり、事前診断と共に老朽化パーツの漸次交換を進めていく。また冷却水関係の流量変動による中断もあり、施設管理と共に対策を行って

いく必要がある。

3. ブースター・シンクロトロンの概況

ブースター・シンクロトロンでは主電源の主要構成品であるサイリスタが供給停止となっているため、後継の代替品への転換を実施している。四極電磁石電源に関しては2015年度に収束・発散とも交換作業が終了している。偏向電磁石電源に関しては2016年度にサイリスタの予備部品の調達を行い、2017年度以降に交換を実施する予定である。

キッカー電源の高圧ケーブル放電対策として、コネクタ部の分解清掃及びケーブルを切断して端末の再処理を行っている。さらに、経年劣化により出力波形が鈍りジッターが大きくなったキッカー電源のサイラトロン交換を実施した。

2015年末よりクライストロンのコレクター損失大というインターロックの発報が多発していたが、インターロック信号系統の不要な信号による発報を廃止したことでこの事象の発生をなくした。またクライストロン用ドライバアンプの冷却ファン及び供給電源の故障が続発しており、該当機器を交換するとともに予備品の準備を行った。

蓄積リングへの入射ビーム電流を監視しているSSBT系ビーム電荷モニターに関して、電荷積算計への光伝送用トランスミッター/レシーバーの経年劣化及び100 V系の受電電圧変動によるモニター値の変動が判明したため、予備品への交換、AVRを介した電源供給を行うことにより解消している。

4. 蓄積リングの概況

近年、99.5%前後の利用率を保つ中、残り0.5%のダウンタイムを占める故障の1つとして、蓄積リングのハイパワー高周波（RF）系機器の1つであるサーキュレータの放電インターロックがある。この放電インターロックによる蓄積リングの停止は、過去11年間に40余回（5台のサーキュレータの合計）起きており、平均すると1台あたり1年に1回程度、本事象が起きていることになる。これについて調査を行ってきた結果、放電インターロックが作動したケースの中には、実際の放電ではなく放電センサーの誤動作によるものがあることが分かった。2017年度以降、アークセンサーの誤動作を減少させる方策として、1台のサーキュレータに複数台のアークセンサーを設置し、これらが同時に作動した場合のみクライストロンの出力を停止させるような仕組みについて、調査・検討を行っている。また、経年劣化が問題となっていた蓄積リング用高周波電源に関しては、2014年度にA～Dの4ステーション分の新規電源を製作、2015年度に

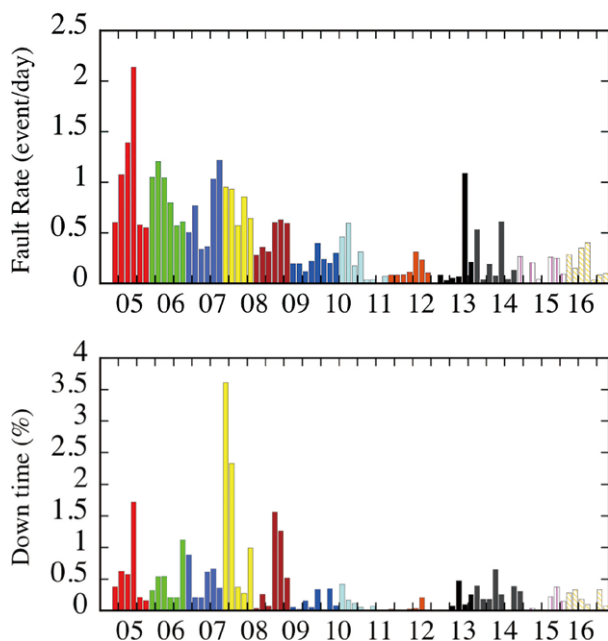


図2 2005-2016年度の線型加速器インターロックフォールトの頻度（上）とダウンタイム（下）

C、Dステーションについて更新し、2016年度は残りのA、Bステーションの更新を行った。これにより、蓄積リング用高周波電源の更新が全て完了した。

磁石系では、偏向電磁石の冷却水ホースからの漏水により、3時間27分のダウンタイムが発生した。当該箇所についてはホース交換により復旧させ、放射線からホースの劣化を守るための遮蔽強化を行った。更に、冷却水ホースの調査を蓄積リング全周にわたって行い、劣化が見られる、もしくは疑われるホースについては交換する処置を施した。また、ステアリング電磁石電源の故障がダウンタイムを引き起こすケースが今年度も発生しているが、これら多数ある電磁石電源の確率的な故障については、引き続きメンテナンスによる未然防止を極力行っていく。蓄積リング入射部における磁石としては、DCセプタム電磁石（Sep5、Sep7）の交換、パルスセプタム電磁石電源の出力異常調査等も行っており、ダウンタイムにはならないがトップアップを中断させる事象についても適宜対応を行っている。将来、SACLAから蓄積リングへのビーム入射も計画されており、蓄積リング入射部におけるパルス磁石の維持管理、高度化も重点項目の1つとして継続的に行っていく。

その他の装置としては、1. 運転の概況で述べた通り、ビーム不安定性抑制装置（BBFシステム）の不調によりビームが不安定となる問題が何度か発生しており、BBFシステムの信頼性向上と、利用ニーズを満たすバンチ運転モードとビーム寿命並びに入射効率に関する運転条件との見極めを今後行っていく。また、本年度は、ビームラインの安全インターロック系誤動作によってダウンタイムが生じたケースが複数回あった。老朽化対策等、これらについても対処していく。

JASRI 加速器部門

高野 史郎、鈴木 伸介

青木 毅、渡部 貴宏、後藤 俊治

2-2 ビームライン

1. 概要

2016年度の主な光源および光学系の更新として、ImPACTのタフポリマー研究関連で加速器診断ビームラインBL05SSの改造、NEDO RISING IIプロジェクト関連で、理研ビームライン BL32B2の改造、さらに兵庫県ビームラインBL24XUにおいて遮蔽ハッチ（実験ハッチ）の改造が行われた。

BL05SSでは、まず、タフポリマー研究のためのX線小角散乱実験等を可能とするために縦偏向、横偏向の2台のミラーを光学ハッチ内の二結晶分光器の下流に設置したほか、ミラーによる反射ビームを通すために実験ハッチへの延伸ダクトの改造等が実施され、2016年10月から利用に供された。さらに、挿入光源に関し、これまでのウィグラー（ $\lambda_u = 76$ mm, $N = 51$ ）から真空封止アンジュレータ（ $\lambda_u = 32$ mm, $N = 93$ ）への変更が行われた。2017年4月から更新された挿入光源を用いた利用が開始される。

BL32B2では、革新型電池研究におけるハイスループット電池材料評価を目指し、XAFSおよびX線回折ステーションの増設を目的として、既存の実験ハッチ1から下流12 mに実験ハッチ2を増設した。この他、二結晶分光器の安定化改造、タンデムミラーへの更新、実験ハッチ1からの延伸ダクトの設置などが行われ、2017年3月末までに改造が完了した。2017年4月から試験調整を経て利用実験が開始される。

また、兵庫県ビームラインBL24XUでは、ステーション機器の増設に伴い、設置エリア拡大を目的とした実験ハッチの延伸改造が行われた。

既設ビームラインの挿入光源、フロントエンド、光学系および輸送チャンネルのそれぞれの部分において、以下に示すようなビームライン共通部に関する維持管理、高度化開発が継続的に実施された。維持管理、老朽化対策に関しては、光源・光学系の各部に起因する運転のダウンタイムの低減をあらためて目標に掲げ推進を図っている。高度化においても多様なニーズに応え、また、最新の光源・光学系技術を提供すべく高度化を推進している。

2. 挿入光源

2-1 維持管理

運転開始から10年以上が経過した挿入光源について、老朽化に伴う各種機器の故障や不具合が発生したため、これらの交換作業を実施した。

(1) エンコーダ

磁石ギャップ測定を行うためのロータリーエンコーダについて、放射線損傷によると思われる機器故障が数か所発生し、互換機への交換を行った。

(2) 磁石冷却水系

真空封止型アンジュレータ用永久磁石を冷却する冷却システムについて、ポンプ交換やカプラ交換などの作業を行った。

(3) ステアリング磁石電源

挿入光源上下流に設置されている軌道変動補正用ステアリング電磁石の電源について、冷却ファンの故障に伴う機器停止が発生したため、当該ファンの交換作業を行った。

(4) ステッピングモーター

既に多くのメーカーで生産が中止されている、高トルク5相ステッピングモーターを使用している挿入光源について、今後も安定な運転を可能にするため、2相で同等の性能を有するステッピングモーターへの交換を行った。

2-2 高度化

磁場吸引力を相殺することにより、真空封止型アンジュレータの駆動架台を軽量・コンパクト化するための研究開発を行っている。2016年度は、吸引力を相殺するための反発磁石を取り付けたアンジュレータ磁石列を新規に開発した架台に取り付け、アンジュレータとしての磁場性能評価を行った。この結果、主磁石列と反発磁石列の相対的な位相偏差に依存する剪断力が生じることがわかった。位相偏差を補正した状態で磁場性能の計測を行った結果、アンジュレータの性能指標である位相誤差を3度以内に抑制可能であることが確認された。

3. フロントエンド

3-1 改造・保守作業

(1) 劣化ケーブルの交換

2015年度より進めている建設初期ビームラインの経年劣化対策として、2016年度はBL09XU、BL39XU、BL41XUの収納部内ケーブルの交換を行った。その中で、特にベリリウム製前置スリット下流周りのケーブル損傷が顕著であったため、ケーブル交換後に鉛遮蔽板を設置した。

(2) 高熱負荷機器損傷調査

高熱負荷機器の経年劣化状況確認のためBL09XU/アブソーバ受光部(Glidcop製、約20年間使用)を取り外し、最新仕様の一体型マスク・アブソーバに置き換えた。放射光照射による材質変化の有無をミクロ観察、硬さ分布、転位密度、格子歪み等から調査した結果、受光パワーが最も高い部位と極めて弱い側端部の間で顕著な差異は認められなかった。

(3) BL43LXUにおける光位置モニターの補正係数測定

BL43LXUの定点観測Gap値が8.3 mmに変更されたことに伴い、各3台のセグメントについてXBPM補正係数を再測定した。

3-2 高度化

(1) フロントエンド出射ビーム用プロファイルモニターの開発

CVDダイヤモンド薄膜のフォトルミネセンスを利用したフロントエンド出射ビーム用プロファイルモニターの開発を進めている。2016年度は垂直方向の強度プロファイルを脱フラット化するためのフィルター材(ジルコニウム)の過渡熱解析を実施するとともに、パルスモータ駆動式フィルターやLabVIEWを用いた画像収集システムを含む装置一式をBL13XUに整備した。なお本成果について誌上発表を行った「Review of Scientific Instruments. 87, 083111 (2016)」。

(2) 高熱負荷機器用銅材料の内部残留歪み評価

2016年度は約300℃で1.1%から4%の圧縮歪みが付与されたGlidcopについて回折プロファイルの測定を行い、転位密度の導出を行った。フーリエ解析法による解析の結果、転位密度は $5.7 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ から $8.0 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ となり、ひずみの増加に対して転位密度の増加は緩やかであることが分かった。

(3) パルス・モード計測型光位置モニターの開発

放射光ビームの光軸変動をパルス毎に計測することを

目指した光位置モニターの開発を進めている。2016年度は、総合動作試験を実施するために、従来型XBPMの機能もあわせ持つ実証機を設計・製作し、BL02B1フロントエンドに設置した。

4. 光学系・輸送系

4-1 標準型X線二結晶分光器の安定運用のための改良と老朽化対策

アンジュレータビームライン用分光器の振動対策として、冗長な第一結晶ティルトステージの排除と、第二結晶ティルトステージの高剛性化を進めた。2つの従来型ティルトステージを連結して高剛性試験を行い効果が確認されたため、ガイドレールを大型化した上で、間隔を拡大した新版を製作した。また第二結晶は熱負荷が小さいので、液体窒素の流量を絞ることで第二結晶の振動の抑制が期待される。具体的には、分光器の真空槽内で配管を1/2インチと1/4インチのチューブに分岐し、1/2インチを第一結晶の冷却に、1/4インチを第二結晶の冷却に使用した。低振動配管の内部構造を抜本的に見直し、1/4インチ配管における低振動性と低圧力損失を1/2配管と同様に両立可能なフレキシブルチューブの開発に成功した。これらの改造をオフラインで試験し良好な結果を確認した上で、2017年3月に4ビームライン(BL19LXU、BL20XU、BL29XU、BL41XU)に導入した。このうち、BL20XUの分光器は機構部品の老朽化が進んだ上、一部部品の調達に困難があったため分光器本体を更新し、老朽化対策と安定化対策を合わせて行った(図1)。

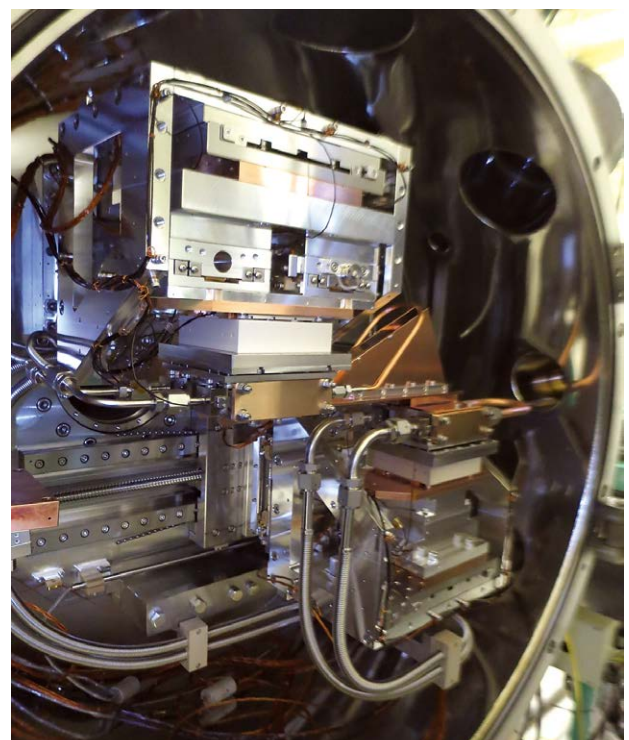


図1 新規製作のBL20XU分光器

従来、分光結晶の液体窒素冷却ではインジウム箔が熱伝達材として使用されていた。レーザー照射試験装置でのオフラインテストと、BL20XUでの試験運用にてカーボンシートの優位性が認められ、先の4ビームラインに加え、BL35XU、BL39XUでも熱伝達材をインジウムからグラファイトシートに変更した。

BL39XUにおいて、放射光照射開始時の大きなドリフトが観測された。これは第一結晶からの散乱線により、第二結晶ホルダの一部の部品が熱膨張するためと推定された。結晶ホルダに散乱線シールドを取り付けた結果、ドリフトは大幅に低減した。結晶交換に合わせて順次シールドを導入している。

偏向電磁石ビームラインBL32B2の分光器にエラストマーチューブによる配管の平滑化とアキュムレータによる脈動吸収を行い、振動を低減させた。

液体窒素循環装置の定期保守と、分光器3台 (BL10XU、BL40B2、BL46XU) の動作確認および定期保守（グリスアップ）を行った。

4-2 ミラー光学系の高性能化

(1) KBミラー集光光学系の高密度化と表面汚染対策改造

BL39XUでは、2010年度より大気圧のHe置換雰囲気下で使用される100 nm集光KBミラー光学系が利用されてきたが、ミラー表面汚染の対策や集光光子密度の増大への要請が高まった。そこで2015年度より100 nm集光あたり従来比20倍の集光光子密度向上を目的とした光学系の改良を実施した。本改良では、KBミラーの作動距離を100 mmと従来と同じ長さに保ちつつ、垂直方向集光ミラーと水平方向集光ミラーの配置を変えることで、前者の焦点距離を従来よりも短く配置した。その結果、仮想光源を使用せず発光点を直接集光し、100 nmサイズの高フラックスビームが得られる。さらに、ミラーの姿勢調整を高真空環境下で行える装置とすることで表面へのコンタミ付着の防止を図った。2015年度末までに構築した高真空対応KBミラー集光調整機構(図2)を利用して、2016A期開始時に光学系の立ち上げ調整、および、集光ビームの評価を実施した。結果、集光ビームサイズ：垂直方向140～115 nm (FWHM)×水平方向93 nm (FWHM)、集光光子数： 2.5×10^{11} photon/sを実測し、計画通り従来と比較して集光光子密度の20倍向上に成功した。垂直方向のビームサイズは現在のところ二結晶分光器の振動に制約されているため、上述の高安定化対策を計画している。また、2016A期よりユーザー提供を開始し、高真空環境下 (10^{-6} Pa台前半) のミラーチャンバー圧力にて運用し、コンタミ付着が防止されていることを確認した。

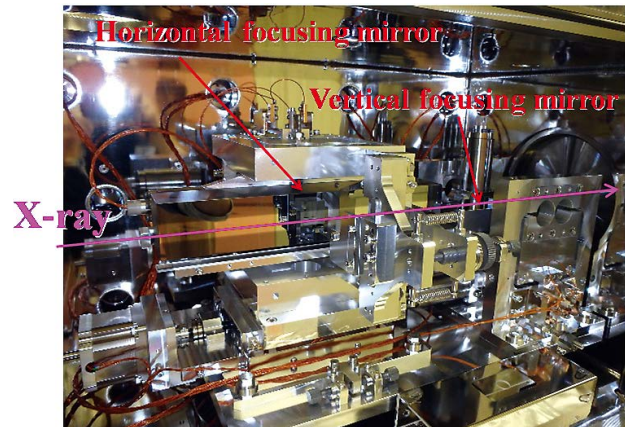


図2 BL39XU超高真空対応KBミラー集光調整装置

(2) 軟X線ビームライン用の高効率サブミクロン集光ミラーの開発

軟X線ビームラインで使用されている高分解能回折格子分光器は出射スリット後の縦方向の発散角が大きく、後置集光ミラー位置におけるビームサイズは10 mm (縦) × 数 mm (横) に達する。十分な開口で高効率かつ大きな縮小倍率で集光する光学系として、部分Wolterミラーの設計検討を行った。ミラー面は各焦点を共有する軸対称の部分回転楕円面と部分回転双曲面で構成される。Ray traceによるシミュレーションなどから、この光学系はアライメントエラーに寛容でコマ収差が小さく、ミラー調整軸を半減できることが確認された。加工・計測技術の現状と開発項目を精査した上で、使用する実験装置を念頭に、ミラーの表面形状を各種検討した。一枚の基板上に部分回転楕円と部分回転双曲面を作り込むことが可能な光学パラメータの最適化を行った。2017年度には、このパラメータに基づくミラーの加工と計測技術の高度化に取り組みながらミラーを試作し、放射光を用いた評価実験を行う計画である。

4-3 光学素子評価と高度化

(1) 大きな入射角分布を有するミラー開発のための形状計測装置の開発

市販の可視光干渉計では測定が困難な、小さな曲率半径や大きな入射角分布を有する非球面ミラーを開発することを目標として、X線ミラー用の光学プローブ走査型の表面形状計測装置の開発を行った。集光ビーム強度の増大や、集光ビームサイズの微小化を図るためには、5 mrad以上の大きな入射角分布を持ち、数 mなどの小さな曲率半径の表面をもつ大開口X線ミラーを1 nm精度で評価することが求められる。本計測装置の特徴として、 ± 100 mrad以上の傾斜した面を測定可能である色収差変位センサを零位法で使用する。2015年度に構築した表面形状計測装置を用いて、2016年度は実際の楕円

筒面形状X線ミラーを作製するにあたり、ミラー送りステージの運動誤差や、変位センサの計測回数と計測再現性、平面ミラーを利用したフィゾー干渉計との比較計測・システムエラーの評価を実施した。開発ターゲットとした ± 5 mradの入射角分布をもつ楕円筒面形状X線ミラーを用いて置き直し計測再現性1.3 nm (RMS)を達成し、X線ミラー開発に利用した。

(2) 高精度ミラーコーティング技術の開発

サイト内に整備したコーティング装置を用いてビームラインで使用されるミラーへのコーティングを行っている。2016年度は、600 mm長の集光ミラーやBL27SUの回折格子についてコーティングを行った。また、高精度光学素子コーティング技術の開発として、コンパクト、高スループットな集光光学系が実現可能な多層膜集光ミラーの開発を進めている。このミラーに使用される面内で膜厚傾斜を有する多層膜の試験成膜と評価を行った。

コーティング前の基板表面の有機物除去を目的とした、エキシマランプ光源による洗浄装置の立上と試験を行った。有機物除去の試験として、炭素を50 nmコーティングしたSiウエハにエキシマランプを照射し、コーティングした炭素が除去可能なことを確認した。また、放射光分光結晶として長時間使用されたSi結晶の表面に付着した汚染を除去可能なことを確認した。

4-4 輸送系機器

(1) 標準排気ユニットの粗排気ポンプ更新に向けた評価

X線ビームラインの排気系に組み込まれている粗排気ポンプの老朽化対策として、2015年度に現行機種のほか新規2機種をオフラインにて比較検討した。新機種ではノイズレベルや到達真空度は変わらず、騒音レベルを10%以上低減でき、保守周期は3～5倍程度長くなると見込まれる。2016B期より、7本のビームラインの光学ハッチに試験的に導入した。新たなポンプは2機種ともインバーター制御のため、電気ノイズ、放射線耐性を考慮し、従来型ポンプをバックアップ機として配置し、万一のトラブル時に速やかに回復できる体制を整備した上で試験を開始した。2016年度内において、利用実験に支障なく運転が継続されている。引き続き、電氣的ノイズ、振動・騒音、放射線耐性及び発塵状況について評価を行う。

(2) 標準排気ユニットの主排気ポンプのイオンポンプ化に向けた評価

X線ビームラインの排気系はターボ分子ポンプと粗排気ポンプで構成されている。これらは、大気開放後の立上げには必須であり、光学系・輸送系機器の真空への要請を寛容とする。しかし、いずれも回転型の排出ポンプ

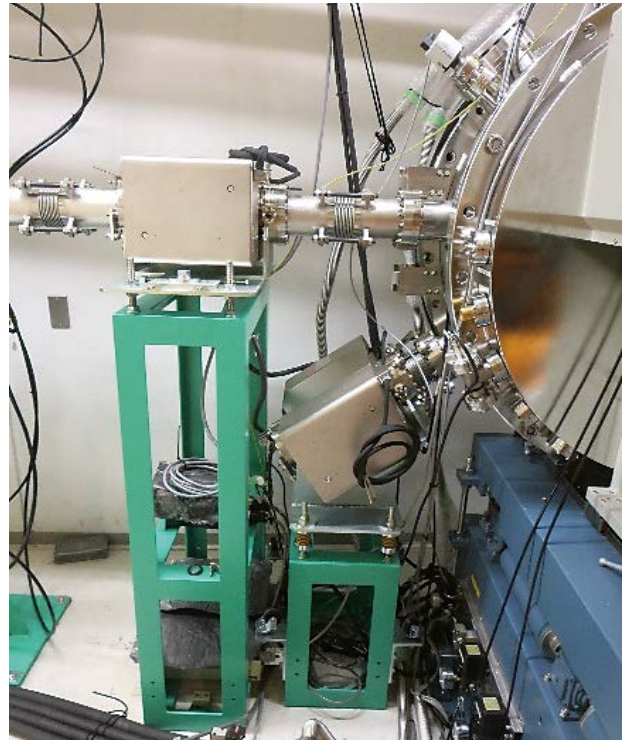


図3 二結晶分光器の主排気ポンプとして試験導入した2台のイオンポンプ

であるため、光学ハッチ内の振動源、騒音源、発熱源となり、また粗排気ポンプについては機種・運転時間に応じて1～3年程度で保守が必須である。そこで、高真空状態が維持されることを前提に主排気ポンプとして溜め込み型となるイオンポンプの採用を検討した。粗排気後に排出型ポンプを停止できれば、これら回転ポンプの保守コスト低減、低振動化、省エネ化、温度安定化につながる。過去の真空度の履歴をいくつかのビームライン・セクションに対して調査・検討し、イオンポンプ化の試験導入を開始した。既設機器をできる限り活用することを念頭に貫通型の溜め込み型のイオンポンプ(300L/s)を配置した(図3)。2017年度に試験運転を開始する予定である。

5. 遮蔽

5-1 ハッチハードウェアメンテナンス

(1) 以下のビームラインハッチに関して、点検、不具合対策、部品交換などの保守を行った。

BL01B1、BL05SS、BL12B2、BL12B2、BL14B2、BL22XU、BL26B1、BL28B2、BL29XU、BL38B1、BL39XU、BL40B2、BL41XU、BL43XU、BL47XU

(2) 以下のビームラインに関して、改造申請への対応等を行った。

BL19LXU、BL24XU、BL32B2、BL36XU、BL41XU

(3) 以下のビームラインに関して、FEスリット開口制限への検討、助言・指導、実施手順手配策定を行った。
BL09XU, BL13XU

(4) 共用ビームラインに対し、自動扉リニアガイドおよび下流シャッター等の摺動部点検・グリスアップを各ビームライン担当者に指示し実行した。また、この点検の情報を専用ビームライン等に周知し、必要な指導を行った。

(5) 10月21日に発生した地震の影響調査として、遮蔽ハッチの扉正常動作を確認した。

5-2 申請時遮蔽計算

第40次変更許可申請において、BL05SSの利用可能な最大蓄積電流値の下方変更、挿入光源の変更及び逆コンプトン散乱の利用廃止に伴う線量評価の見直しを実施した。また、BL32B2の実験ハッチ新設及びBL36XU実験ハッチ下流への検出器遮蔽体設置に伴う線量評価の見直しを実施した。第41次変更許可申請においては、BL19LXU出力の上方変更に伴う線量評価の見直しを行った。

5-3 ビームライン放射線漏洩検査

フロントエンドのXYスリット最大開口の変更に伴う放射線漏洩検査をBL13XUにて、また、BL24XUの実験ハッチB1拡張に伴う漏洩検査を実施した。

5-4 放射線測定及び手法の開発

ガフクロミックフィルム読み取り装置の保守を引き続き行った。また、電子線量計による中性子線量の時系列測定を、運転モード毎に蓄積リング収納部天井にて行った。

JASRI 光源・光学系部門

田中 隆次、高橋 直、大橋 治彦

竹下 邦和、成山 展照、後藤 俊治

2-3 実験ステーション

2-3-1 共用ビームライン

BL01B1

XAFS

1. はじめに

ビームラインBL01B1では、広いエネルギー領域（3.8～118 keV）に渡り希薄・薄膜試料測定やin-situ時間分解測定など多様な手法を用いたXAFS研究が実施されている。2016年度も、実験ステーションに大きなトラブルはなく、概ね順調にユーザー利用に供された。最新のビームラインの状況、マニュアルなどの各種情報はBL01B1ホームページ（<http://bl01b1.spring8.or.jp/>）に掲載されている。

2. CT-XAFS 計測システムの高性能化

BL01B1では、アンジュレータービームラインでは難しい1 mm程度以上の試料を対象として、試料内部に存在する測定対象元素の化学状態および局所構造の3次元イメージングを分解能：1 μm 程度で行うCT-XAFS計測システムの開発を進めている。2016年度は、各2次元投影像計測角度でQXAFSを計測することによりCT-XAFSデータを取得する計測システムの構築を行い、テスト試料を用いた性能評価実験を行った。図1にCT-XAFS計測システムの配置を示す。試料は精密回転ステージ上に設置した。入射光に対する試料セル角度を固定した状態で、QXAFSスキャンにより2次元透過XAFSイメージング計測を行った。この計測を試料セル回転角度範囲： $-65^\circ \sim +65^\circ$ ($1^\circ/\text{step}$)で行うことにより、CT-XAFSイメージングデータを得た。透過X線像の計測には、蛍光板とsCMOSからなる可視光変換型X線イメージ検出器

を用い、測定視野：1 (H) $\times$ 0.2 (V) mm、画素分解能：1.3 μm で計測を行った。テスト測定試料は、アルミパウチにシール封入された円盤状のLiCoO₂電池電極を用い、Co K端近傍（7725～7729 eV, 0.1 eV/step）でex-situ投影型CT-XAFS計測を行った。得られたデータから、3次元XAFSイメージ像を再構成した。図2にLiCoO₂電池電極の電極断面方向から見た再構成像断面図を示す。明るい部分はLiCoO₂電極層に対応する。本測定には、50分ほど要した。今後、計測制御の効率化、計測角度範囲・角度ステップの最適化の検討を行い、計測の迅速化を進める計画である。

3. operando XAFS 計測に向けた反応ガス制御・分析システムの整備

BL01B1では、触媒や燃料電池等のガス反応に対するoperando XAFS計測システムの高性能化を進めている。2016年度は、様々な反応ガスの制御・分析が可能なユーティリティの整備およびXAFS測定との連動制御システムの構築を行った。本システムの整備は、「文部科学省 元素戦略プロジェクト拠点形成型 京都大学 実験と理論計算科学のインタープレイによる触媒・電池の元素戦略拠点（ESICB）」との協同で実施した。本ガス制御・分析システムは、(1) 6種類の反応ガスの混合および流量制御が可能なガス混合装置、(2) 反応器の出口ガスの高速な同定・定量が可能なマイクロガスクロマトグラフ ($\mu\text{-GC}$)、(3) ガス組成をリアルタイムでモニタする四重極型

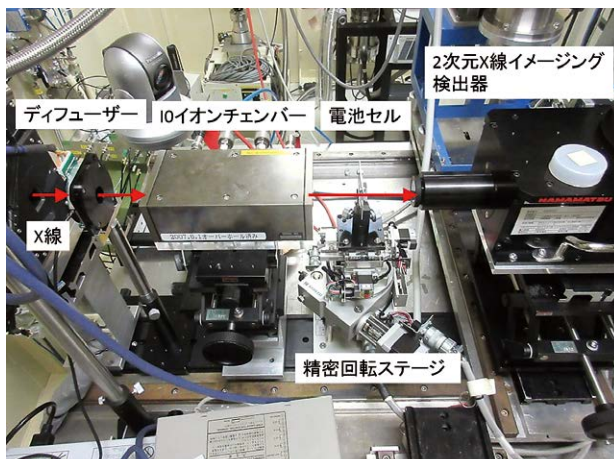


図1 CT-XAFS 計測システム配置

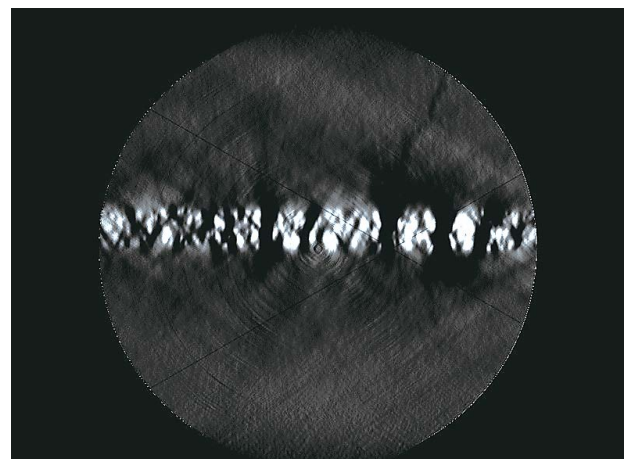


図2 LiCoO₂電池電極の電極断面方向から見た3次元再構成像断面図

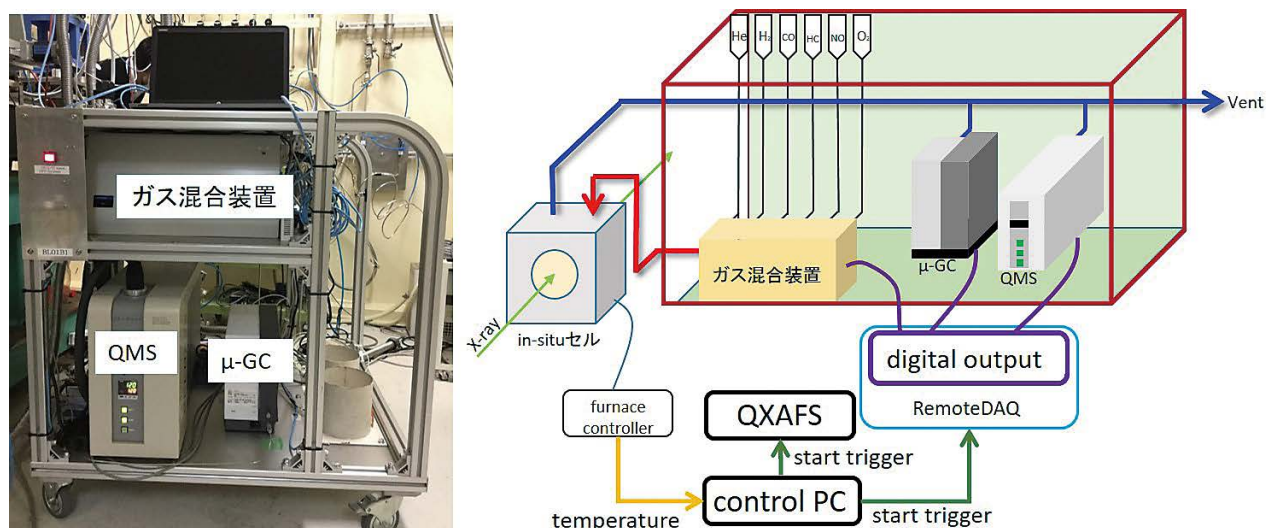


図3 反応ガス制御・分析装置（左）と試料温度制御システムと組み合わせたoperando XAFS計測システム（右）

質量分析計（QMS）から構成されている（図3）。これらの装置類は可動式キャビネットに収納されており、ビームタイム時にμ-GCとQMSを反応器からの排出ガスのサンプリング用配管に接続し使用する。本システムにより、ビームラインへの設置作業や反応装置の組立作業が大幅に軽減された。また、ビームラインの制御・測定プログラムと同じプラットフォームのLabVIEWを用いて外部制御システムを開発し、既存の試料温度制御システムと組み合わせたoperando XAFS計測を実現した。本システムを用いて、自動車排ガス浄化触媒に対するoperando XAFS計測を実施し、模擬排ガス（C₃H₆-CO-NO-O₂）環境下の触媒活性の挙動と触媒金属の動的挙動を同時追跡することに成功した。

利用研究促進部門 分光物性 I グループ
 加藤 和男、伊奈 稔哲
 新田 清文、宇留賀 朋哉

BL02B1 単結晶構造解析ビームライン

1. 概要

BL02B1は、偏光電磁石を光源としたビームラインで、主として単結晶試料による結晶構造解析を目的とした研究のために建設された。現在、精密構造解析を主軸とする物質構造と物性との相関を明らかにする研究が展開されている。光学ハッチには、2結晶分光器の上下流にミラー（白金コート）が設置されており、それぞれX線ビームの平行化及び鉛直方向の集光を行っている。さらに、サジタル集光結晶（第2結晶）により水平方向に広がったX線ビームを集光することによって試料位置でのビームフラックス密度を高めており、微小結晶を用いた実験にも対応している。光学ハッチに設置されているSPring-8標準型の分光器で分光可能なX線エネルギーは、4.5 keVから113 keVまでであるが、標準的には、18 keVから35 keVを使用する。

エネルギー領域	4.5 ～ 113 keV (Si (311)が標準配置、Si (111)、(511)をインクラインド配置により使用)
エネルギー分解能	$\Delta E/E \sim 10^{-4}$ (@E = 35 keV、Si (311)で分光)
フラックス	$> 10^{10}$ ph/s (X線エネルギー 35 keV、蓄積電流100 mAの条件)
ビームサイズ (半値全幅)	0.15 mm (水平) × 0.15 mm (垂直) (X線ミラー(垂直)及びサジタル集光(垂直)による値)

使用できる実験装置としては、主に以下のものがある。

- (1) 大型湾曲IPカメラ
- (2) CCD
- (3) 4軸回折計

図1に、光学系・実験ステーションレイアウトを示す。

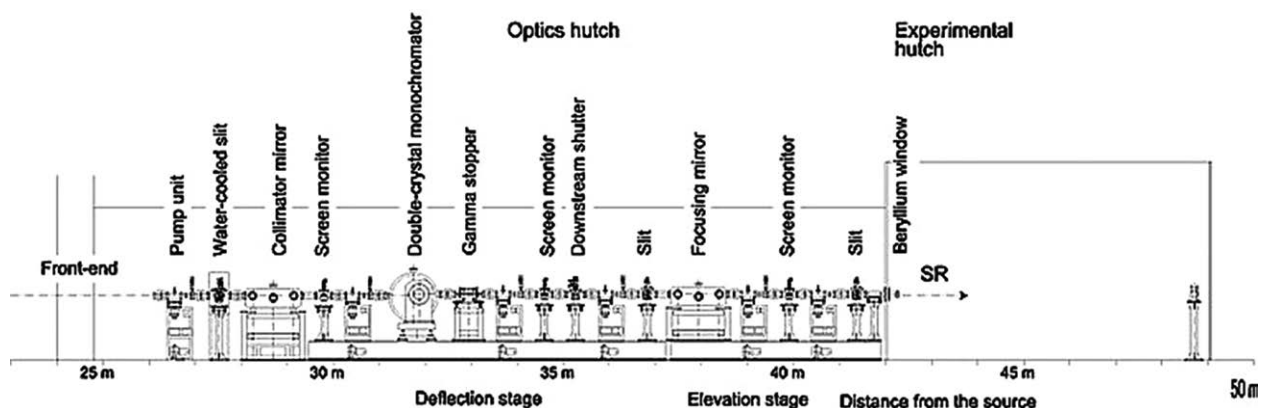


図1 BL02B1光学全体レイアウト

ビームラインの基本性能と実験装置の詳細は、http://www.spring8.or.jp/wkg/BL02B1/instrument/lang/INS-0000000581/instrument_summary_viewを参照して頂きたい。

2. 利用状況

2016A期2016B期合わせて38課題が実施された。採択率は、2016A期、2016B期それぞれ、75.0%、60.7%であった。図2（左図）に、2016年度のBL02B1の応募・採択課題数の機関割合を示す。各機関の応募・採択課題は、大学等教育機関が最も多く、応募38課題・採択24課題、国立研究機関等が、応募6課題・採択5課題、海外機関が、応募3課題・採択2課題、産業利用が、応募1課題・採択1課題であった。図2（右図）に、2016年度の本ビームラインの研究分野割合を示す。構造解析が最も多く、応募33課題・採択12課題、精密構造解析が、応募14課題・採択12課題、歪み・応力が、応募1課題・採択1課題であった。本ビームラインでは、継続して2016年度から2017年度までパートナーユーザー課題「Application of synchrotron radiation in materials crystallography」（代表者：Iversen Bo / University of Aarhus）及び2016年度～2017年度まで長期利用課題「普遍元素を用いる高機能触媒の創製：先端放射光技術の包括的利用に立脚した触媒元素戦略の実現」（代表者：高谷 光准教授／京都大学）の実験が行われており、今後、これらの課題による精密構造解析研究及びビームラインの高度化が期待される。また、成果公開優先利用課題は、2課題、萌芽的研究課題は、2課題が実施された。

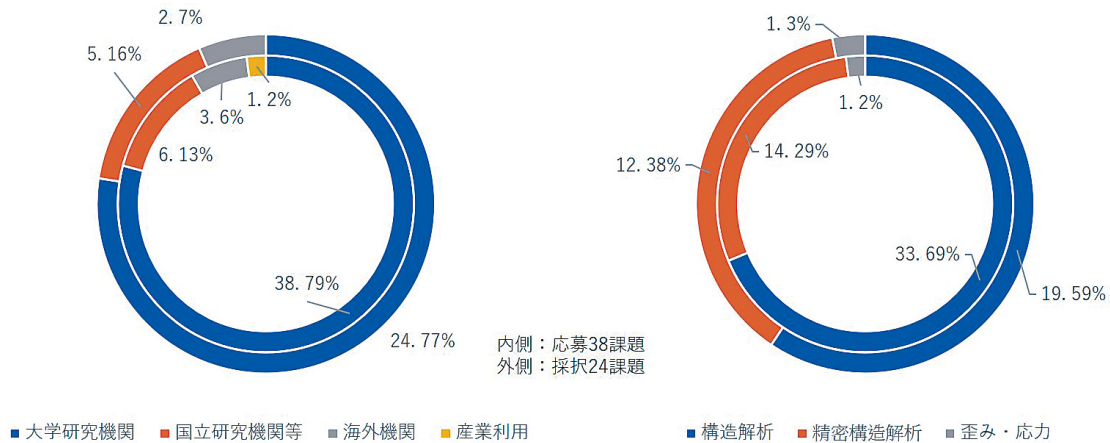


図2 2016年度のBL02B1の応募・採択課題数の機関割合（左図）、研究分野割合（右図）。

3. BL02B1の整備状況

2007年度に導入された大型湾曲IPカメラは、これまで光学系を含めたブラッシュアップにより、精密構造解析を中心とする多くの成果を創出してきた。一方で、導入当初には、想定していなかった微小、不安定試料の迅速測定のためのCCD検出器やピクセルアレイ型検出器などを利用する実験の提案が見受けられるようになってきた。2012年度には、高度化予算を投入して、一軸ゴニオメーターに持ち込みの検出器での測定ができるように整備し、リガク社製のMercury2 CCDを常設するに至った。

近年、上述のとおり、微小、不安定な単結晶試料を取り扱うことが多くなり、試料準備において、より高分解能な顕微鏡による作業が必要となってきた。そこで、2016年度は、ライカ社製の実体顕微鏡（M205C）の導入を行った（図3）。本顕微鏡の特徴としては、高い解像度と深い焦点深度を両立しており、ズームレンズを含めたトータルシステムにおいて、色収差を徹底的に排除したアポクロマートシステムを採用しているところにある。したがって、低倍率から高倍率まで色収差のない像が得られ、微小単結晶を取り扱う上で、非常に効率よく試料

をガラスキャピラリーなどに取り付けることが可能となった。

また、本顕微鏡は、コーディング機能が実装され、パソコン・画像解析システムとの統合により、自動キャリブレーションされた顕微鏡の条件を自動的に読み取ることが可能である。観察倍率や絞り条件など、リアルタイムにソフトウェア側で読み取り、パソコン画面上のスケールバーが倍率の変更に連動して表示される。画像保存の際は、顕微鏡設定条件も自動保存され、保存されたパラメータはいつでも呼び出すことも可能である。したがって、本顕微鏡は、試料の写真の保存だけでなく、実験後に試料の大きさをパソコンの画面上で計測することも可能である。

4. まとめ

2016年度は、近年、ユーザーからの要望の多かった微小単結晶の試料準備を効率的に行えるようにするために、実体顕微鏡システムを導入した。ビームラインの性能を維持していく上では、計測機器の整備だけでなく、試料準備の整備も限られたビームタイムを有効に活用し、優れた成果を創出するための重要な高性能化と言える。

一方、2007年度に導入した大型湾曲IPカメラは、間もなく10年が経とうとしているが、未だ精密構造解析に必要なデータの質を維持しており、海外のユーザーからも高い評価を得ている。しかしながら、今後、IPを検出器としたシステムの継続的な供給は見込むことができず、新たな精密構造解析を主眼とした計測システムの構築が必要となっている。

現状は、当面の間、既存の大型湾曲IPカメラに頼らざるを得ない状況であるが、並行して、迅速、且つ統計精度の良い高エネルギーX線での検出効率の良い精密構造解析用計測システムを検討していく必要がある。2017年度には、ハイブリッド型ピクセルCdTe検出器の導入を



図3 2016年度に導入した実体顕微鏡システム

計画しており、今後の展開が期待される。

利用研究促進部門

構造物性Ⅰグループ 動的構造チーム

杉本 邦久

ナノテクノロジー利用研究推進グループ

ナノ先端計測支援チーム

安田 伸広、隅谷 和嗣

技術支援グループ 技術支援チーム

小林 俊幸

BL02B2 粉末結晶構造解析

1. 概要

BL02B2は偏光電磁石を光源としたビームラインで、主として粉末試料による結晶構造解析を目的とした研究のために建設された。現在、粉末回折実験により、相転移、構造変化、リートベルト解析、精密構造解析など物質構造と物性との相関を明らかにする研究が展開されている。光学ハッチには、2結晶分光器の上流に前置ミラーが設置されており、X線ビームの平行化及び高調波の除去を行っている。本前置ミラーの入射角2 mradは固定であり、高調波除去のためには、X線エネルギーに応じて、Siの基板にNiまたはPtがコーティングされた領域に水平移動させて使用する。2結晶分光器は、SPring-8標準型で、分光結晶にはSi (111)結晶を用いている。分光可能なX線エネルギーは、12 keVから37 keVである。図1に、光学系・実験ステーションレイアウトを示す。ビームラインの基本性能と実験装置の詳細は、http://www.spring8.or.jp/wkg/BL02B2/instrument/lang/INS-0000000409/instrument_summary_view および *Rav. Sci. Instrum.* **88**, (2017) 085111を参照していただきたい。実験ステーションには、2 θ 軸上に6台の一次元半導体検出器とイメージングプレート検出器を搭載した2軸粉末回折計が常設されている。

2. 利用状況

2016A期2016B期合わせて63課題が実施された。採択率は、2016A期、2016B期それぞれ、86.8%、66.7%であった。1課題あたりの2016A期、2016B期の平均シ

フト数はそれぞれ、4.6、4.3シフトであった。2016年度のBL02B2の応募・採択課題数の研究機関・分野割合状況は、大学等教育機関が最も多く、応募77課題・採択58課題、国立研究機関等が応募4課題・採択3課題、海外機関は応募1課題・採択1課題、産業界は応募1課題・採択1課題であった。本ビームラインの研究分野割合では、無機系結晶が最も多く、応募61課題・採択43課題、有機・分子系結晶が、応募14課題・採択12課題、低次元系、表面界面構造、ナノ構造、機能性界面・薄膜材料等が応募7課題・採択7課題、産業利用が、応募1課題・採択1課題であった。本ビームラインでは、2015年度からパートナーユーザー課題「粉末・多粒子X線回折による高速構造計測基盤の構築」(代表者：森吉 千佳子准教授/広島大学)の実験が行われており、今後、これらの課題による外場下でのその場構造計測、精密構造解析研究及びビームラインの高度化が期待される。また、成果占有一般課題は2課題、成果公開優先利用課題は3課題、大学院生提案型課題は13課題実施された。

3. BL02B2の整備状況

2016年度は、既設の多連装一次元半導体検出器と連携した全自動粉末回折計測システムの開発を行った。これまで、BL02B2では、試料交換・試料のセンタリングを行うために、数分毎にハッチ内での作業を行う必要があり、特に、初心者や実験操作に不慣れなユーザーにおいては、それらの作業時間がビームタイムを圧迫しているといった現状もあった。これらタイムロスを解消し、さ

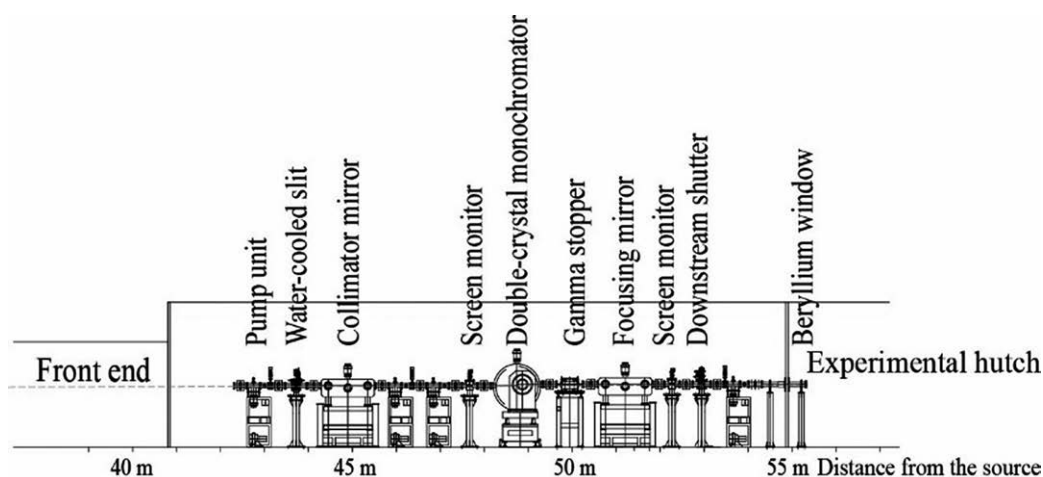


図1 BL02B2 光学全体レイアウト

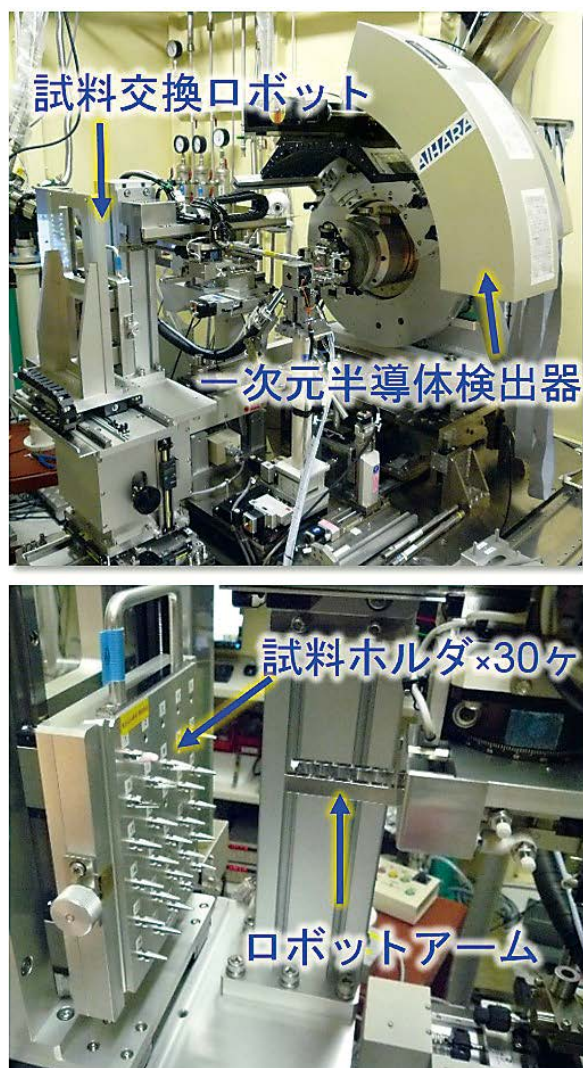


図2 自動試料交換ロボットを搭載したBL02B2の粉末回折計

らなる高精度粉末回折データ取得のハイスループット化を目指して、今回、新たに試料交換ロボットを開発し、既設の二軸粉末回折計に導入した（図2）。これにより、試料交換や煩雑なPCでの作業時間のロスおよびユーザーの負担を大幅に軽減できることができ、測定データに対して議論の場を多く設けることが出来ると期待される。新型試料交換ロボットでは、1パレット30個のキャピラリー試料をマウントすることができ、キャピラリー試料は、専用取付治具を用いてホルダーに固定し、ホルダーごとパレットにマウントする。キャピラリー試料は、パレットからロボットアームにより、回折計の5軸試料台へと輸送される。これら試料保持、輸送の際でも、キャピラリー試料内に充填された粉末（またはバルク）試料が、なるべく水平に保持されるように設計されている。これにより、キャピラリー充填時の状態をそのまま保持できることが可能である。回折計に輸送されたキャピラリー試料は、CCDカメラにより画像認識され、5軸試料台のφ、水平Y、Z軸、アーク軸のRY、RZ軸により、キャピラリー試料

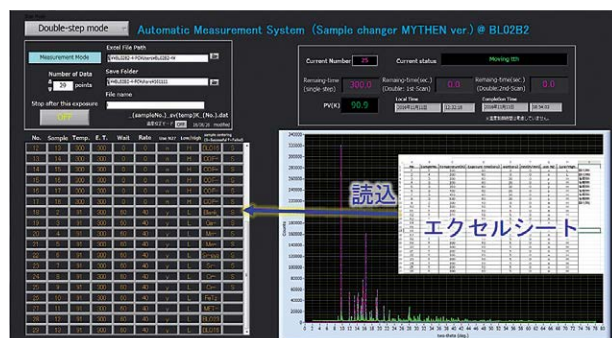


図3 全自動粉末回折測定用の制御ソフトウェア

のセンタリングが自動で実行される。センタリングが終了後、均一なデバイリングを得るために、φ軸が自動で回転し（0.5～0.25 Hz）、一次元半導体検出器による粉末回折測定が実施される。なお、試料交換に要する時間は、キャピラリーのアライメント調整を含んでも約1-2分程度であった。さらに、粉末回折データの温度依存性測定にも対応するために、既設の二種類の低温・高温窒素吹付装置のステージ類を改造し、同時に利用できるように開発を行った。これにより、一連の試料交換・試料センタリング・測定が自動で実施できる。これら全自動粉末回折測定の制御ソフトウェアには、これまで本ビームラインの測定プログラムと同じプラットフォームのLabView™で開発を行い、単一のソフトウェアで実行できるように、インハウスで開発を行った（図3）。ユーザーはエクセルシートに試料番号や、露光時間、測定温度などの情報を書いたシートを開発したソフトウェアに読み込ませるだけで測定が実行される。これらの開発により試料温度を90～1100 Kまでの幅広い温度領域で制御し、多試料に対して全自動で粉末回折実験を行うことが可能となった。なお、これら試料交換ロボットは、従来のイメージングプレートを用いた測定においても利用可能であるとともに、回折計から簡便に着脱可能である。これにより、試料周りの空間を広く利用することも可能であり、ガスハンドリングシステムを利用したガス雰囲気制御下でのその場粉末構造計測、電気炉を利用した高温実験や、ユーザー持込の機器に対して柔軟かつ迅速に対応でき、非常に汎用性が高くユーザーフレンドリーな粉末回折実験が実施可能な環境が整備された。

4. まとめと展望

2016年度の高性能化では、高精度粉末回折データ取得のハイスループット化を目指して、試料交換ロボットを開発し、既設の二軸粉末回折計に導入した。本装置と既設の多連装一次元半導体検出器を用いることにより、迅速かつ高い角度分解能とS/N比を有する高精度な粉末X線回折実験が可能である。今後、ヘリウムガス吹付装置

および高温吹付装置の改良による試料温度制御領域の拡張、さらにミリ秒データ読み取りの高速オンライン二次元検出器を用いた粉末試料のデバイリングの可視化により、加えて汎用性に優れ、ユーザーフレンドリーな粉末回折実験環境を整備することにより、材料開発研究分野への貢献だけでなく、使用条件下での非平衡状態の構造ダイナミクスの解明、外場応答型デバイスなどのメカニズム解析など構造ダイナミクスと物性・機能の相関解明が飛躍的に進歩すると期待される。

利用研究促進部門

構造物性Ⅰグループ 動的構造チーム

河口 彰吾、杉本 邦久

技術支援グループ 技術支援チーム

竹本 道教

BL04B1 高温高圧

1. 概要

BL04B1は偏向電磁石を光源としたビームラインで、主として白色X線を用いた高温高圧条件下のエネルギー分散型のX線回折測定とX線ラジオグラフィー観察に使用されている。偏向電磁石を光源とする放射光を実験ハッチ（区分上は光学ハッチ）にそのまま導入しており、幅広いエネルギー範囲を持つ白色X線をそのまま利用可能である。また、小型のSi(111)二結晶分光器も備えており、30～60 keVの単色X線を利用した角度分散型のX線回折測定やX線ラジオグラフィー観察も可能である。

ビームラインには2つの実験ハッチが直列に設置され、それぞれのハッチに最大荷重1500トンの大型プレスを有している。X線の上流側から、SPEED-1500 川井型高圧発生装置（DIA型プレス、光学ハッチ2）とSPEED-Mk.II 川井型高圧発生装置（D-DIA型プレス、光学ハッチ3）が設置されており、SPEED-Mk.IIでは焼結ダイヤモンドアンビルを使用した30 GPa以上の高圧高温実験の他に、D-RAM（メインラムとは独立して可動する差動ラム）を使用した高圧変形実験を行うことも可能である。

2016年度は高度化として、単色X線用の I_0 モニターの整備、SPEED-Mk.IIステージ制御用PLCの改修及び制御ソフトウェアの開発を行った。また今年度はGe-SSDのBe窓の破損、油圧ポンプの漏電や実験ハッチ内の過電流等、ユーザー操作に起因するトラブルも相次いだため、これらのリスクを低減するための対策も行った。

2. BL04B1の利用状況

2016A期2016B期併せて29課題（含1年課題）が実施された。採択率は、2016A期、2016B期の平均として80%であった。重点課題としては、愛媛大学のPU課題『大容量高圧装置を活用した地球および関連物質の高温高圧物性研究の推進』が実施された。2016期は従来メインストリームであった地球惑星科学分野の研究課題に加えて、電池材料や合金の高圧相転移など物質材料科学分野の研究テーマが新規に実施されており、大容量プレスを用いた高圧研究の新分野への展開がみられた。

3. 単色X線用 I_0 モニター

BL04B1では2007年度の小型分光器導入以降、30 keV以上の高エネルギー単色X線を利用した2次元X線回折測定やX線吸収イメージ観察技術の高度化に取り組んで

きた。その結果、高圧鉱物の変形機構や粒成長に関して多くの重要な研究成果が生み出されてきたが、分光器が小型かつ簡易的な機構であるため、長時間の実験やエネルギー変更の際にしばしばフラックスの低下がみられた。そのため測定中の正確な I_0 計測が求められていたものの、既設の小型イオンチャンバーと電離ガスに空気を用いたシステムでは定量性が乏しかった。そこで2016年度新たに大型のイオンチャンバーとガス流下装置を整備し、高圧実験中の入射X線フラックスの常時定量計測を可能にした。

イオンチャンバーは応用光研工業社のS-1194C1を使用し、電流アンプにはFEMTO Messtechnik社のサブフェムトアンペア電流アンプDHPA-300を使用し、電離ガスにはArガスを採用した（図1）。

高エネルギーX線のフラックス測定の定量性を検証するために、X線のエネルギーは60 keVに固定して印加電圧、ガス流量、X線減衰量を変化させて電流値を測定した。電流値は100 Vで飽和に達し、1000 Vまでほぼ変化しなかった。ガス流量も25～100 cc/minの間で出力電流に変化なく、これらの擾乱に対して高い定量性を持つことが分かった（図2）。



図1 単色X線用イオンチャンバーの設置状況

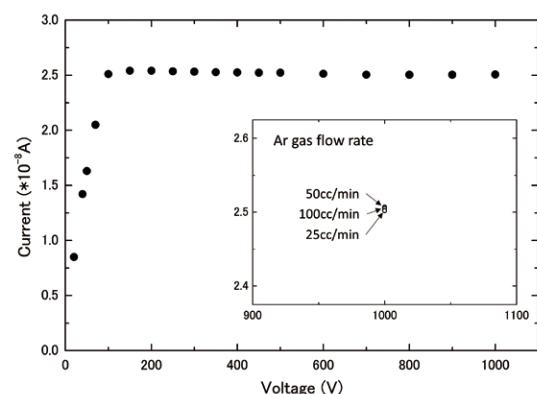


図2 印加電圧及びガス流量と電流値の関係

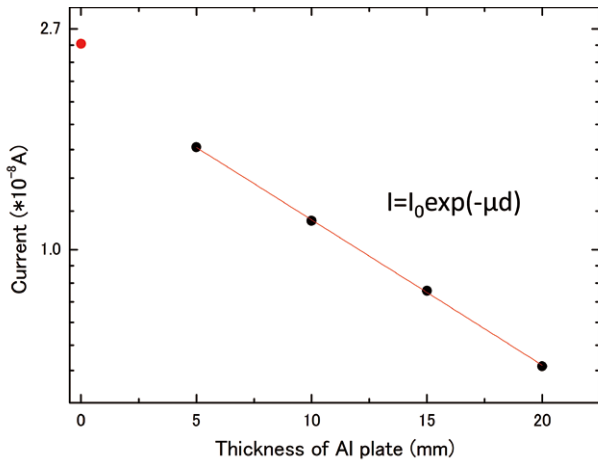


図3 X線フラックス（Al板厚）と電流値の関係

また、厚みの異なる4種類のAl板を用いてX線を減衰させ、X線フラックス変化に伴う、電流値の直線性を検証した（図3）。その結果、高い直線性を持つことが分かったが、高フラックス領域においてやや直線から外れる傾向があり、今後これらの挙動を詳しく調査して、高エネルギー単色X線に対応した、定量性の高い I_0 モニタリングシステムの構築を目指す。

4. SPEED-Mk.II ステージ制御用PCLおよびソフトウェアの改修

BL04B1では白色X線を主に使用しており、ビーム位置の変更が容易ではない。そのため、精密ステージを使用して、総重量が20トンにもなる大型プレスおよび5～6軸ステージ全体を1 μm単位で移動し、試料にX線を照射している。1000トンもの荷重を1～2 mの大型プレスに印加するため、装置そのものの弾性変形も非常に大きく、実験時は頻繁に大型プレスを移動する必要がある。そのためステージ制御UIの利便性や安定性は効率的にユーザー実験を行うために非常に重要である。本高度化ではステージを直接制御しているPLCとPC用ソフトウェア両方の改修を行い、ステージ移動の利便性を向上させた。

PLC側ではサーボモーターの位置フィードバック閾値を可変としてOperation Disable時間を大幅に短縮し、またPCとの通信方法を変更して、通信安定性を向上させた。制御ソフトウェアは外部ソフトウェアとの通信が可能になるように全面的に改装した。これによりゴニオステージやGe-SSD検出器との連携が可能となり、プレス軸の自動スキャンやエネルギー/角度分散型X線回折測定法であるCAESAR測定が可能になった（図4）。

5. トラブル防止策

2015年度にGe-SSDのエネルギー較正用RIを導入し、エネルギー較正の精度および利便性が増した一方で、こ

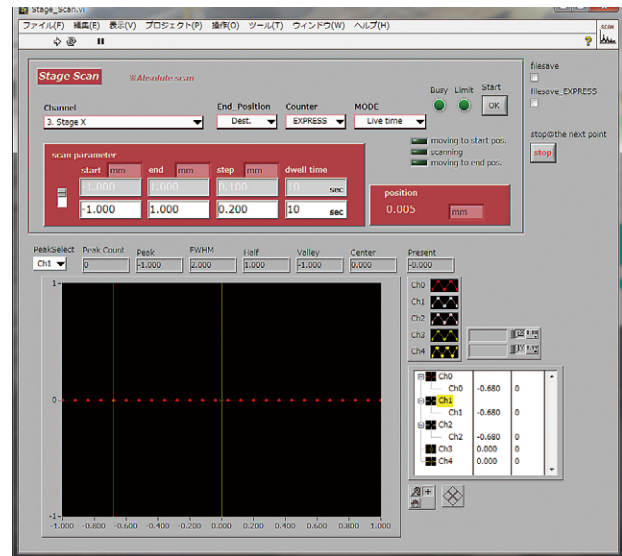


図4 新たに開発した自動スキャンソフト



図5 従来型と新型のアンプル台座の外観

れまでなかったGe-SSDのBe窓を破損する事故が発生した。こうした事故を防止するためユーザーがGe-SSDに接触するのを防ぐために検出器用カバーの一部を改造し、チェックソース用カートリッジを作成した。これ以降同様の事故は発生していない。また2016年度に発生した過電流や漏電に対処するため実験ハッチ内にコンセント盤を増設した。

利用研究促進部門

構造物性 I グループ 極限構造チーム

肥後 祐司、丹下 慶範

BL04B2 高エネルギーX線回折ビームライン

1. 概要

高エネルギーX線回折ビームラインBL04B2は、61 keVのX線を用いた非晶質物質のPair distribution function (PDF) 解析、高エネルギーX線の透過力を活かした実材料内部の評価 (113 keV) や、高圧発生装置ダイヤモンドアンビルセルを用いた高圧下における結晶・非晶質回折実験 (38 keV) 等が実施されている。本ビームラインは高次光を含む光学系であるため、ポイント型検出器によるエネルギー分別装置を整備しており、ユーザーの大半がこの装置を利用し、PDF解析による非晶質物質の構造解析を実施している。PDF解析の精度は、広いQ範囲と高角度側の十分な統計の両方を満たす実験データにより決定されるため、高エネルギー(短波長)かつ高強度のX線利用が不可欠である。また試料環境としては、リガク製高温電気炉、及びガス浮遊による超高温環境を整備し、多くの特筆すべき成果を出してきた。2016年度においては、1) 低温クライオスタットシステムの導入、2) 二軸回折計ポイント型検出器多連システムの整備、3) IP回折計の制御システム更新が実施された。次項で上記3点の高性能化について詳細を記す。

2. 低温クライオスタットシステムの導入

ビームラインBL04B2の低温試料環境のため、2013年度に英国Oxford Instruments社製窒素吹き付け装置が導入された。この装置は容易に低温の回折実験を可能にしたが、0°Cを下回る低温領域に入ると、大気中の水分が

霜となりキャピラリーに付着する。測定時間が1時間以内であれば霜が着く前に測定を終了することができるものの、高次光除去を目的としたポイント型検出器を利用している状況では致命的な問題となった。ゆえに、2016年度より霜の発生を防ぐことの可能なHe循環式低温クライオスタット装置の導入を進めた。これはBL02B2の縦振り回折計用冷却装置を移設し、BL04B2横振り大型二軸回折計にて使用できるように仕様変更した(図1a)。また、サンプルの交換に伴う真空引きや加熱・冷却の時間を短縮できるように、サンプルホルダーはキャピラリーを3本セットできるようにし(図1b)、一度に多くの実験データを得ることを可能にした。これまで自作の低温装置を持ち込んでいたユーザーも本装置整備により、装置の組み上げ時間やサンプル交換時間を短縮できるようになった。今後、水やアルコールなど低分子液体の応用的構造解析に加え、骨格構造、原子・分子の振動を低温で抑え、液体やガラスの構造を理解するような基礎的研究が広く行われていくことが考えられる。

3. 二軸回折計多連式ポイント型検出器システムの整備

図2にBL04B2二軸回折計へ導入された多連式検出器システムを示す。2012年度より、ポイント型CdTe検出器を16°間隔で3台並べたシステムが導入され、測定時間の短縮化が実現された。今年度は測定時間のさらなる短縮を目指し、8°間隔で検出器を7台並べられるように改良した(検出器1の位置を0°とした場合、残りの検出

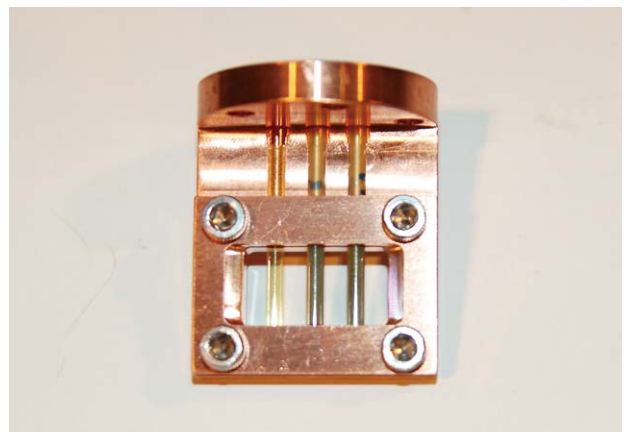
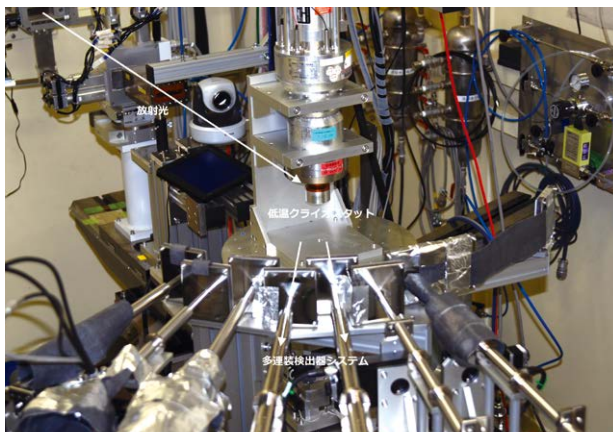


図1 (a) BL04B2の大型二軸回折計へ組み込まれた低温クライオスタットシステムのセットアップ。
(b) BL04B2低温クライオスタット用サンプルホルダー。



図2 BL04B2大型二軸回折計にインストールされた多連式CdTe / Ge検出器システム

器の位置がそれぞれ8°、16°、24°、32°、40°、48°となる)。高角側の3台は、CdTe検出器よりも高感度で高角側の微弱な散乱を検出できるGe半導体検出器を採用した(図2の検出器5、6、7)。現在は、CdTe半導体検出器4台、Ge半導体検出器を1台にて稼働中である。今後、本システムで全ての検出器が稼働することにより、測定時間が現在の半分に短縮されると期待される。さらに、7台目の検出器を設置し測定Q領域を広げたため、さらなるPDFの実空間分解能の向上が期待できる。なお、本整備は長期利用課題ユーザーである物質・材料研究機構の小原 真司 主幹研究員(JASRI客員研究員)と、JASRIとの共同で実施された。

4. IP回折計の制御システム更新

BL04B2下流に設置されているIP回折計は、主に高圧発生装置ダイヤモンドアンビルセルを用いた高圧下における結晶・非晶質回折実験に使用されている。本装置の制御システムは、導入されてから15年以上経過し、制御製造元(リガク株式会社)においても修理ができない状況にあった。実際に、2016年度上期にパソコンの電解コンデンサーが液漏れを起こし、起動しなくなった。今後、同様の不具合が多発することが見込まれるため、当該実験の安定的な実施を目的として2016年度にシステムの更新を実施した。リガク株式会社にご協力いただき、

Windows 2000で動作していた制御システムをWindows 7にて動作するように更新した(図3)。近年、高速2次元検出器を用いた時分割測定への展開が進んできているが、一方で精密構造解析は様々な分野における基底でありつづけており、広いダイナミックレンジを有し読み取り画素数の小さいイメージングプレートの利用を求めるユーザーは多い。今後とも、本ビームラインの高エネルギーX線と本IP回折計を組み合わせた測定システムの継続的な利用が期待される。

利用研究促進部門

構造物性 I グループ ナノ構造物性チーム

尾原 幸治、河口 沙織、大石 泰生

技術支援グループ 技術支援チーム

Bagautdinov Bagautdin、竹本 道教

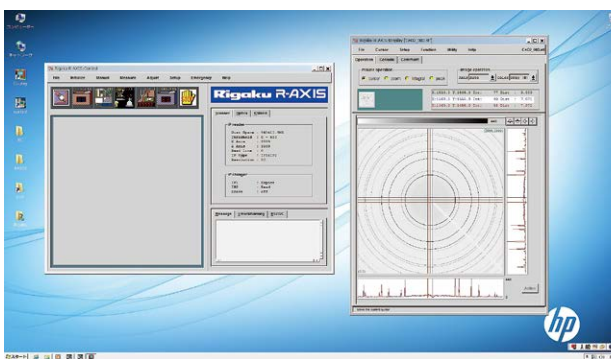


図3 Windows7へアップグレードしたIP回折計のR-AXIS制御システム

BL08W 高エネルギー非弾性散乱

1. はじめに

高ビームラインBL08Wは、SPring-8 唯一のウイグラーを光源とする100～300 keVの高エネルギーX線を使用することができるビームラインである。高エネルギー非弾性散乱（コンプトン散乱）測定による物性研究に主に利用されているほか、高エネルギー・高フラックスなX線を利用して、蛍光X線実験、透過イメージング測定、X線回折実験などの各種実験の他、高エネルギーX線用光学素子や検出器の開発・評価実験にも利用されている。

2016年度に実施された課題数は計30件、内、一般利用研究課題は12件、社会・文化利用課題3件、大学院生提案型課題2件、新分野創成利用課題1件、長期利用課題1件、成果公開優先課題2件、成果占有時期指定課題2件、インハウス課題5件であった。全課題における実験手法別内訳は、コンプトン散乱実験件13件（内、波長分散型スペクトロメータ使用7件、エネルギー分散型検出器使用6件）、磁気コンプトン散乱実験8件、蛍光X線分析3件、イメージング2件、装置開発2件であった。

2. 磁気コンプトン散乱測定プログラムのアップデート

磁気コンプトン散乱実験で使用している測定用PCのOSは、2014年4月にサポートが停止したwindows XPであるため、早急にOSをアップグレードすることが必要不可欠であった。また、測定用プログラムはVisual Basic 6.0で開発されているため、最新のプログラム言語へ更新することも望まれていた。そこで、PCのOSを最新のwindows 10に更新した。プログラミング言語に関しては、現在使用しているマルチチャンネルアナライザーのプログラミングライブラリーがVisual Basicで作成されているため、Visual Studio 2015 express (Visual Basic.net) への更新をおこなった。制御対象となる測定機器は、マルチチャンネルアナライザー、超伝導マグネット、冷凍機コントローラー、カウンター、ステッピングモーターコントローラーである。図1に開発したプログラムの測定画面を示す。通常の磁気コンプトン散乱実験は、以前までと同じ測定が可能となっており、磁場、温度、測定位置を自動制御して測定を行うシーケンスモードも追加した。また、スピン磁気ヒステリシスを測定するモードにおいて、これまでは、測定点一つにおいてデータの取得と消去に5秒ほど要していたが、開発したプログラムでは測定アルゴリズムを変更することにより

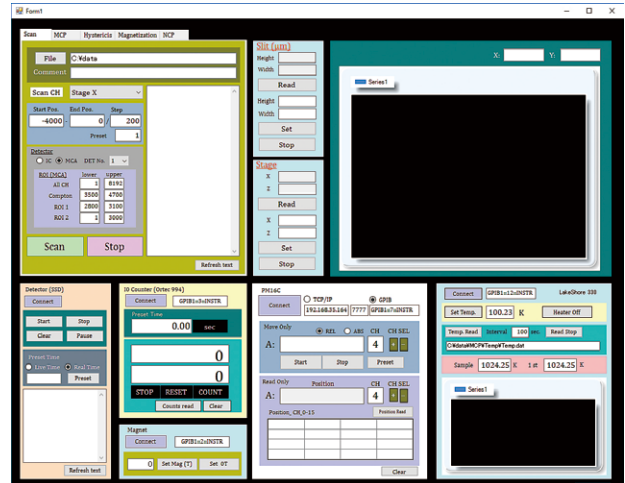


図1 Visual Basicで作成した磁気コンプトン散乱測定プログラムの実行画面

約1秒に軽減できるようになった。この改善により、測定時間を短縮できるようになった（例えば、これまで24時間必要であった測定が、21時間程度にまで短縮できる）。また、磁気コンプトン散乱測定で使用している超伝導マグネットと10素子Ge 半導体検出器は、すでに導入から約20年が経過しており、後継機への早急な更新が求められる。

3. スピン磁気ヒステリシス測定装置の高度化

磁気コンプトン散乱の散乱断面積はスピンにのみ依存するため、磁気コンプトンプロファイルの磁場依存性を測定することにより、スピン磁気ヒステリシス測定が可能となる。現在、10素子のGe 半導体検出器 (Ge-SSD) を利用して測定を行っている。スピン磁気ヒステリシス測定では、磁気コンプトンプロファイルの積分値を利用するため、エネルギー分解能が必ずしも高い必要性はないため、高計数率で測定が可能なYAP(Ce)シンチレーションカウンターを用いたスピン磁気ヒステリシス測定装置の開発を行った。Ge半導体検出器をYAPシンチレーションカウンターに変更すると、計数率と立体角の増大により測定時間の大幅な短縮が図れる。散乱強度が十分にある大型試料の測定では、1/1000以下への測定時間の短縮が期待される。ただし、計数率を稼ぐためには、試料の近くに設置することが求められるが、シンチレーションカウンターは光電子倍增管を利用しているため、磁場の影響を受けることが懸念されるので、この点に関し

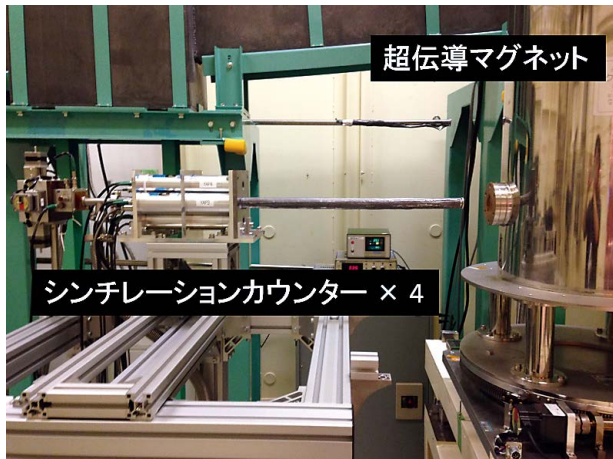


図2 実験配置図。4つのシンチレーションカウンターを用いており、超伝導マグネットと検出器の距離は1 mである。

でも検討を行った。

図2に実験配置図を示す。4つのシンチレーションカウンターを用いて、計数率を稼いでおり、入射光が通過する場所には、鉛を巻いた筒を用いてバックグラウンドを低減する工夫を施している。スピン磁気ヒステリシス測定にはFeの粉末を用いて行った。超伝導マグネットと検出器の距離が1 mでの、コンプトンプロファイルの磁場依存性を図3に示す。磁場が1 T以上になるとプロファイルの低エネルギー側へのシフトと形状変化が観測された。しかし、プロファイルの積分値にはほとんど影響がなかったため、磁場の影響を無視することとした。スピン磁気ヒステリシス測定は、 ± 2.5 Tを0.1 Tステップで1点0.2秒の露光時間で行った。図4にシンチレーションカウンターの測定結果と、比較のために露光時間180秒で測定したGe-SSDの測定結果を示す。ヒステリシス曲線の形は概ね再現されており、磁場の影響を無視してもある程度問題ないことを確認した。また、エラーバーはSSDと同程度であることから、測定時間を約1/1000に

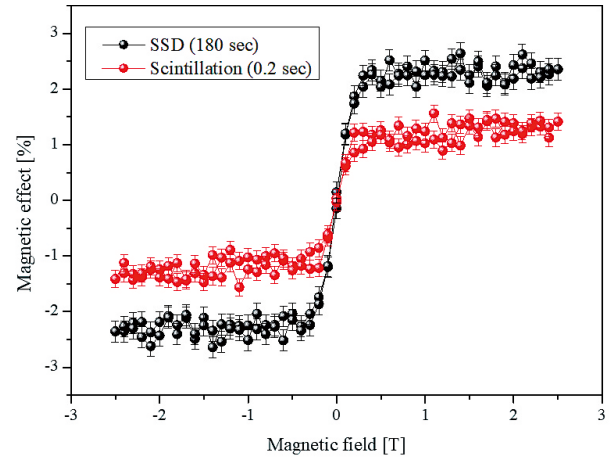


図4 シンチレーションカウンターとSSDによるヒステリシス曲線。

短縮できるようになった。しかし、飽和状態での磁気効果が約1.22%となっており、これはGe-SSDで測定した結果のおよそ半分程度の大きさである。これは、バックグラウンドに起因していると考えられる。

測定時間を大幅に短縮できるようになったが、得られた磁気効果が小さいため、スピン磁気モーメントが小さい試料などでは十分な成果が得られない可能性がある。そこで、バックグラウンドと磁場の影響に関しては今後対策を行う予定である。

利用研究促進部門
構造物性IIグループ
伊藤 真義、辻 成希

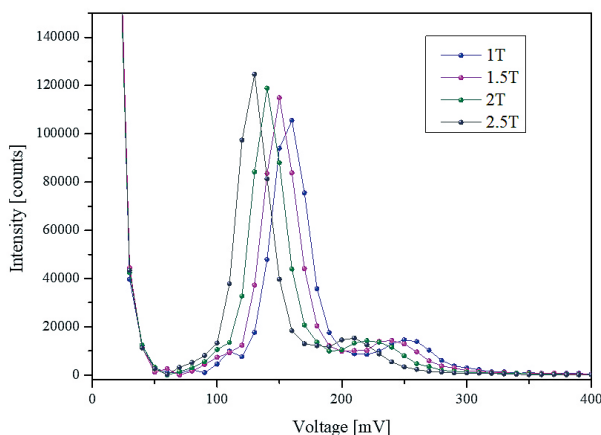


図3 コンプトンプロファイルの磁場依存性。シングルチャンネルアナライザーのローレベルディスクリ (LLD) を10 mVずつ変化させ、その前後の差分により強度を得ている。横軸は電圧だが、X線のエネルギーに対応している。

BL09XU 核共鳴散乱

1. はじめに

核共鳴散乱ビームラインBL09XUは周期長 32 mm の SPring-8 標準アンジュレータを有する硬 X 線ビームラインである^[1]。ビームラインモノクロメータには液体窒素冷却シリコン結晶が使用されている。ビームラインでは高エネルギー分解能光学系と時間分解測定を組み合わせた核共鳴散乱と Kirkpatrick-Baez (KB) ミラーを用いた高強度・高エネルギー分解能の硬 X 線光電子分光 (Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy: HAXPES) を利用した研究が行われている。

2016 年度は、フロントエンドスリット開口制限の変更に伴う高輝度化や HAXPES 用の KB ミラーの核共鳴散乱への利用という既設のビームライン基盤機器を利用した整備・高度化に加えて、核共鳴散乱、および、HAXPES それぞれの実験ステーションにおける整備・高度化を行った。

2. ビームライン共通機器及びビームライン共通機器化した既設機器

フロントエンドスリット開口制限の変更

従来の制限が 1.0 mm (縦) × 1.0 mm (横) であったフロントエンドスリットの開口制限をビームプロファイルに合わせたものとするため、0.65 mm (縦) × 1.5 mm (横) に変更した。2016A 期のユーザー運転開始前の放射線漏洩検査を経て、ユーザー運転に供することとした。各種実験における光学系の熱負荷による制限があるため、実際に利用するスリットの開口上限は制限値と一致しない。例えば、Gap 19.8 mm で利用している ⁵⁷Fe 核の励起エネルギーである 14.4 keV では縦方向を現行の 0.6 mm としたまま、横方向の開口を 1.0 mm から 1.5 mm に広げるにより、約 20% のフラックスの増加が得られた。

HAXPES 用 KB ミラーの核共鳴散乱への利用

2014 年度に導入された KB ミラーは 10 keV 以下の X 線を用いる HAXPES 用として設計された。設計上のエネルギーを超える ⁵⁷Fe 核の共鳴エネルギーである 14.4 keV においても、計算上約 50% の反射率が確保できるため、⁵⁷Fe 核共鳴散乱の実験にも設計上利用可能である。

しかしながら、KB ミラーの上下方向の調整可動域が狭いため、ビーム高さを KB ミラーの高さに合わせる必要があるとなる。Si111 二回反射の光軸調整光学系の導

入によって KB ミラーを利用可能となり、高圧下や薄膜試料の放射光メスバウアー分光や核共鳴非弾性散乱の実験が可能となった。光軸調整光学系導入後、⁵⁷Fe 核共鳴線における KB ミラーによる反射率はほぼ設計値に近い約 44% が確保され、半値幅 (縦) 4.2 μm × (横) 10.2 μm、試料への入射強度が 2.6×10^9 cps の集光 X 線を供することが確認された。このことによって、KB ミラーを用いた集光 X 線による ⁵⁷Fe 核共鳴散乱のユーザー実験が可能となった。

3. 核共鳴散乱

核共鳴散乱では、放射光を励起光としたメスバウアー効果測定が行われており、原子ダイナミクスのための非弾性散乱や電子や原子核の状態を観測する前方散乱や放射光メスバウアー分光が行われている。前者は原子を特定したフォノン状態密度を観測できる手段として、同様にフォノンを観測する中性子非弾性散乱や高分解能 X 線非弾性散乱と一線を画す実験手法である。後者は放射線源を用いた実験が困難な高圧下実験や共鳴回折実験に加え、適当な親核を持たない核種の実験に利用されている。

2016 年度の核共鳴散乱実験ステーションの整備・高度化として平行化レンズによる核共鳴に関わる入射強度の増大や低温下核共鳴非弾性散乱実験の無冷媒化を行った。

平行化レンズによる核共鳴に関わる入射強度の増大

X 線のビーム発散は試料位置でのビームサイズや高分解能モノクロメータのエネルギー分解能や透過率に影響を与える。BL09XU の光学系では、X 線の縦方向の発散角を抑えることで、高分解能モノクロメータの分解能と試料位置での入射ビーム強度やビームサイズを向上することが可能となる。図 1(a) に示す平行化レンズをビームラインモノクロメータの後方、高分解能モノクロメータの前に導入した。その結果、⁵⁷Fe 用 3.5 meV 高分解能モノクロメータ使用時に 15% (図 1(b))、⁵⁷Fe 用 0.8 meV 高分解能モノクロメータ使用時に 10% の核共鳴信号強度の向上を実現した。

低温下核共鳴非弾性散乱の無冷媒化

希少資源であるヘリウムの使用量を削減するため、低温での核共鳴散乱実験においてヘリウム循環型パルス冷凍機を用いた無冷媒化を進めている。核

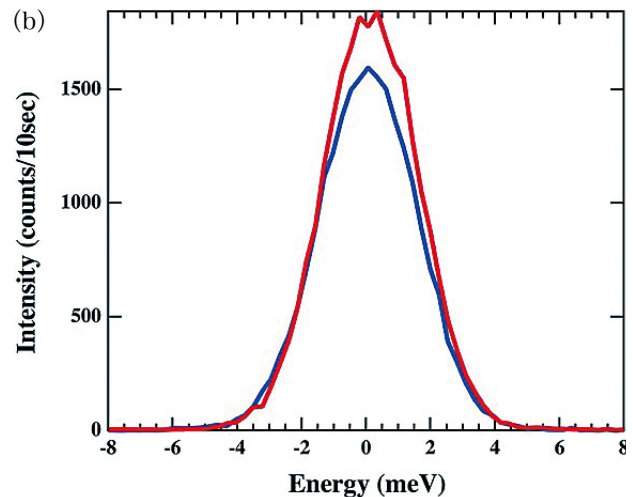
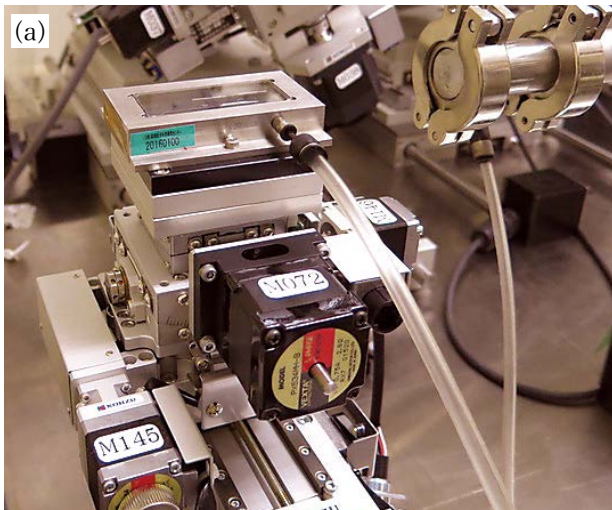


図1 (a) ユーザー実験用に導入した平行化レンズの写真

(b) 平行化レンズによる核共鳴散乱信号強度の変化。平行化レンズ入れた場合（赤色）と入れない場合（青色）。

共鳴非弾性散乱では微小な共鳴信号を効率的に検出するために立体角を確保することが必須である。図2に示すような冷凍機カバーを備えて試料ホルダー位置で最低到達温度6 Kを実現し、試料位置決めを容易にするための検出器用手動ステージを整備した。これらの整備によって、無冷媒での低温下核共鳴非弾性散乱実験が可能になった。

参考文献

- [1] Y. Yoda et al.: *Nucl. Instrum. Methods A*, **715** (2001) 467-468.



図2 冷凍機使用時の非弾性散乱実験配置。

4. 硬X線光電子分光 (HAXPES)

BL09XU のHAXPES は、2014年度後期からユーザー実験に供されている。BL47XUと比較して、30倍程度の光電子検出増大と100 meV程度と非常に高いエネルギー分解能を達成している。試料上での集光サイズ(3.0 μm (縦) $\times$ 6.3 μm (横))@8 keV

と高いフラックスを活かし、ダイヤモンド移相子による光電子磁気円二色性、線二色性計測と、共鳴HAXPES 計測を推進している。本稿では、特に共鳴HAXPES計測技術開発を報告する。

2016年度のHAXPES 実験ステーションの整備・高度化として、現在整備を進めている共鳴HAXPES計測系のうち、連続エネルギー掃引を可能にするための高エネルギー分解能チャンネルカット機構、および、蛍光X線吸収測定(XAS)との同時計測を可能とするためのシリコンドリフト検出器(SSD)の導入を行った。

高エネルギー分解能チャンネルカット機構

HAXPES 計測は、これまで、6、8、10 keVといった固定入射エネルギーに限られていた。これは、従来のSi 111チャンネルカット結晶を用いた高単色化において光軸の高さ変動が大きいため、光電子アナライザーのレンズ軸を逸れて検出が著しく減少することが最大の要因であった。しかしながら、近年、強相関電子系物質の物性起源の解明、例えば、価数揺動機構解明に対して、軟X線領域で既に盛んに行われている共鳴計測の有用性が理解され、その計測系の整備が切望されていた。これまで、高エネルギー分解能化のために、ギャップ幅が41 mmのチャンネルカットを用いてきた。しかしながら、共鳴HAXPES計測では、入射光エネルギー掃引時に光軸高さが大きく変位することが問題となる。この光軸の変位は、ギャップ幅に比例することから、ギャップ幅5 mmのものを新たに導入し、光軸変位の抑制を図った。また、細かい入射光エネルギーステップでの測定に対応するために、また、エネルギー再現性を高めるために、高分解能モノクロメ

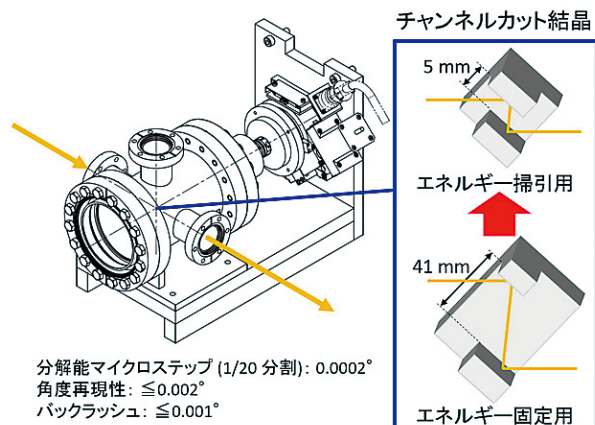


図3 高エネルギー分解能チャンネルカット機構の概要

ータ回転ステージを導入した（図3）。本機構の導入により、後置のKBミラーでの高さ補正や装置架台高さ自動追尾制御等、特別な制御を施すことなく、10 keV以下の特定元素吸収端周りの約100 eVの範囲での共鳴HAXPES計測が可能になった。

シリコンドリフト検出器（SDD検出器）

RAYSPEC社の単素子SDDを導入した。これにより、共鳴HAXPES計測とSDD検出器を用いた蛍光X線吸収測定(XAS)、さらに、全電子収量法(TEY)によるXASの複合計測により、異なる検出深さにおける同時電子状態分析が可能になった。それぞれの計測手法の典型的検出深さは、HAXPES計測：数十 nm、蛍光XAS：数 μm 、TEY-XAS：数百 nmである。その適用例は、応用面では異なる深さにおける同時XAS計測が挙げられる。一方、電子とX線の異なるプローブを同時に調査できることから、基礎物理ではX線励起状態からの脱励起過程の解明に繋がる。

利用研究促進部門
 構造物性Ⅱグループ
 依田 芳卓・筒井 智嗣

利用研究促進部門
 応用分光物性グループ
 保井 晃・池永 英司

BL10XU 高圧構造物性

1. 概要

BL10XUは、短周期型真空封止ハイブリッドアンジュレータを光源とする高エネルギー単色X線による高圧粉末X線回折が可能な共用ビームラインである。1997年の供用開始から現在まで、高圧物性分野や地球惑星科学分野を中心に、幅広い高圧研究が展開されている。ダイヤモンドセル高圧発生装置(DAC)と冷凍機や近赤外線レーザーを組み合わせた実験手法により、数百万気圧(1万気圧 = 1 GPa)に至る圧力領域で、極低温から数千度を越える温度領域をカバーした多重極限環境下におけるその場X線回折実験の他、数百万気圧を越える圧力領域での安定した実験を目指す高圧力発生技術の開発も実施されている。以下では、2016年度の利用課題実施状況、および機器整備の状況について報告する。

2. 利用課題実施状況

2016A期および2016B期において、それぞれ19課題、18課題が実施された。一般課題は、大学院生提案型課題を合わせ、A・B期ともに16件であり、採択率はA期53%、B期52%であった。また、2014A期採択のパートナーユーザー(PU)課題(指定期間延長)が1件、2014B期ならびに2015B期からの長期利用課題が2件実施された。PU課題では、マイクロX線集光ビームを利用した高温高圧条件におけるX線回折計測技術の開発・高性能化とその先導的利用研究、長期利用課題では、多重極限環境条件下でのX線回折との複合同時計測を利用した先端的研究が実施された。2016A・B期においては、国

外からの利用研究課題が2・3件実施され、大学院生提案型課題は4・5件実施された。

図1に、2016Aならびに2016B期に実施された研究分野と実験手法の利用件数を示す。主な研究分野は、固体物理・化学、地球惑星、材料物質、技術開発であり、2016Aと2016B期において、それぞれ7・10課題、7・5課題、3・2課題、1・1課題が実施された。固体物理・化学分野および地球惑星分野で、全課題数の80%を占めており、2016A期では、固体物理・化学分野と地球惑星分野の利用研究課題が同数であった。2016B期では地球惑星分野課題が減少した結果、全体の60%近い割合を固体物理・化学分野課題が占めた。

BL10XUにおける実験手法は、冷凍機を利用した低温高圧実験、室温下での高圧実験、近赤外線レーザーまたは抵抗ヒーターを用いた加熱法による高温高圧実験に分類される。2016A期では、地球惑星分野だけでなく、固体物理・化学分野において物質合成などに利用されたため、高温実験が半数を占め、低温実験と室温実験が25%とほぼ同等であった。2016B期では、低温実験の利用研究が増加し、高温実験とほぼ同じ割合となった。室温実験は、近年減少傾向にあるが、高圧発生技術開発や関連する材料評価などに利用され、2016年度は全体の20%程実施された。

3. マイクロX線回折実験用低振動型冷凍機システムの導入整備

近年、高圧研究の測定対象が高い圧力領域に向かうに

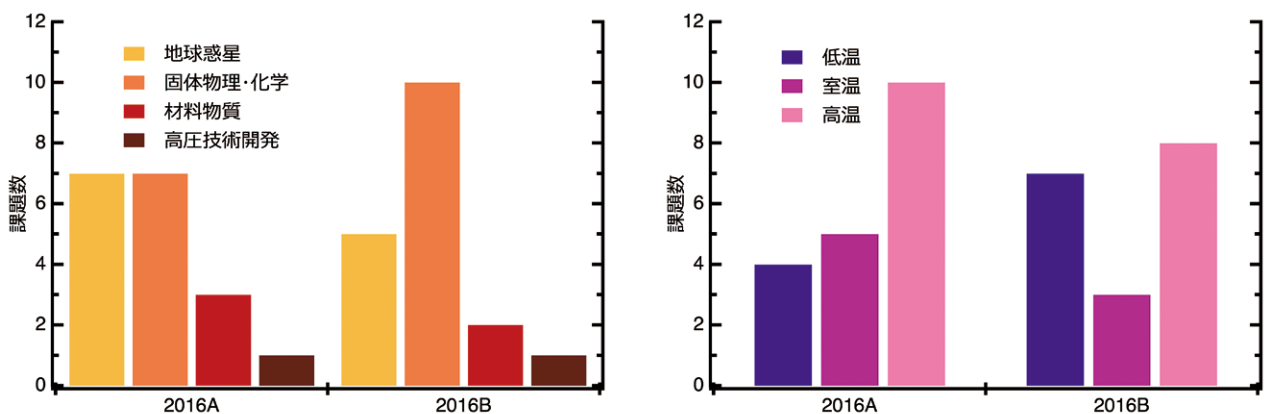


図1 BL10XUにおいて2016A期並びにB期に実施された研究分野別課題数(左)と実験手法別課題数(右)。

つれ、試料の微小化が進み、更に電気抵抗測定など複合計測のため試料部が複雑化してきている。そのため、局所領域計測が可能な高空間分解能を有する微小X線プローブが要求されている。BL10XUでは、複合X線屈折レンズ (XCRL) による高エネルギーX線集光光学系の開発を継続的に行っており、マイクロビームによる高圧X線回折測定が利用可能になっている。マイクロX線集光ビームを形成するX線集光光学系は複数ハッチに設置される光学素子から構成されるため、実験ハッチ2においてマイクロX線ビーム利用が可能である。

高エネルギーマイクロX線ビームを利用したX線回折実験による低温高圧下での精密構造解析や構造物性研究を可能とするため、2016年度に実験ハッチ2に低振動型冷凍機システムを導入し、多目的高耐荷重回折計へ設置するための架台が整備された(図2)。導入された冷凍機は、信頼性が高く、操作が簡便な4K-GM (Gifford-McMahon) 型であり、本ビームラインで2006年に開発導入され、実験ハッチ1に設置されている冷凍機と同型である。微小試料にX線集光ビームを照射する際、冷凍機の振動が問題となるため、冷凍機内のコールドステージとダイヤモンドアンビルセルホルダー間は銅製の練り線で接続することにより、冷凍機から試料部への振動伝達を抑制し、高圧試料部において5 μm 以下の低振動化が実現可能な仕様となっている。

2012年以降、高密度水素に関する実験的研究が加速度的に進んでおり、300 GPa領域におけるラマン散乱分光測定や赤外吸収分光測定などが低温から高温まで実施されてきている。新たな高圧相も発見されており、X線回折による構造研究の重要性が急速に高まっている。200 GPaを越える圧力領域における水素の低温高圧実験や高温超伝導相探索など、高エネルギーX線集光ビーム

を利用した低温高圧X線回折計測による利用研究が期待される。2017年度より実験ハッチ2において、同冷凍機システムを利用したマイクロX線ビームによる低温高圧X線回折実験が開始される予定である。なお、本高性能化は、パートナーユーザー課題ユーザーである東京工業大学廣瀬敬教授らのグループから冷凍機が譲与され、JASRI との共同で実施された。

利用研究促進部門

構造物性 I グループ 極限構造チーム

平尾 直久、河口 沙織、大石 泰生

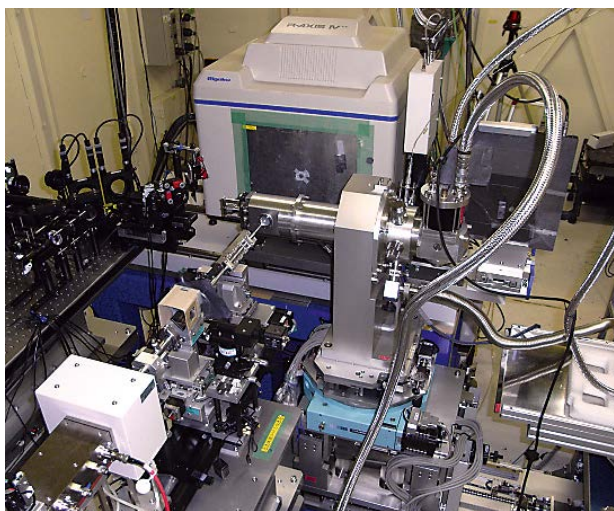


図2 BL10XU実験ハッチ2に整備された低温高圧マイクロX線回折計測用低振動型冷凍機システム

BL13XU 表面・界面構造解析ビームライン

1. 概要

表面や界面では、物質のもつ対称性が破れるため結晶のかたまり(バルク)とは異なる特徴的な原子配列をとり、それに起因して多様な物性があらわれる。表面・界面構造解析ビームラインBL13XUでは、X線の回折・散乱現象を利用して金属、半導体結晶の表面構造のその場観察のほか、酸化物結晶、有機結晶、触媒の表面層や、その上に成長した薄膜・ナノ物質構造が調べられている。デバイス材料の局所歪みの評価や、静的な構造解析にとどまらない外場印加時の表面や界面の動的構造変化のその場観察、表面における位相問題への取り組みなど、多岐にわたるX線回折・散乱実験が行われている。

第1実験ハッチでは、高精度X線回折装置を用いた薄膜、固体液体界面、ナノ物質の解析実験、第3実験ハッチでは、超高真空表面X線回折装置による固体表面のその場観察実験、第4実験ハッチでは、高分解能ナノビーム回折装置によるデバイス材等の局所構造解析実験が主に行われている。第2実験ハッチは、ユーザー持ち込み装置用の実験ハッチである。標準アンジュレータ・光学系に加え、非対称分光結晶をもちいた大強度光学系も利用できる。異常散乱等エネルギー可変型実験を効率化する光学系も整備されている。以下に2016年度に行われた技術開発・高度化の詳細について報告する。

2. 表面X線回折計測の迅速化

放射光X線回折による表面構造解析では、表面界面に存在するわずかな原子層の原子の配列を解析対象とする。そのX線反射率は多く見積もってもバルクの百万分の一以下であることから、計測時間に数日を要してしまう場合も多い。研究対象を拡大し、より広範なユーザーの要望に応える上で計測時間はボトルネックとなっていた。そこで、従来のロッキングモードとよばれる試料を揺動する方式に加え、試料を揺動しない代わりに二次元検出器をもちいる静止モードとよばれる計測方式を導入した。第3実験ハッチに設置された、分子線エピタキシー法によるその場試料作製が可能な超高真空槽を備えた表面回折装置の実験レイアウトを図1に示す。図1挿入図に示すように、検出器軸に設置された二次元検出器をもちいて、回折像とそのまわりのバックグラウンド信号を同時に計測するため、格段に計測時間を短縮することができる。酸化物界面を評価したユーザー実験例^[1]では、従

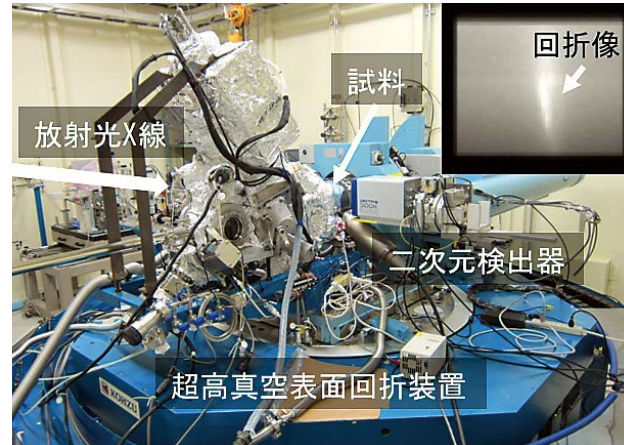


図1 迅速計測を実現する二次元検出器をもちいた表面X線回折法の実験レイアウト。右上挿入図は二次元検出器で得られた試料からの回折像の例。

来法に比して10倍以上の迅速測定が実現できた。本計測方式の導入によって、上述のとおり表面回折の測定時間を短縮できるほか、より高精度の表面回折データも取得可能となるため、より高品位なデータをユーザーに提供できることとなる。

参考文献

- [1] D. Kan, Y. Wakabayashi, H. Tajiri, Y. Shimakawa: *Phys. Rev. B* **94**, (2016) 025112.

3. 高分解能ナノビームX線回折装置の整備

本装置は、X線マイクロ・ナノビームを用いたX線回折法により、半導体材料やデバイス中の局所領域における格子歪と格子面の傾きを分離し、且つ、高い空間・角度分解能で測定することができる。これまで、集光素子としてフレネルゾーンプレートを用いていたが、15 keV以上の高エネルギーX線に対して集光効率が著しく低下することが問題であった。そこで、高エネルギーX線を高効率に集光可能な石英製キノフォームレンズを導入した。

キノフォームレンズは、石英基板上にリソグラフィとドライエッチングのプロセスによりパターンを形成したものである。図2(a)に、同レンズの顕微鏡写真を示す。100 μm 深さのエッチングの実現により、 $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ のレンズ開口を確保した。また、レンズによるX線の吸収を低減するため、レンズ外側の部分を矩形に除去している。焦点距離200 mmと100 mmのレンズを作製し、

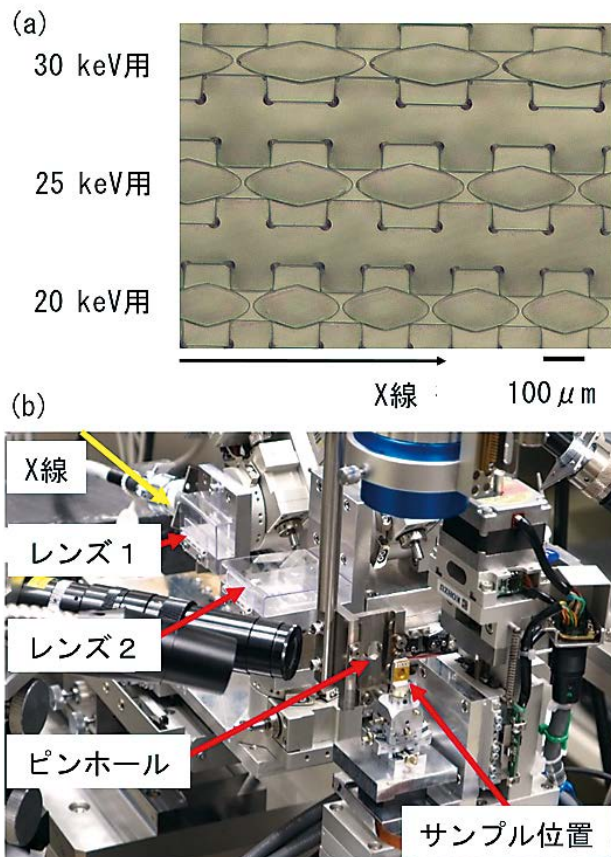


図2 (a) 石英製キノフォームレンズの顕微鏡写真。(b) 石英製キノフォームレンズを用いた実験レイアウト。レンズ1(縦集光用)とレンズ2(横集光用)が光軸上に並んでいる。

これらを縦横に組み合わせることで、水平・鉛直の両方向の集光を実現した (図2(b)参照)。

同レンズによる放射光X線の集光試験を行った結果、X線エネルギー 20 keVで $0.77 \times 2.49 \mu\text{m}^2$ (水平 × 鉛直方向)、25 keVで $1.11 \times 1.70 \mu\text{m}^2$ 、30 keVで $2.33 \times 3.20 \mu\text{m}^2$ のビームサイズを得た。また、30 keVにおいて39%と高い集光効率を達成した。高エネルギーX線マイクロビームを用いれば、Ag、Inなどの蛍光を利用した精密位置調整や、試料深部からの回折測定が可能となり、観測可能な逆格子空間も拡大させることができるため、より一層高度なユーザー支援が可能となる。

利用研究促進部門
構造物性Iグループ

田尻 寛男

ナノテクノロジー利用研究推進グループ
隅谷 和嗣、今井 康彦

BL14B2 産業利用Ⅱ

1. 概要

BL14B2は産業分野のXAFS測定を対象とした偏向電磁石を光源としたビームラインであり、簡便で高能率なXAFS測定を目指して研究支援および機器開発を行っている。2015年度までに19素子ゲルマニウム半導体検出器(19素子SSD)を用いた蛍光法XAFS測定を遠隔XAFS測定にも適用出来るようにするために計測系の自動化を達成している。2016年度はこの自動化環境をもとに、蛍光配置Quick XAFS (QXAFS) における複数吸収端連続測定機能の開発を行った。また、標準試料のXAFSスペクトルデータを収集し、系統的に整理して提供するXAFS標準試料データベースを構築した。これらの詳細を以下に示す。

2. 蛍光配置XAFSにおける複数吸収端連続測定

2015年度に19素子SSD計測系のデジタル化が完了し、アンプ増幅率、ROI (Region Of Interest) 設定、数え落とし補正係数の選択が自動化された。2016年度はこの自動化環境をもとに、蛍光配置Quick XAFS (QXAFS) における複数吸収端連続測定機能の開発を行った。従来のシングルチャネルアナライザを用いたアナログ計測系とは違い、本計測系では、励起エネルギー掃引上の全測定点における蛍光X線スペクトルを取得する。計測完了後にROIの切り出しと積分を行うので、任意の特性X線のXAFSスペクトルを、生データから自由に再構成することができる。本機能はステップスキャンXAFSでも利用可能であり、2016B期よりユーザ提供を開始している。

測定例としてFe-KおよびMn-K端のQXAFS連続測定の結果を図1に示す。試料は MnFe_2O_4 で45° 蛍光配置で測定している。

3. XAFS 標準試料データベース

SPring-8実験データリポジトリシステムを活用してBL14B2で測定した様々な標準試料のXAFSスペクトルデータ、測定条件、試料情報を収録した、XAFS標準試料データベースを構築した。本データベースには、BL14B2で測定した様々な標準試料のXAFSスペクトルデータ、測定条件、試料情報を収録している。本データベース上のデータは、パソコンのブラウザから閲覧及びダウンロードが可能である。2016年度末(2017年3月31日)の時点で本データベースには、15元素、268試料のXAFSスペクトルデータが収録されている。本データベースは、SPring-8実験データリポジトリサイト(URL: <https://sp8dr.spring8.or.jp/>)からログインした後、トップページメニューの「各BLのリポジトリブラウズ」→「BL14B2」から閲覧することができる。本データベースは、SPring-8 User Information(URL: <https://user.spring8.or.jp/>)にユーザ登録している方であれば誰でも利用することが可能で、詳細(登録試料、マニュアル等)及び最新情報については、SPring-8 産業利用推進室のホームページ内のBL14B2サイト内にあるXAFS標準試料データベースのホームページ(<http://support.spring8.or.jp/xafs/standardDB/standardDB.html>)に掲載している。

本データベースに登録した標準試料には、組成、結晶

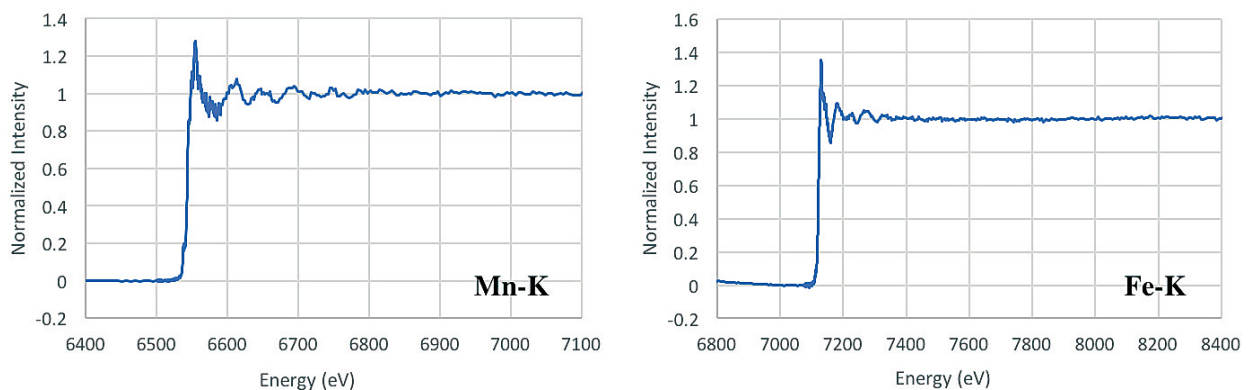


図1 MnFe_2O_4 のMn-KおよびFe-K端連続測定の結果。モノクロ: Si (111)、動作範囲 18.575 ~ 13.235° (ステップ -0.00084°)、Dwell = 10 ms



図2 XAFS標準試料データベース画面

構造、純度等など、試料の素性が既知である市販の純金属及び化合物を用いた。純金属は箔状、化合物は窒化ホウ素と混合しペレット化したものをXAFS測定に用いた。潮解性や吸湿性など、大気雰囲気で不安定な試料については、グローブボックス内(酸素濃度及び水分値：1ppm以下)で試料を調製し、ガスバリア又はラミネートで封入した上で測定を行った。

図2にXAFS標準試料データベース内の閲覧画面を示す。閲覧画面は画面上部の「メニュー表示」、左側の「ツリー表示」、右側の「該当データ」により構成される。ツリー表示は吸収元素、吸収端(K又は L_I , L_{II} , L_{III})、分光器の結晶面(Si (311)又はSi (111))、標準試料名の順でフォルダが階層化されており、ツリー表示で選択された一段下のフォルダに関する情報が該当データ欄に表示される。データベースには3種類の実験データ(拡張子: dat, ex3, txt)、及び実験データの詳細情報(README, CSV)が登録されている。実験データのファイル形式は、拡張子datが9809フォーマット、ex3とtxtがそれぞれXAFS解析ソフトウェアREX2000、Athenaで読み込み可能な形式である。また、README.csvファイルには、標準試料に関する情報や測定条件が記載されており、Excelやテキストエディタを用いて閲覧可能である。実験データ及び詳細情報はzip形式で圧縮された状態でブラウザからダウンロードすることができる。

産業利用推進室 産業利用支援グループ
高垣 昌史、大淵 博宜、本間 徹生

BL19B2 産業利用 I

BL19B2は産業界による放射光利用を目的としており、産業界の多様なニーズに対応するため、イメージング装置、多軸X線回折計装置、粉末回折装置および小角X線散乱装置といった複数の装置が設置されている。2016年度は、イメージング装置において、2015年度に開発した凍結試料X線CT測定用試料冷却装置の温度制御性改善および防霜対策を行って装置の操作性を向上させた。多軸X線回折装置においては、同一視野その場XRD・XAFS測定システムの開発を行った。小角X線散乱装置では、試料搬送ロボットの試料搭載部を改造し、ガラスキャピラリーに充填した試料を測定する際のユーザーの作業量を半減させた。以下に各装置の詳細を記す。

イメージング装置

BL19B2のイメージング装置では、食品分野の新規利用ニーズ開拓を目的として、冷凍食品の氷組織のX線CT観察技術の開発を行っている。主な技術的課題は試料を冷凍保持する技術であり、試料冷却装置（凍結試料X線CT測定用試料冷却装置）の開発に注力している。CT測定では試料を回転させることが必要であるため、本装置はX線が透過する窓を開けた筒（吹付筒）で試料を覆い、その中に液体窒素蒸気を通して約 -30°C 程度に維持することを実現している。この実験を効率的に行うため、

2016年度は以下の2項目の改良を行った。第一に吹付筒の防霜を目的として、液体窒素を吹き付ける内筒の外に二重の外筒を設け、外筒の内側にヒーターで室温程度の温度に制御した乾燥ガス（空気もしくは窒素）流すように改めた（図1(a)）。更に、試料温度の制御性を向上させるため、液体窒素蒸気の吹付量及び温度の制御が可能な液体窒素供給装置を導入（図1(b)）した。以上の改良により、冷凍食品を対象としたX線CT実験を安定的かつ効率的に実施することが可能となった。

多軸X線回折計装置

産業利用推進室では燃料電池材料分野をターゲットとし、新規利用者開拓のため潜在的なニーズ探索を行っている。その候補の一つとして、電気化学反応中の触媒材料の化学状態および結晶構造その場観察技術が挙げられる。燃料電池で使用される触媒の活性は、化学状態や結晶構造などに依存している。したがって同一視野でのその場XRD・XAFS測定を実現することで結晶構造と化学結合状態の同時評価が可能となり、触媒の活性や耐久性向上につながる詳細な知見の獲得が期待される。そこで2016年度は、同一視野によるその場XRD・XAFS測定のための計測システムの開発に取り組んだ。

図2は、多軸X線回折装置を用いたその場XRD・

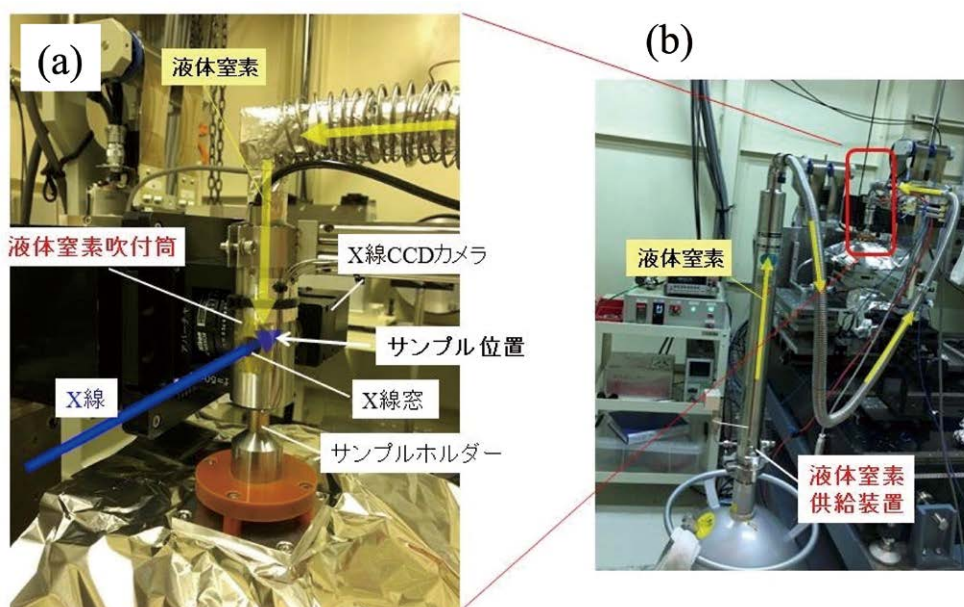


図1 改良型のX線CT装置用試料冷却装置。

(a) 液体窒素蒸気吹付筒を設置した試料回転ステージ周りの外観、(b) 液体窒素供給装置外観。

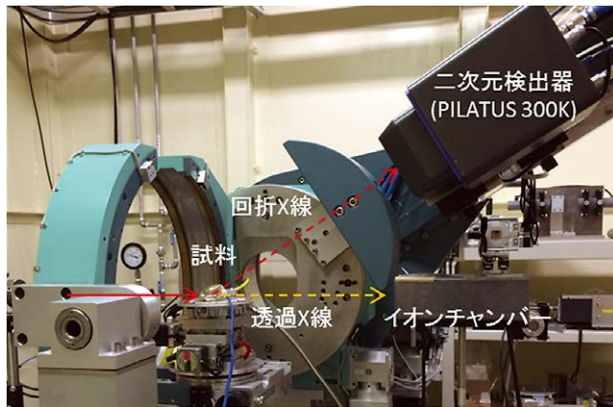


図2 その場XRD・XAFS測定システムの概略写真。

XAFS測定システムの概観写真を示す。試料を透過する直前と直後のX線強度を計測するため、多軸回折装置の上・下流部に電離箱を設置した。さらに、X線回折強度を取得するための二次元検出器を試料の下流側に設置した。これらの測定で得られたZn箔標準試料のXRDパターンおよびXAFSスペクトルを図3に示す。この例では、はじめにX線エネルギー9.5 keV、露光時間30秒の条件でXRDパターンを測定した後、ステップスキャン方式の分光器駆動でZn-K吸収端におけるXAFSスペクトルを測定している。このような実験装置配置を構築することによって、同一視野でのXRDパターンおよびXAFSスペクトルが取得可能となった。

小角X線散乱装置

BL19B2の小角X線散乱装置では、2012年度に開発した試料自動搬送ロボット (HummingBird、図4) を利用して、室温大気圧下の完全自動 (無人) 測定が実現している。このロボットは、板状・棒状など様々な試料形態にも対応可能であり、液体など流動性がある試料は、市販のガラスキャピラリー (長さ約80 mm) に充填して棒状試料として測定できる。ロボット本体は、30個の試料をマウントできる試料カセットを3個搭載する3段構造

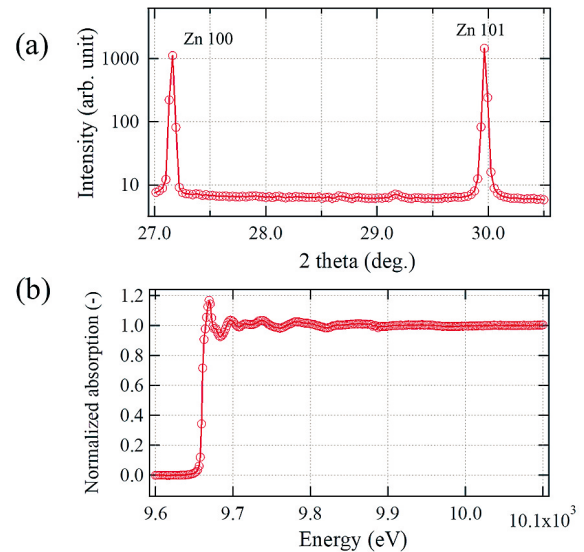


図3 Zn箔標準試料の(a)XRDパターンと(b)XAFSスペクトル。

(図4(a)の青の部分) になっているが、中および最下段に載せる試料には高さに70 mmまでの制限があった。そこで、中段のカセット搭載部を脱着可能な機構に改造することで、最下段の高さ制限を大幅に緩和することができた (図4(b)の赤の部分)。図4(c)は最下段にキャピラリーをマウントした状態を示している。この改造によって、従来の高さ制限 (青線) より高い試料も多数 (2段分) 搭載可能となり、試料交換回数を半減させ、一層効率よく測定ができるようになった。

産業利用推進室

産業利用支援グループ

大坂 恵一、渡辺 剛、佐藤 眞直

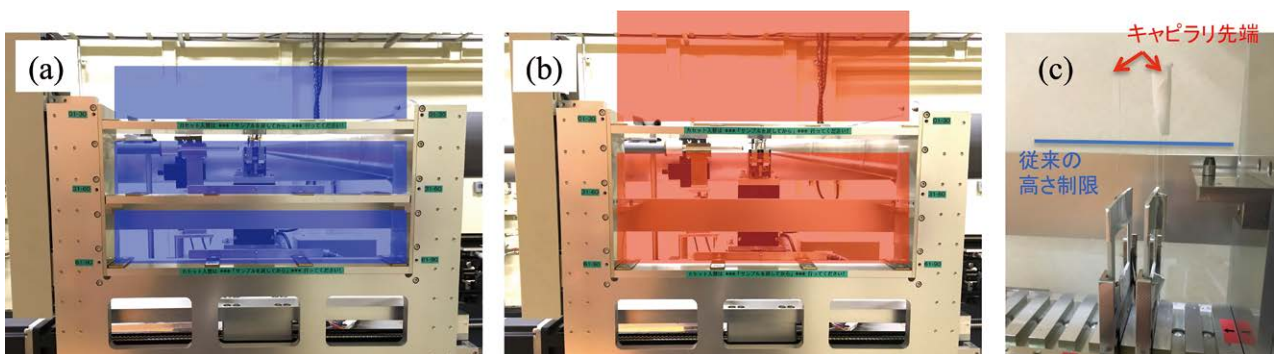


図4 試料カセット搭載部を改造した小角X線散乱測定用試料搬送ロボットHummingBird。(a) 改造前 (青はカセット搭載部3段)、(b) 脱着可能な構造に改造後 (赤はカセット搭載部2段)、(c) 中段を取り外して最下段にマウントしたガラスキャピラリー。

BL20XU

医学・イメージングⅡ

1. 概要

BL20XUはハイブリッド型アンジュレータを光源にもつ全長約250 mの中尺ビームラインである。蓄積リング棟内にある実験ハッチ1(光源より80 m)および中尺ビームライン実験施設内にある実験ハッチ2(光源より245 m)があり、両方でマイクロCTや、これにX線回折を組み合わせたXRD-CT、各種in-situ、operandoイメージング測定が実施されている。どちらのハッチを使うかは必要とされるフラックス密度、視野、コヒーレンス等に応じて使い分けられているが、極小角散乱実験や、現在開発中の高エネルギーX線結像顕微鏡では両方のハッチを利用した実験も行われている。

2. アポダイゼーションFZPの開発

X線顕微CTは、X線結像顕微鏡光学系を利用した高分解能3Dイメージング用CT装置として、BL37XU、BL47XUでユーザー共用実験が実施され、BL20XUでも共用実験に向けた開発が進められている。シンプルな投影光学系を利用したマイクロCTの空間分解能が約1 μm 程度に制限されているのに対して、このX線顕微CTは空間分解能100nm前後3Dイメージングが可能であることから、ナノCTとも呼ばれる。対物素子にフレネルゾーンプレート(Fresnel zone plate, FZP)を用いており、様々な分野で利用されている。このナノCTのベースとなるX線結像顕微鏡光学系にはしかしながら、視野周辺部において周期フリッジ、エッジ強調、疑似コントラストが生じやすくデータの定量性を著しく損ねるという問題が指摘されていた。原因は以下のとおりである。結像光学系で得られる像は試料の透過率関数と光学系の点像分布関数(point-spread function, PSF)の畳み込みで表される。ここで、対物素子の開口関数とPSFはフーリエ変換の関係にあり、一般に対物素子は円形或いは矩形の開口を持つので、そのPSFはベッセル関数或いはシンク関数として知られる。これらの関数はメインピークの周囲にリップルと呼ばれる複数のサイドピークを持つが、Off-axis条件(視野周辺部)ではこれが畳み込みの結果試料の位相成分に応じたフリッジノイズを形成する。つまり、理想的な無収差レンズであってもこれらのノイズは発生するというを示し、さらに、位相成分を反映しているので、吸収の小さい試料であっても強いコントラストを生じる。しかし逆にいえば、PSFにリップルがなければノイズの

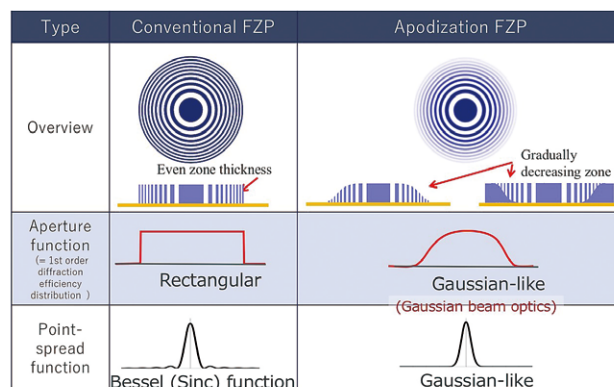


図1 従来のFZP(左側)とアポダイゼーションFZP(A-FZP, 同右側)の模式図。従来のFZPは様なゾーン厚みを持つのにに対し、A-FZPは素子周辺部に行くに従い厚みが徐々に小さくなる(上段)。これにより開口関数はガウシアン様の形状(中断)、フーリエ面に相当する点像分布関数もガウシアンを示し(下段)、ガウシアンビーム光学系を形成する。

発生を抑えることができる。リップルの無いPSFの一つにガウシアンがあるが、たとえば、対物素子がガウシアンのような明確な境界を持たない開口をもつとき、ガウシアンのPSFが実現できる。このように、リップルを抑えるためにフーリエ面に適当なフィルタを乗ずることをアポダイゼーションとよぶ。この事を利用して、X線結像顕微鏡のフリッジノイズの除去を目的としたアポダイゼーション機能付きFZPが開発された^[1,2]。概念図を図1に示す。FZPの開口関数は1次回折効率分布で表すことができる。通常のFZPの場合は、中心から周辺部まで様なゾーン深さを持っており、故に明確な円形或いは矩形で定義される開口関数を持つ(図1左)。一方で、図1右に示すように、素子周辺部にいくにつれてゾーン厚さが小さくなるような構造をFZPが持つ場合、回折効率も周辺部で徐々に低下し、明瞭な境界を持たないガウシアンライクな開口関数、つまり自ずとアポダイズ開口付きFZP(apodization FZP, A-FZP)となる。NTT-ATに製作を依頼したA-FZPの性能評価として、マイクロビームナイフエッジスキャンによって測定した集光プロファイルを図2に示す。8 keVのX線に対して、最外線幅50 nmに対してスポット半値幅55 nmとほぼ回折限界に近い集光が得られていることを示している。また、その裾野を見ると、リップルがかなり抑えられており、ガウシアンに近いプロファイルとなっていることがわかる。このFZPは既にナノCT装置に導入されており、実際に像特性の向

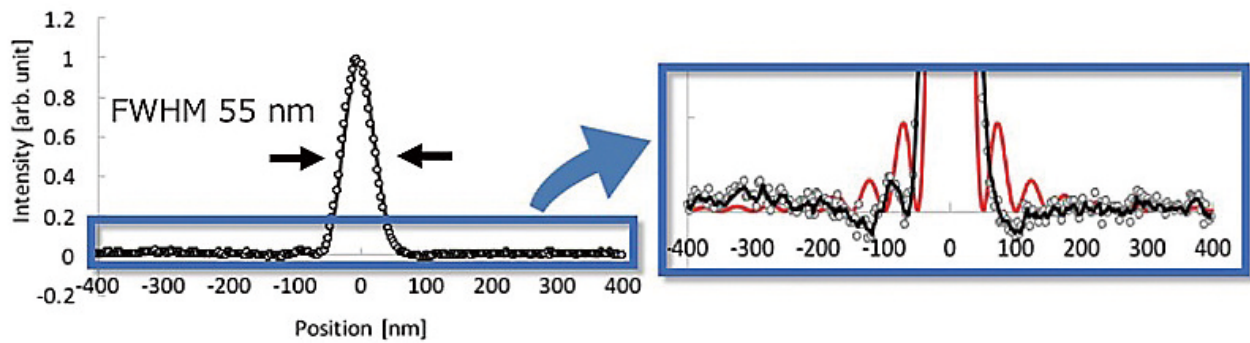


図2 A-FZPによる集光スポットプロファイル（左）。X線エネルギー 8 keV、マイクロビームナイフエッジスキャンにて測定。素子最外線幅 50 nm に対して集光スポットの半値幅 55 nm とほぼ回折限界に近い集光が得られている。右図はプロファイル裾部分の拡大。赤線で示した従来の FZP の集光プロファイル（理論値）と比較して、リップルが抑えられているのが分かる。

上に繋がる成果を挙げている。更に、A-FZPには他の利点がある。この素子は通常のFZPと違って、外周側のゾーン深さを内周側と同じにする必要がないため、より高分解能な素子、あるいはより高効率な素子を作りやすい。FZPを利用したX線顕微鏡は現状 10 keV 前後のエネルギー領域でしか利用できなかったが、A-FZPのこの特性を利用して、BL20XUにおいて 20-30 keV 程度の高エネルギー領域X線顕微鏡の開発が進められている。

参考文献

- [1] A. Takeuchi *et. al.*, *J. Synchrotron Rad.* **24** (2017) 586.
- [2] A. Takeuchi, *et. al.*, *J. Phys. Conf. Series* **849** (2017) 012055.

利用研究促進部門

バイオ・ソフトマテリアルグループ

竹内 晃久、上相 真之

BL20B2 医学・イメージング I

1. 概要

BL20B2は偏向電磁石を光源とした中尺ビームラインであり、蓄積リング棟内の実験ハッチ1および中尺ビームライン実験施設内の実験ハッチ2、3において、X線マイクロCTをはじめとしたイメージング（画像計測）実験等に利用されている。リング棟内にある実験ハッチ1では主に高い光束密度を必要とする高分解能計測や高速撮影を行う。光源から200m以上離れた下流実験ハッチ2、3では、質の良い大面積単色X線ビームを利用することが可能であり、空間コヒーレンスを必要とするX線の位相情報を用いた画像計測を行うことが可能である。

2. 材料試験器も兼ねたCT装置の開発

X線CT法は物体の構造を3次元で取得できる手法である。BL20B2では、X線CTの計測条件の最適化や最新型の検出器を導入することで計測時間を短縮させてきており、特定の条件下（空間分解能10 μm 程度、15-30 keVあたり）では計測時間は1分以下とすることも可能である。この比較的短い計測時間を利用して、物体の変形や吸水・燃焼の様子をとらえるような実験が行われている。また繰り返しが可能な弾性変形過程では、数ミリ秒の時間分解能での変形挙動を捉えることも可能となっている。材料の破壊や変形の過程を可視化するために、材料試験機を持ち込むユーザー実験もあるが、いくつかの点で放射光画像計測実験に最適化されているとは言い難い。一つは荷重を支えるためのポリマー筒や支柱の存在である。もう一つは試験機としては非常にゆっくりとした高精度な動作を要求されるものの、それを満たすような機器が販売されていないことである。ポリマー筒や支柱は画像に偽像を発生させる。これは視野の外側における物体の存在がその理由となる。また、材料の機械的変形速度はX線画像計測（特にデータ取得に時間がかかるCT計測）においては極めて遅い必要がある。具体的には、毎秒あたり0.1ミクロンから数ミクロン程度の移動量が限界となる。これ以上の速度での動作は、CT再構成像における偽像（モーションアーチファクト）の原因となる。

2016年度はこれらの問題を克服し、非定常状態における材料の変形挙動を計測するための装置を開発し共同利用装置として公開した。装置写真を図1に示す。装置の製作は神津精機による（型式名SPU-12）。支柱内側の上下に回転機構を備えており、試料が回転しても支柱が視野

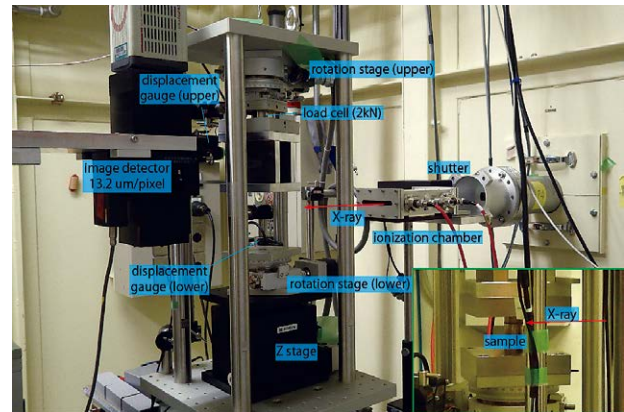


図1 BL20B2実験ハッチ1に設置された装置（神津精機製SPU-12）。最大2 kNの加重まで回転状態で計測可能。

を横切る事はない。また、加重とステージの変位を同時に計測する事が可能である。荷重計（引っ張り圧縮とも最大2 kN）はスリップリングで上側回転ステージ上に接続されており、連続回転に対応している。本稿執筆時点では、上下ともに高さ調整機構を有するように改良がなされ、試料を中心とした引っ張りおよび圧縮が可能となった。上下の取り付け板間に20 cm以上のスペースを設けているため、電気炉などの外場をかける装置が比較的簡単に設置可能である。

この装置を使用して粘弾性体であるStyrene-butadiene rubber (SBR)の引っ張り時における破壊挙動を可視化する試みを行った^[1]。計測は実験ハッチ1において行われた。主な計測条件は次のとおりである。X線エネルギー：25 keV、実効画素サイズ：13.2 μm 、露光時間：5 msec/projection、視野：26.4 mm(横) × 3 mm(縦)、投影数：900、引っ張り速度：2 $\mu\text{m}/\text{sec}$ 。1回のCT撮影に要する時間は7.5 secであった。図2に400秒間(0.8 mmに相当)引っ張り、その後600秒間保持したときの画像データを示す。この計測では約130回分のCT連続撮影が行われた。総データ量はおよそ100 GB程度となった。ロードセルのデータからは、引っ張りを停止させた直後からSBRの緩和が始まり、加重が小さくなっていく様子が見られた。画像からはSBRの緩和に伴い、広がっていくボイドと収縮していくボイドの2種類が存在していることが分かった。

3. まとめと今後の展望

計測技術の進歩により高速測定が可能となった。そう

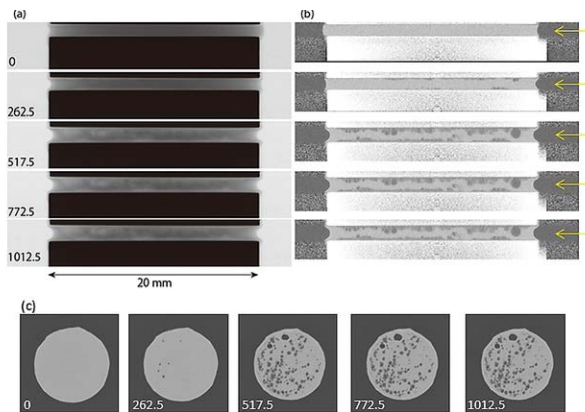


図2 SBRゴムの引っ張り試験の様子を時系列順にならべたX線画像。ゴムの上下には固定用の金属治具が貼り付けてある。各画像の数値は撮影開始からの時間（秒）を示している。開始から400秒で引っ張りの変位を停止させた。(a)透過X線。(b)CT像のスタックから中心付近の縦断面を切り出した。(c)(b)の黄色の矢印の位置のCT像。

なると動的観察への期待が高まる。実際にBL20B2で行われている実験は静的なものよりも動的な現象の観察の方が多い。そのうち1/3程度は動物実験であるが、金属材料や岩石系の実験も多い。本稿で示した装置は、すでにいくつかの課題で使用されはじめ、成果が出つつある。今後はこの装置のポテンシャルを引き出していくような試験研究が増えるであろう。具体的にはねじれの計測や電気炉の導入による溶解や流体の計測である。BL20B2ではこれ以外にも様々な動的観察を行っており、それらで培った技術を有機的に連携させ、今後の課題遂行をスムーズに進めていく予定である。

参考文献

- [1] K. Uesugi, M. Hoshino, H. Kishimoto and R. Mashita, *Proc. SPIE* **9967**, “Developments in X-Ray Tomography X”, 99670V (2016)

利用研究促進部門

バイオ・ソフトマテリアルグループ

星野 真人、上杉 健太郎

BL25SU 軟X線固体分光ビームライン

1. はじめに

BL25SUは、ツインヘリカルアンジュレータを光源とする共用の円偏光軟X線ビームライン(BL)であり、1998年の供用開始から現在まで固体物性分野を中心に各種軟X線分光研究が中心的テーマとなっている。2013B期の利用実験終了後、ナノ・マイクロビームの利用基盤整備を目的としたアップグレード改造を行い、2014A期のコミッショニングを経て、2014B期から供用を再開した^[1-3]。改造後のビームラインは、高いエネルギー分解能のマイクロビーム利用を推進するAブランチと、角度発散の小さい光学設計でナノビーム利用を推進するBブランチで構成した。以下では、利用課題実施状況、成果状況、および、機器整備の状況について報告する。

2. 利用課題実施状況

図1に、2016A期と2016B期における課題種別実施シフト割合を示す。2014A期から継続中のPU課題は、軟X線ナノビームの利用技術である走査型軟X線MCD顕微測定技術の開発と、その先導的利用研究に関するものである。また、2015A期から継続中の長期利用課題が2件、2015B期から継続中の新分野創成利用課題が1件含まれている。一般課題の採択率は低い状態が続いているが、2015年度と比較して増加傾向にある。

図2に各ブランチと各実験装置の利用割合を示す。2016年度における各ブランチの利用割合は概ね同程度と

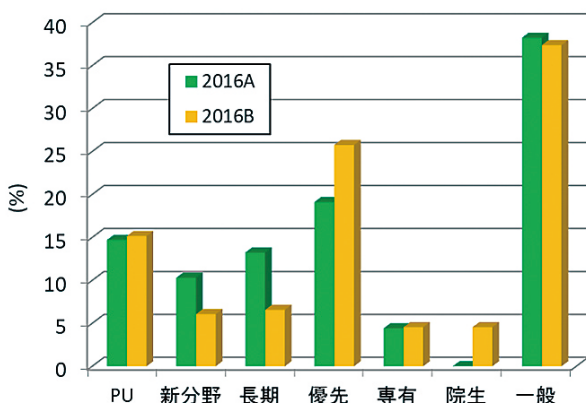


図1 2016A期、2016B期の課題種別実施シフト数の割合。縦軸は、ユーザー実験の全シフト数に対するシフト数の割合(%)を表す。“PU”、“新分野”、“長期”、“優先”、“専有”、“院生”、“一般”は、それぞれ、パートナーユーザー(PU)課題、新分野創成利用課題、長期利用課題、成果公開優先利用課題、成果専有課題、大学院生提案型課題、一般課題である。

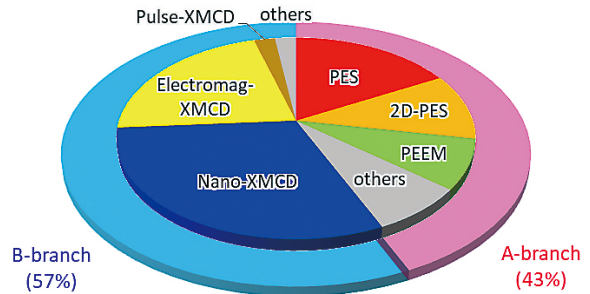


図2 2016年度におけるブランチと各実験装置の利用シフト数割合 (BL担当者調べ)。2D-PES (二次元表示型光電子アナライザー)、PEEM (光電子顕微鏡)、PES (光電子分光装置)、Pulse-XMCD (パルス強磁場軟X線MCD装置)、Electromag-XMCD (電磁石式軟X線MCD装置)、Nano-XMCD (走査型軟X線MCD顕微鏡装置)。Othersは、一時的な持ち込み装置や開発中の機器の利用実験に相当する。

なった。また、PU課題、成果公開優先利用課題、新分野創成利用課題で利用された走査型軟X線MCD顕微鏡装置と電磁石式軟X線MCD装置の利用率が高い。

3. 成果状況

2016年度に出版された査読付き論文数は、2017年3月31日時点で33件の登録(1998年～2016年度の総数は420件)であり、直前の5年間の平均と比較して17%増加した。2015年度は直前の5年間の平均と比較して25%減少していたが、これは2014A期のコミッショニング期間が影響していた可能性がある。改造後のビームラインが安定的に稼働し始めた結果、論文報告が順調に行われ始めたものと考えられる。

4. 光学系、および、実験装置の状況

4-1 ビームライン光学系

これまでAブランチでは、改造前のビームラインで使用していた回折格子を再利用していたが、2015～2016年度にかけて光学パラメーターを最適化した回折格子への更新を行ってきた。まず、2015年度に300本/mmと1000本/mmの回折格子を更新した。さらに、2016年度に600本/mmの回折格子を更新し、すべての更新を完了した。その結果、光エネルギーやエネルギー分解能に応じて適切な回折格子を選択して利用することが可能になった。

4-2 二次元表示型光電子アナライザー装置 (A-branch 第1ステーション)

一度に 1π sr の広角光電子放出角度分布を測定できる分析器の特徴を生かし、表面敏感光電子ホログラフィー^[4]、円偏光共鳴光電子回折による原子軌道解析^[5]、顕微光電子回折^[6] など独自の手法開発を展開してきた。2016年度は、グローブボックスからの試料導入を可能にし、開発中の真空試料搬送スーツケースにも対応するため、試料導入槽・搬送槽を一新した。また、W-ドーピング ZnO₂ ガスセンサ表面^[7] や SiO₂ / SiC パワーデバイス界面の N 原子周辺の局所構造解析^[8] など、様々な原子構造解析の応用研究も進んでいる。継続的な保守により、装置は安定的に稼働している。

4-3 光電子顕微鏡装置 (A-branch 第2ステーション)

光電子顕微鏡 (PEEM) 装置 (PEEMSPECTOR, ELMITEC GmbH) は、パルスレーザー等の外場励起と放射光を同期した時間分解測定を特徴として利用されている。2016年度は2015年度に引き続き、イメージングカラム周辺の絶縁低下の対策を行い一定の効果は得られたが、未だ安定的な運用に至っていない。装置の老朽化が大きな原因であるため、より先端的な新型機器への更新が必要である。

4-4 光電子分光装置 (A-branch 第3ステーション)

本装置は、2014年度に新たに導入した角度分解光電子分光 (ARPES) 装置である。斜入射配置の採用により、従来の BL25SU の ARPES 装置と比較して感度が約 1 桁向上した。また、ディフレクター付き光電子分析器 (Scienta Omicron 製 DA30 型) により、試料の角度を固定したままでの ARPES 測定が可能になった。2016年度は利用実験が順調に行われた。2017年度にマイクロビーム化の装置改造を予定している。

4-5 パルス強磁場軟 X 線 MCD 装置 (B-branch 第1ステーション)

B-branch 第1ステーションは装置をレールで退避できる機構を有するため、目的に応じて様々なアプリケーションを組み込むことが可能である。2016年度は時間分解測定のための X 線チョッパー装置やユーザー持ち込み装置を設置して放射光実験を実施した。

4-6 電磁石式軟 X 線 MCD 装置 (B-branch 第2ステーション)

部分蛍光収量法による XMCD 測定の高精度化を目的として、新たに高計数読み出し器 (英国・Quantum 社: Xspress 3) を導入した。これと 4 素子シリコンドリフト検

出器 (SDD) と組み合わせて使用することで、信号カウント数で 10 倍以上の高精度 XMCD 計測が可能となった。

4-7 走査型軟 X 線 MCD 顕微装置 (B-branch 第3ステーション)

本装置は、元素戦略プロジェクト<磁性材料研究拠点>の助成を受けて開発された。100 nm 以下の高い空間分解能を有し、強磁場下で元素選択磁気マッピング測定ができる特徴がある。2016年度には計測回路の低ノイズ化と計測ソフトウェアの効率化を図り、60 μm × 60 μm の視野を約 7 分間で観察できるようになった。これは 2014 年の装置の立ち上げ直後と比較して 20 倍以上の高速化に相当し、より多数の測定ポイントや磁場依存性の観察などに対応することが可能となった。一方、超伝導磁石で印加可能な磁場が当初の 8 T から約 5 T に性能低下している問題への対応が課題となっている。

参考文献

- [1] 中村哲也ら: SPRING-8 利用者情報, **19** (2014) 102-105.
- [2] 中村哲也ら: SPRING-8/SACLA 利用研究成果集, **3(1)** (2015) 186-200.
- [3] Y. Senba *et al.*: *AIP Conference Proceedings* **1741** (2016) 030044.
- [4] F. Matsui *et al.*: *Sci. Rep.* **6**, (2016) 36258.
- [5] F. Matsui *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **114**, (2015) 011501.
- [6] K. Sugita *et al.*: *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* **14**, (2016) 59.
- [7] S. Fukami *et al.*: *Phys. Rev. Appl.* **7**, (2017) 064029.
- [8] D. Mori *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **111**, (2017) 201603.

利用研究促進部門 分光物性Ⅱグループ

中村 哲也、小谷 佳範、室 隆桂之

大河内 拓雄、松井 文彦

光源基盤部門 光学系・輸送チャンネルグループ

大橋 治彦、仙波 泰徳

BL27SU 軟X線光化学ビームライン

BL27SUは、8の字アンジュレータを光源とする直線偏光軟X線ビームラインである^[1]。ビームラインは異なるエネルギー領域の軟X線を供給する二つのブランチから構成されており、広帯域の高輝度軟X線を利用できることが一つの特徴である。高エネルギーブランチ(Bブランチ)では、Si(111)結晶分光器を利用して2.1～3.3 keVの高エネルギー領域の軟X線を、低エネルギーブランチ(Cブランチ)では回折格子型分光器を利用して、0.17～2.2 keVの低エネルギー軟X線が利用可能である。主要な分析手法は、軟X線吸収分光・蛍光X線分析・軟X線発光分光などの分光分析や、軟X線マイクロビームを利用した走査型軟X線顕微測定による軽元素分布の観察、吸収分光と顕微観察を組み合わせた化学状態マッピングなどである。また、差動排気や真空窓を使用することで、大気圧環境(ヘリウムパスもしくは密封試料)から高真空まで、試料特性に合わせて幅広い圧力条件下で測定条件を選択することができる^[2]。本稿では、2016年度のビームラインの利用状況ならびに、整備状況について報告する。

1. 2016年度の課題申請状況

2016年度(2016Aおよび2016B期)に申請された課題は65課題であり、その中から48課題が採択・実施された。図1に、研究分野ごとの申請課題数を示した(長期利用課題は期間を通じて1課題として計上している)。最も課題申請が多い研究分野は、電池材料開発を中心とした電気化学分野(20件:全体の31%)であった。これらの課題は、大部分が*operando*観察による動作中の電極や電解液の反応過程解析、あるいは、反応中の活性種を直接分析することを目指した研究である。ここ数年、電池開発に関連する研究課題は継続して高い比率を占めており、今年度も引き続き同様の傾向がみられた。電気化学分野以外では、希少金属を使用しない触媒開発(5件:全体の7.6%)や、軽元素を主原料とした構造材料開発(8件:全体の12.3%)など、近年社会的要請が強い元素戦略や省エネルギー対策を指向した研究課題が高い比率を占めている。

一方で、地球化学分野(14件:全体の21%)や文化財(4件:6.1%)を対象とした課題が多いことは、他施設の軟X線ビームラインとの比較も含めて、このビームラインの特徴となっている。これらの分野の利用申請も、近年では継続して20～30%程度の割合を占めるようになっており、軟X線を利用する新しい研究分野の一つとし

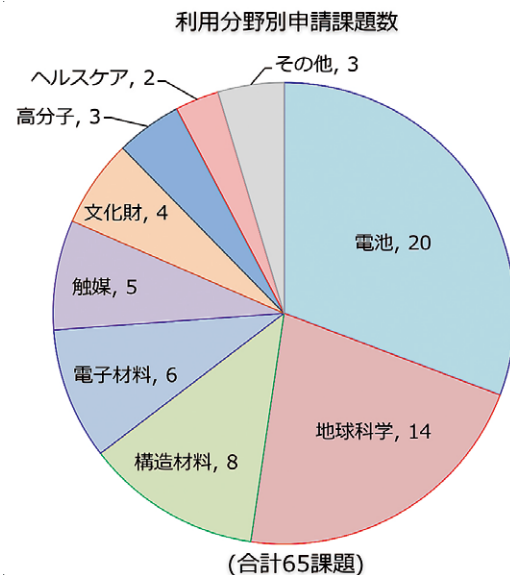


図1 2016Aならびに2016B期に申請された、研究分野毎の課題申請数。図中の数値は、各分野の申請課題数を示す。ここで示すデータは、課題申請書を基にビームライン担当者が分類したものである。なお、長期利用課題は、期間を通して1課題として扱った。

て定着してきたものと思われる。試料環境の自由度が高いことにより、従来の軟X線利用では限定的であった含水性試料や制御雰囲気下を必要とする分析など、多彩な分野に対して軟X線分光の利用が波及していることがうかがえる。

2. ビームラインの整備状況

BL27SUは、ビームラインの建設から15年以上が経過している。現在の課題申請やビームラインの利用状況を踏まえて、2013年から段階的に、利用頻度が低い装置の整理統合ならびに廃棄作業を進めてきた。整理統合の対象となった機器は、大部分がビームラインの建設期に導入されたものである。2016年度には、反応性試料の除害装置の撤去・廃棄作業を完了させた。それにより、稼働率が低い大型機器の撤去作業が完了した。光軸上の有効利用スペースが拡大したことにより、今後は利用者による持ち込み装置の受け入れ体制を充実させることを計画している。受け入れ可能な装置の自由度を向上させることにより、最先端の挑戦的な課題の受け入れを積極的に進めてゆく予定である。

また、常設の汎用装置の一つとして、新たに深さ分解

軟X線吸収分光装置の整備をおこなった。本整備では、軟X線の表面感受性を活かして、材料の表面・界面近傍の化学状態をnm分解能で深さ分析することを可能とする。それにより、表面が寄与する高機能材料の開発や、材料の耐久性向上などを指向した研究を積極的に支援することを目的としている。将来的には、二次元の顕微XAFSと組み合わせることにより、三次元ナノ化学状態分析基盤として整備を進めてゆく予定である。本報では、現在の装置の概要および、整備状況について報告する。

2-1 深さ分解吸収分光測定法の開発

内殻正孔の緩和過程で放出される光電子や蛍光X線強度は、正孔を生成するX線の吸収量に比例する。そこで、軟X線の領域ではこれら二次生成物の収量変化を励起エネルギーの関数として計測することで、吸収分光を行うことが一般的である。その際、検出する二次生成物によって試料からの脱出深さが異なることを利用して、試料表面からの深さに応じた化学状態分析が広く普及している。例えば、一般に、全電子収量法による吸収分光測定では試料表面から数nm、蛍光法では表面から数百nm～1 μm部分の化学状態が反映されていると言われている。この様に、試料内部を非破壊で分析できるX線分析は、試料の化学状態を深さ方向に分析可能な有力な分析手段の一つである。

一方で、表面から進行する反応の表面・界面の分析や、

試料内部に断層構造を有する試料においては、上述の手法では深さ分解能が不足する。高い深さ分解能で表面・界面を観察する手段の一つに、X線励起された試料から放出される二次生成物の角度依存性から、深さ方向の情報を得る方法がある。例えば、オージェ電子の角度分布を利用した吸収分光測定により、表面極近傍の数原子層の磁性薄膜の評価例が報告されている^[3]。ここでは、より分析深度が深い蛍光X線を用いることで、表面からバルク(～数100 nm)に至る試料の化学状態変化を断層的に分析するための基盤整備を行った。

深さ分解測定の原理を図2(a)に、また、整備した装置の外観を図2(b)に示した。本手法では、蛍光X線の出射深さ(すなわち、分析深さ)が、蛍光X線の放出角度に依存することを利用する。測定では、試料に対して垂直にX線を入射し、入射X線に対して直交する位置に位置敏感型軟X線検出器を配置した。位置敏感型検出器には、画素サイズが13 μm、有効画素数が1024×1024ピクセルの背面照射型CCD検出器(BITRAN社製BK-501X)を使用した。試料の深部で生じた蛍光X線は試料外への脱出途中で減衰するため、外部に放出される蛍光X線の角度分布は発光点の深さに依存する。そのため、入射X線を基準として蛍光X線の出射角が大きな領域には、主として表面近傍で生じた蛍光X線のみが放出される(図(a)の赤線)。一方、放出される蛍光X線が試料中を透過する距離が短くなる入射X線方向に対しては、試料深部からの蛍光X線も試料外に放出されるため、出射角が小さな領域では試料内のバルク領域で生成した蛍光X線も検知される(図(a)の青線)。これらの特性を利用し、位置敏感型検出器の各ピクセルで検知される蛍光X線強度の差分を解析することにより、深さ方向の化学状態を断層的に解析することを試みた。

図3に、本装置の評価測定の結果を示した。評価試料

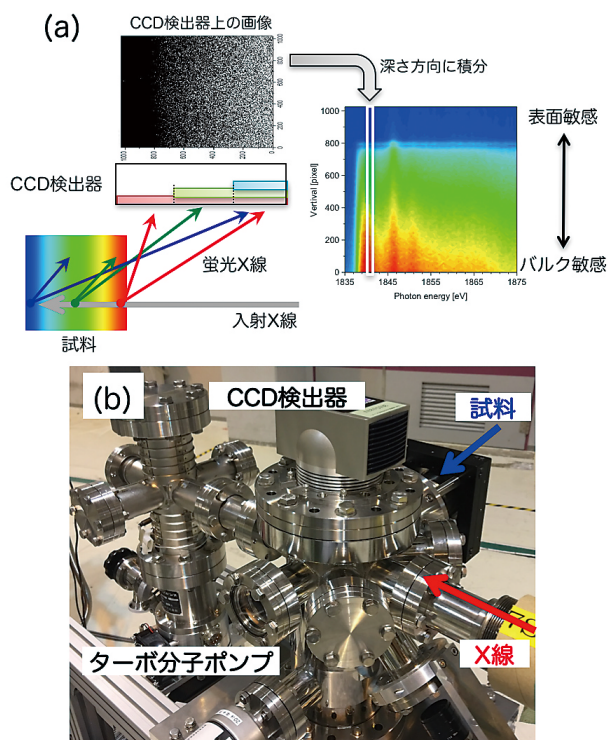


図2 (a) 蛍光X線の脱出深度の角度依存性を利用した深さ分解測定法の原理、(b) 使用した深さ分解測定装置の外観

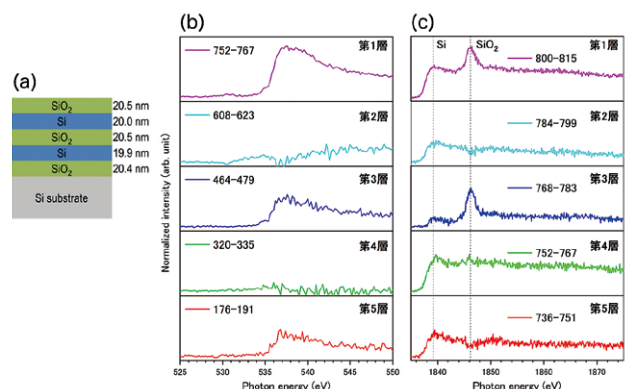


図3 (a) 深さ分解測定用の標準試料(NMIJ CRM5202-A)の概略図、(b) 酸素のK殻領域で測定した深さ分解吸収スペクトル、(c) ケイ素のK殻領域で測定した深さ分解吸収スペクトル

には、産総研が供給している深さ分解測定用の標準試料(NMIJ CRM5202-A)を使用した。試料の構造は、20 nm厚のSiO₂層とSi層が交互にシリコン基板上に5層積まれた形状である(図3(a))。図3(b)(c)には、それぞれ酸素ならびにケイ素のK殻吸収端で測定した軟X線深さ分解吸収測定の結果を示した。各スペクトル中で示した数値は検出器のピクセル番号に対応し、ピクセル番号が増大するにつれてバルクから表面へと対応している。いずれの測定も、16ピクセルごとにスペクトル強度を積分した後、隣り合った領域との差分を求めることで各層のスペクトルを得た。

酸素のK殻における測定では、信号を検出するピクセル領域に依存してスペクトルが交互に現れることが確認された[図3(b)]。この現象は、酸素を含むSiO₂と含まないSiが交互に積層していることと対応しており、また、得られたスペクトルはSiO₂の文献とも対応していることから、試料内部を断層的に化学分析できていることが確認された。また、20 nm厚の各層を16ピクセルで検出できていることから、1ピクセルあたりの深さ分解能は1.25 nmに相当すると見積もられた。同様に、ケイ素のK殻領域においても、深さ方向に対してスペクトルが交互に変化する様子が観察された。1846 eV付近に現れるピークはSi-O結合に対応する構造であり、SiO₂とSiが交互に積層している様子を、ケイ素の化学状態からも確認することができた。

一方で、ケイ素の分析では最下層(表面から第5層のSiO₂)を確認することができなかった。また、第2層と第4層のスペクトルにおいては、Si-O結合に対応する1846 eV付近で、信号強度が減少している。これらの症状は、信号の処理過程において、入射X線の飽和効果や放出されるX線の自己吸収などを考慮していないことに起因していると考えられ、今後はこれらの補正を組み込んだ解析法を確立することが課題として残っている。本装置はすでに一般利用に供されており、電池材料の表面・界面分析などの分析に利用され始めた。今後は、各種補正を含めたデータの処理方法を確立するとともに、多様な材料系の表面界面分析へと利用開拓を進める予定である。

参考文献

- [1] T. Tanaka, et al.: *Rev. Sci. Instrum.* **70**, (1999) 4153 .
- [2] Y. Tamenori, *J. Synchrotron Rad.* **20**, (2013) 419.
- [3] K. Amemiya et al.: *J. Phys.* **15**, (2003) S561 .

利用研究促進部門、分光物性IIグループ
為則 雄祐、鶴田 一樹

BL28B2 白色X線回折

1. 概要

BL28B2は、SPRING-8偏向電磁石から得られる白色X線を、結晶分光器といった光学素子を通すことなくそのまま利用できるビームラインである。その用途は、小動物生体機能イメージング、放射線治療のための基礎的研究、白色X線回折およびイメージングによる構造材料の評価、時間分解エネルギー分散型XAFSによる触媒や燃料電池材料などの化学反応過程における動的構造変化の観察、高エネルギーX線マイクロCTによる金属製試料の3次元非破壊観察など、多様な研究分野、研究対象に応用され、白色X線を用いた計測手法の開発や利用研究が展開されている。2016年度における主な活動状況は下記のとおりである。

2. エネルギー分散型回折顕微法の高性能化

BL28B2の特徴的な実験手法であるエネルギー分散型回折顕微法(EXDM)の高性能化を行った。EXDMは、多結晶体の結晶粒内における応力・ひずみの分布を評価することが可能である。本手法は、結晶粒からの回折スポットのX線エネルギーを半導体検出器(SSD)とマルチチャンネルアナライザ(MCA)で測定している。本手法の解決すべき課題の一つが、現行のMCAの信号処理能力の低さである。信号処理能力が低いと、カウントレートが高くなった時に測定したX線のエネルギー値が本来の値からシフトしてしまう。回折スポットの強度が、その回折指数によりさまざまであり、高いカウントレートの場合はアッテネータを使い強度を下げていた。これを解決するために、信号処理能力の高いデジタルシグナルプロセッシング(DSP)機能を有するMCA(テクノエーピー社

製APU101)を導入した。

図1はMCAの評価結果であり、横軸がカウントレート、縦軸がX線エネルギーのシフト量である。許容できるエネルギーのシフト量は 5×10^{-4} とした。これは、EXDM装置の幾何学的な条件から決まるエネルギーのシフト量である。従来機(MCA7700)では、25,000 cpsのときにエネルギーのシフト量が 5×10^{-4} を大きく超えた。一方で、導入したAPU101では、35,000 cpsのときにエネルギーのシフト量が 5×10^{-4} をわずかに超えており、概ね1.5倍のカウントレートまで対応できるようになった。

3. DXAFS実験の高性能化

2016年度は、DXAFS計測システムの高性能化を目的として、受光幅を拡張した可視光変換型2次元検出器の開発を行った。DXAFS計測においてEXAFS解析精度を向上させるためには、より広いエネルギー領域の測定が可能な検出器が必要であるが、現在使用している可視光変換型CCD検出器のX線受光幅によって制限を受けている。可視光変換型2次元検出器は、X線を可視光に変換する蛍光体、可視光を2次元検出器に導入するための2つの光学レンズおよび2次元検出器から構成されており、受光できるビーム幅は、2次元検出器の素子サイズと光学レンズの倍率によって決まる。一方、光学レンズの倍率と2次元検出器の画素サイズから得られる実効画素サイズは、エネルギー分解能に影響する。今回開発した検出器では、2次元検出器として素子サイズ13.3 mm、画素サイズ6.5 μm のsCMOSカメラを使用し、光学レンズの縮小率を1.7倍にすることにより、ビーム受光幅を従来の13 mmから23 mmに拡張するとともに、実効画素サイズを20 μm から11 μm にすることに成功した。図2

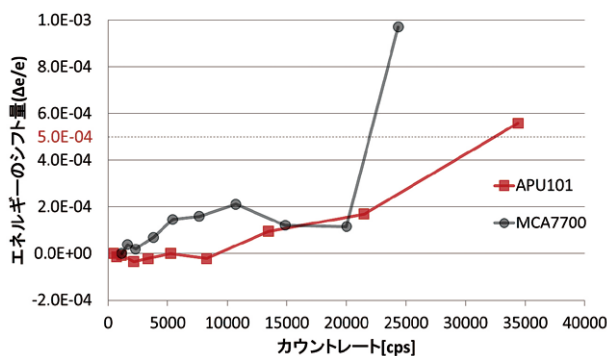


図1 MCAの評価結果(カウントレートとエネルギーのシフト量, 従来機: MCA7700, 導入機: APU101)

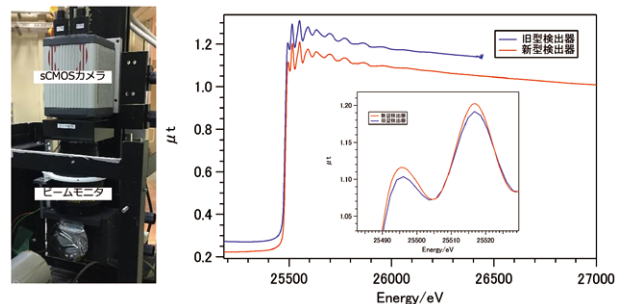


図2 開発した検出器外観(左)とAgホイルのAg K吸収端XAFSスペクトル

に開発した検出器外観およびAgホイルのAg K吸収端のXAFSスペクトルを示す。本検出器により、25 keV付近では、従来の約1.7倍の1.6 keVのエネルギー領域を計測することが可能となり、エネルギー分解能は1.2倍向上した。

4. 長尺試料X線マイクロCT測定用可搬型試料ステージの導入

白色X線に対して重金属フィルタを適用すると、白色X線の高エネルギー成分を抽出して利用することが可能である。具体的には、厚さ2 mmの鉛と、厚さ0.5 mmのタングステンを用いることにより、200 keVにピークを持った白色X線スペクトルを得ることができる^[1]。高エネルギーX線マイクロCTの測定対象は、鉄や銅といった金属を含む、あるいは構成される試料であり、中でも剣や火縄銃といった金属製文化財試料への応用利用実験が大部分を占めている。これらの試料は、長尺形状ゆえに、その全体像をスキャンするためには汎用の試料ステージでは移動ストロークが足りず、試料の取り付け直しが必要など、関心領域の測定の障害となっていた。そこで、鉛直方向で±300 mmのストロークをもつ長尺試料に対応可能なX線マイクロCT用試料ステージの導入を行った。外観写真を図3に示す。X線マイクロCT計測に必要な、並進ステージや回転、スイベルステージが搭載され、その全体が鉛直方向に±300 mm移動することが可能である。さらに、可搬型とすることにより、ハッ

チ内およびビームライン間の移動や据付を容易に行うことができる。

200 keV領域の高エネルギーX線において、実効的に利用できるビーム縦幅は、1.5 mm程度であるため、長尺試料を観察するためには、鉛直方向で試料を走査する必要がある。そのため鉛直方向ステージの移動に際しては、高い試料姿勢保持性能が要求される。実際に、長尺試料のX線マイクロCT計測を行った際の試料回転中心の変位量は、160 mmの走査量に対して標準偏差で4.8 μm であり、フルストロークをさせても1 mradを下回る姿勢変形精度が得られている。

今後は、導入した試料ステージを用いた、長尺試料に対する効率的なスキャン方法の開発を進めていく予定である。

参考文献

- [1] 梅谷啓二他：SPring-8・SACLA 年報、2015年度、63-69.

利用研究促進部門

パイオ・ソフトマテリアルグループ

星野 真人、梅谷 啓二

分光物性 I グループ

加藤 和男

産業利用推進室

産業利用支援グループ

梶原 堅太郎

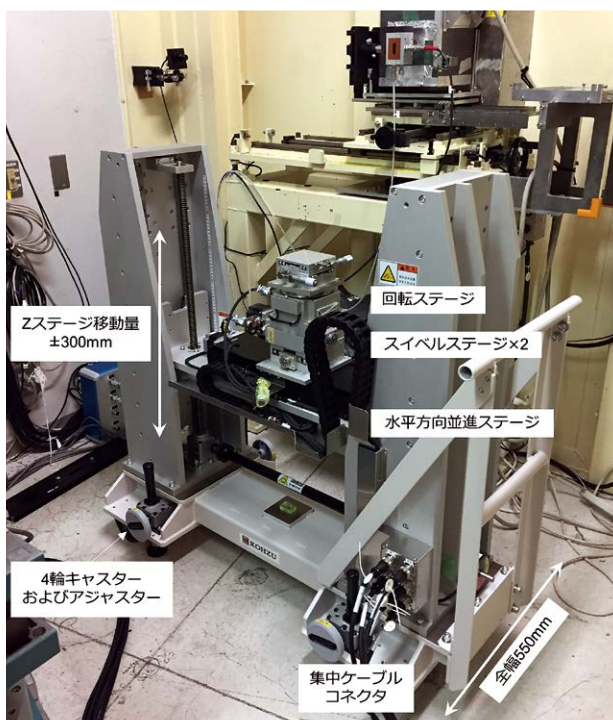


図3 ビームラインに設置した長尺試料X線マイクロCT用可搬型ステージの外観

BL35XU 高分解能非弾性散乱

概要

BL35XUは、短周期アンジュレータから得られる硬X線を利用したmeV 分解能の高分解能非弾性X線散乱ビームラインである。ビームラインでは、周期配列を持つ結晶や周期配列を持たない液体やガラスなどからの素励起観測に基づく原子ダイナミクスに加えて、最近では音響モードの分散関係から高圧・高温下での弾性率を推定し、地震波の計測から得られた実測値との比較から地球最深部の殻の組成同定を目指す地球科学分野への研究もおこなわれている。このようにBL35XUでは、様々な研究分野にわたる実験がおこなわれているが、より多くのユーザを獲得するために、より多様な試料条件を提供することが重要となる。その一環として、共通機器として導入した従来機器よりも試料位置での最低到達温度がさらに低い2 Kクライオスタットが利用できるよう環境を整備した。また、測定コンピュータの更新に伴い測定の高速化・高効率化を達成したので、この点についても報告する。

He循環式2 Kクライオスタットの利用に向けた整備

固体物理分野では、特に超伝導や磁性の分野において低温域での計測が必須となっている。絶対零度に近い温度域では、沸点が4.2 Kの液体ヘリウムが使用されることが少なくないが、希少資源の節約や運転経費の削減という立場からヘリウム循環式であることが冷凍機の仕様として望ましい。そこで、硬X線領域の共用ビームラインでの超低温実験を実現するために、共通機器としてヘリウム循環式のクライオスタットを整備した。本クライオスタットは、従来10 K程度の低温を実現することが可能なヘリウム循環式クライオスタットと同程度の性能を有するコンプレッサー(住友重工製)を利用した冷凍機に、ヘリウム循環型のジュール・トムソン(JT)効果を装備したコールド・ヘッドを取り付けたもので、試料位置で最低温度1.5 Kを達成する仕様となっている。

本クライオスタットは共用の硬X線ビームラインでの共通機器として利用できるように設計されている。このため、SPring-8の標準的なビームラインよりも370 mm高い、床面から1800 mmの高さに試料位置があり、試料周りの制約が比較的高いBL35XUでも利用可能な仕様となっている。このため、クライオスタット本体とコンプレッサー及び循環させるヘリウムが細管の中で詰まる



図1 BL35XUで2 Kクライオスタットの使用状況。手前左に見えるポンプの後ろにヘリウムガス精製装置が、写真中央の非弾性散乱分光器の奥に冷凍器用のコンプレッサーが配置されている。

ことを防止するためのヘリウムガス精製装置の間の配管を十分長くとする構造となっている。また、これだけの長さの配管であれば、他の硬X線ビームラインでは問題なく利用できる長さである。図1はBL35XUでの当該クライオスタットを試運転させたときの様子を撮影したものである。写真は、クライオスタットを用いて回折計で実験試料を様々な方位に合わせて、非弾性X線散乱スペクトルの測定が可能であることを示している。

図1に示す配置で、X線ビームを試料に照射しない条件で仕様である最低温度1.5 Kを達成することに加え、1.5 Kから室温までの任意の温度に制御可能であることを確認した。今後、本クライオスタットはBL35XUにおいて超伝導をはじめとする超低温でのフォノン物性に関するユーザ実験に利用され、他の硬X線ビームラインでも超低温の放射光実験に共通機器として供される。

測定用コンピュータの更新による測定の高速化・高効率化

最初に、BL35XUでの測定装置及びその周辺環境について概略図を図2に示す。非弾性X線散乱実験では測定用コンピュータを一台に集約している(図中A)。ユーザ(B)は、測定コンピュータ上のX端末にコマンドを入力することにより、各種装置(C1とC2。C1はコンピュータに直接接続された装置でC2はSPring-8ネットワークシステムを介して制御する装置である)を動かし、カウンタで得られた情報を得る。得られた全データ(バックグラウンドで測定されたデータを含む)は随時外部公開サーバ(D)にアップロードしてSPring-8外に公開している。X端末はspec(Certified Scientific Software社製)とい

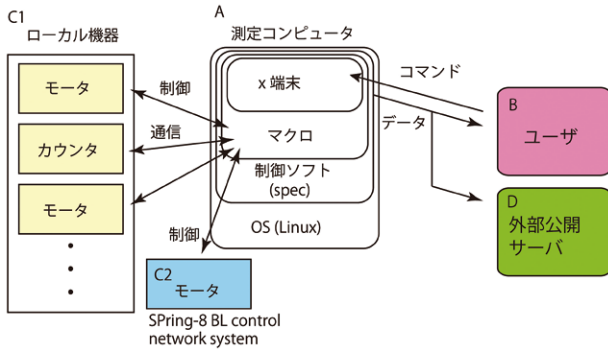


図2 測定用コンピュータとその周辺の模式図。

う制御用ソフト内で動作しており、各機器への通信・制御はマクロ (spec macro) と呼ばれる自作のプログラムによりおこなわれている。

測定コンピュータ (A) は設置から数年が過ぎ、OS (Linux) のセキュリティ上問題が生じていた。また、マクロはBL35XU建設当初に作成されたものを使用していたため、通信速度の遅い環境に最適化されており、プログラム上無駄な部分が多くあった。そこで、測定用コンピュータ (ハードウェア) を交換し、最新のOS (Fedora からCentOSへ変更)、最新の制御ソフト (spec v.5からv.6へ変更) を導入することとした。更新前のマクロは新しい制御ソフトと十分な互換性がなかったため、(互換性がなかった箇所について) マクロを新たに作成した。この際合わせて全マクロをチェックしていくつかの書き換えをおこない、測定の高速度化／高効率化をおこなった。以下にその実例を2例示す。なお、(ユーザが操作する) コマンドは更新前後で (可能な限り) 変更していない。また、外部公開サーバ(D) へのアップロードも従来通りである。ユーザ・外部公開サーバに提供するデータの種類も更新前後で変化していない。半年間の準備期間を経て、夏期停止期間中に交換・更新作業をおこなった。

最初に高効率化の例を示す。BL35XU非弾性X線散乱実験では非弾性散乱スペクトルを得るのに、エネルギーを掃引しながらカウンタの積算をおこなう。ただし、積算時間に対して、実際の測定時間は長い。このような待機時間 (= (測定時間) - (積算時間)) が存在するのは、制御ソフト (spec) の処理時間があるためで、待機時間中に制御ソフトは (すべての) カウンタデータを参照するなどの作業を行なっている。更新前には非弾性X線散乱スペクトルカウンタを例えば10秒積算させるために平均11.5秒かかっていた (表1)。マクロの最適化をおこない、不要な (測定に関与しない) 制御ソフト作業を取り除いた。この結果、更新後は10秒積算に要する測定時間が平均10.4秒となり、待機時間を1.1 (=1.5-0.4) 秒減らすことができた。この待機時間を測定時間に割り振ることによって、より多くのデータ点を得ることができる

ようになっている。具体的な例を図3に示す。図中では更新前後での標準物質 (PMMA) を用いた非弾性散乱スペクトル (生データ) である。どちらも-3から3 meVまでのエネルギー領域について、掃引を1.2 meV/minという条件でおこなっている。図中の各測定点の積算時間は3秒である。3秒積算に要する測定時間が更新に伴い4.4秒から3.4秒になったことで (表1)、図3の例ではこのエネルギー領域でのデータ点が71点から89点に増加している。これは、より多くのデータ点を同じ掃引条件で得ることができるようになったことを示し、データの質が更新前に比べて向上していることを意味する。

次に高速化の例を示す。図4は液体窒素モノクロ結晶のエネルギースキンスペクトルである。このスキンは (非弾性X線散乱実験中) 光学系の調整の際に必要なスキンスキャンであり、スキンスキャンではSPring-8ネットワークシステムを介してモータを制御しつつ測定をおこなっている (図2中C2)。図中更新前後で測定点および積算時間は同じで (測定点26点、各点につき0.5秒積算)、スペクトルはほぼ変化しない。更新前ではこのスキンスキャンに80秒かかっていた (図4下)。この (長い) 測定時間が必要だった理由の一つとして、BL35XU建設当時は測定コンピュータ - SPring-8ネットワークシステム間の通信が (現在と比べ) 遅く、測定コンピュータのマクロ上待機時間を大きく設定する必要があったことがあげられる。今回

表1 制御コンピュータ更新前後における非弾性X線散乱スペクトル測定所要時間の比較

	10秒積算 に要する時間 (平均値)	3秒積算 に要する時間 (平均値)
更新前	11.5秒	4.4秒
更新後	10.4秒	3.4秒

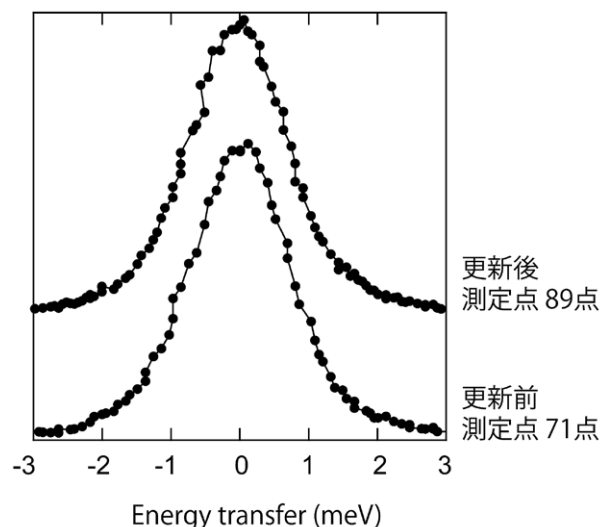


図3 標準物質の非弾性散乱スペクトル。
下がコンピュータ更新前、上が更新後

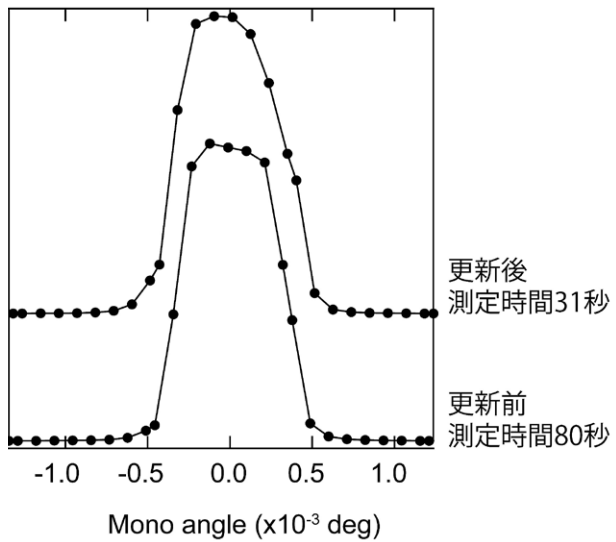


図4 液体窒素モノクロのエネルギーキャン。
下がコンピュータ更新前、上が更新後。

の更新の際に冗長な待機時間を削るなどのマクロの最適化をおこなった結果、測定時間を31秒に短縮できた（図4上）。これにより、より速く光学系の調整がおこなえるようになっている。

利用研究促進部門

構造物性Ⅱグループ 非弾性散乱チーム

内山 裕士、筒井 智嗣

BL37XU 分光分析

1. 概要

BL37XUでは、走査型顕微分光分析を主体として全視野型分光イメージングや、蛍光分光法・深さ分解計測法などの高輝度X線分光法により、物質の形態・元素分布・化学状態・局所構造の解析を通して、物質のもつ性質や機能解明に向けた利用研究が行われている。2016年度も実験ステーションに大きなトラブルはなく、概ね順調にユーザー利用に供された。また2016年度には高速2次元走査型顕微XRF/XAFS計測の第3ハッチへの適用による高分解能化を行い、15 keV以下で100 nmの分解能を有する2次元高速走査型顕微XRF/XAFS計測を開発した。

2. 2次元高速走査型顕微XRF/XAFS計測の第3ハッチへの適用

2014年度に第1ハッチにおいて整備された本計測法は、図1に示す通り試料水平位置をxステージにより連続掃引しながら、一定の時間間隔でパルスモーターコントローラーから出力されるタイミングパルスと同期して透過X線もしくは蛍光X線強度信号をon the fly計測する。試料上下位置をzステージにより移動しながらこの計測を繰り返し行うことにより、任意元素の2次元分布を取得する手法である。

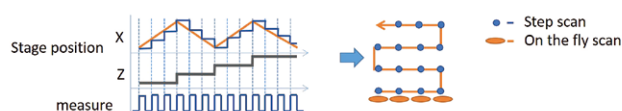


図1 2次元高速走査型顕微XRF/XAFS計測の概略

図1は2次元高速走査型顕微XRF/XAFS計測の概略である。図1左に示すように従来のstep scan法では各位置での静止時間が必要でありまた次の測定点への移動時間がロスタイムとなっていたが、on the fly法では連続的に位置を掃引するため、ロスタイムなく高速で計測が可能となる。今年度は本手法のさらなる高空間分解能化を目指して第3ハッチに設置されている100 nm集光が可能なKBミラー集光光学系を利用した。これにより高速2次元走査型顕微XRF/XAFS計測を100 nmの分解能で適用することが可能になった。

3. 2次元高速走査型XRF/XAFS計測法を用いたバリウム酸化物中のヒ素に対する利用研究

2次元高速走査型XRF計測システムを利用した例として、過去の詳細な地球化学的環境の復元を行う水質計の開発と利用を目的として、酸化還元状況の指標となりうるバリウム酸化物中のヒ素やセレン、鉄などに対する2次元高速走査型XRF/XAFSを利用した研究を紹介する。本研究では玉川温泉と沖縄での水熱環境下において採取した試料を用いて試料中のバリウム酸化物存在下でのヒ素やセレンの濃集部を導出し、その点におけるヒ素及びセレンの異なる価数の化学種の割合から環境状況の指標となるを導出することに成功した。図2には2次元XRFイメージを示す。バリウムとヒ素やセレンを同時に分析することによりバリウム酸化物中の目的元素濃集部の導出が可能となっている。更には本年度の高度化により2次元イメージの取得が高速で行えるようになった。

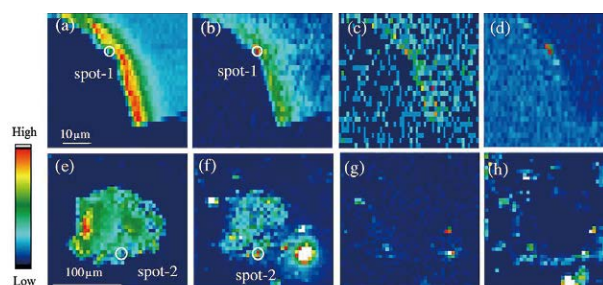


図2 玉川温泉(a-d)と沖縄(e-h)より採取したバライト試料のμXRFイメージ。(a)と(e)はBa、(b)と(f)はAs、(c)と(d)はSe、(d)と(h)はFeの分布を表している。

参考文献

- [1] K. Tokunaga, *et al.*, *Chem. Geol.*, **447**, 59 (2016).

利用研究促進部門
分光物性Iグループ
新田 清文、寺田 靖子

BL38B1 構造生物学Ⅲ

偏向電磁石を光源とするBL38B1では、安定性の高いビームを利用した効率的かつ高精度なタンパク質結晶回折データ測定環境を中心に、試料の化学状態をモニターするオンライン顕微分光装置や生理条件での構造解析を可能にする室温測定環境など、多様な実験環境の提供と開発を行っている。

ユーザー実験の利便性や効率性を高めるため、2003年以来ユーザーフレンドリーなデータ測定ソフトウェアBSS^[1]、新型CCD検出器、大面積IP検出器の導入によりシステム構築を進めてきた。2005～2010年度には自動サンプルチェンジャSPACE^[2]の導入とマグネットピン対応の高度化を行うとともに、自動運転のための試料情報、測定条件、回折データなどの管理を行う環境を整え、メールイン測定システムを導入、さらにこれを発展させた遠隔実験システムの共用利用を開始した。2011～2014年度には、X線集光系の改善、高感度型CCD検出器、ビームサイズ可変機構、回折計/検出器分離型定盤の導入を行った。試料雰囲気湿度調整と結晶の水溶性ポリマーコーティングを用いた室温および凍結条件下での試料マウント手法(HAG法)の開発を行った。2015年度は、高精度/高効率なデータ収集のための高性能化、非対称配置結晶を用いた高輝度化、X線トポグラフィー測定システムの構築、解析環境の整備を行った。2016年度も2015年度に続き高性能化を進めている。HAG法については、引き続き開発を行っている。

1. 高精度/高効率な実験を可能とするための高性能化

BL38B1では、HAG法を用いた室温でのデータ収集が可能であるが、その際の試料の放射線損傷は100 Kのクライオ温度とは異なり、無視できない状況にある。この問題を軽減するため測定系の高速化を進め、6 Hzでの連続読み出しが可能な新型のCMOS検出器と高精度高速回転が可能なゴニオメータ、同期制御システム、10 Gbps接続の高速ストレージを組み合わせることで、180枚分の回折データ収集が30秒～1分程度で可能となった。2016年度は、放射線損傷の回避を目的として、試料へのX線照射位置を精密に移動させるために、ゴニオメータ上のXZ方向の動作軸のストローク拡張と高剛性化を実施した。さらに、CMOS検出器の距離が150 mm固定であったため、より高分解能での測定を可能とするために、50 mmまでの検出器距離変更機構を追加し、分解

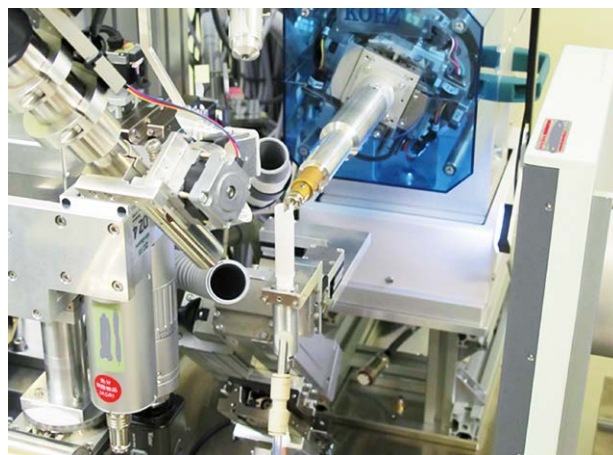


図1 高精度高速回転ゴニオメータとCMOS検出器によるシャッターレス測定

能1.6 Å@ $\lambda=1.0$ Åでの測定を可能とした(図1)。また、老朽化により動作が不安定であったX線シャッタの制御部を更新した。

2. 非対称配置結晶を用いた高輝度化

これまでに、ミラーによるX線集光の最適化、回折計上機器の光路真空化などにより高輝度化を進めてきた。2015年度より、結晶サイズのさらなる微小化に対応するため、光源・光学系部門光学系グループの協力のもと、分光器内結晶の非対称配置化(図2)による高輝度化の検討と評価実験を行った。現在、結晶の歪みに由来すると考えられる縦方向のビーム発散を抑える間接冷却方式の第1, 2結晶ホルダーを製作した。今後、この結晶ホルダーの評価と運用に向けた改良をさらに進めていく予定である。

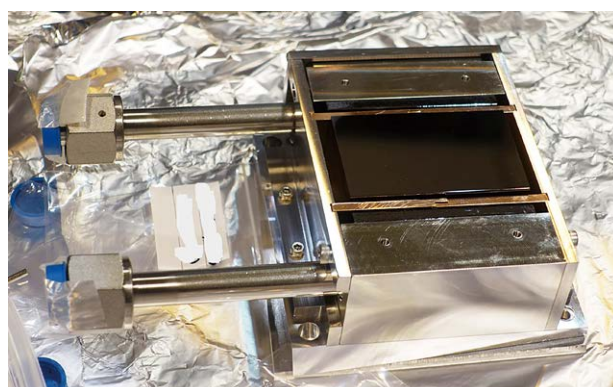


図2 二結晶分光器に設置する非対称配置結晶

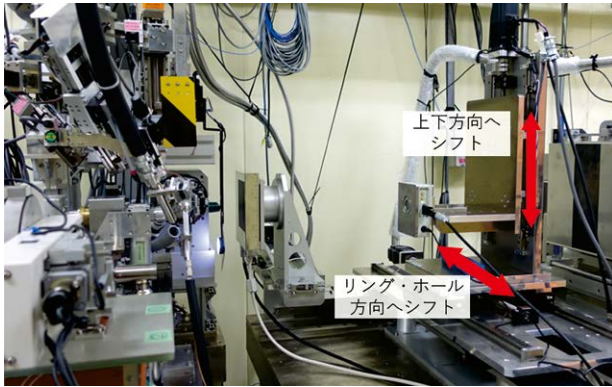


図3 X線トポグラフィー実験系

3. X線トポグラフィー測定システムの構築

X線結晶構造解析では、できるだけ高分解能なデータを取得することで、より精密な構造を解析することが求められる。そこで我々は、タンパク質結晶内部の転移、積層欠陥、成長縞、不純物の混入などによる回折への影響を確認するために、X線トポグラフィー法(XRT)の測定系の構築と測定手法の開発を行った。これまでに、高空間分解能の二次元検出器を用いて、狙った回折点の内部構造の測定を半自動で行える実験系が構築できた。2016年度は、より小型な浜松ホトニクス社製高感度・高分解能CMOS検出器(C12849-101U)を導入し、自動化システムを再構築した(図3)。その結果、従来はZ方向の可動範囲が光軸を中心に-30 mmから+60 mmであったが、 ± 100 mmの動作が可能となり、より高角の回折点を測定することが可能となった。これを用いたXRT測定手法の開発をさらに進める。

4. HAG法の高度化

先述したHAG法^[3]は、これまでの高度化で温度制御型調湿装置、温度制御ワークベンチを開発することで、適用可能な温度が4～20℃まで対応可能となった。さらに高精度な実験を可能とするために、装置の高性能化を進めた。さらに、生体内の活性温度での構造解析を可能とするために、より高温での調湿を可能とする高温対応の調湿装置開発を行った。

・4-20℃対応温度制御型調湿装置の高性能化

温度湿度測定の高速化と、計測値算出に時間差平均法を導入し、測定の高精度化を進めた。さらに、熱交換器の高効率化を実施し、装置の小型化を進めた(図4)。2016年度よりユーザー利用を開始している。

・温度制御ワークベンチの高性能化

結晶観察用のCCDカメラとLCDの解像度を800×600ピクセルから1920×1020ピクセルへ向上させるとともに、結晶観察用の光源を改良し、ハンドリング時の視認性を向上した。2016年度よりユーザー利用を開始して

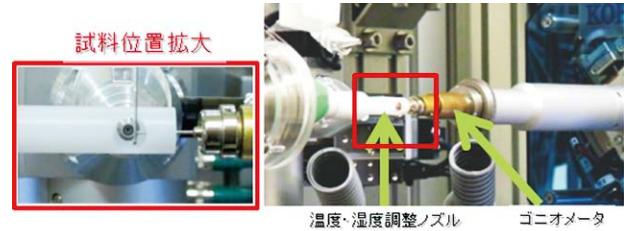


図4 低温対応調湿装置を試料位置に設置した様子

いる(図5)。

・高温対応調湿装置の開発

タンパク質の活性温度や生理条件温度は結晶化温度や回折測定温度と一般に異なっている。生体内での活性状態に近い環境で構造解析を行うことは、機能解析に重要な構造情報を得るために重要である。このため温度制御可能な調湿装置の開発を進め、20～40℃範囲での制御が可能となった。2017年度以降、この装置を利用した実験手法の開発を進める。

参考文献

- [1] G. Ueno, et al.: *J. Synchrotron Rad.* **12** (2005) 380-384.
- [2] H. Murakami, et al.: *J. Appl. Cryst.* **45** (2012) 234-238
- [3] S. Baba, et al.: *Acta Cryst.* **D69** (2013) 1839-1849.

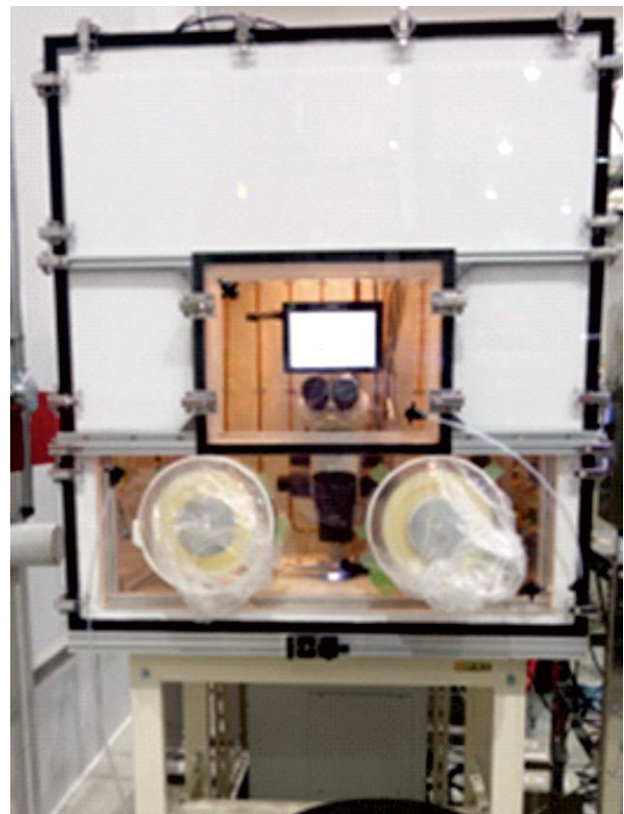


図5 温度制御ワークベンチ

タンパク質結晶解析推進室

タンパク質構造解析促進グループ

馬場 清喜、水野 伸宏、仲村 勇樹

長谷川 和也、奥村 英夫、村上 博則

Nipawan Nuemket、尾崎 愛美、津田 奈美

熊坂 崇、八木 直人

利用研究促進部門

技術支援グループ

福居 知樹、入江 崇起、早賀 紀久男

BL39XU 磁性材料

1. 概要

BL39XUは、X線吸収分光法 (XAS)、X線磁気円二色性 (XMCD)、X線発光分光 (XES)、および共鳴磁気散乱法を用いた利用研究に供されている。最近は、低温・強磁場・高圧といった複合環境下でのX線分光法や、100 nm集光X線ビームを用いた走査型顕微鏡XAS・XMCDイメージング計測技術の開発を進め、共同利用に展開している。2016年度は、複合環境X線分光ステーション (実験ハッチ1) では、XES測定の高感度・高精度化を目指した複数個の分光結晶を搭載可能なXESスペクトロメーターの導入を行った。また、X線ナノ分光計測実験ステーション (実験ハッチ2) では、KBミラー装置の真空化と集光ミラーの焦点距離の最適化を行った後の集光ビーム特性を評価した。

2. 複合環境X線分光ステーション

本ステーションでは、複合環境 (低温/高温・強磁場・高圧) 下での電子状態・磁気状態を観測するためのX線分光 (XAS、XMCD、XES等) 計測装置の開発を精力的に進めている。なかでも、XES測定は電子状態に関する詳細な情報が得られる有力な手法である。しかし、検出効率が低いため、高精度なスペクトルの取得や微量元素の解析には長い測定時間を必要とする。この問題を克服するため、高精度・高感度化を目指したマルチアナライザー型XESスペクトロメーターの開発を行った。

図1に、導入した新XESスペクトロメーターの概略図を示す。基本設計指針は以下のとおりである。① 最大15個の球面湾曲分光結晶を搭載することで、広い立体角での蛍光X線強度の取り込みを可能とする、② 分光結晶

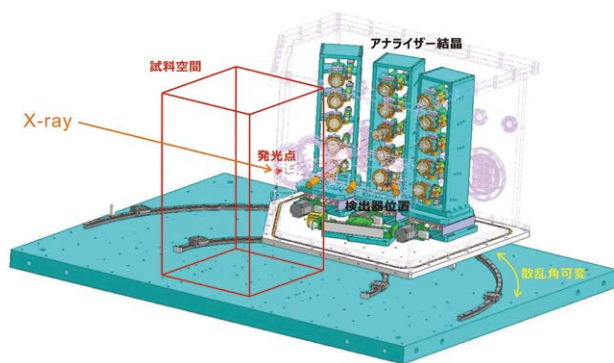


図1 マルチアナライザー型X線発光分光スペクトロメーターの概略図。

ステージを真空中に設置することで大気による蛍光X線強度の減衰を低減する、③ 試料周辺の空間を広く確保し、超伝導磁石等の大型装置を設置可能とする、④ 現有の分光結晶の利用を可能とする、⑤ エネルギー分散型方式での利用も可能とする、⑥ 散乱角の変更を可能とする、⑦ スペクトロメーターのエネルギー分解能は1 eV以下とする。現状の仕様は、最大5個の球面湾曲分光結晶、ローランド半径820 mm、Bragg角は70°～83°、散乱角は90°±45°である。蛍光X線の経路はヘリウムガス雰囲気下での利用が可能となっている。Si、Ge、InSb分光結晶を用いることで、4.66～14.13 keV (実績値) でのXES測定を行うことができる (図2)。ただし、一部のエネルギー領域にはまだ対応していない。

新スペクトロメーターで得られる測定感度を評価するため、搭載予定のGe球面湾曲分光結晶に対するエネルギー分解能および集光強度の測定を従来のスペクトロメーターを用いて行った。図3にGe 333反射における、入射エネルギー5.845 keV (Eu $L\alpha_1$ 線近傍) の弾性散乱強度による評価結果を示す。現状の仕様で搭載可能な5個の分光結晶すべてに対して、エネルギー分解能0.4～0.5 eV、代表的なEu化合物に対するEu $L\alpha_1$ 線に対して結晶1枚あたりの集光強度4,500 cpsを実現した。この結果から、5枚の結晶を搭載したマルチアナライザー型XESスペクトロメーターを利用することで、1枚の分光結晶しか搭載できなかった従来のスペクトロメーターと比べて、XES測定の感度および効率が5倍に向上することが期待できる。図2の括弧内の数字は現有の分光

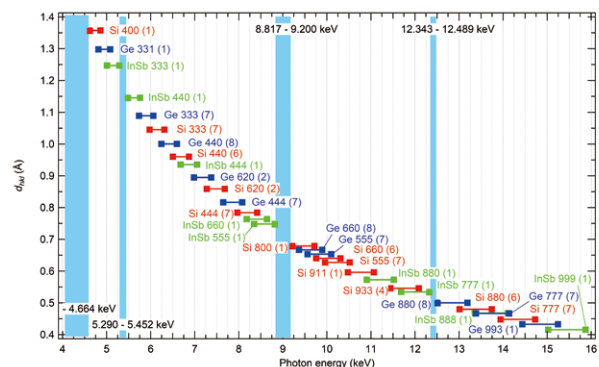


図2 現有の分光結晶でカバーするX線発光分光測定のエネルギー領域。括弧内の数字は分光結晶の保有枚数を表す。現有の分光結晶では、水色の四角で示されたエネルギー領域には対応していない。

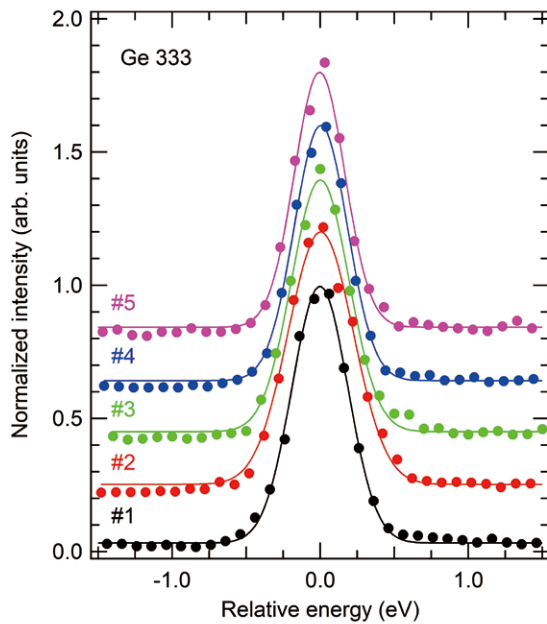


図3 球面湾曲Ge 333分光結晶によるエネルギー分解能評価の結果。モノクロメーターはSi 220、入射エネルギー5.845 keV(Eu $L\alpha_1$ 線近傍、Bragg角 $\theta_B = 76.912^\circ$)での弾性散乱によって評価している。強度は最大値で規格化している。

結晶の枚数を示しており、該当するエネルギー領域についてはこの枚数分の感度向上が期待できる。今後は、高感度測定が可能な(複数の分光結晶が利用可能な)エネルギー領域の拡張を目指し、分光結晶の整備を進めていく予定である。

新スペクトロメーターは、2017年度以降は実験ハッチ1に常設とする。スペクトロメーターの調整と、5枚の分光結晶によるXESスペクトルの実測定による装置評価を行った上で、2018A期からの共用開始を予定している。

3. X線ナノ分光計測ステーション

本ステーションでは、ナノビーム走査型の顕微 XAFS/XMCD 計測および時間分解顕微 XAFS/XMCD 測定が共同利用に提供されている。2016年度には、2015年度に実施したKBミラー装置改造の効果を調べるため、集光ビーム性能の評価を行った。この改造ではKBミラー装置の真空化とともに、二枚の集光ミラーの焦点距離の最適化を行った。垂直方向の集光ミラーの焦点距離を460 mmから200 mmに短くすることで光学系の垂直方向の縮小率を高め、仮想光源を用いなくとも光源点の直接投影によって大強度の100 nm 集光ビームの形成を可能とすることを目的とした。

図4に集光ビーム性能の評価結果を示す。評価に用いたX線のエネルギーは12 keVである。光学ハッチ内、輸送チャンネルの4象限スリット(TCスリット1)を仮想光源として用い、スリットサイズを変えることで集光ビームサイズを変化させた。水平方向は常にスリットを閉め

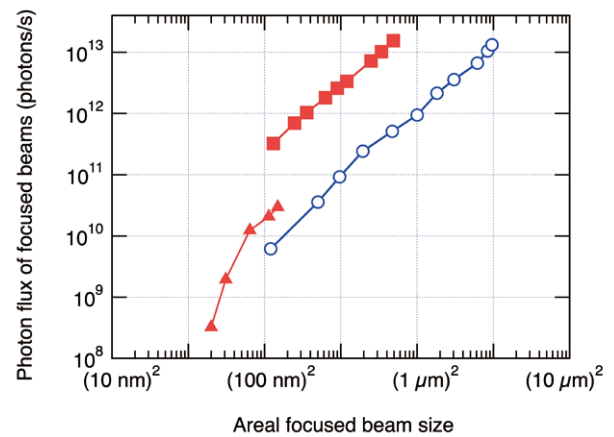


図4 KBミラー装置の改造による集光ビーム性能の向上。集光スポット中に得られる光子数を集光サイズ(面積)に対して示す。(赤四角)改造後、垂直方向は光源を直接投影集光、水平方向は仮想光源を使用した集光；(青丸)改造前、垂直・水平方向とも仮想光源を使用した集光；(赤三角)改造後、垂直・水平方向とも仮想光源を使用した集光。

た状態(開口2 μm ~ 235 μm)で用い、TCスリット1を仮想光源とした。垂直方向に関しては、TCスリット1を全開として光源を直接投影する条件と、TCスリット1を閉めて(開口4 μm ~ 27 μm)仮想光源とした場合の2つの条件で評価を行った。赤四角および赤三角が改造後の集光ビーム性能を表す。垂直方向の集光については光源を直接投影する条件で100 nm 集光を達成した(赤四角)。改造後の(100 nm)²のビームサイズでの光子フラックスは 3×10^{11} photons/sが得られている。改造前(青丸)と比べて50倍のフラックスの増大を実現した。また、改造後の条件で仮想光源スリットの開口を垂直18 μm × 水平8 μm 以下とすることで、100 nm 以下のビームサイズが実現された(赤三角)。

100 nm 集光ビームの高フラックス化によって、高空間分解能での磁気イメージング実験や局所磁気解析実験での統計精度向上および測定時間の短縮が行える。また、孤立電子バンチからのX線を利用した時分割実験においても高効率化が図られるため、時分割磁気イメージング解析が現実的なビームタイムで行えると期待される。

改造のもう一つの恩恵として、KBミラーの真空化によって、ミラー表面の汚染が大幅に軽減されたことが挙げられる。従来Heガス雰囲気中でKBミラーを運用していたときには、半年程度の利用でミラー表面に白い汚れが付着し、ミラーの反射率の低下と集光ビームサイズの増大が見られた。そのため、半年ごとにミラーの洗浄を行っていた。真空化によってKBミラーチェンバーは 2×10^{-6} Pa以下の真空度に保たれており、1年間の利用後もミラー表面の汚染は確認されず、集光ビーム性能の劣化も見られなかった。

本高性能化によって得られた高フラックスの100 nm

ビームは、2016A期から利用実験に提供されている。

利用研究促進部門

分光物性 I グループ・MCD チーム

河村 直己、鈴木 基寛、水牧 仁一朗

BL40XU 高フラックス

本ビームラインはヘリカルアンジュレータを光源とし、分光器を使用せずに2枚の全反射ミラーでビームを集光することにより、擬似単色の高輝度X線ビームを使用できるビームラインである。このビーム特性を活かして、回折、散乱、XAFS、イメージングなど、多様な利用実験が行われている。本ビームラインには共同利用実験に供されている実験ハッチ1と、CREST研究プロジェクトにより建設された実験ハッチ2がある。

1. 実験ハッチ1

実験ハッチ1では、非結晶試料の時分割X線回折、1分子計測、マイクロビーム回折実験等が行われている。

1-1 ガルバノX線シャッター導入

高輝度のX線ビームを利用し、高時間分解能の回折散乱実験が行われているが、高輝度X線により生体試料が損傷を受けることはよく知られている。不要なX線照射を回避するために、高速X線シャッターが必須である。従来、市販品のメカニカルX線シャッターを運用してきたが、シャッター自身もX線による損傷を受け、シャッターの遅延タイミング誤差が徐々に大きくなるなどの問題があった。そこで、長期運用に耐えうるガルバノスキャナを用いたX線シャッターを開発、導入した。その概観を図1-(A)に示す。タンタル製・板（厚さ1 mm、幅4 mm、高さ4 mm）を回転動作させることで高速X線シャッターとして利用する。実際にX線ビームを照射させ、その開時間と遅延タイミングのばらつきについて評価した。透過X線強度は、PINダイオードを用いて測定し、透過強度が1割から9割に達するまでの時間を開時間、シャッターの開・指令タイミングから透過強度が50%になるまでを遅延時間として評価した。ガルバノシャッターについては扁平なX線ビーム（横200 μm 、縦50 μm ）に対して、縦、横それぞれに遮る方向に配置し比較した。導入したガルバノX線シャッターの開時間は400 マイクロ秒程度で、従来のX線シャッターの300マイクロ秒と比較しても遜色なく動作した。また、遅延タイミングのばらつきについては数マイクロ秒に抑えられている。市販・高速シャッターの遅延タイミングのばらつきは40マイクロ秒程度であったが、1年間運用した後の実測値である。X線照射によるブレード損傷が駆動部の摩擦に影響を与え、遅延タイミング誤差の増大を引き起こすものと考えられる。ガルバノX線シャッターでは、そのような問題は回避できるため、長期運用に耐えら

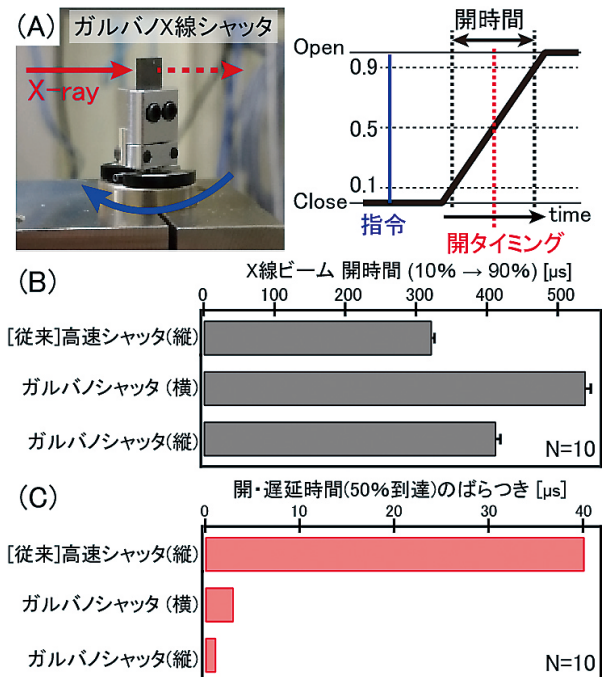


図1 ガルバノX線シャッター。(A) シャッターの概観(左)と評価方法(右) (B) シャッターの開時間評価 (C) シャッターの遅延時間のばらつき評価

期待できる。

1-2 薄型ピクセルアレイ検出器の導入

薄型で小型（厚さ20 mm、幅70 mm、高さ115 mm）のピクセルアレイ検出器 Modupixを新たに導入した。Modupixは、CERNで開発されたTimePixチップをベースとしており、ピクセルサイズ55 μm 角で検出面積14 mm角(256×256ピクセル)である。各ピクセルに入射したフォトン数を数えるフォトンカウンティングモードの他に、各ピクセルに到達したフォトン到達時間を記録するToA (Time of Arrival) モードが利用できる。小型でデータ読み出し時間5 ミリ秒程度で利用できるため、小角・広角同時計測時の広角高速測定用の検出器としての利用を検討している。またToAモードを利用し、回折点の動きを高速に捉える実験などへの応用を試みている。

2. 実験ハッチ2

実験ハッチ2では、ピンポイント構造計測装置を利用した集光X線による極微小単結晶構造解析や、シングルバンチからのピコ秒X線パルスを利用した次世代エンジンの燃料噴射ノズル開発のためのX線イメージング実験、

レーザーによる半導体のポンププローブ実験が行われている。

2-1 X線チョッパーシステムの導入

シングルパンチを切り出すためにForschungszentrum Jülich製のX線パルスセレクターが利用されてきたが、老朽化により安定性の問題が生じてきたため、以前より開発が行われていたX線チョッパーシステム(図2左)を導入して、安定した高繰り返し周波数でのパルスX線切り出しを行えるようにした。

X線チョッパーは水平面内で回転する円盤に深さの異なる2種類の溝が掘ってあり、X線が通過する位置によって、1000Hzまたは2000Hzでのシングルパンチ切り出しが可能となっている(図2右)。

架台にはXZステージと回転ステージ、スイベルステージを使用し、それぞれのスキャンによって円盤の溝とX線を一致させるように調整を行う。また、タイミング制御用のソフトウェアはNational Instruments社のLabviewで製作され、蓄積リングのRF信号とモータの位置信号のタイミングを計測し、制御用コントローラへ修正コマンドを送信してフィードバックを行っている。

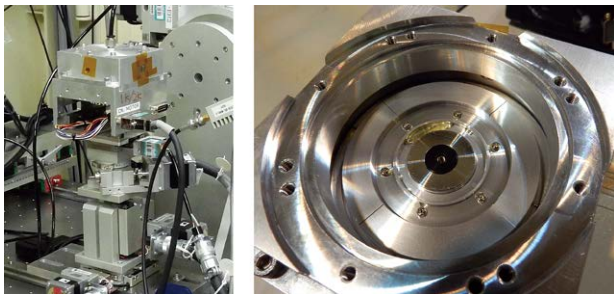


図2 新規導入したX線チョッパー(左)とX線チョッパーの円盤部(右)

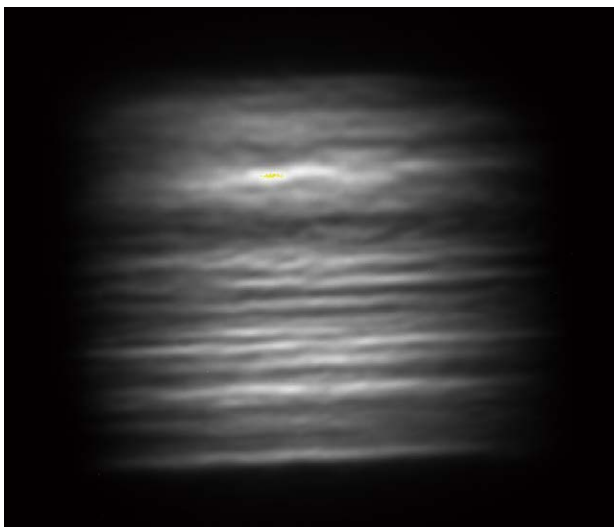


図3 ハッチ1に設置した場合の大面積ビーム(検出器の観察領域 1×1 mm)



図4 超長作動ズームレンズ

装置が小型化されたことで実験ハッチ1と2への移動が簡便になり、ハッチ1にX線チョッパーを設置してミラー集光によってX線チョッパー位置から広がってくるサイズの大きなX線(試料位置サイズ 0.8×0.8 mm²、図3)や、ハッチ2にX線チョッパーを設置して試料位置にミラー集光することによる高強度の集光X線(試料位置サイズ 縦 $23 \times$ 横 280 μm²)の利用が可能である。また、ゾーンプレート集光によるマイクロビームと組み合わせた利用も可能である。

既にユーザーへの提供を開始しており、X線チョッパーを利用した高繰り返し時間分解測定実験が実施されている。

2-2 超長作動ズームレンズの導入

ピンポイント構造計測装置は集光X線と試料との高い位置合わせ精度の必要性から、試料をX線と同軸方向から観察する方式を採用しており、X線照射時には試料観察ができなかった。また、測定時には試料周辺に検出器などが接近しており、通常の作動距離の望遠鏡を導入することは難しかった。この問題を解決するために、作動距離205 mmのユニオン光学製の超長作動ズームレンズを導入して、X線照射中の試料観察ができるようにした(図4)。本システムの導入により測定時の試料観察とともにレーザー照射実験のようにレンズ類が試料周辺にある場合においても遠方から試料を観察できるために、X線とレーザーの照射位置の調整が短時間で行えるようになった。

利用研究促進部門

バイオ・ソフトマテリアルグループ

関口 博史・岩本 裕之・青山 光輝

ナノテクノロジー利用研究推進グループ

安田 伸広

BL40B2 構造生物学Ⅱ

ビームラインBL40B2は偏向電磁石を光源とし、タンパク質、生体膜などの生体分子、合成高分子、液晶、界面活性剤などのソフトマテリアルを対象としたX線小角散乱法が利用できる。計測できる構造体はおよそ0.15 nmから600 nmの範囲で、試料から検出器までの距離、すなわちカメラ長とX線波長を適切に選択し実験で利用できる。広角領域の散乱回折を小角散乱法と組み合わせた同時計測、微小角入射X線散乱回折法による高分子薄膜の解析も行われている。2016A期に45課題、2016B期に36課題が採択され、概ねトラブルなく実施された。2016年度は、X線検出器MODUPIXを用いたセットアップの迅速化と小角広角同時計測の高性能化の検討を行った。

1. 小角散乱セットアップ用X線検出器の検討

X線小角散乱法では、ビームストッパー周辺に生じる寄生散乱を低く抑えるための調整を、ユーザーセットアップやカメラ長の変更の度に行わなければならない。ビームラインBL40B2では、大面積イメージングプレート2次元検出器を小角散乱計測に用いており、この検出器のままではイメージングプレートの読み取りに時間を要するためにセットアップに多大な時間を掛けることになる。この調整を効率良く行うために、フラットパネルX線検出器を2010年に導入した^[1]。しかしながら、真空カメラなどのバックグラウンドの低いセットアップでは、フラットパネルX線検出器での調整後、イメージングプレートで長時間露光を行うと必ずしも満足される調整に至っていないことがある。これは、フラットパネルX線検出器の最大露光時間が10秒に限られ、ダークカレントが変動することも加わるために1秒間に1カウント以下の寄生散乱の判別ができなくなることに起因する。したがって、ビームストッパー周辺を計測できるダークカレントの変動のないX線検出器を導入することが必要である。

このX線検出器には、前述の要件に加え、ビームストッパーが収まった真空パスと大面積イメージングプレート2次元検出器間の隙間およそ20 mmに収まる必要がある。今回選定したX線検出器MODUPIX(ADVACAM S.R.O., Czech Republic)は筐体が15.3 mmと薄いので、これまで用いていたフラットパネルX線検出器と置き換えることが可能である。またMODUPIXは、フォトンカウンティング型のX線検出器であるので、ダークカレン

トなく寄生散乱を観測することが可能であった。素子サイズが14.08 mm×14.08 mmと小さいことは欠点であるが、BL40B2でのビームストッパーのサイズが標準で直径3 mmであるので寄生散乱を検出する用途では十分であった。今回、フラットパネル検出器をMODUPIXに置き換えることで、フォトンカウンティング型検出器の特徴であるダークカウントがなくなり、安定して微弱な寄生散乱がリアルタイムに確認できるようになり、ユーザーセットアップに必要な調整時間が短縮された。

2. X線小角および広角同時計測の高速化の検討

2016年度は、X線小角および広角同時計測の高速化の検討を行った。これまで、BL40B2では、小角広角X線散乱同時計測における広角用検出器にフラットパネル検出器(C9728DK-10, Hamamatsu Photonics K. K.)が利用されている。この検出器は、ピクセルサイズが0.050 mm角で細かく、アクティブピクセルにより低ノイズを実現している。筐体のエッジ位置に検出面を配置しており、X線ビーム近傍まで検出面を近づけることが可能である点が同時計測に用いられる理由である。しかしながら、フレームレートが最大3 Hzであり、高速な実験に対応しきれていない。

MODUPIX(ADVACAM S.R.O., Czech Republic)は、筐体サイズ108.5 mm×70 mm×15.3 mmの小型なピクセルアレイ検出器で、素子は剥き出しでも利用できる。薄く狭い空間に設置でき、X線ビーム近傍まで素子を近づけることが可能な形状であり、小角広角同時計測におけ



図1 広角用X線検出器としてMODUPIXを2台配置

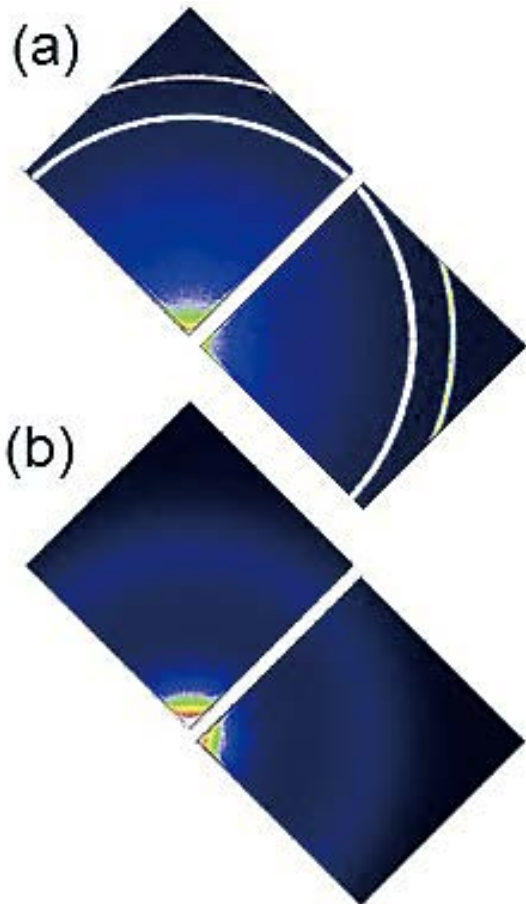


図2 MODUPIXにより取得した広角2次元像
(a) 酸化セリウム (b) グラッシーカーボン

る広角散乱計測に利用可能な形状と考えられる。しかしながら、MODUPIXのピクセルサイズは0.055 mm角であるが、検出面積は14.08 mm×14.08 mmと小さいので、広い角度領域を高分解能で計測する利用は望めないが、リードアウト時間1.17 msで高速な計測が期待される。

小角広角同時計測の広角計測では、試料より約40 mmの位置に検出面積を広くとるためにMODUPIXを2台使い、鉛直方向と水平方向の広角散乱が検出できるように配置した(図1参照)。テスト試料として、酸化セリウムとグラッシーカーボンを計測した例を図2に示す。露光時間1 sおよび0.1 sで計測できることを確認し、MODUPIXは、フラットパネル検出器で計測できない3 Hzを上回り、X線小角および広角同時計測におけるダークカレントのない広角用X線検出器として利用可能と考えられる。

参考文献

- [1] SPring-8年報: 2010年度版, p89-90

利用研究促進部門

バイオ・ソフトマテリアルグループ

太田 昇、関口 博史

BL41XU 構造生物学 I

BL41XUはアンジュレータを光源に持つタンパク質結晶構造解析ビームライン(MXビームライン)である。高フラックスビームを利用して回折データ測定を行えることから、主として膜タンパク質・超分子複合体など、良質な結晶を得ることが困難な高難度試料の構造決定に利用されている。アンジュレータを光源とする唯一の共用MXビームラインであることから、海外の研究グループ・製薬会社などを含む幅広いユーザーに利用されている。また20～35 keVのX線を利用した回折データ測定ができることもBL41XUの特徴の一つである。2016年度は、回折実験やビームライン調整の迅速化・効率化、微小試料からの新たなデータ測定方法の開発等を目的として下記5項目の高性能化に取り組んだ。

1. サンプルチェンジャーの高速化

2014年度からPILATUS3 6Mを運用し始めたことにより標準的な測定時間が3分にまで短縮された。その一方でサンプルチェンジャー SPACEによる試料交換に1分要しており、さらなる効率的なビームライン利用のためには試料交換の高速化が必要であった。そこで20秒以下での試料交換を目指して次のようなSPACEの高性能化を行った(図1)。

(1) マウントアームの2重化

これまでマウントアームは1本であったためサンプル交換のためにゴニオメーターへ2度アクセスする必要があったが、マウントアームの2重化により1度のアクセスで試料交換が可能になった。

(2) ダイレクトドライブモータ、サーボモータの利用

従来のステッピングモータでは高速駆動に限界があったため、マウントアームの回転軸にダイレクトドライブモータを、並進軸にサーボモータを用いた。

(3) マウントアームの長ストローク化

マウントアームのストロークを長くすることでSPACE本体と光軸の距離を長く取れるようにした。これにより検出器とSPACEの干渉がなくなり、試料交換前の検出器の退避や交換後のSPACEの退避が不要になった。

このようなSPACE本体の改造に対応して、制御ソフトウェアやデータ収集ソフトウェアBSSの改造も進め、試料交換時間を18秒にまで短縮することができた。1000回以上の試料交換テストを行ったところ、安定性についても高速化前と同等であることを確認している。また、SPACEの近くにエアセンサを設置し、動作中に人が近づいた場合に緊急停止する仕組みも設けた。高性能化したSPACEは2017A期よりユーザー利用に提供する。

2. Serial Synchrotron Rotation Crystallography (SS-ROX) 法による測定技術の確立

近年は大きくて良質な結晶を得ることが難しいタンパク質へと構造解析の対象が変わってきている。このような試料から高精度な回折データ測定を得るためには高強度微小ビームを用いた回折データ測定が有効であるが、X線照射損傷による結晶の品質の低下(回折能の低下)を招くため1つの結晶から必要なデータ全てを測定するのが困難である。このようなケースでは多数の微小結晶から得た部分的なデータを合わせて完全性を高めざるをえない。そこで多数の微小結晶から効率よく測定する方法としてSS-ROX法による測定技術の確立を進めた。

この方法ではタンパク質の微小結晶懸濁液を直径約1 mmの汎用のサンプルループをすくい上げ、凍結した後に回折計に載せる。従来の測定方法のように結晶の位置合わせをした後でX線を照射するのではなく、サンプルループを動かして2次元走査することでループ上の結晶に網羅的にX線を照射する(図2)。露光時間が数十ミリ秒から数百ミリ秒の露光で回折データを測定することから、SFX法と異なり無損傷データ測定を行うことはできないが、露光の間に結晶を回転することができることから、回折強度を効率よく測定できると期待できる。

このようなSS-ROX法の有効性を実証するために、ルシフェリン再生酵素(Luciferin-regenerating enzyme; LRE)

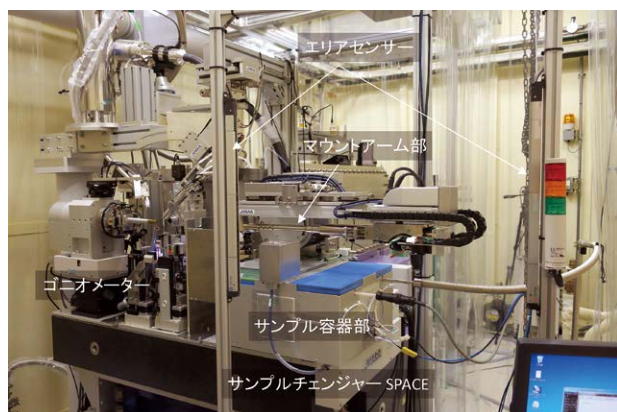


図1 高性能化後のサンプルチェンジャー SPACE

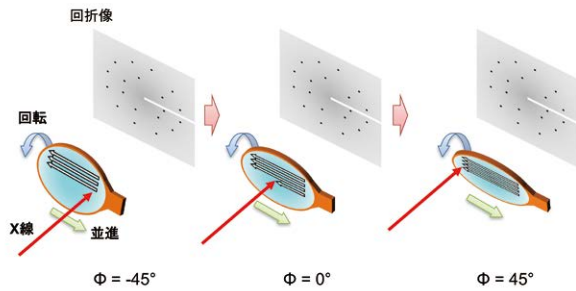


図2 SS-ROX法による回折データ測定の様式図

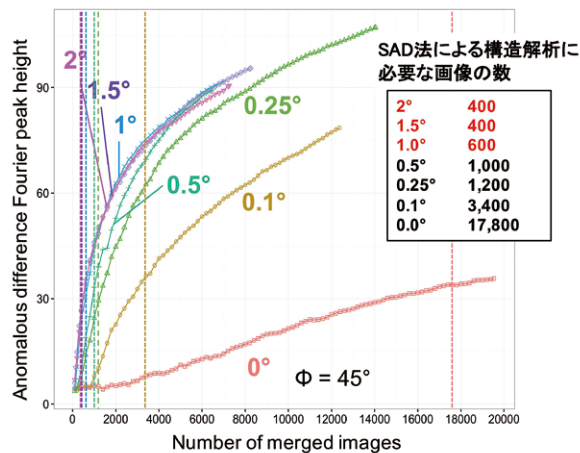


図3 1枚あたりの回転角を変えて測定し、異常分散のシグナルの大きさおよびSAD法による構造決定に必要な回折画像数を比較^[1]

の水銀誘導体の微小結晶(太さ3~5 μm, 長さ20~50 μm)を用いて測定を行った。1枚の回折画像あたりの回転を0°から2°まで変えてデータ測定を実施し、独自のデータ処理方法を用いて解析したところ、回転角0°(静止写真)では単波長異常分散法による構造決定に17,800枚の回折画像が必要であったのに対し、1°以上回転すると400~600枚の回折画像で構造が決定することができた(図3)。さらに、様々な露光時間で測定して照射損傷の影響について調べた結果、LREの場合は吸収線量3 MGyまでであれば、長時間の露光で得られたデータは照射損傷による劣化よりもS/N比向上によるメリットが大きかった^[1]。

SS-ROXの利用法の一つとして期待されるのが室温構造解析である。非凍結状態ではX線照射損傷が70倍以上速く進行することから微小結晶をもちいた室温データ測定は困難であるが、多数の結晶から効率よく測定できるSS-ROXであれば可能であると期待される。2016年度はこのために必要な高速シャッターや高速ステージの整備も進めた。

3. ビームラインのソフトウェア開発

ビームライン操作スケジュールソフトウェア(BOSS)は、電動軸の制御、強度モニタリングと較正、X線ビー

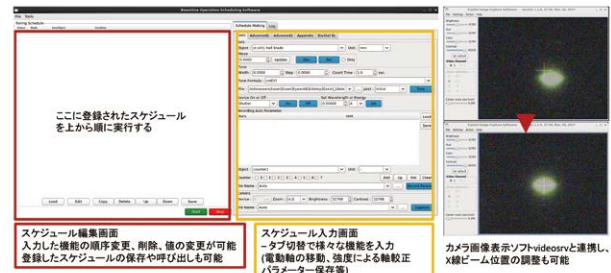


図4 自動調整を行うBOSSの画面構成

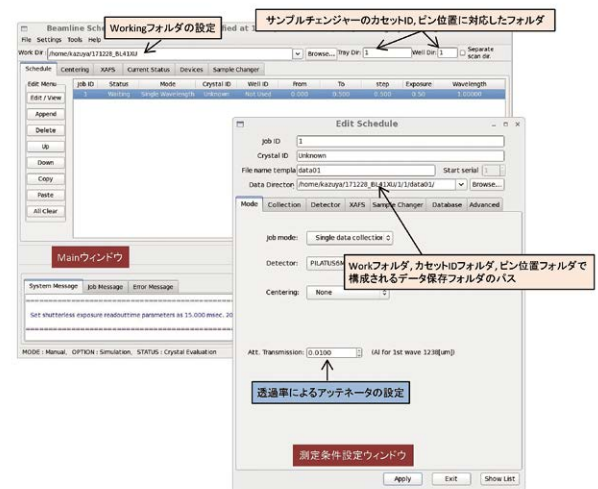


図5 BSSのメインウィンドウおよび測定条件設定ウィンドウ

ム位置の調整などの作業をスケジューリングし、自動で実行することが可能なソフトウェアである。BOSSの導入により通常のビームライン調整作業の時間および作業量を大幅に短縮することや人為的なミスが減少することが期待できる。これまでにBL38B1において実用化されていたが、BL38B1に比べて複雑な集光光学系をもつBL41XUにおいてもアライメントの自動化を図るためにBOSSの高性能化を進めた(図4)。これにより各期のビームライン立ち上げ作業におけるスリット、ミラーの位置調整やビームサイズ測定などの作業が自動化された。また、ユーザー運転期間中に2週間に1回行っている波長ごとの回折計位置の微調整は、手作業で2時間以上かかっていたものが1時間に短縮された。今後は、ユーザービームタイム中に毎朝手作業で行っているビーム位置の確認等の作業の自動化も行う予定である。

この他SPring-8タンパク結晶解析ビームライン標準のソフトウェアBSSの高性能化を行い、フォルダ名・ファイル名を自動設定する機能や、透過率によるアッテネータの設定する機能を実装した(図5)。

4. 高エネルギーモード高性能化

BL41XUでは20 keV以上のX線を利用した回折データ測定を行うために、実験ハッチ1内に専用の回折計を

設置している。2015年度よりユーザー利用に提供しているが、メカベアリングを用いた旧式のゴニオメーターを使用していたことから、回転スピードはせいぜい25°/s程度であり偏芯精度も数ミクロンであった。2016年度は直動型モータを利用した低偏芯ゴニオメーターを導入し、これまでの10倍以上の360°/sで試料を回転することが可能になり、偏芯精度も1 μm未満にまでに減少した。これにより、結晶の位置合わせが迅速化され、また、小さな結晶を用いたデータ測定にも対応できるようになった。

5. 結晶化実験環境の整備

X線結晶構造解析法によるタンパク質の構造決定において、解析のターゲットとなる試料の結晶の品質は構造解析を成功に導くために最も重要なファクタの一つである。そこでSPring-8を用いて結晶の品質の評価を行いつつ結晶化条件の探索を行うために、BL41XUの測定準備室に結晶化セットアップ装置、結晶観察装置、インキュベータなどの整備を2015年度まで進めてきた。2016年度はユーザー利用に向けてこれらの機器の調整、および試薬分注装置などの装置周辺環境の整備をすすめ、試験運用を開始した。

参考文献

- [1] K. Hasegawa, K. Yamashita, T. Murai, N. Nuemket, K. Hirata, G. Ueno, H. Ago, T. Nakatsu, T. Kumasaka, M. Yamamoto : *J. Synchrotron Rad.*, **24**, (2017) 29-41.

JASRI タンパク質結晶解析推進室

タンパク質構造解析促進グループ

長谷川 和也、水野 伸宏、村上 博則、河村 高志

馬場 清喜、奥村 英夫、仲村 勇樹

Nipawan Nuemket、尾崎 愛美

熊坂 崇、八木 直人

JASRI 利用研究促進部門

技術支援グループ

福居 知樹

理化学研究所 放射光科学総合研究センター

生命系放射光利用システム開発ユニット

山下 恵太郎、山本 雅貴

BL43IR 赤外物性

BL43IR赤外物性ビームラインは偏向電磁石を光源としたビームラインで、赤外放射光を利用した分光研究を行っている。赤外分光光源として市販の装置に搭載されているのはグローバルランプなどの熱輻射光源だが、これと比較すると赤外放射光は2桁以上高い輝度と低波数への拡張性が特徴である。広帯域をカバーする点も特徴で、BL43IRでは1.1 ~ 0.012 eV (波数は9000 ~ 100 cm⁻¹、波長は1.1 ~ 100 μmに相当) のエネルギーの光が主として利用されている。高エネルギー側は、光学系の最適化がされておらず強度が低下するが、1.8 eVまで利用可能である。2016年度は、分光装置入射光学系の改造と、磁気光学顕微分光ステーション整備を行ったので報告する。

1. BL43IRの利用状況

2016A期、2016B期合わせて40課題が実施された。また重点課題として、東北大学の佐々木孝彦教授によるPU課題「強相関電子系分子性物質の赤外顕微イメージング分光による電荷ダイナミクスの研究」が実施された。課題数で見た際の採択率は、およそ8割であった。BL43IRでは、高空間分解顕微鏡、長作動距離顕微鏡、磁気光学顕微鏡、近接場分光の4つのステーションがある。

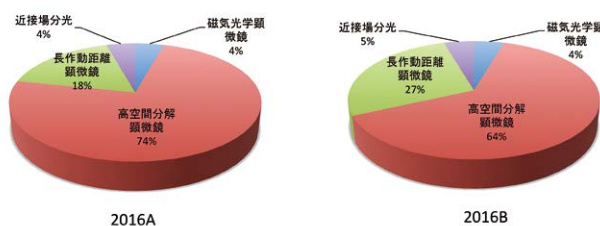


図1 各ステーションにおいて実施された課題数の割合

2016A期、2016B期のそれぞれのステーションにおける課題実施割合のグラフを図1に示す。およそ7割の課題が、高空間分解顕微鏡ステーションで実施されている。採択課題の研究分野は、物性物理・化学・材料・考古学・生物・医学など幅広い。

2. 分光装置入射光学系の改造

2011年度に高空間分解顕微鏡ステーションに新規赤外顕微分光装置を導入したが、その際には、分光装置入射光学系を図2のように配置した。これまで約5年間の共用において、分光装置直前の放物面鏡に主要な光軸調整機構を持たせたことと、分光装置入射口に正対しての光軸調整ができないほど作業スペースが狭いことが、調整作業をやりにくくし、ひいては光軸再現性を下げていることが明らかとなった。そこで、今後フィードバック光学系を挿入する機会に合わせ、入射光学系全体を更新した。その際、調整ミラー数は多くなるが、分光器への入射ミラーは平面鏡とし、放物面鏡によるサイズ調整と平面鏡による入射角度調整を分離して、効果的な入射光学系を設計した。また、光路の乾燥空気パージをするためのパージカバー一式を用意した。パージガスジェネレーターシステムを一台増設し、分光器本体と入射光学系を効率よくパージできるように改善した (図3参照)。以上の改善により、2015年度の分光装置内部光学系光軸調整の可視光線化と合わせて、再現性の良い調整が可能となり、安定した条件での測定ができるようになった。

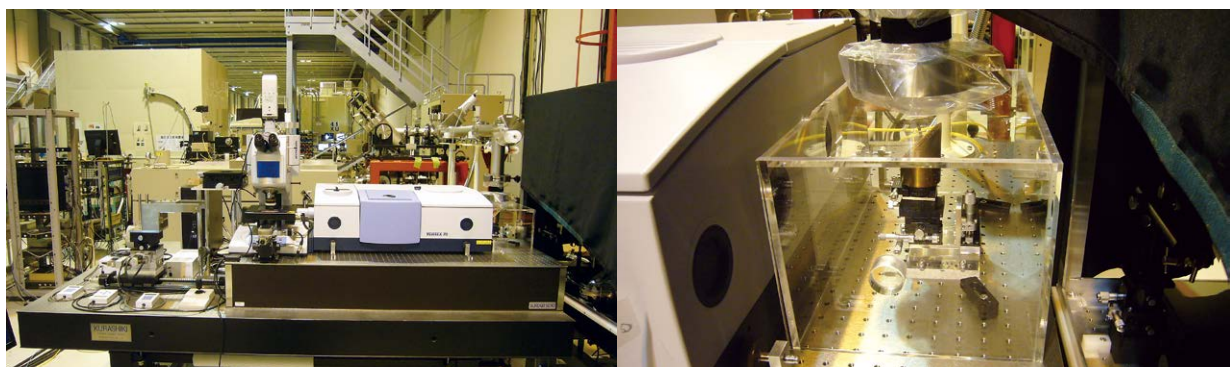


図2 (左) 分光装置と改造前の入射光学系、(右) 入射光学系、分光装置入射ミラーは放物面鏡で、XYZ α β 調整機構を備える。



図3 (左) 改造した入射光学系、(右) 分光装置入射ミラーは平面鏡で、その上流に放物面鏡を設置した。



図4 磁気光学顕微分光ステーションのクライオスタット

3. 磁気光学顕微分光ステーション整備

磁気光学顕微分光ステーションは、最大印加磁場が14 Tの超伝導磁石と赤外顕微鏡を組み合わせた装置を用いて磁場下における赤外顕微分光を行うステーションである。従来から低温測定用クライオスタットも装備されていたが、赤外透過窓の窓材が中赤外領域 ($800 \sim 9000 \text{ cm}^{-1}$) 用の BaF_2 に固定であるため、 800 cm^{-1} 以下の遠赤外領域に対応しないという問題があった。さらに、最新のクライオスタットに比べて液体ヘリウム消費量が多いことも問題となっていた。そこで2016年度は、最新式のクライオスタットを導入し、これらの問題を解消した。図4に今回導入したクライオスタットを示す。クライオスタットの底面に配置している窓材は、赤外光を透過する材質で、 $800 \sim 9000 \text{ cm}^{-1}$ の波数領域は BaF_2 、 $450 \sim 9000 \text{ cm}^{-1}$ の波数領域は KBr 、 $100 \sim 1000 \text{ cm}^{-1}$ の波数領域はポリプロピレンを使用する。新たなクライオスタットでは、窓材は窓枠に取り付けており、窓枠ごと交換可能な形式とした。これにより、本ステーションがカバーする波数領域を遠赤外領域に拡張できるようになった。温度は、 $4.2 \sim 325 \text{ K}$ で制御可能である。また、液体ヘリウムの使用量は、 $1/5$ 以下に抑えられるようになった。波数領域の拡大、および、液体ヘリウムの消費量抑制は、ともにユーザー実験に重要な実験環境であり、利用の拡大につながる。

利用研究促進部門

分光物性IIグループ

森脇 太郎、池本 夕佳、中村 哲也

BL46XU 産業利用Ⅲ

1. 概要

BL46XUは産業界による放射光利用の促進を主な目的とする産業利用ビームラインであり、標準アンジュレータを光源とする高輝度X線を利用することができる。測定手法は第1実験ハッチにおいてX線回折・散乱とX線イメージング、第2実験ハッチにおいて硬X線光電子分光(HAXPES)を提供している。2016年度、BL46XUでは第1実験ハッチ下流側のオープンスペースを使用したマイクロビームX線回折装置における2次元検出器PILATUS 2Mの更新と、多軸X線回折装置において新規検出器軸の追加改造、および第2実験ハッチのHAXPES装置R4000に新規分析チャンバーおよびArイオンスパッタ銃とデュアルアノードX線源を導入した。

2. 高度化の実施内容と成果

2-1 マイクロビームX線回折装置における大型2次元ピクセル検出器更新

BL46XUでは近年、食品業界の加工油脂食品分野の新規利用ニーズ開拓を目的とし、マイクロビームX線回折装置の整備を行ってきた。本装置の目的はマヨネーズやショートニングのようなエマルション食材の安定性向上において重要な、エマルション油滴中の油脂結晶組織制御の為の基礎知見を得るために、油滴中の結晶相分布評価を行うことにある。本装置はフレネルゾーンプレートを用いてマイクロビームを形成し、試料からのX

線回折パターンの検出には大型2次元ピクセル検出器のPILATUS 2Mを用いた。試料位置制御の為の試料位置観察にX線同軸光学顕微鏡を導入するなど、測定技術の効率化を進めている。しかしながら、PILATUS 2Mが老朽化の為、測定データの取り込みが測定中に中断するなど、制御が不安定になり、実験に支障をきたすようになってきた。このPILATUS 2Mの修理を検討したが、本装置はJASRIとスイスのPaul Scherrer Institut (PSI)とのPILATUS検出器の共同開発において製作された試作機で、現在PILATUSを取り扱っているDECTRIS社に修理を依頼するのは困難であること、さらに本機は現行のPILATUS3タイプよりも前の世代のPILATUS2タイプであるため、部品の確保が困難であることから修理を断念せざるを得ず、検出器をPILATUS3 X 2Mに更新した(図1参照)。PILATUS3 X 2Mは検出素子面積、ピクセルサイズは旧装置と同じであるが、リードアウトタイムがPILATUS2に比べて3.6 msから0.95 msに高速化と制御システムに検出器制御サーバーとは別にデータ保存用のストレージサーバーの装備により、時分割測定などの実験における大容量のデータにも対応になった。

2-2 多軸X線回折装置における新規検出器軸の追加改造

BL46XU第1実験ハッチ上流側にはHUBER社製多軸X線回折装置が設置されている。金属片などのバルク試料や、シリコン基板やガラス基板上に成膜された薄膜試料のX線回折・散乱測定、各種in-situ測定を実施している。本装置の軸の基本構成は、試料周辺4軸と検出器軸2軸の6軸回折計であり、検出器軸は水平面内と垂直面内の2方向に検出器を走査することができる。試料周辺にxyz軸や、検出器軸にアナライザー用 θ - 2θ 軸を追加することも可能である。この回折計は、検出器軸にスリットとシンチレーションカウンターなどの0次元検出器を取付け、検出器軸あるいは試料軸を走査することでX線回折・散乱プロファイルを得る装置である。しかし、近年MYTHENやPILATUSなどの優れた1次元及び2次元検出器が利用できるようになり、BL46XU多軸X線回折装置を利用する課題の半数以上が、MYTHENやPILATUSを用いる実験で、従来の0次元検出器と2次元検出器の両方を用いる実験もある。このような測定ニーズの変化に対応するため、1次元・2次元検出器専用の新規検出器軸を追加する改造を実施した。改造を実施した装置の写



図1 更新により導入した大型2次元ピクセル検出器
PILATUS3 X 2M

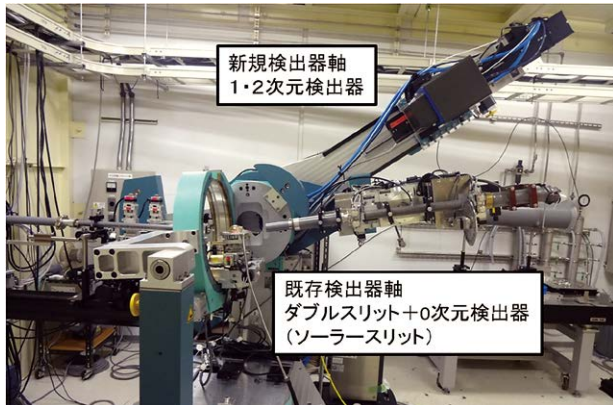


図2 新規検出器軸を追加改造した多軸X線回折装置

真を図2に示す。既存検出器軸にはこれまで通り2基の四象限スリット（ダブルスリット）、もしくはソーラーズリットと0次元検出器を設置し、追加した新規検出器軸には1次元検出器あるいは2次元検出器を設置し運用する。各軸は干渉しない範囲で独立に駆動することができ、新規検出器軸には1次元検出器あるいは2次元検出器を光軸方向に移動することができる自動ステージを設けている。この改造により課題となっていた検出器入れ替え作業が不要になり、大幅な効率化・省力化が実現でき、ユーザー実験の受入れ幅を拡大することが可能となった。

2-3 HAXPES R4000装置における新規分析チャンバーの導入

BL46XU第2実験ハッチに設置されている硬X線光電子分光(HAXPES)装置(VG Scienta R4000アナライザー)は、2016年度において、装置の機能拡張性を確保することを目的とした分析チャンバー及び各種機器についての更新を行った。図3に更新した装置の外観写真を示す。本更新における主な改良点は以下の通りである。

- (1) 試料に成膜や加熱等の前処理を行うために利用者が持参した前処理チャンバーから、前処理を行った試料を大気非暴露で分析チャンバー内に導入することを可能にするためのサブチャンバー機構を設けた。

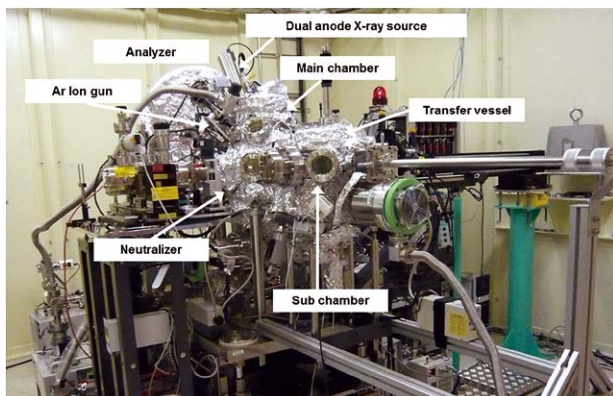


図3 HAXPES R4000装置の外観写真

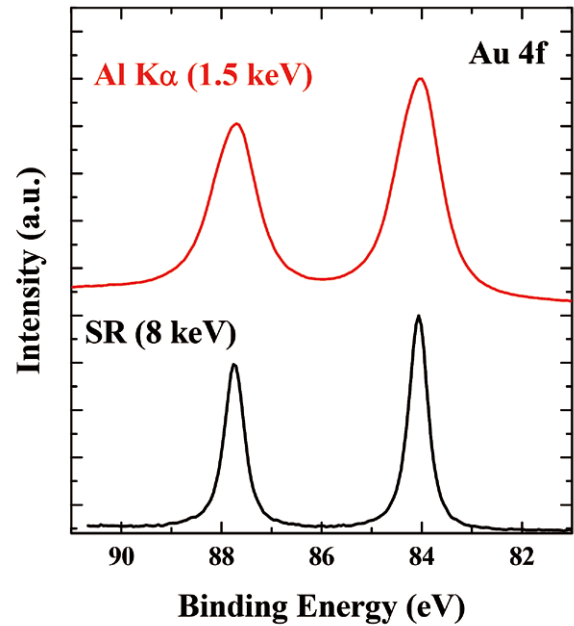


図4 リファレンス Au 試料の Au4f スペクトル

- (2) Ar イオンスパッタ銃とデュアルアノードX線源を導入した。Ar イオンスパッタ銃は、スパッタエッチングによって表面汚染層や表層除去を行う事を目的としており、既に実際のユーザー課題で使用され始めている。その他、低速イオンを使用する事で、特に絶縁性の高い試料の測定で問題となりやすい試料の帯電対策にも応用が可能であり、既設の中和用電子銃と同一イオン銃を組み合わせたデュアル中和処理によって絶縁性の高い材料を含めた多様な試料の測定を可能にすることも見込んでいる。後者については、Al K α (1.5 keV) と Ag L α (3.0 keV) のデュアルアノードX線源を導入しており、これを用いた軟X線励起による表面敏感な光電子分光と、プローブ深さが深いことを特徴とするHAXPESを組み合わせた深さ方向における結合状態評価を可能にすることを目的としている。その他、オフラインでの装置調整やメンテナンスにも使用することができ、効率の良い装置運用と維持管理を行うことが可能となっている。図4にリファレンス Au 試料を放射光 (8 keV) と Al K α (1.5 keV) で測定した Au 4f スペクトルの結果を示す。Al K α は非単色化線源のため、放射光 8 keV (Si (111) DCM + Si(444) CCM) に比較して2倍程度のピーク半値幅となっている。また、様々なユーザーニーズに応えるため他のオプション機器の取り付けを可能にするため、予備ポートも増設した。

産業利用推進室

産業利用支援グループ

安野 聡、小金澤 智之、梶原 堅太郎、佐藤 真直

BL47XU 光電子分光・マイクロCT

1. アポダイゼーションFZPの導入による結像型CTの定量性向上

X線顕微CT（ナノCT）は、X線結像顕微鏡光学系を利用することで約100 nmの空間分解能で3Dイメージングを可能とするCT装置である。BL37XU, BL47XUでFresnel zone plate (FZP)を対物素子として用いたナノCTが様々な分野のユーザーに供されている。この装置のベースとなるX線結像顕微鏡光学系には、しかしながら未だフリンジノイズや疑似コントラストによりデータの定量性を著しく損ねやすいという問題が指摘されていた。原因はベッセル関数で通常表される対物素子のpoint-spread function (PSF)のメインピーク周囲に見られるリップルと呼ばれる複数のサイドピークである。このリップルの無いPSFを得るには、そのフーリエ面に相当する対物がガウシアンのような明確な境界を持たない開口をもてばよい。このように、リップルを抑えるためにフーリエ面に適当なフィルタを乗ずることをアポダイゼーションとよぶ。この事を利用して、X線結像顕微鏡のフリッジノイズの除

去を目的としたApodization FZP (A-FZP)が開発された^[1,2]。この素子は、周辺部にいくにつれてゾーンが浅く、それにつれ回折効率も低下し、ガウシアンのような開口関数を持つ。このA-FZPを対物素子として用いたナノCTの測定例を図1下に、比較として、通常のFZPを対物とした場合の測定例を図1上に示す。通常のFZPの測定例では、CT像に試料境界のエッジ強調、ストリーク、像コントラストのムラなどが確認できる。一方、A-FZPによる測定例では、そういった偽像が効果的に抑えられていることがわかる。それぞれのCT値のヒストグラムを比較すると、FZPの場合はブロードなシングルピークしか確認できないが、A-FZPではこれが2つのピークに分離されており、密度分解能が向上していることが分かる。このように、A-FZPを導入することによって、効果的にナノCTの定量性を向上させることに成功した。

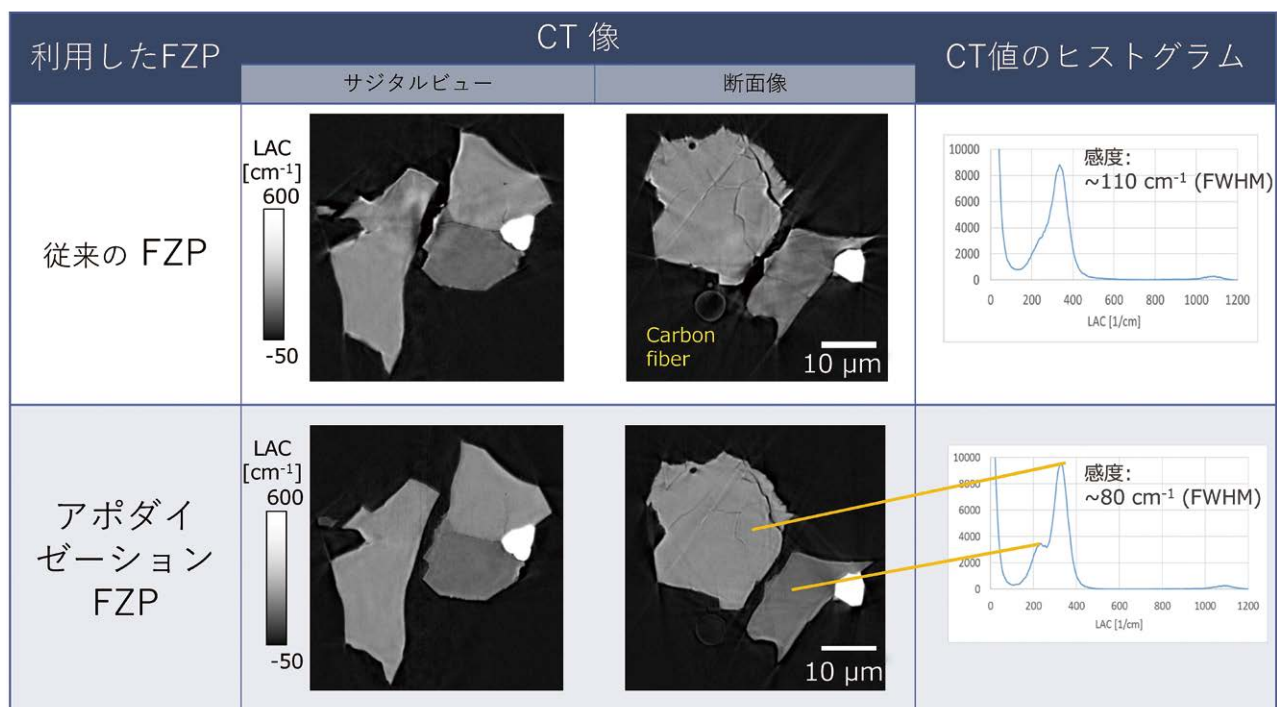


図1 X線結像CT測定例(上:通常のFZPを対物素子として利用、下:A-FZPを利用)。資料はKilabo隕石。左から、CT像のサジタルビュー、断面像、CT値のヒストグラム。X線エネルギー 8 keV。1800投影、測定時間30分。

2. 硬X線光電子分光

BL47XU の硬 X 線 光 電 子 分 光 (Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy: HAXPES) では、バルク感性を生かし、広角対物レンズを用いた角度分解深さ分析法やKirkpatrick-Baez (K-B) ミラーによる $\phi 1 \mu\text{m}$ 集光ビームを用いて、埋もれた界面における微小領域化学結合状態のイメージング計測技術が、利用研究に供されている^[3]。現在、HAXPES が利用できるビームラインは世界の大規模放射光施設で数多く存在するが、本微小領域イメージング法と組み合わせた広角度分解深さ分析が可能なビームラインはSPring-8のBL47XUのみである。また、上記の特徴を活かして、試料雰囲気（溶液や湿潤ガス）環境の試料を対象とした、“その場”HAXPES計測を推進している。本稿では、2015年度の2端子電圧印加機構をさらに高度化した4端子電圧印加計測機構と、大気非暴露計測のためのトランスファーベッセル機構の開発について報告する。

2-1 4端子電圧印加計測機構

最近、様々なモット絶縁体物質において、電界効果で絶縁体から金属に相転移が起きることが発見され、新規

トランジスタや抵抗変化メモリ等の応用が期待されている。電界誘起金属―絶縁体転移を示す物質のHAXPES計測時には、実際に試料が転移したことを確認するために、4端子法を用いた電流―電圧計測を同時に行うことが望ましい。このような系の計測需要の高まりを受け、4端子電圧印加計測機構を開発した(図2)。試料ホルダーは、汎用試料ホルダーを4つに分割し、それぞれがアルミナや空隙により絶縁された機構になっている。汎用試料ホルダーとサイズが同じであるため、真空内に常設のトランスファー機構や試料バンクを利用できる。すなわち、事前に大気圧下でセットした電圧印加試料を導入できる。また、本機構はクライオマニピュレータに搭載されているため、最低温度20 Kまでの温度誘起相転移を示す物質に対しても適用可能である。

2-2 トランスファーベッセル機構

これまで、試料を大気暴露することなく、計測チャンバーに導入する必要があるリチウムイオン電池材料などの大気活性試料や、潮解性試料を対象とした研究にもHAXPES計測の適用が望まれてきた。広範な研究分野に利用促進させるため、大気非暴露でロードロックチャンバーに接続可能であり、利便性を向上させたトランスファーベッセル機構を新たに開発した(図2)。Oリングで



図2 (a) 4端子電圧印加計測機構。試料ホルダーは汎用試料ホルダーと同じサイズである。(b) トランスファーベッセル機構。最大5試料格納可能である。

のシールを用いており、最大5試料まで格納可能である。電池材料をはじめとする活性物質の測定だけでなく、軟X線ビームラインなど、他の真空環境下で測定した試料をそのまま、HAXPES装置に持ち込んで測定するなど、さまざまな利用用途が見込まれる。

上記した2つの開発のほか、既存ユーザーや潜在的なユーザーに向け、BL47XU HAXPES装置をより理解していただくことを目的とし、HAXPESの紹介と、BL47XUのHAXPES装置を用いた実験の概要、および、実験結果の紹介を盛り込んだ紹介ビデオを製作した。SPring-8Channel (URL : <https://www.youtube.com/user/spring8channel>) にて紹介中である。

参考文献

- [1] A. Takeuchi *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **24** (2017) 586.
- [2] A. Takeuchi, *et al.*: *J. Phys. Conf. Series* **849** (2017) 012055.
- [3] E. Ikenaga *et al.*: *J. Electron Spectrosc. and Relat. Phenom.* **190** (2013) 180-187.

利用研究促進部門

バイオ・ソフトマテリアルグループ

上杉 健太郎、竹内 晃久

分光物性Ⅱグループ

保井 晃、池永 英司

2-3-2 理研ビームライン

理化学研究所・放射光科学総合研究センターではSPring-8のビームライン利用技術や利用システムの開発高度化、SACLAの新規利用技術に向けた様々なR&Dに対応し、また理研内の物質科学や生命科学での放射光利用研究を推進するために、現在9本の理研ビームラインを設置している。稼働中の理研ビームラインには、膜タンパク質の微小結晶構造解析で成果を挙げているターゲットタンパクビームライン (BL32XU) や、コヒーレントX線による走査型回折顕微法 (タイコグラフィ法) で奥行き方向の情報を得る新しい手法を開発した物理科学ビームラインI (BL29XU) など、それぞれ独自の特徴を持った構造生物学関連4本、物理科学関連4本の理研ビームラインが順調に技術開発と利用実験を進めている。

また、X線非弾性散乱研究用の量子ナノダイナミクスビームライン (BL43LXU) は2016年度からユーザー利用を開始した。

以下では、ビームライン基盤研究部のユニット毎に運用中のビームライン (BL26B1&B2、BL32XU、BL45XU、BL19LXU、BL44B2、BL17SU、BL29XU) 及び立上げ調整中のビームライン (BL43LXU) の現状について報告する。

(山本 雅貴)

1. 構造ゲノムビームラインⅠ&Ⅱ (BL26B1、BL26B2)

BL26B1、BL26B2は、広範なエネルギー領域で安定したX線ビームが利用可能な偏向電磁石光源および標準光学系のビームライン構成と、大量の結晶試料のスクリー

ニングおよび回折データ収集の効率化に特化した実験ステーションからなる、タンパク質結晶解析データ収集用ビームラインである。利用者は自動サンプルチェンジャーSPACE^[1]、および制御インターフェースBSS^[2]により、自動測定による効率的な実験を行うことができる。また遠隔地からWebデータベースD-Cha^[3]を介して実施するメールイン・データ収集や、研究室から結晶センタリング等の操作が可能な遠隔実験システム^[4]の利用により、SPring-8を訪れることなく回折データセットの取得を行うことができる。SPACEはUni-Puckの場合最大128個の凍結結晶を設置可能で、ロボットアームのアタッチメントを交換する事により、従来より実施している専用ネジ式ピンを利用した、オペレータの介助による自動データ収集への対応も可能である (最大試料数306個)。

現在、さらなる利用支援拡大を目指して結晶試料凍結条件の探索や常温回折データ収集に向けたオンライン試料調湿装置^[5]や、紫外吸収、ラマン分光測定への対応も可能なオンライン分光装置等、新規実験手法の導入を進めるとともに、試料スクリーニングやデータ収集のさらなる効率化を目指している。2016年度には両ビームラインの二次元検出器の更新を行った。BL26B1では、EIGER X 4M (DECTRIS) を導入し、自動切り替えステージにより大型IP検出器R-AXIS V (RIGAKU) または高感度CCD検出器MX225HE (RAYONIX) との併用が可能である。またBL26B2にはMX225HS (RAYONIX) を導入した (図1)。いずれも外部トリガー信号による高フレームレートの撮像が可能であり、fine-slicing法によるデー

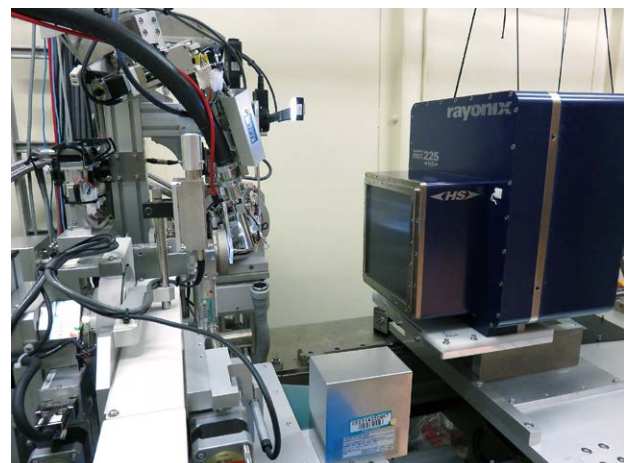
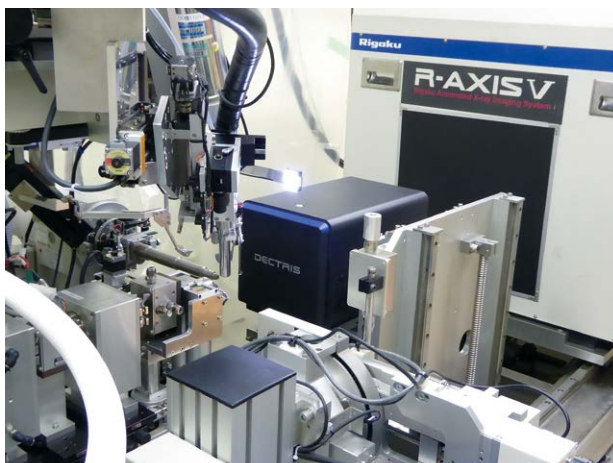


図1 高速二次元検出器 左) EIGER X 4M (BL26B1)、右) MX225HS (BL26B2)

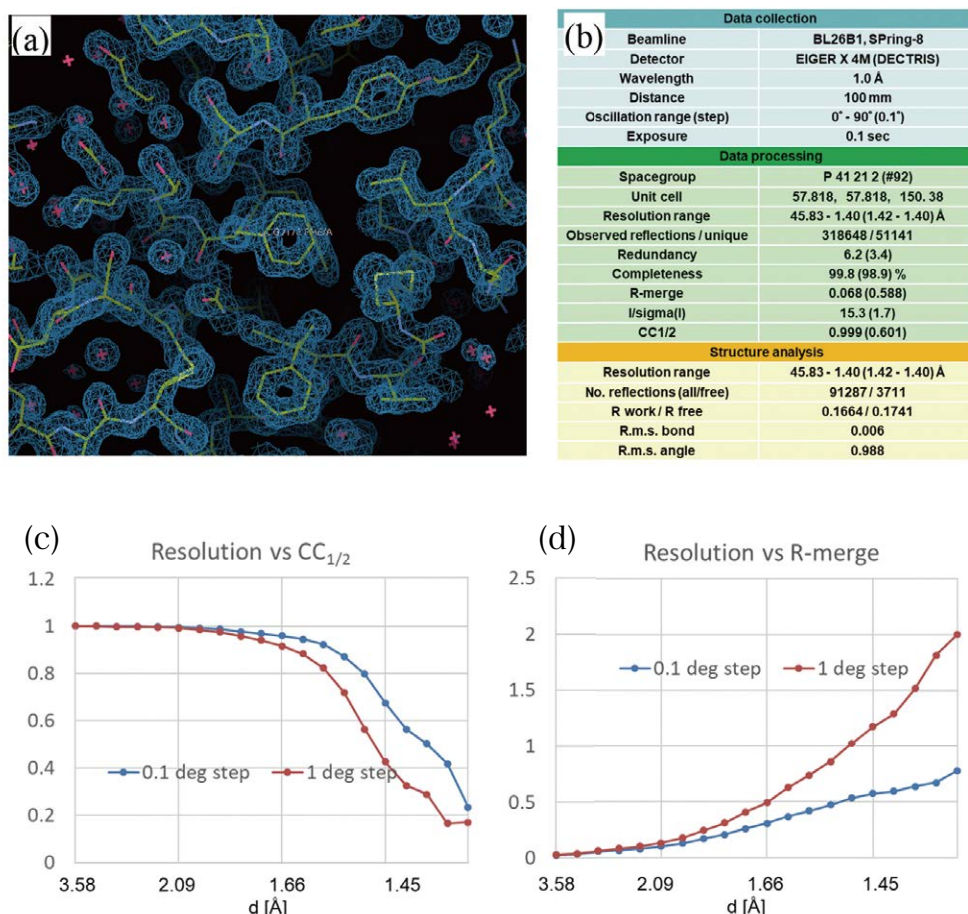


図2 EIGER検出器を利用したFine-slicing法によるデータ精度の向上。Thaumatin結晶の構造解析 (a. PHE173付近の電子密度図、b. fine-slicing解析データ統計値) において、角度当りの露光時間を一定にして異なる振動角(1度と0.1度)で取得したデータの統計値CC1/2およびR-mergeの比較 (c、d)。いずれもFine-slice法で精度の向上が見られた (図中青プロット)。

タ精度の向上 (図2) や、結晶探索のためのラスタースキャンやデータ収集の高速化に貢献している。

参考文献

- [1] H. Murakami, *et al.*: *J. Appl. Cryst.* **45** (2012) 234-238.
- [2] G. Ueno, *et al.*: *J. Struct. Funct. Genomics.* **7** (2006) 15-22.
- [3] N. Okazaki, *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **15** (2008) 288-291.
- [4] G. Ueno, *et al.*: *AIP Conference Proceedings* **1741**(2016) 050021.
- [5] S. Baba, *et al.*: *Acta Cryst.* **D 69**, (2013)1839-1849.

(上野 剛)

2. ターゲットタンパクビームライン (BL32XU)

BL32XUは2010年度より高フラックス微小ビームを用いたタンパク質の結晶構造解析に特化したビームラインとして運用している。このビームラインで利用できる

ビームサイズは1ミクロン～10ミクロンであり、10ミクロン以下の小さなタンパク質結晶からも高いシグナル・ノイズ比で回折データ収集を行うことができる。

2016年度も昨年度から継続して脂質メソフェーズ法を用いた膜タンパク質結晶からのデータ収集を多く行なった^[6,7,8]。2015年から開発を進めて行きた自動データ収集システムZOOの運用方法について検討を進めるとともに、脂質メソフェーズ法を用いた膜タンパク質結晶から効率よくデータ収集を行うことを目指し新規結晶マウント方法 (結晶化からX線を照射するまでの工程) を検討した。

2016年当初から高速読出しが可能な光子計数型検出器であるDectris社製EIGER X 9Mを用いた測定系の立ち上げを行った。BL32XUの測定では、主に連続した回折像取得にX線シャッターを利用しないいわゆるシャッターレス測定を行っていたが、この手法ではゴニオメータの並進軸や回転軸、それと合わせて検出器の読出しを高い時間分解能での同期が必要である。そこでSPRING-8で開発されたモジュールBlancを用いて駆動軸とEIGERの高速同期制御を可能にした。またEIGERは238 Hzでの高速読み出しが行えるため、その性能評価も行った。

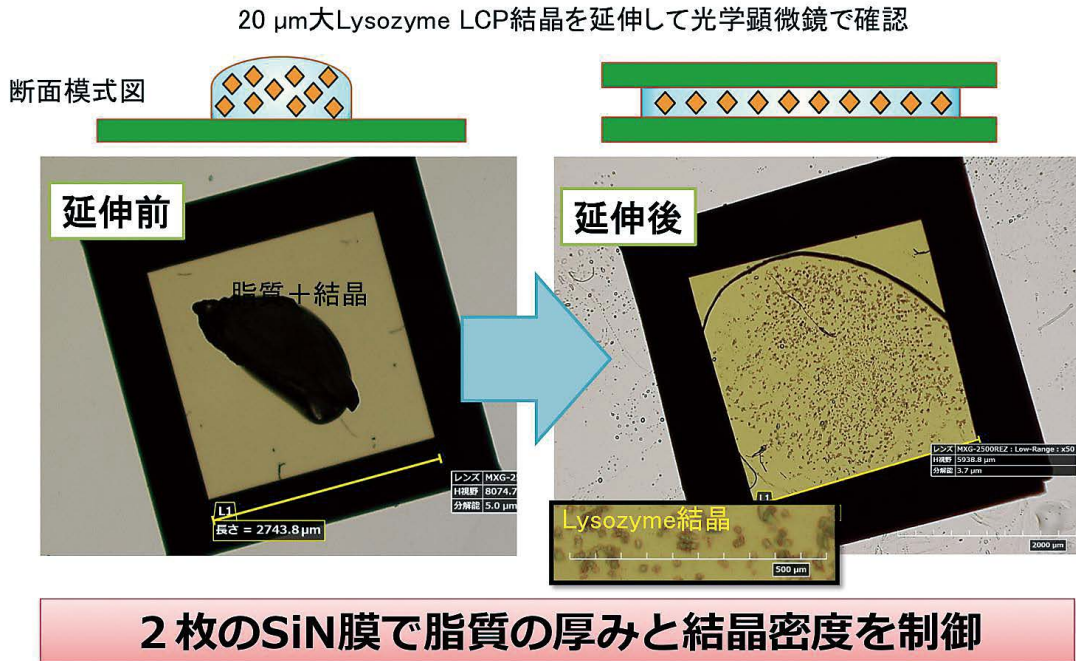


図3 窒化シリコン膜（二枚）を用いた大量結晶マウント法の概略図

BL32XUで利用可能な高フラックスビームを用いて標準タンパク質の凍結結晶から1秒未満で構造解析可能な完全なデータ収集が可能であること、またそのデータ精度にも問題がないことを確認した。

脂質メソフェーズ法で結晶化した膜タンパク質結晶にはX線に照射するまでに多くの技術的障壁があり、不慣れた実験者には大きなストレスであるとともに回折実験をより困難なものとしている。脂質メソフェーズ法では多くの場合、ガラスサンドイッチと呼ばれるプレートを用いて結晶化を行う。文字通り二枚のガラスの間に穴の開いた両面のガラス接着も兼ねたスペーサを挟んで結晶化条件を保持する特殊なプレートである。スペーサの穴のあいた部分で結晶化するため、顕微鏡で結晶を確認したのちその部分のガラスに取り除いて結晶を掬い取る。この工程は非常に難易度が高い手技が要求され、不慣れた実験者の場合、回折実験に利用する凍結結晶が「結晶化した時点の回折能を示している」のか「掬い取る時に損壊した状態」なのか判断することが難しい場合が多い。これはガラスサンドイッチから結晶をループで掬い取り凍結するまでの時間が短く制限されていることも大きな要因である。結晶化条件を保持しているガラスプレートを割ってから15秒程度で掬い取らなければ種々の結晶環境が変化し、結晶の品質が著しく損なわれることが多い。実験者の熟練度によっては結晶化で得られた結晶の20～30%程度の数しか回折実験に用いることができない（凍結以前にやむなく捨てられてしまう）。この大きな問題を解決するために今年度、ワイヤ法（理研・南後らによる：unpublished）による結晶化方法と組み合わせた新規結

晶マウント手法の開発を進めた（図3）。ワイヤ法では従来の結晶化プレートではなくワイヤに刺した脂質およびタンパク質の混合物をエッペンドルフ中のリザーバ溶液に浸すことで結晶化を行う。メリットとしては結晶ができた後にワイヤをリザーバから引き上げれば容易に結晶を取り出すことができることである。結晶を取り出した後に粘度が高い脂質に含まれている結晶を2 mm角の窒化シリコン薄膜（1 μm 厚）にのせて、もう一枚の薄膜で上から押さえ込むようにマウントし凍結することを試みた。これによって脂質と結晶を引き伸ばす（延伸）ことが可能で、また結晶の数密度（単位あたりの結晶の数）を制御できることも確認した。データ収集時は窒化シリコン窓（2 mm角）に対して垂直にX線を入射するため、結晶の数密度制御により光軸方向の複数結晶にX線が当たってしまい有用な回折像が得られない問題を解決できる。図3のように二枚の膜に挟んで延伸したLysozymeの微小結晶をそのまま凍結し、NC加工機で製作した窒化シリコン膜ホルダーと組み合わせて回折実験を行った。その結果、1ホルダー上の300以上の結晶から連続データ収集を行うことが可能で、各結晶から5°分ずつ集めたデータをマージすることで構造解析に有用な構造因子を得ることに成功した。新規マウント法では、従来法の数十倍の個数の結晶を1ホルダーに保持し、回折実験に用いることができるため、試料交換の回数を大幅に減らし、各結晶をより近い条件で凍結することが可能である。

参考文献

[6] X.Jiang, et al.: *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.*,

133(44),(2016) 12420-12425.

[7] W.Shihoya, *et al.*: *Nature.*, **537(7620)**, (2016) 363-368.

[8] H.Tsuchiya, *et al.*: *Nature.*, **534(7607)**,(2016) 417-420.

(平田 邦生、河野 能顕、山下 恵太郎)

3. 構造生物学ビームライン I (BL45XU)

BL45XUは、タンパク質の溶液中の構造やその動的变化、高分子材料の構造と機能・物性などのナノスケールの構造解析をX線小角散乱 (SAXS: Small-Angle X-ray Scattering) 測定により進めている。ビームラインの構成は垂直偏光のタンデムアンジュレータを光源とし、合成ダイヤモンド結晶を分光素子としたビーム分岐・単色化機構を備え、SAXSステーション及びSWAXS (Small and Wide- Angle X-ray Scattering) ステーションにて同時に実験が可能な特徴を持つ。SAXSステーションの全ビームタイムの20%をJASRI共同利用課題に供出し、10%を創業等支援技術基盤プラットフォーム事業にて解析支援、残りの70%を理研内プロジェクト研究とビームライン高度化および調整に利用している。

2016年度は、長時間測定時の入射X線のドリフトを低減するために、モノクロメーターの水冷却冷却系にアクチュエーターを設置し、モノクロメーターの低振動化を進めた。また、サンプルから2次元検出器 (PILATUS3X 2M) の間を真空に保つ真空パイプの大口径化を行い、2次元検出器前面の真空窓を

Φ 300 mm から Φ 350 mm に拡大した (図4)。併せて、強度モニタ内蔵のダイレクトビームストッパーをΦ 4 mmからΦ 3 mmに小径化することにより、より広いqレンジの測定が可能となった。波長1 Å、カメラ長2.0 mのSAXS測定では測定可能qレンジが $0.008 \text{ \AA}^{-1} < q < 0.44 \text{ \AA}^{-1}$ から $0.005 \text{ \AA}^{-1} < q < 0.50 \text{ \AA}^{-1}$ へ、WAXS/D測定では最大測定分解能が2.8 Åから1.8 Åへと拡大した。真空パイプの大口径化に併せて、真空異常時には試料前X線シャッターと検出器前保護カバーを自動閉とするインターロックを設け、X線誤照射によるサンプルの損失と機器保護の対策を行った。さらに、精密測定向上のために、実験ステーションのエアコン空調口にソックダクトを設置し、実験ステーション内の温度安定化を進めた。

測定制御・解析系では長時間連続間欠測定中の試料の放射線損傷を評価するためにシャッター、検出器の制御システム“DataCollector”(図5)の改良を行った。従来は1回の露光当たりに1枚の散乱画像を取得していたが、1露光当たり複数枚のフレームに散乱回折像を分割取得し、画像データ処理プログラム“DataProcess”にて放射線損傷評価とともに自動的にマージする機能を組み込んだ。散乱画像の取得枚数は大幅に増加したが、実験データのデータベース化と画像データの自動処理によって、ビームラインでのデータ解析の迅速化・簡便化を実現している。

サンプルでの局所構造解析の迅速化のためにX線同軸試料観察カメラの高解像度化を行ったほか、オンライン



図4 大口径真空パイプ

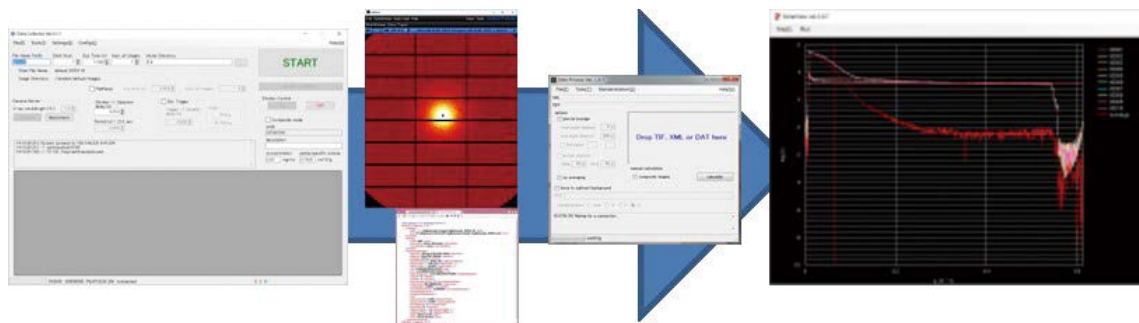


図5 測定制御・自動分析プログラム

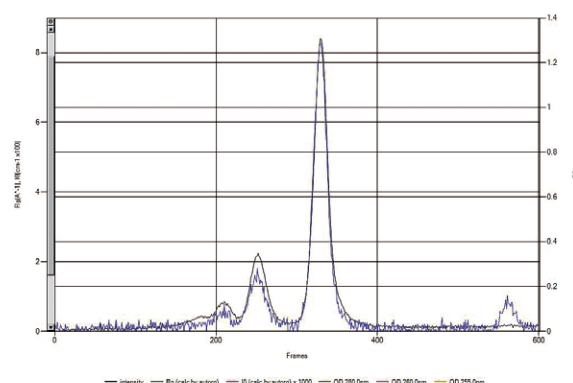


図6 オンラインFPLCシステム（左）とオンタイム解析システム（右）

FPLCシステム（図6）の改良も進めた。真空封入型フローセルの改良を行いセルの耐久性を向上させるとともに、6種類までのバッファ置換を自動化する交換バルブの設置、セルの自動洗浄と乾燥機能を追加し連続測定時の省力化と測定精度の向上を進めた。ハードウェアの改良に並行して、多種タンパク試料に対するゲルろ過カラムの最適化を精査し、20～500 μ Lのタンパク質試料量で効率的な散乱測定プロトコルの構築を進めた。

記のように新規散乱回折測定法への展開を進めつつ、運用面では構造生物学や物質科学分野など広い研究領域での利用支援を展開している^[9-11]。

参考文献

- [9] K. Maeshima, *et al.*: *EMBO Journal* **35**(10), (2016) 1115-1132.
- [10] AD. Nalay, *et al.*: *Scientific Reports* **6**, (2016) 27573.
- [11] M. Oide, *et al.*: *J. Biological Chemistry* **291**(38) (2016) 199750-19984.

(引間 孝明)

4. 物理科学ビームラインII (BL19LXU)

BL19LXUは、27 m長真空封止アンジュレータを光源とするX線ビームラインである。2000年度に実験ハッチ1～3の供用を開始し、2001年度に実験ハッチ4が拡張された。これまで光学ハッチでは、MOSTAB（分光器安定化システム）や縦集光ミラーの設置（2004年度）とその直下流位置での4象限スリット設置（2010年度）などの高度化を進めてきた。一方で2012年度頃には分光器全体に老朽化によると思われる機械的、熱的な不安定要素が目立つようになってきた。このため2013年度末に分光器のオーバーホールを行いチャンバーの内部のほぼ全ての部品を新規格のものに更新した。その後も液体室素配管

の更新（2015年度）など継続的に改良が続けられ、高安定なビームが供給できている。実験ハッチの高度化・維持管理に関してはシングルパルス利用のための高速回転シャッターの導入（2009年度）、KBミラーによる100 nm集光（実験ハッチ4、2010年度）、実験ハッチ3へのKBミラーの常設化（2014年度）と横集光ミラーの変更（視射角1.5 mrad→3 mrad、2015年度）、ダイヤモンド薄膜を使ったインラインビームモニタの設置（実験ハッチ2、2015年度）、ハッチ内照明をLEDにして低発熱・低消費電力化（2015年度）が行われてきた。

2016年度初頭に、フェムト秒パルスレーザーシステムのアシレータ用励起レーザーが故障したため、アシレータ以外のレーザーシステムを更新した。特に、再生増幅器の繰返し周波数をこれまでの1 kHzから10 kHzにアップグレードした。これによってポンププローブ実験のスループットが10倍に増強され、統計精度の高いデータ取得が可能となった。また、SPRING-8のH-modeに合わせて、9.49 kHzのX線チョッパーを新たに開発した。

2014年度より開発を進めてきたダイヤモンド薄膜を使ったインラインビームモニタは、実験ハッチでの使用で十分な実績が蓄積された。そこで、2016年度は光学ハッチ内に設置されていたスクリーンモニタ（SCM5）を、新たに製作したダイヤモンド薄膜のビームモニタで置き換えた。このビームモニタは関連機器の変更なく置き換えられるように、従来のスクリーンモニタと寸法・制御ともに完全互換としてある。新SCM5の導入により、ビームイメージだけでなく、その強度もモニタできるようになった。SCM5は下流シャッター（DSS）の直上流にあるため、実験ハッチで作業中でもビーム調整可能となり、より効率的なビームライン調整が可能となった。

ハッチなどの付帯設備に関しては、老朽化したハッチ自動扉の改修と精密空調装置の更新を行った。自動扉は圧縮空気駆動からモーター駆動に変更した。実験ハッチ

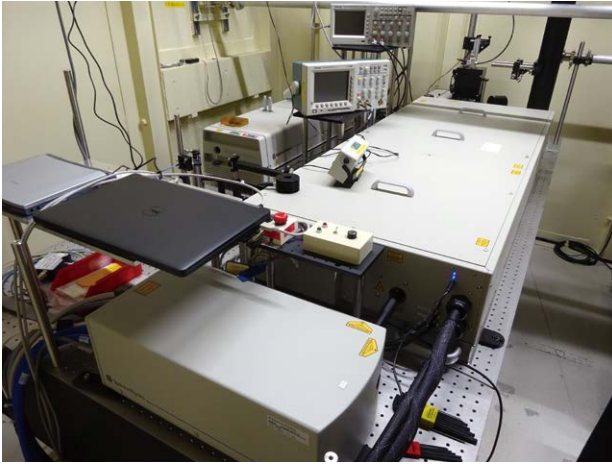


図7 BL19LXUの実験ハッチ2に設置された10 kHzの高繰り返しフェムト秒レーザーシステム。

1と3の精密空調装置は、ハッチ外に設置するタイプとした。これによって実験スペースが拡大され、また、空調装置による振動がなくなった。実験ハッチ3では発熱の大きい大型装置が使われるので、数百W程度の熱源に対応できるよう大容量の空調装置を導入した。

各実験ステーションでは高輝度光源を有効利用した実験の他、X線自由電子レーザー (SACLA) 利用のための新手法の開発が進められている。以下に2016年度に行われた主な研究項目を実験ステーションごとに示す。実験ハッチ1では、X線パラメトリック変換過程の基礎実験、核共鳴散乱による酵素反応の研究、未発見素粒子の探索実験、X線磁気回折実験が行われた。大型機器が持込できる実験ハッチ3では円偏光を使った時分割硬X線光電子分光(HAXPES)実験、X線励起下での走査型トンネル顕微鏡による表面物性研究、検出器の評価実験が行われた。実験ハッチ4では100 nmビームを用いたX線磁気散乱マッピング、強磁場下でのX線回折実験が行われた。SACLA利用課題の予備実験としてX線磁気2色性の時分割測定や真空回折実験のR&Dが行われた。

(玉作 賢治)

5. 物質科学ビームライン (BL44B2)

理研ビームラインBL44B2は当初、構造生物学IIビームラインであったが、2009年度から物質科学ビームラインとして運用されている^[12]。現在、全ユーザータイムの最大10%を共用枠として受け入れている。

近年、物質科学の対象とする材料は、複雑かつ不均質な系へと拡大している。このような多様性に対応するためここ数年、ビームラインでの主たる実験解析手法を、Bragg回折のみを考慮した粉末結晶構造解析から散漫散乱を含む全てのコヒーレント散乱を一緒に扱う全散乱実空間解析へと転換するべく、計測システムの開発を行ってきた。特に、シャープなBragg回折とブロードな

散漫散乱を同時に精度良く計測し、広い空間スケールにおいて高い空間分解能でシームレスな構造情報を得るために、ハードとソフト両面から検出器システムを構築してきた。2016年度は、DECTRIS製MYTHENモジュールを隙間なく湾曲状に並べた従来の8Kおよび12Kシステムでのノウハウを活かして、一度に20～150°をカバーする15Kシステムへとアップグレードした。全散乱実験で一般に使われるエネルギーの1/3程度の30 keVを使うことで、散乱ベクトルQの最大値として必要十分と言われる30 Å⁻¹のデータが10⁻⁴ Å⁻¹オーダーのQ分解能を維持したまま得られるようになった。これら15個のセンサーそれぞれの入射側には、Ta製のブレードが備わっている。これは、センサーとマイクロストリップをつなぐワイヤーボンディングへのX線照射によるノイズの低減と、低角における回折プロファイルの非対称化を軽減するためのものである。12Kシステム時において統計精度を上げていくと、このブレードのセンサーに対する傾きが散乱強度に影響を及ぼすことがわかったため、アップグレードを機に平行精度を一桁向上させるとともに、ブレードエッジに平坦処理を施した。その結果、10⁶カウンットの全散乱データにおいて、ブレードがない場合と比べても遜色のない全散乱データが得られようになった。また、回折計の中心からそれぞれのセンサー表面までの距離のばらつきを10 μm以内に収めるために、レーザー変位計によるアライメントを採用した。各センサーの最終的な位置決めは、吸収端を利用した10⁻⁴ Å精度の較正波長を使って、格子定数が10⁻⁵ Å精度で定まっている標準試料の粉末回折データを解析することにより行った。以上のように、全散乱本来の特徴であるマルチスケール実空間解析を行う環境が整いつつある。

参考文献

- [12] K. Kato and H. Tanaka: *Advances in Physics: X* **1**, (2016) 55-80.

(加藤 健一)

6. 物理科学ビームラインIII (BL17SU)

軟X線ビームラインであるBL17SUは、軟X線領域の各種の分光法や計測技術において新機軸を打ち出すこと、先端的な物質科学研究や光科学研究を推進することなどを主な目的として運営されている。2003年度に運転を開始し、各種調整運転の後、2004年度の秋から理研ユーザーによる利用研究が開始され、2005年度の秋からは全ビームタイムの20%をJASRI共同利用課題に供出している。研究を多角的且つ効率的に推進するため、ビームラインは排他的利用形態のブランチa、ブランチbに分岐した構成となっており、それぞれのブランチには恒温ブースに

よって精密に温度調節された超高分解能回折格子分光器を整備し、エネルギー的に安定した高輝度軟X線ビームを各実験ステーションに供給している。

ブランチaでは、主要実験ステーションの一つである超高分解能光電子分光ステーションにおいて先端物質科学の実験的研究が行われ、もう一つの主要装置である高効率軟X線発光ステーションにおいては、各種液体試料を観察対象とし、溶液中の分子の電子状態や固液界面における固体の電子状態を観察するため、吸収・発光分光実験が2015年度に引き続いて進められた。これらの主要ステーションの間にある実験ステーションでは、主にJASRI共同利用課題として、エネルギー分光型光電子顕微鏡（SPELEEM）を用いた実験が行われており、結像型の顕微XAFS・XMCD・XMLDのツールとして先端物質科学・表面科学の分野で着実に成果を挙げている。S2a出射スリット直下流のフリーポートでは、希ガスや重元素含有多原子分子（例えば、 CH_3I や CF_3I など）を気相標的分子として光電子分光実験装置のガスセルに導入し、高輝度軟X線による内殻励起／脱励起過程で放出される光電子やオージェ電子の精密分光研究が兵庫県立大学や仏・ソルボンヌ大学との共同研究として2016年度から開始されている。

ブランチbでは、常設の実験ステーションの一つである軟X線回折実験装置による長周期秩序物質の電子状態の直接観測などが2015年度に引き続いて行われ、2016年度からは共鳴軟X線回折による磁気および軌道カイラルドメインの研究などが進められている。またS2b出射スリット直下流のフリーポートでは、XFEL施設での研究の展開を想定し、東北大学多元物質科学研究所・産業技術総合研究所・京都大学などとの共同研究として、分子イメージングの開発研究を2013年度より推進している。2016年度は、2種類の希ガス原子（Ne、Kr）を混合ガスとして装置に導入し、異核Ne-Krクラスターの内殻光イオン化とその後の緩和過程で放出される低エネルギー電子放出過程の解明を目指し、電子・イオン対の3次元運動量多重同時計測実験による研究が行われている。この他、2016年度末には、持ち込み装置用フリーステーションに静電レンズ型の光電子顕微鏡が導入されている。aブランチのSPELEEM程の空間分解能（ $\sim 22\text{ nm}$ ）はないが、レーザーや電気的の外場を用いた時分割観察が 100 nm 以下程度の空間分解能で実施できるようなシステムとなっている。外場との同期実験が行えるよう、本装置の上流部に軟X線チョッパーが併せて導入されている。2017年度から調整運転を開始し、2018年度からのユーザー利用実験に公開する予定となっている。また、このフリーステーションには装置切替用のレールが敷設されており、フレネルゾーンプレート（FZP）による集

光システムを持った大気圧下ナノ顕微分光システムが設置され、立上げ調整運転が2015年度に続いて行われている。FZPによる集光調整は未完であるが、システムとしての動作確認等は順次行われている。FZPにより軟X線ビームを $200\sim 300\text{ nm}$ まで絞り、薄膜窓を通して大気圧中の（He置換された環境下にある）試料にサブミクロンスケールの軟X線ビームを導入し、蛍光収量法により二次元顕微XAFS測定を行なう予定である。これにより試料表面で起こる不均一な現象（触媒反応など）の顕微分光による反応過程の観察や、動作中のデバイスの電子状態の観察などを目指している。また、最下流では、エネルギー・波数・深さ・時間・実空間といった多面的な電子構造可視化を可能とする超高効率の光電子分光装置を用いた先端物質科学の研究が2016年度より進められている。

a、b両ブランチとも、挿入光源のヘリカルアンジュレータモードを用いた左右円偏光、擬似水平・擬似垂直の各アンジュレータモードによる水平・垂直の各直線偏光が利用されており、偏光特性を積極的に利用した先端的研究が鋭意進められている。

（大浦 正樹）

7. 物理科学ビームラインI（BL29XU）

BL29XUは全長が約 1 km の長尺ビームラインである。アンジュレータを光源とする硬X線ビームラインで、タンデムに配置された4つの実験ハッチを有する。2012年度にTCセクションの分光器内部の駆動ステージや液体窒素配管類を低振動型に刷新した。2013年度には、分光器の性能評価が行われ、従来型から劇的に振動が低減されている事が確認された。その後も、最新の低振動化技術を、逐次、導入している。TCセクションには、原子レベルで研磨されロジウム蒸着されたJTEC社製のX線ミラーが、2012年度に導入された。第2ミラーのミラー表面には、焦点距離 48 m の放物面領域が帯状に成形されている。 48 m は、このミラーと光源との距離に一致するので、放物面領域に当たったX線は、ミラー下流で究極的に平行度の高いビームとして出射させることができ、干渉計応用などで新展開が期待されている^[13]。

本ビームラインでは、可干渉性X線（コヒーレントX線）を用いた利用研究を推進している。2016年度には、X線光子相関分光法（XPCS）計測において、X線の試料照射密度を上げるために、焦点距離が 1 m の一次元集光全反射鏡を導入した。輸送チャンネルのTCスリットを仮想光源とし、約 50 m 下流の実験ハッチ3に全反射鏡を入れ、このハッチで集光ビームを使って実験を行う仕様とした。集光実験により、試料面で予定通りの半値全幅 0.3 ミクロン 程度の集光ビームが得られることが確認され、試料

観察も開始されている。一方、生きたマウスの肺胞の実時間CT計測を行うため、2016年度に、実験ハッチ3横のクリーンブース内に簡易手術室の整備が進められた。実験手順を見直し、人が躓く事故を防止するため磁石で保持されたマウス返しが製作され、安全性向上がなされた。

本ビームラインでは、2016年度、最先端コヒーレントX線イメージング実験、X線光学の分野で装置開発を伴うユーザー研究の成果が出た。まず、X線全反射鏡を利用し、50 nmの空間分解能を有する色収差のない結像顕微鏡が開発された^[14]。X線を4回反射させる結像光学系を構築することで、色収差のない結像顕微鏡を実現し、結像面に、エネルギー弁別ができるX線画像検出器を置き、スペクトル情報と画像を同時に取得した^[14]。続いて、微小構造体からの散乱X線を参照光とするインラインホログラフィとX線タイコグラフィを組み合わせることで回折強度パターンのダイナミックレンジを1000分の1程度圧縮する新手法「暗視野X線タイコグラフィ」と、生物試料の高空間分解能イメージングが実証された^[15]。この成果によって、比較的安価である光子計数率の小さい二次元X線検出器により、X線タイコグラフィによる高空間分解能・高感度イメージングが可能になり、手法の普及が期待されると同時に、高性能な二次元X線検出器を駆使することで世界最高性能の空間分解能・感度を実現することが可能となった。さらに、脂肪酸への臭素の1元素ラベルとBL29XUの走査型蛍光X線顕微鏡による細胞内脂質イメージングにより、世界で初めて細胞内脂質の高分解イメージングがなされた^[16]。細胞内脂質をオルガネラレベルの分解能で観察することにより、生命現象や疾患研究の新しい展開を示した。最後に、X線自由電子レーザー利用研究において、ビーム単色性を向上し、電子ビームのセルフシーディングを誘導するための結晶など光学素子評価実験や検出器の評価・開発も精力的に行われた。

[13] D. Takei, *et al.*: *Journal of Synchrotron Radiation*, **23**, (2016) 158.

[14] S. Matsuyama, *et al.*: *S. Rep.* **7**, (2017) 46358.

[15] A. Suzuki, *et al.*: *S. Rep.* **6**, (2016) 35060.

[16] M. Shimura, *et al.*: *FASEB Journal* **30**, (2016) 1.
(香村 芳樹)

8. 量子ナノダイナミックスビームライン / Quantum NanoDynamics Beamline (BL43LXU)

Commissioning of BL43LXU^[17] continued through 2016, but the bulk of the time was for user experiments, including some installation of new equipment (see below).

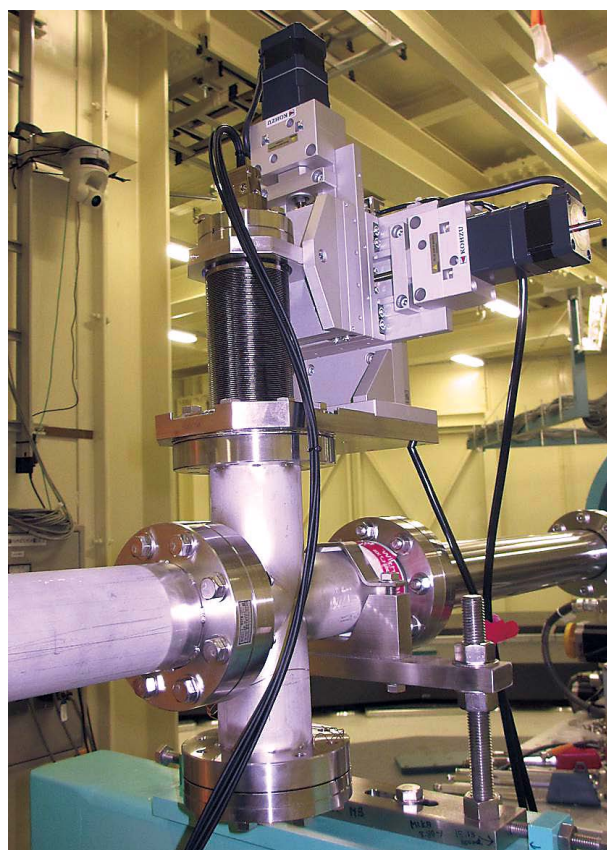


Figure8 XZ stage for the diamond quadrant BPM on CF114 beam pipe just upstream of the high-resolution spectrometer sample position.

The present report will, as usual, emphasize both the changes and the problems at the beamline, in an effort both to provide a record of progress and to provide useful information to others working to develop SR instrumentation.

Work at the experimental stations has largely been done by members of the Materials Dynamics Laboratory, with assistance on some projects by members of JASRI, and RIKEN, and, occasionally, members of the RIKEN beamline support group. Help from part timers included some for more general beamline tasks (Shibutani), some work on technical drawings (Taguchi), and some support for software (Nishimura), though the software person left SPring-8 unexpectedly, unfortunately before the break-even point of output relative to training invested. BL43 also began to have help from full-time members of the engineering team (Nagare, Umezawa) on specific tasks including standard start-up of the LN₂ cooling for the mirror and mono, and, sometimes, beam size measurement and setup of sample refrigerators. This is an ongoing process, and the break-even point (time saved for BL scientists greater than time invested in training) may be soon for simpler tasks.

Beam Position Monitoring: Two diamond quadrant transmission beam position monitors (DQBPMs) were

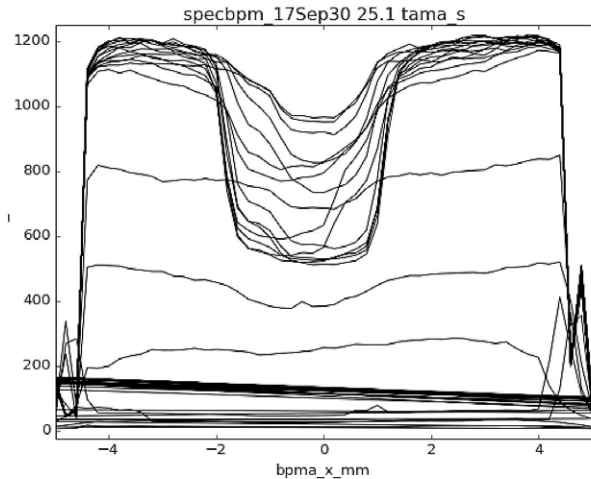


Figure9 Scans of the RIGI through a small ($\sim 0.05 \times 0.05 \text{ mm}^2$) beam after a burn-in period. The plot shows total current in pA vs x-position (mm) for several different z's (see text). The radiation damage is evident. See text.

installed in the beamline. One was put just upstream of the high-resolution (HR) spectrometer sample position. After that one performed well, a second one was installed just in front of the medium resolution monochromator (MRM). The sensors were both RIGI4-M's from Dectris ($3 \times 9 \text{ mm}^2$ aperture with four $1.5 \times 4.5 \text{ mm}^2$ quadrants) followed by a TetrAMM 4-channel picoammeter (CAENels) mounted on an xz stage (the chamber/stage combination was designed in collaboration with Kohzu based on a CF114 cross). The DQBPM for the HR spectrometer performed nicely, even at currents down to $\sim 50 \text{ pA/channel}$ ($\sim 1 \text{ GHz}$ flux at 25.7 keV), with position noise less than $2 \text{ }\mu\text{m}$ for a beam size of $\sim 300 \text{ }\mu\text{m}$. The DQBPM before the MRM, however, was not stable in the high power monochromatic beam (roughly $5 \times 10^{14} \text{ s/mm}^2$ at 21.7 keV) - it had a burn-in period of several weeks, during which the output over the beam spot dropped roughly a factor of two (figure 2), before mostly stabilizing. As a practical matter, this BPM will mostly be used to measure small ($\sim 10 \text{ }\mu\text{m}$) beam displacements so it remains useful. However, the burn-in issue is worth noting for others.

The DQBPM for the HR spectrometer is used to stabilize the beam position at the sample to an estimated $\sim 1 \text{ }\mu\text{m}$ for a $5 \text{ }\mu\text{m}$ beam size after the KB. Note: the temperature of the support was carefully monitored and found to be sufficiently stable, unless either the hutch door was opened for a longer period of time, or new equipment was placed in the hutch. The second DQBPM will be used to stabilize the energy zero of the MRM in the face of angular drifts of the mirrors and high-heat-load monochromator. (Baron & Ishikawa)

Sub-meV resolution: Building on previous tests, commissioning of the sub-meV setup using the Si(13 13 13) reflection at 25.7 keV continued. This included new offset crystals, and substantial fine-tuning of the optical performance for stability. Notably, the thermal heat load of the beam from the high-heat-load monochromator on the stability of the offset crystals was a significant issue. World-leading resolution of 0.81 to 0.86 meV for a user instrument was obtained in useful operating conditions and, if the beam was attenuated, 0.76 meV was possible, consistent with ^[18]. Several samples were measured including user experiments. A new method of reducing the power onto the backscattering crystal to obtain better than 0.8 meV resolution with higher rates is now in progress - this will also be applied to, we expect, achieve 1.3 meV at the (11 11 11) without attenuation. (Ishikawa & Baron)

5 μm Micro-focus: A graded-multilayer KB setup was installed which successfully achieved a $5 \times 5 \text{ }\mu\text{m}^2$ beam size at 17.79 keV at the sample position of the HR spectrometer with a throughput of $\sim 60\%$ ($>90\%$ peak reflectivity on each multilayer) and a d-spacing for the coating as small as 22 Angstroms . The setup time for this is significant (2+ days) as it requires removing the cylindrical mirror usually used, and a realignment of much of the beamline (including manual translation of several transport channel components). The new KB setup did greatly facilitate experiments in extreme conditions in DACs, reducing background from gaskets, allowing the x-ray beam to easily fit within the laser heated spot, and allowing a new, through-gasket, geometry to improve rates. It was greeted with great enthusiasm by the DAC community working at BL43. (Baron & Ishikawa).

Collimation & Masks: Several new types of collimation (Soller slits & related) were installed downstream sample for high-resolution spectrometer and shown, e.g. to significantly reduce the scattering from the diamonds of a DAC cell. (Baron, Fukui & Nakajima). In addition, masks were designed for the sub-meV setup to allow improved count-rates with good momentum transfer resolution at low Q. These allowed clean data to be collected at momentum transfers as low as 0.5 nm^{-1} at 25.7 keV with sub-meV resolution. (Ishikawa & Baron).

Medium-Resolution Analyzer Crystals. Two good analyzer crystals were used (~ 25 and 27 meV resolution) and showing reasonable count-rates^[19]. One notes that the best published data on electronic excitations before^[19] had $>50 \text{ meV}$

resolution, and similar rates with a much larger solid angle, so BL43LXU is doing well. The glue failed on one of the earlier poorer analyzers, but we have already moved beyond that design. First tests were done with a combined T-gradient/dispersion-compensated setup which was found to improve resolution from 260 meV to better than 60 meV (this is at larger detector offsets than the 25 meV resolution). Three more analyzers are now in progress and should be installed early in 2018. (Ishikawa & Baron)

High-Resolution Spectrometer: This operated reasonably over most of the year, excepting issues with the granite alignment/floor stability. Early in 2017, the granite was re-aligned by Huber/Oelze but, then, after that, the alignment drifted again, unusually quickly, forcing additional work in the summer. The performance has been mostly reasonable since then. The fluctuation of the granite stability (some years very stable, but occasionally not) leads one to wonder if the problems could be related to floor motion due to ground-water changes in the gravel layer under the concrete. Two other issues noted with the spectrometer include slowing of the response of one air sensor, and slight (few micron) motion of the sample associated with the two-theta arm motion. The responsible company, Huber, has been contacted.

High Resolution Analyzer Crystals: Three new analyzer crystals were delivered. The performance was acceptable (~1.5 meV resolution) but not as good the best ones received.

- [17] A. Q. R. Baron, SPring-8 Inf. Newsl. 15, (2010) 14.
and A. Q. R. Baron, in Synchrotron Light Sources Free.
Lasers Accel. Physics, Instrum. Sci., edited by E.
Jaeschke, et al. (Springer, Cham, 2016), p. 1643–1757.
See also arXiv 1504.01098.
- [18] D. Ishikawa, D. S. Ellis, H. Uchiyama, and A. Q. R.
Baron: J. Synchrotron Radiat. 22, (2015) 3.
- [19] D. Ishikawa, M. W. Haverkort, and A. Q. R. Baron:
J. Phys. Soc. Japan, Lett. 86, (2017) 93706.

(Alfred Q.R. Baron & Daisuke Ishikawa)

2-3-3 専用ビームライン BL22XU JAEA重元素科学 I

1. 概要

BL22XUは非密封放射性物質の利用研究を目的として、JAEAの4本目ビームラインとして建設され、2002年5月に運用を開始した。RI実験棟に導かれた軟X線ビームラインBL23SUと相補的に利用することで、JAEAが掲げる原子力に関する基礎と応用研究を推進するためのビームラインである。2016年4月のQST（国立研究開発法人 量子科学技術研究開発機構）の発足によりJAEAの一部がQSTへ分離・移管されたが、BL22XUはこれまで通りJAEA専用ビームラインとして、今後も利用することとなった。

2016年度に実施された課題は、前期は17課題、後期は17課題であった。その内訳は次の通りである。数値はビームライン調整・機器調整を除いた日数で示す。

	2016 年前期			2016 年後期		
	内部課題	外部課題	小計	内部課題	外部課題	小計
JAEA	20	11	31	27	3	30
	24%	13%	37%	34%	4%	38%
QST	33	19	52	26	23	49
	40%	23%	63%	33%	29%	62%
全体	53	30	83	53	26	79
	64%	36%	100%	67%	33%	100%

ビームラインと実験装置の所有法人が異なっており、入れ子状態となっている。今後、入れ子状態を解消するに従って、JAEAとQSTの課題比率も改善される予定である。

2016年度に実施した研究の成果について、実験分野ごとに報告する。

(塩飽 秀啓)

2. 高圧プレス（実験ハッチ1）

キュービック型マルチアンビル高温高圧発生装置SMAP180を利用することにより、現在、室温で圧力10 GPa、圧力6 GPaで温度2000°Cまでの領域で、角度分散型X線回折実験とX線吸収法による密度測定が可能である。2016年度は「Fe-Ni-S液体の密度・音速における圧力効果の解明」「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」(大阪大学 寺崎准教授)及び「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」(岡山大学 浦川教授)の3課題が施設共用課題として実施された。これらは水星、火星といった地球型惑星核の組成の解明を目指したものである。X線吸収測定とイメージング測定、回折測定の迅速な切り替えが可能な計測システムを利用して、多成分系の鉄系合金融体を対象

とした密度・音速同時測定を実施し、各組成での密度と音速の温度・圧力依存性を明らかにした(図1)。その結果、含まれる軽元素の種類と量によって融体の密度、音速の変化が異なることが明らかとなった。また、炭素を添加したFeの音速と密度の同時測定による研究成果が論文として出版され^[1]、そのFe-C融体の熱弾性に関する結果を主な成果として博士号の学位取得があった^[2]。Fe-O系融体の密度結果についてはSPRING-8成果報告集に掲載された^[3]。

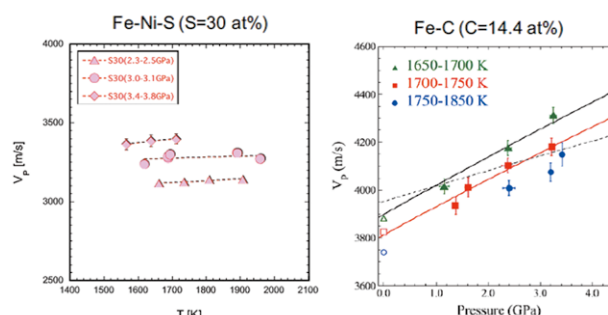


図1 Fe-Ni-SおよびFe-C融体のP波速度への温度、圧力の効果
(綿貫 徹、町田 晃彦)

3. DAC（実験ハッチ1）

ダイヤモンドアンビルセル (DAC) 用回折計では、施設共用課題として鉄系超伝導体Fe (Se,S) (東京大学 芝内教授、水上助教) および励起子絶縁体である層状遷移金属カルコゲナイドTa₂NiSe₅や励起子絶縁体候補物質であるTiS₂ (名古屋大学 澤教授) の低温高圧下における単結晶X線回折実験が行われた。いずれの実験においてもHe圧力媒体を利用した高い静水圧条件下で、純良単結晶を用いてX線回折測定を行うことにより、精密な測定を実施した。特に低温高圧下で多様な電子状態相図を持つFeSeにおいては2015年度までに決定した4 GPaまでの低温の状態相図をより高圧側へ拡張した。その結果、構造相転移は1-8 GPaの圧力領域においては約5 GPaを頂点としたドーム状の圧力依存性を示すことを明らかにした。また、微量試料を扱える本装置の特徴を活用して、福島土壤粒子の鉱物種の同定をX線回折によって行った研究について論文出版が行われた^[4]。

DAC回折計と高エネルギーX線 (70 keV) を利用して原子二体分布関数 (Pair Distribution Function; PDF) 解析のためのX線全散乱測定も2015年度に引き続き実施した。これまでの室温での測定に加えて低温での測定を可能とするために、窒素吹付型冷凍機を回折計に設置しての実験を

実施した。約300 Kで構造相転移がおこるTiH₂粉末をin-situ測定用の試料セルに封入し、全散乱プロファイルの温度変化の測定を実施した。吹付のノズル位置の調整を行い、約310 Kから5 Kずつ温度を下げながら測定を行った結果、約290 Kで立方晶から正方晶への相転移が観測された。これまでの報告と相転移温度はほぼ一致しており、調整したノズル位置で試料が設定どおりに冷却されていることが確認できた。この低温測定システムをLaNi₅合金、LaNi_{4.5}Al_{0.5}合金の低温での水素吸蔵過程の測定に適用した。水素吸蔵過程で形成が示唆されている中間状態の構造の解明を目指し、約-10°Cで約1MPaの水素ガスを導入して全散乱プロファイルの時分割測定を実施した。その結果、室温での測定と構造変化を観測することに成功した(図2)。2016年度にはPDF測定に関して2件の施設共用課題(産総研 榊主任研究員、物材機構 冨中主任研究員)が実施された。産総研の課題においては2015年度までに行った薄膜試料でのPDF取得方法を用いて、カプトン基板上に作製したMg-Ti合金薄膜について水素雰囲気におけるその場観察を実施し、解析可能なPDFの取得に成功した。また、物材機構の課題においては軽元素材料に担持された量子ドット・ナノ粒子材料の全散乱測定を実施し、メソポーラスシリカに担持した酸化鉄クラスターの構造をPDF解析により明らかにすることに成功した。水素吸蔵過程の時分割全散乱測定や試料中の体積分率の低い薄膜や微量なナノ粒子の全散乱測定はBL22XUのSi(111)二結晶分光器による高強度の高エネルギーX線と大型二次元検出器の組み合わせによって可能となったものであり、BL22XU実験ハッチ1の特長を活かした測定である。水素貯蔵材料関係のPDF実験は主に文部科学省の光・量子融合連携研究開発プログラムでの研究課題として実施された。また、負の熱膨張を示すペロブスカイト(Bi, Pb)NiO₃において、PDF解析により室温常圧で局所的にはBi³⁺とBi⁵⁺が短距離秩序を形成しており、電荷ガラスと呼べる状態が自発的に形成されることを明らかにした論文が掲載された[5]。

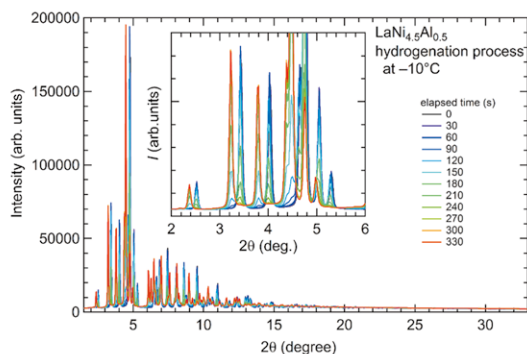


図2 LaNi_{4.5}Al_{0.5}合金の-10°Cにおける水素吸蔵過程の全散乱プロファイルの時間変化。

(綿貫 徹、町田 晃彦)

4. 磁性体(実験ハッチ3)

共鳴X線回折実験用に、超伝導クライオマグネットと³He循環型冷凍器、入射X線の水平直線偏光を任意の直線偏光に変換する移相子が整備されており、最低温度0.6 K、最高磁場8 Tで全偏光解析した回折実験ができるようになっている。4f電子系の実験では、2015B期に引き続き、らせん磁性体Yb(Ni_{1-x}Cu_x)₃Al₉の研究を進めた。YbNi₃Al₉は空間群R32のキラル結晶であり、純粋試料およびNiをCuで置換した系において磁化過程がキラルソリトン格子特有の振る舞いを示すことが報告されている。純粋試料の中性子回折実験からは、ジャロシンスキー守谷相互作用により、c面内に強的に揃ったモーメントがc軸方向に波数 $q = 4/5$ で変調していることが分かっている。2015B期にはYbのL₃吸収端において水平偏光入射で共鳴磁気回折実験を行い、純粋試料および幾つかの濃度のCu置換試料の波数の磁場-温度依存性を測定した。2016年度は入射円偏光を利用し、結晶の掌性と磁気構造の関係を明らかにすることを目的として実験を行った。実験は8Tクライオマグネットを横振り回折系に搭載し、³He温度(2016A)および⁴He温度(2016B)で行った。入射エネルギーはYbのL₃吸収端であった。結晶の掌性は実験室のX線回折から決定するとともに、ビームラインでも異常散乱を用いて再度確認した。結果としては、(i)円偏光入射により、磁気構造がらせん構造であることを明らかにすることができた。(ii) $x = 0$ の右及び左結晶について磁気散乱を測定した結果から、結晶の掌性とらせんの向きには1対1の対応関係があることが分かった。(iii) $x = 0.2, 0.4, 0.6$ の左結晶についての測定においても、この関係が成立することを確認した。(iv) E1遷移に加えてE2遷移で測定を行い、偏光依存性が両者で異なるという結果を得た。(v) $x = 0.6$ の左結晶について、磁場を印加すると高調波(2q)が現れることを確認した。2017A期ではCu置換した右結晶について測定を行い、研究を完成させる予定である[6]。

強磁性体の磁区観察のための測定手法の開発を進めている。硬X線を用いた磁性材料内部の磁区観察は産業応用に向けての重要な課題である。一方、放射光を用いた磁気測定では、磁気円二色性測定が確立された極めて有用な手法であるが、硬X線領域においては3d遷移金属(鉄やコバルトなど)に対して磁気効果が大変小さい(0.5%程度)という問題が存在する。そこで硬X線領域で3d遷移金属に対して大きな磁気効果を示す新たな測定原理について検討し、実証実験を行った。考え方としては、まず、吸収過程(1s→4p)における小さい磁気効果の原因は、1s軌道にも4p軌道にも有効なスピン軌道相互作用がないという原理的なものであり、如何ともしがたい。

硬X線領域で利用できる遷移は、従って、 $K\alpha$ ($2p \rightarrow 1s$) および $K\beta$ ($3p \rightarrow 1s$) 発光となる。 $K\alpha$ 発光の場合、終状態 ($2p^5$) には大きなスピン軌道相互作用が存在し、また、スピンおよび軌道で分裂していることも分かっているため、大きな磁気効果が期待できる。測定では、磁化させた鉄試料に放射光を照射し、出てきた $K\alpha$ 発光をスリットでコリメートし、ダイヤモンド移相子を用いて円偏光を直線偏光に変換し、最後に直線偏光アナライザ (Ge(400)) を用いて直線偏光度を求め、ここから円偏光度を得た。直線偏光アナライザは同時にエネルギーアナライザとしても機能する。移相子により右円偏光および左円偏光敏感の条件で測定した $K\alpha_1$ 発光のスペクトルを図3に示す。実測で12%、幾何学補正を行うと18%という大きな磁気効果を示すという結果を得た^[7]。硬X線を用いたバルク敏感でかつ3d遷移金属に対し大きな磁気効果を示すX線領域での新しい磁気光学効果の発見であり、今後の産業応用などへの発展が期待されるものである。

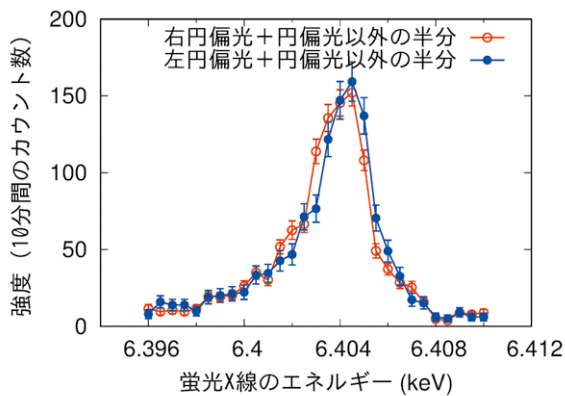


図3 円偏光解析した鉄の $K\alpha_1$ 発光スペクトル。右円偏光を含む方が低エネルギー側にシフトしていることが分かる。赤と青のスペクトルの差が円偏光度に対応する。

(稲見 俊哉)

5. 強誘電体 (実験ハッチ3)

強誘電体は自発電気分極を持ち、これにより蓄電や、電気と力や熱とを相互に変換できることから、コンデンサや圧電素子、センサーに使われる。中でもリラクサー強誘電体は材料の組成や分極の広がり・構造を不均質化することによって高い性能が実現される。この不均質な構造は原子レベルからミリメートルまで様々な大きさを持つとともに様々な速さで動くことから、高い性能の本質を解明するためには、様々な長さや時間スケールを計測する事が必要となる。今回、リラクサー強誘電体である不均質化した $\text{Pb}(\text{In}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$ を対象に、構造を放射光X線散乱計測、電子顕微鏡観察により幅広い長さスケールで計測するとともに、これらのダイナミクスを光散乱により1 GHzから100 GHzまで観測した。その結果、

原子レベルから100 nmにわたって自己相似的に類似した構造が存在し、それらが動いていること、すなわち「フラクタル性」を持つことが、構造と動きの両面から明らかにされた。一方、均質で性能が低い $\text{Pb}(\text{In}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$ はフラクタル性を示さなかった。^[8]

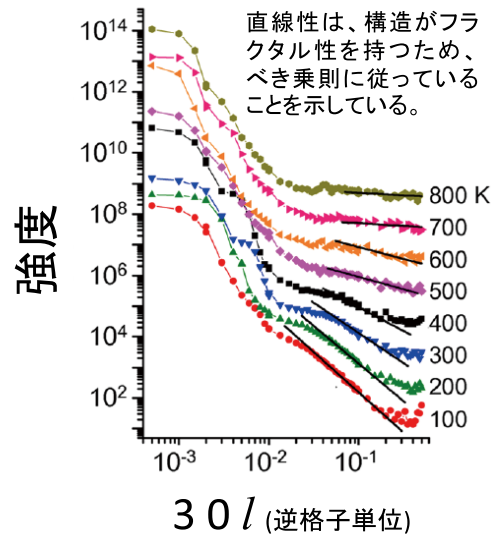


図4 300 ブラッグ反射周りに現れる散漫散乱強度の分布。

(大和田 謙二)

6. 応力 (実験ハッチ3)

高エネルギー放射光X線を用いた応力測定では、加工、製造後に発生する材料強度を把握するための1つの指標である転位密度評価を目指し、今年度は回折法を利用したラインプロファイル解析手法の検討を実施した。PilatusやCCDカメラ等の小型2次元検出器を少しずつスライドさせながら連続撮影を行い、重ね合わせた複数のX線回折プロファイルの形状、特に幅と裾の広がりからSUS316Lやアルミニウム等の金属材料の転位密度の導出に成功し、本結果が透過型電子顕微鏡により観察された転位密度とほぼ同じであることを確認した。本手法をパーライト鋼に適用した結果、真ひずみ1.39の試験片においては中心部の転位はランダムに分布し、表面に近づくにつれダイポール形成などの転位再配列が進むこと、図5に示すように高温中で転位ダイポール密度の高いcell wallの転位が優先的に消滅していることなどを明らかにした^[9]。

一方2015年度より引き続き、レーザー照射下における金属球の溶融凝固その場測定を行った。その結果、大気中やガス雰囲気中、及び真空中における振る舞いに大きな違いが発生していることを明らかにし、金属球周りのガスが金属球の振動源であること、真空中では高品質な金属膜が精製できることなどを確認した。本研究成果は、国家プロジェクトであるSIP (戦略的イノベー

ション創造プログラム) / 革新的設計生産技術、高付加価値設計・製造を実現するレーザーコーティング技術開発 (H26-H30、代表機関: 大阪大学、JAEA) におけるレーザーコーティング現象解明に大きく貢献するものであり、2017年度も引き続き、研究を重ねていく予定である。

2016年度は応力評価に関する施設共用課題を6機関8件(うち、成果専有課題2件)実施した。主なテーマは、モーター等で利用されている電磁鋼板の磁区とひずみとの相関に関する研究、レーザーピーニング表面改質による圧縮応力分布評価、燃料電池の充放電における内部差応力評価、応力腐食割れ対策を念頭に置いた溶液に対する鉄鋼材料表面皮膜生成メカニズム解明^[10]など、ものづくりを念頭に置いた評価実験であり、それぞれ非常に有益な情報が得られた。

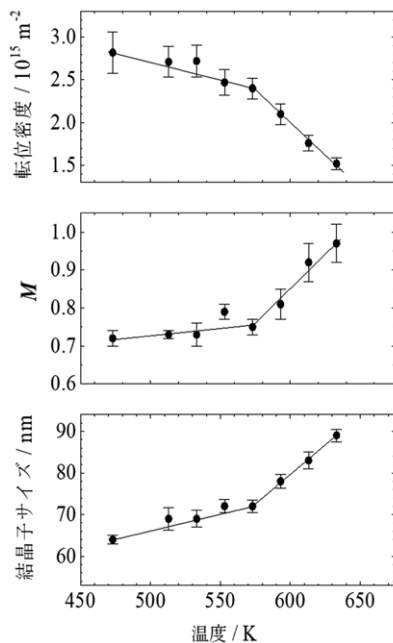


図5 伸線加工パーライト鋼の転位密度, M 値, 結晶子サイズの温度変化

(菖蒲 敬久、安田 良、城 鮎美)

参考文献等

- [1] Y. Shimoyama, H. Terasaki, S. Urakawa, Y. Takubo, S. Kuwabara, S. Kishimoto, T. Watanuki, A. Machida, Y. Katayama and T. Kondo, J. Geophys. Res.: *Solid Earth* **121** (2016) 7984-7995.
- [2] 下山裕太: 博士論文(大阪大学)、2017年3月、Thermoelastic properties of iron-carbide and carbonate melts under high pressure: implication for carbon in the Earth's and lunar interiors (高圧下における鉄-炭素合金とカーボネートメルトの熱弾性的性質: 地球や月内部における炭素への応用)
- [3] Y. Takubo, H. Terasaki, Y. Shimoyama, S. Kuwabara, S. Urakawa, T. Kondo, A. Suzuki, K. Nishida, E. Ohtani, T. Watanuki and Y. Katayama: *SPring-8 Section A: Scientific Research Report*, Vol. 4, No.1 (2016) 53-57.
- [4] S. Motai, H. Mukai, T. Watanuki, K. Ohwada, T. Fukuda, A. Machida, C. Kuramata, R. Kikuchi, T. Yaita and T. Kogure: *J. Mineralogical and Petrological Sci.*, **111**, (2016) 305-312.
- [5] K. Nakano K. Oka, T. Watanuki, M. Mizumaki, A. Machida, A. Agui, H. Kim, J. Komiyama, T. Mizokawa, T. Nishikubo, Y. Hattori, S. Ueda, Y. Sakai and M. Azuma: *Chem. Mater.*, **28** (2016) 6062-6067.
- [6] T. Matsumura, Y. Kita, K. Kubo, Y. Yoshikawa, S. Michimura, T. Inami, Y. Kousaka, K. Inoue and S. Ohara: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **86**, (2017) 124702/1-12.
- [7] T. Inami: *Phys. Rev. Lett.*, **119**, (2017) 137203/1-5.
- [8] S. Tsukada, K. Ohwada, H. Ohwa, S. Mori, S. Kojima, N. Yasuda, H. Terauchi and Y. Akishige: *Sci. Rep.* **7**, 17508 (2017).
- [9] 佐藤成男, 小貫祐介, 菖蒲敬久, 城鮎美, 田代均, 轟秀和, 鈴木茂: *金属*, vol. 86, No.8, (2016)pp.654-660.
- [10] M. Watanabe, T. Yonezawa, T. Shobu, A. Shiro and T. Shoji, *Corrosion*, Vol. 72, No. 9, (2016) pp.1155-1169.

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
原子力科学研究部門
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
アクチノイド化学研究グループ

塩飽 秀啓

放射光分析技術開発グループ

菖蒲 敬久

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構
量子ビーム科学研究部門
関西光科学研究所 放射光科学研究センター
高圧・応力科学研究グループ

綿貫 徹、安田 良、町田 晃彦、城 鮎美
磁性科学研究グループ

稲見 俊哉

コヒーレントX線利用研究グループ

大和田 謙二

BL23SU JAEA重元素科学ビームラインII

1. 概要

重元素科学ビームライン (BL23SU) は、高輝度軟X線を利用したアクチノイド化合物の電子状態の研究を主目的とする。利用実験は、蓄積リング棟実験ホール内の表面反応リアルタイム光電子分光ステーションと生物物理分光ステーション、さらにRI棟内のアクチノイド実験ステーションで展開されている。

2. 表面反応リアルタイム光電子分光ステーション

BL23SU 軟X線放射光のビーム特性を最大限に活かした表面・界面の電子状態および化学状態分析研究を行った。特に、イノベーションに重要な酸化物形成ナノ粒子などの化学反応機構などに関する以下の研究が行われた。

GaNは高い絶縁破壊電界などSiC以上の優れた物性を有し、またAlGaN/GaNヘテロ界面に高濃度の2次元電子ガスを形成することから、パワーデバイス応用が期待されている。AlGaN/GaNヘテロ接合トランジスタ(HFET)へのMOSゲート構造適用が検討されており、報告例の比較的多い Al_2O_3 ゲート絶縁膜では、ヒステリシスや $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{AlGaN}$ 界面欠陥が問題となっている。これに対して、我々は窒素添加 Al_2O_3 (AION) ゲート絶縁膜が優れた特性を示すことを報告しており、本研究では、ゲート絶縁膜堆積時の基板温度に注目して、AION膜の優位性を検証した。AlGaN層上に反応性スパッタ法

により室温から300°Cの基板温度条件下でAIONまたは Al_2O_3 を3 nm成膜し、その界面構造を放射光光電子分光法により評価した結果を図1に示す。 Al_2O_3 膜では室温成膜に比べて300°C成膜の方がO 2sピークが増大する一方で、N 1sピークが減少していることがわかった。このことは、 Al_2O_3 の場合、成膜温度が高温ほどAlGaN表面の窒素脱離を伴う酸化が起きることを示唆している。一方で、AION膜の場合、室温成膜と300°C成膜でほぼスペクトルが一致していた。実際、MOSキャパシタを作製して電気特性を評価したところ、300°Cの Al_2O_3 膜では顕著な界面特性劣化が起きていたが、AION膜では電気特性でも成膜温度依存性は見られないことを確認し、AlGaN/GaN MOS-HFETのゲート絶縁膜として有望であることがわかった^[1,2]。

GaNを利用したパワーエレクトロニクスへの応用が急速に立ち上がっている。インプラ技術が不十分な現状ではGaNパワーデバイスはトレンチ構造を形成し、ゲート酸化膜を形成しなければならない。GaNのc面(0001)とm面上に酸化物を同一条件で形成するために、酸化過程の面方位依存性を理解することが良好なゲート酸化膜形成するうえで重要となる。そこで、Ga面(0001)、N面(000 $\bar{1}$)、m面(10 $\bar{1}0$)のGaN表面を高温で酸素分子線(エネルギー: 2.26 eV、フラックス量 $2.8 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$)を照射しながら、酸化過程の面方位依存性をその場観察光電子分光で測定を行った。図2にO1sコアスペクトル面積の時間依存性を示す。N極性面(青)が最も酸素が吸着しにくく、Ga極性面(赤)とm面(黒)が吸着しやすい。また、N面では高エネルギー側に、m面では低エネルギー側にTail stateがあることがわかった。酸化に対する面方位依存性と界面準位特性との相関を明らかにし、パワーデバイス特性向上につながる成果へと展開していく。

金属-酸化物-半導体電界効果トランジスタ(MOS-FET)の開発では、従来用いられてきた二酸化シリコン(SiO_2)ゲート絶縁膜の薄膜化によって生じるゲートリーク電流が更なる高集積化の深刻な問題となってきた。二酸化ハフニウム(HfO_2)は、 SiO_2 よりも高い誘電率($k \approx 25$)を有し、さらに広いバンドギャップ($E_{\text{Gap}} \approx 5.7 \text{ eV}$)とSi基板上で熱安定性を示すため、実際の HfO_2 膜厚は厚くし、 SiO_2 換算膜厚を薄くできリーク電流を抑制することができることから次世代ゲート絶縁膜材料として注目を集めている。そこで、本研究では、Si(100)-2×1清

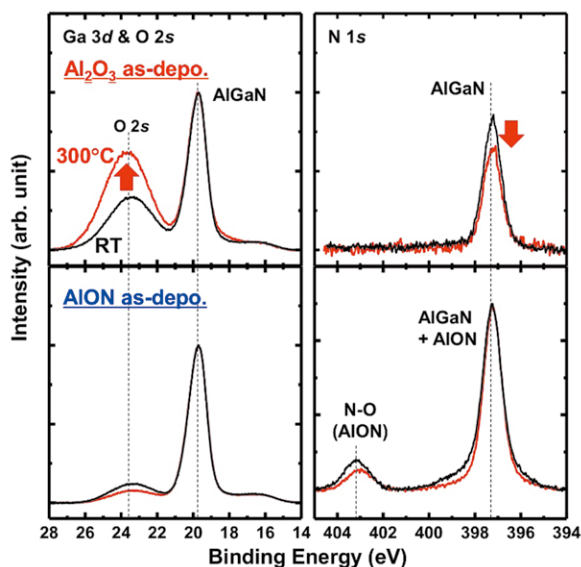


図1 AlGaN層上でAIONまたは Al_2O_3 を3 nm成膜し、その界面構造を放射光光電子分光法により評価した結果

浄表面に約2 MLに相当するHf超薄膜を作製し（以下、Hf/Si(110)と表記）、超高純度の酸素（O₂）原子を曝露しながら放射光光電子分光法を実施することで、その初期酸化過程の解明に取り組んだ。

まず、Hf/Si(110)にO₂を曝露すると僅か7.5 × 10⁻⁴ L (1 L = 1.3 × 10⁻⁴ Pa·sec)でHf膜の酸化が始まり4.1 Lでほぼ酸化した。さらに、約1.0 × 10⁻³ L以上O₂を曝露するとSi(100)基板の酸化も観測され、HfとO₂の高い反応性がSi(100)基板の酸化を増進させることが示唆された。一方、Hf/Si(110)を800℃でアニールすることでHf薄膜はHfSi₂へと変化し、低速電子回折像の観測によってSi(110)基板の2×1パターンが観測されたことからHfSi₂は表面で島状になっていると考えられる。さらに、アニール後の試料にO₂を14 Lまで曝露してもHfSi₂およびSi(100)基板共にほとんど酸化しなかった。800℃のアニール前後で観測されたO₂とHfおよびSi(110)基板の反応性の変化は、表面界面構造を制御してHfO₂/Si超薄膜を作製できることを示唆している。

Si(110)は従来のSiデバイス基板として用いられるSi(100)表面より高い正孔移動度を持つ。しかし、デバイス応用しようとした場合重要となる、この表面上での酸化膜の熱安定性の理解は不十分である。これまでに、STMによるSi(110)表面からの酸化膜の熱分解過程の計測からSiとSiO₂の境界に特異な領域が存在していることを見出していたが、この領域の由来が明らかになっていなかった。放射光光電子分光を用いた実時間計測によって、酸化膜のSi⁴⁺に対するSi³⁺の割合が増大する一方、Si²⁺の割合は分解完了直前まで変化しないことが明らかになった。これはSiO₂がSiOへ還元される過程で中

間状態を経由し、SiOになると直ちに表面から脱離していることを示す。したがって、SiとSiO₂の境界の領域は還元の間状態であることが明らかとなった。

福島地域の環境回復に向けて、粘土鉱物や汚染水から放射性Csを効率的に除去して高密度に回収する方法の開発を目指し、次の3つの基礎テーマについて放射光X線光電子分光測定を実施した。(1) Si (100) 2×1表面に対して超音速分子線の塩化メチル（CH₃Cl）を照射すると、CH₃Clの並進運動エネルギーが高い場合、CH₃やClが解離してSi表面に飽和吸着した後にClのみが選択的に吸着する引き抜き反応が生じると分かった。(2) CsCl水溶液中で作製したAuナノ粒子は、作製過程でナノ粒子表面にCsやClを取り込んでCs-Au、Cl-Au、Cs-Cl-Au結合を形成することが分かった。(3) L-システインで表面修飾したAuナノ粒子とCsの吸着反応を水溶液中で促すと、システインのカルボキシル基やアミノ基がCsと結合を形成することが分かった。これら研究は、Csを粘土鉱物からハロゲン化物として容易に脱離できる条件の解明や、水溶液中のCsを吸着する材料として比表面積の大きいナノ材料を応用する指針に繋がると期待される。

(吉越 章隆)

3. 生物物理分光ステーション

DNAの分子変異（DNA損傷）は発ガンや突然変異誘発の要因の一つとされている。DNAが放射線初期過程（放射線相互作用とエネルギー付与にもとづく物理的・物理化学的素過程）ののち、不對電子種・活性断片種などの中間生成物を経て最終的にどのような変異に固定されるかを明らかにすることにより、放射線による突然変異誘発などの遺伝的影響の理解が進むと期待されている。生物物理分光ステーションでは、軟X線吸収分光^[3]、表面脱離イオン分光^[4,5]、液体分子線分光、電子常磁性共鳴（EPR）等を駆使し、分子変異生成に関する初期過程を明らかにするための研究を進めている^[6]。2016年度は主に、DNA関連分子の溶液に対する軟X線吸収分光、光電子分光、および発光検出による損傷過程中間体の分光分析を行った。また、BL23SUで行った分光学的な研究成果を含んだ論文をレビューとして発表した^[7]。

DNA放射線損傷を、細胞環境を模した水溶液中で調べるため、液体分子線分光実験を東京農工大学のグループと共同して継続的に行っている。核酸塩基内に生成する内殻空孔状態は塩基損傷を誘発する反応の開始点の一つの候補である。空孔生成時に付与されるエネルギー、および、その確率は、原子の塩基内結合サイトだけでなく水和・環境相互作用により変化する。ま

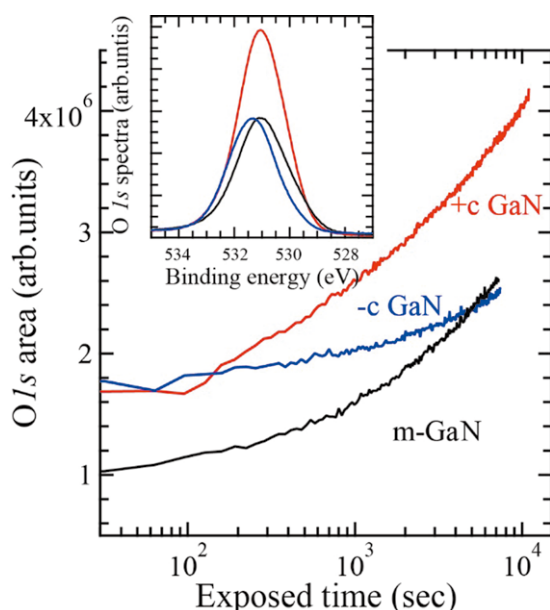


図2 GaN表面酸化過程におけるO1s コアスペクトル面積の時間依存性

た、塩基損傷経路を決定するポテンシャル曲面も同様の相互作用に支配されると考えられる。2015年度以前には、放射線が間接的に与える局所的なプロトンイオン濃度変化と、ヌクレオチドの内殻吸収端近傍吸収スペクトル (XANES) における吸収X線エネルギーとその確率の変化を明らかにした^[8]。またX線照射時の内殻光電子、オージェ電子に対するエネルギー分析についても予備的な成果を得た。これらを踏まえて2016年度にはヌクレオチド (CMP,UMP) 内の核酸塩基から放出される窒素1s光電子スペクトル測定により、窒素サイトの構造変化に対応する窒素1s軌道の化学シフト変化が観測され、上記の説明を裏付けた (図3上。UMPの例)。構造変化にともなう化学シフト変化はオージェ電子放出後に生成するイオンの束縛エネルギーにも出現すると考えられるが、オージェ電子エネルギー分析によるとpH変化に対する顕著な化学シフトの変化は見られていない。これについては、X線吸収ではほとんど問題とする必要がなかったイオン化過程における分子の電荷状態の変化が与える溶媒との相互作用への強い影響によるものであることが分かった。すなわち、中性の溶液中では中性電荷状態にあるピリミジン塩基が、高pH溶液中ではN3位の窒素原子の脱プロトン化による負電荷状態にあるため、配向分極した水分子とオージェ電子放出後に正イオンとなった塩基部位との間に反発相互作用を生じた結果である

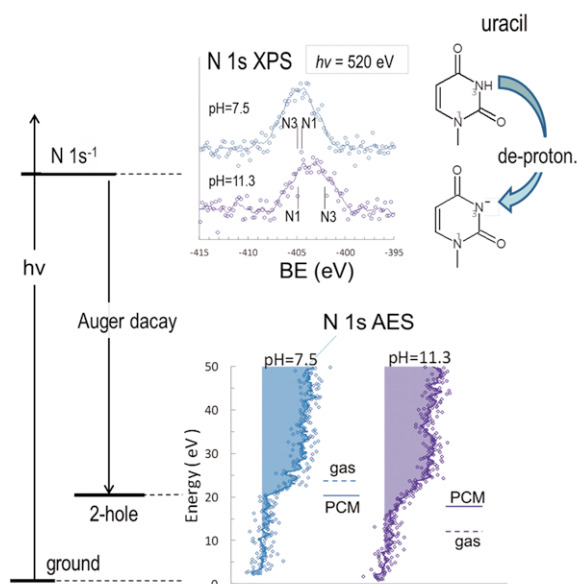


図3 液体分子線電子分光による溶液中のUMPからの窒素K殻光電子スペクトル (上) およびオージェ電子スペクトル (下)。光電子スペクトルには溶液のpHの違いによる窒素原子の化学シフトが見られる。オージェ電子分光による二重イオン化エネルギーには有意の差が見られない。PCMは溶媒相互作用を取り入れた量子化学計算 (gasは相互作用を含まないもの)。

ことが連続誘電体モデルを取り込んだ量子化学計算により明らかとなった (図3下。UMPの例)^[9]。また、溶媒相互作用を取り入れた新規の解析法によれば既報のXANESスペクトルに対してもより詳細な説明を加えることができることが分かった^[10]。

内殻イオン化とオージェ電子放出に引き続く分子変異定着経路の中間体についての知見を得るべく、液体分子線内部から放出される可視・紫外領域の発光分光分析実験を立ち上げ中である。2016年度にはUMPに対する発光収量の軟X線エネルギー依存性を測定した。窒素K殻吸収端領域にはウラシル塩基のX線吸収に起因し、かつ二価イオン生成の量子収率を反映した顕著な発光収量の強調が見られ、二価イオン生成に後続して発光中間体を生じたものと考えられる^[11]。ひきつづき発光種の同定等に発展させて明らかにしていく予定である。

(藤井 健太郎)

4. アクチノイド実験ステーション

本ステーションでは、バルク敏感な軟X線光電子分光を用いて、強相関電子系であるウラン化合物とその関連物質である希土類化合物等の電子状態・磁気状態の研究を進めている。光電子分光測定ステーションにおいては、角度分解光電子分光 (ARPES) を用いた強相関電子系に対する研究を進めている。ARPESは物質のバンド構造とフェルミ面を直接的に観測できる強力な実験手法であるが、これまでのARPES測定では、運動量空間内の特定の1次元のバンド構造、あるいは特定の2次元のフェルミ面など、限定的な測定に留まっており、3次元の電子構造を持つ物質に対しては十分な情報が得られておらず、理論との比較も不十分な状況にあった。そこで今回、これまで捉えられてこなかった3次元の電子状態を導出することを目的として、入射光エネルギーと検出角度の両者を掃引する3次元ARPES (3D-ARPES) を開発し、強相関ウラン化合物 URu_2Si_2 に対する実験を行った。 URu_2Si_2 は $T_c=1.2$ Kの重い電子系超伝導体であるが、17.5 K付近で明瞭な二次相転移を示す。その秩序パラメータは、この化合物が初めて報告された1987年から30年にもわたって理解されておらず、「隠れた秩序相」と呼ばれており、物性物理学においても大きな謎となっている。常磁性相の URu_2Si_2 に対する実験の結果、運動量空間において k_x , k_y , k_z のすべての情報を含む完全な3次元バンド構造とフェルミ面を取得することに成功し、これまで捉えられてこなかった3次元の電子状態を捉えることができた。フェルミ面上で特に光電子強度が特に強い部分 (hot spot) が観測され、この部分でRu 4dバンドとU 5fバンドが強

く混成していることが明らかとなった。この結果は、U 5*f*バンドがRu 4*d*バンドとの混成相互作用を通じてフェルミ面を形成されていることを表しており、従来のARPES実験では捉えられていなかった特徴である。これらの基本的な構造はU 5*f*電子を遍歴として取り扱ったバンド計算によって再現されることが明らかになったが、一方で、U 5*f*準粒子バンドのエネルギー分散はバンド計算よりも狭くなっており、電子相関効果の重要性も明らかとなった。今後、各種理論との比較を進めることにより、隠れた秩序発達の舞台となっている電子構造を明らかにする。その他、論文としては、これまでBL23SUにおいて行われてきたウラン化合物に対する光電子分光実験に関するレビュー論文^[12]、電荷密度転移を示すEuAl₄に対するARPES研究^[13]、強相関Ru酸化物であるSr_{1-x}La_xRuO₃に対する光電子分光研究^[14]、などが報告された。

軟X線磁気円二色性(XMCD)測定ステーションでは、ウラン化合物の磁性の研究をはじめとして、強相関電子系や機能性磁性材料にいたる幅広い研究を展開している[XMCD_1-2]。ウラン化合物においては、主に比較的強磁性転移温度(*T*_c)が高いUFe₂ (*T*_c = 165 K), UGa₂ (*T*_c = 125 K)およびUGe₂ (*T*_c = 52 K)に対して、Uサイトだけではなくリガンドサイトに対してもXMCD実験を行った。結果、いずれの物質においてもリガンドサイトにも明瞭なXMCDシグナルが観測された。UGa₂やUGe₂ではUサイトの磁気モーメントが優位であるが、UFe₂においてはUサイトよりもFeサイトの方が優位であることが分かった。また外部研究機関との研究では、東京大学のグループはFeやMnを含む強磁性半導体、広島大学のグループはトポロジカル絶縁体、そして、大阪大学のグループはホイスラー合金についての実験を行った。

ここでは成果の一例として、東京大学のグループが発表したGe_{1-x}Mn_x薄膜の研究を挙げる。この研究は、この試料が示す大きな正の磁気抵抗の起源をXMCDの詳細な温度・磁場依存性を調べることにより、ミクロスコピックに解明したものである[XMCD_2]。実験はMn L_{2,3}吸収端において実施し、XMCDスペクトル形状が温度・磁場に依存して変化することを見出した。これは異なる磁氣的性質をもつ領域が存在することを示している。これら成分を分離することで、Mn濃度の高い領域では100 K以下では強磁性的な秩序を形成する一方、Mn濃度の低い領域では低温においても常磁性的であることが分かった。そして10 K以下においては、Mn濃度の高い強磁性領域からのスピン偏極したホールが空間的に広がり、近接する強磁性領域との重なりに加え、常磁性的なMnと協奏的に相互作用することが大

きな正の磁気抵抗を生じさせていることを明らかにした。これは元素選択的な磁気プローブかつXMCDの高精度検出性能を巧みに組み合わせた研究例である。

(藤森 伸一、竹田 幸治)

参考文献

- [1] M. Nozaki, J. Ito, R. Asahara, S. Nakazawa, M. Ishida, T. Ueda, A. Yoshigoe, T. Hosoi, T. Shimura, and H. Watanabe: *Appl. Phys. Express*, **9**, (2016) 105801.
- [2] R. Asahara, M. Nozaki, T. Yamada, J. Ito, S. Nakazawa, M. Ishida, T. Ueda, A. Yoshigoe, T. Hosoi, T. Shimura, and H. Watanabe: *Appl. Phys. Express*, **9**, (2016) 101002.
- [3] A. Narita, K. Fujii, Y. Baba, I. Shimoyama, *Int. J. Radiat. Biol.*, **92**, (2016) 733.
- [4] K. Fujii, Y. Izumi, A. Narita, A. Yokoya, *et al.*: *Radiat. Res.*, in press
- [5] K. Fujii, M.-F. Politis, M.-A. Hervé du Penhoat: *III International Scientific Conference Oxygenalia 2016*, Nov. 18-19 2016, Kraków, Poland.
- [6] A. Yokoya, Y. Sugaya, T. Oka, K. Fujii, M. Ukai: *14th International Workshop on Radiation Damage to DNA*, Mar. 20-24, 2016, Melbourne, Australia.
- [7] A. Yokoya, and T. Ito, *Int. J. Radiat. Biol.*, **93**, (2017) 743.
- [8] 島田紘行, 横谷明德, 鶴飼正敏, 日本物理学会誌: **71**, 736-745 (2016).
- [9] Y. Takeda, H. Shimada, R. Miura., M. Ukai, C. Ozga, A. Knie, A. Ehresmann, A. Yokoya, K. Fujii, Y. Fukuda, Y. Saitoh: *to be published*.
- [10] H. Shimada, A. Yokoya, K. Fujii, M. Ukai: *14th International Workshop on Radiation Damage to DNA*, Mar. 20-24, 2016, Melbourne, Australia; *12th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics*, September 6-10, 2016, Chanchung, China.
- [11] T. Kojima, H. Shimada, M. Ukai, A. Yokoya, *et al.*: *Micros2017: 16th International Symposium on Micro-dosimetry*, November 5-10, 2017, Venice, Italy.
- [12] S. Fujimori, Y. Takeda, T. Okane, Y. Saitoh, A. Fujimori, H. Yamagami, Y. Haga,

- E. Yamamoto, and Y. Ōnuki, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **85**, (2016) 062001.
- [13] M. Kobata, S. Fujimori, Y. Takeda, T. Okane, Y. Saitoh, K. Kobayashi, H. Yamagami, A. Nakamura, M. Hedou, T. Nakama, and Y. Ōnuki: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **85**, (2016)094703 .
- [14] I. Kawasaki, Y. Sakon, S. Fujimori, H. Yamagami, K. Tenya, and M. Yokoyama: *Phys. Rev. B*, **94**, (2016)174427 .
- [15] Y. Saitoh, H. Fujiwara, T. Yamaguchi, Y. Nakatani, T. Mori, H. Fuchimoto, T. Kiss, A. Yasui, J. Miyawaki, S. Imada, H. Yamagami, T. Ebihara, and A. Sekiyama: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **85**, (2016)114713.
- [16] Y. K. Wakabayashi, R. Akiyama, Y. Takeda, M. Horio, G. Shibata, S. Sakamoto, Y. Ban, Y. Saitoh, H. Yamagami, A. Fujimori, M. Tanaka, and S. Ohya: *Phys. Rev. B*, **95**, (2017)014417.

日本原子力研究開発機構原子力科学研究部門
物質科学研究センター
アクチノイド科学研究グループ

吉越 章隆

電子構造研究グループ

藤森 伸一、竹田 幸治

量子科学技術研究開発機構量子ビーム科学研究部門
高崎量子応用研究所
東海量子ビーム応用研究センター

藤井 健太郎

BL11XU QST 極限量子ダイナミクス I

1. 概要

BL11XUは真空封止型アンジュレータを光源とした量子科学技術研究開発機構の専用ビームラインである。光学ハッチ内にSi (111) 結晶と Si (311) 結晶を真空中で切り替え利用できる液体窒素冷却式の二結晶分光器が設置されており、6 keVから70 keV領域の放射光を高出力で利用できる。更に、集光と高調波カット用の横置き型X線ミラーに加え、複数のBe屈折レンズを切り替え利用できるX線光学機器も整備されている。実験ハッチには、放射光メスbauer分光、X線吸収分析装置、非弾性X線散乱および表面X線回折計測用の測定装置類が整備されており、これらを用いた専用ビームライン独自の先端放射光利用技術開発と量子機能材料研究への応用が展開されている。

2. 放射光メスbauer回折による結晶サイト選択的スペクトルの測定

実験ハッチ1上流側では、先進的放射光メスbauer分光装置の開発と機能材料研究への応用を展開している。2016年度は、放射光メスbauer回折による単結晶試料の局所磁気構造解析法の開発、研究を精力的に進めた。

メスbauer分光で測定の対象となる元素は約45種類にのぼるが、物理、化学、生物から地球科学等に至る多くの分野で取り上げられる鉄 (^{57}Fe) のメスbauer分光が良く知られており、鉄系化合物の電子状態や磁性の研究に有効利用されている。通常、 ^{57}Fe メスbauer分光は ^{57}Co 密封 γ 線源を用いた透過法で行われ、スペクトル解析からアイソマーシフト、四重極分裂、内部磁場といった原子核の超微細構造が決定され、鉄の電子状態、磁気構造、原子配列や格子振動状態に関する情報が得られる。ところで、メスbauer分光で測定する鉄系化合物には結晶学的に複数の鉄サイトを持つことがしばしばある。このような場合、透過法で測定したスペクトルでは、各サイトの鉄に起因した成分が重なり合うため、複雑化して解析が困難となる。一方、X線や中性子の回折実験では、原子位置と反射指数から成る構造因子により回折強度が決まるため、回折線の強度を詳細に調べることで、結晶サイトごと、イオン種ごとの情報を分離して取り出すことができる。このような回折法をメスbauer分光に適用しようとすると、高輝度メスbauer線源が必要不可欠となるが、最近、我々はBL11XUにおいて、市販で最も強い ^{57}Co 線源 (~100

mCi) と比較して10万倍以上も高輝度な ^{57}Fe 放射光メスbauer線源の開発に成功しており、実用的なメスbauer回折の測定環境を利用できる状況にある^[1,2]。そこで、本研究では、高輝度放射光メスbauer γ 線により、回折分光法を高度化して、結晶サイトを選択して超微細構造パラメーターを決定できる新手法の開発を行った^[3]。最初のモデル実験では、典型的なFe複サイト化合物であるマグネタイト (Fe_3O_4) の高温相の結晶サイト選択的スペクトルを測定した。

マグネタイト (Fe_3O_4) は、立方晶逆スピネル型構造 (空間群Fd m) を持ち、結晶学的に異なる2つのFeサイトを有する。Aサイト (8a) は Fe^{3+} が、Bサイト (16d) は同数の Fe^{2+} と Fe^{3+} が占有しており、室温のBサイトFeは、電子拡散により $\text{Fe}^{2.5+}$ として観測される。図1に結晶構造を示す。サイトの対称性が異なるため、結晶構造因子がAサイトのみ、逆にBサイトのみから成る反射が幾つか存在する。典型的な反射指数、ブラッグ角 (θ_B)、Aサイト、Bサイトの構造因子を表1に示す。ところで、メスbauer

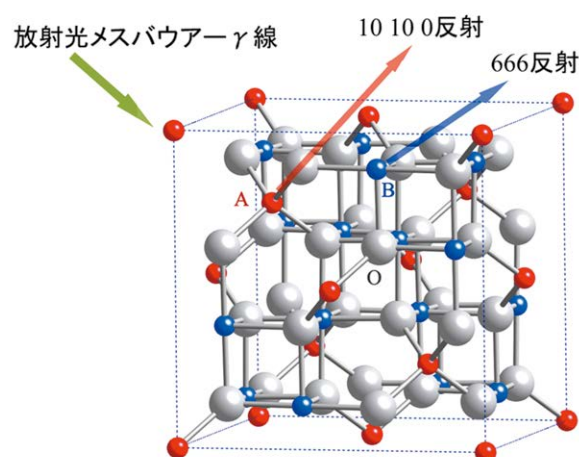


図1 Fe_3O_4 の結晶構造とサイト選択的メスbauer回折の概念
A、B、OはAサイト鉄、Bサイト鉄、酸素を表す。

表1 Fe_3O_4 の反射指数、ブラッグ角、A及びBサイトの構造因子。
 f_{Fe} は、Feの原子散乱因子を表す。

反射指数	ブラッグ角 $\theta(^{\circ})$	A サイト構造因子	B サイト構造因子
2 2 0	8.35	$8f_{\text{Fe}}$	0
2 2 2	10.24	0	$-16if_{\text{Fe}}$
6 6 6	32.26	0	$16if_{\text{Fe}}$
10 10 0	46.48	$8f_{\text{Fe}}$	0

一回折法で結晶サイトを選択してスペクトルを観測するには、電子散乱(X線)を抑制し、表1の構造因子に対応する回折に寄与した核共鳴散乱(γ 線)の発光スペクトルのみを取り出す必要がある。その一つの方法として、電子散乱と核共鳴散乱の偏光因子の散乱角依存性の違いを利用できる。これは、 π 偏光入射した γ 線に対する電子散乱の偏光因子が $\cos^2 \theta_B$ であることから、 θ_B が 45° 近辺の回折面では電子散乱は抑制されるが、核共鳴散乱の偏光因子は、 θ_B が 45° の回折面でも、内部磁場の向きを選ぶことで偏光因子が有限値を持ち、核共鳴散乱のみの発光スペクトルを観測できるという原理に基づいている。表1から分かるように666反射($\theta_B = 32.26^\circ$)と10 10 0反射($\theta_B = 46.48^\circ$)は、ブラッグ角が 45° に近く、結晶構造因子が、それぞれ、Bサイト、Aサイトのみ値を持つため、サイト選択したメスバウアースペクトルの観測に適している。図1には、Aサイト、Bサイトで選択的に起こるメスバウアー回折の概念を示す。今回の実験では、酸素雰囲気制御中で集光式浮遊帯溶融法(FZ法)で合成した ^{57}Fe を95%富化した $^{57}\text{Fe}_3\text{O}_4$ 単結晶を試料に用いた。図2には、放射光メスバウアー回折実験の光学系と装置の外観写真を示す。本装置に装備した核分光器[$^{57}\text{FeBO}_3(111)$]を用いれば、バンド幅15.4 neVの100%直線偏光(π 偏光)した14.4 keVの放射光メスバウアー γ 線[ビームサイズは横1.6 mm×縦0.4 mm、縦方向の発散角は3秒角]を用いた回折配置での実験を容易に実施できる。試料ステージには、 $\theta - 2\theta$ 回折計(チルト機能付)を利用しており、結晶試料からの回折 γ 線を高角度分解能($\Delta\omega = 0.36$ 秒角)で測定できる。図2の光学系において、核分光器をドップラー振動させることでメスバウアースペクトルを観測することができる。室温において観測した666反射のメスバウアー回折スペクトルを図3(上)に示す。表1から予想されたように、電子散乱の大部分は抑制され、核共鳴散乱が支配的な発光スペクトルが観測されている。しかしながら、666反射では、電子散乱の偏光因子が $P_e = 0.43$ と無視できない値を持つため、電子散乱は完全には抑制されておらず、電子散乱と核共鳴散乱線の量子干渉(ファノ効果)による非対称且つブロードな線形とベースラインの傾きが生じている。この点を考慮して、666反射のスペクトルをファノ関数で解析すると、Bサイトのみの発光スペクトル(図3のB(n)成分)と若干のAサイトとBサイトの吸収(図3のA(e)、B(e)成分)の重ね合わせとして説明できた。一方、図3(下)には、10 10 0反射のメスバウアー回折スペクトルを示す。10 10 0反射の電子散乱の偏光因子は、 $P_e \sim 0$ となるため、電子散乱が完全に抑制される。このため、構造因子から予想されるように、Aサイトのみの発光スペクトルが明瞭に観測されている。この時、10 10 0反射のスペクトルは、回折への寄与が核共鳴散乱だけなので、ファノ効果は殆ど観測

されず、一般的なローレンツ関数で良くフィットできる。6 6 6反射と10 10 0反射の回折スペクトルの解析で求めたA、Bサイトの超微細パラメーターは、密封線源を用いた従来の測定で得られる値と同等の値であった。以上の結果より、 $\theta_B \sim 45^\circ$ の回折面(45° 法)を用いた結晶のサイト選択的なメスバウアースペクトルの観測に初めて成功した。本成果を取りまとめた論文は、JPSJの注目論文として

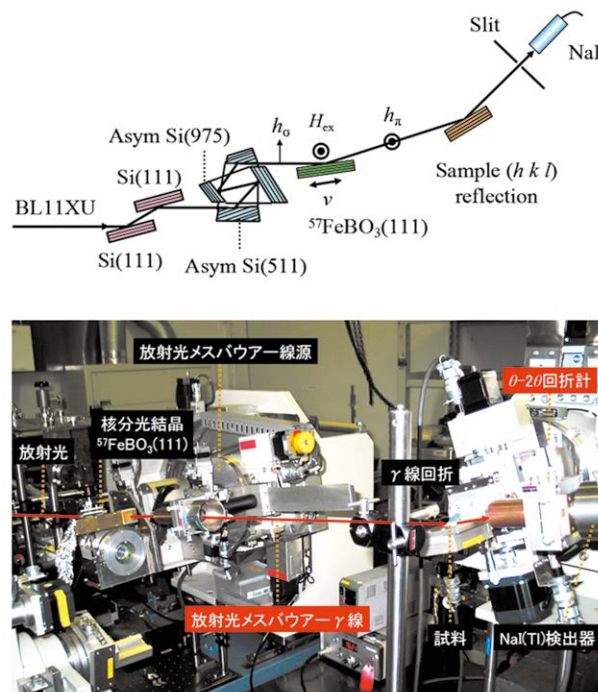


図2 メスバウアー回折装置の光学系(上)と外観写真(下)
 h は光の単位磁場ベクトル(添え字は偏光状態を示す)、 H_{ex} は外部磁場、NaIはカウンターを表す。

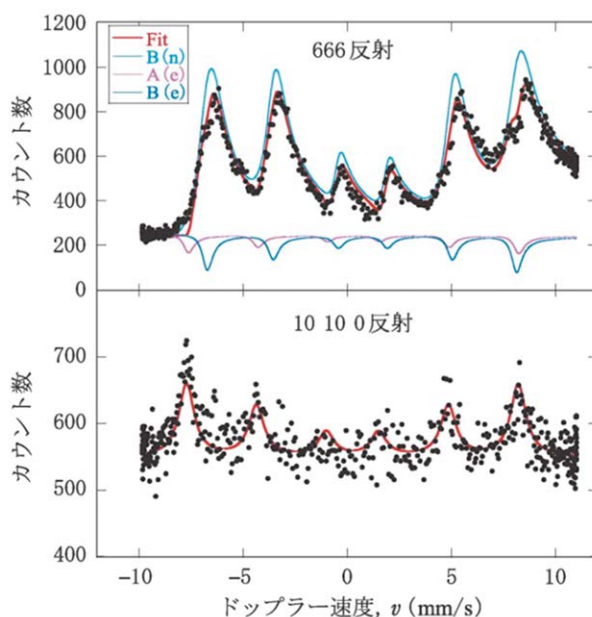


図3 45° 法による $^{57}\text{Fe}_3\text{O}_4$ のサイト選択的メスバウアー回折スペクトル(上)666反射(下)10 10 0反射。上図で、(n)、(e)はそれぞれ、核共鳴散乱、電子散乱に起因する。

選出された^[4]。

一方、上で紹介したブラッグ角が45°近辺の反射面を持つ試料を測定する方法では、対象物質が大きく制限される。この問題を解決するため、2016年度の開発では、試料と検出器の間に偏光アナライザーを配置して、回折線から π 偏光の電子散乱だけを除去する方法（偏光アナライザー法）や電子散乱に対しては禁制反射で、核共鳴散乱に対しては許容反射になる反射（純核ブラッグ反射法）を有する試料の結晶サイト選択的メスバウアースペクトルを観測する手法も実験的に検証されており、汎用性のある測定と超微細構造パラメーターを精密に決定可能な計測シーケンスを確立できた^[5,6]。今後、これら手法を用いた多くの機能性複合サイトFe化合物の磁性・電子状態の応用研究が展開されるであろう。また、回折法を全反射メスバウアー分光法^[7]と組み合わせれば、マルチフェロイクスやスピントロニクスといった鉄系機能性薄膜材料の局所磁性探査技術の高度化にも繋がることが期待される。

（三井 隆也）

3. XAFSによるアクチノイドなど重元素錯体の構造および電子状態解析

実験ハッチ1下流側では、高輝度・高エネルギー特性を有するSPring-8アンジュレタ光を用いたXAFS測定を行っている。喫緊の課題である福島環境回復を目指したCs減容化研究及びCs吸脱着機構解明研究を始め、使用済み核燃料廃棄物に係るガラス固化処分技術の高度化、核燃料廃棄物分離・回収に関連した抽出分離剤の開発と挙動解析、難分離性セレン化合物の分離に向けたスペシエーション、セシウム含有鉱物及び土壌の低温昇華処理技術の開発、さらに燃料デブリ対策や廃炉研究を見据えた原子力関連研究を推進している。一方、2016年4月よりJAEA-QST分離移管に伴い、アンジュレタ放射光高輝度XAFS測定システムをBL22XUへ移設する計画を進めている。これまでBL11XUで整備したXAFS測定システムに加え、極微量のRI・アクチノイド試料測定へ向けた高感度測定システムの構築を含めた技術開発研究も実施している。

3-1 有機配位子によるアクチノイド・ランタノイド認識機構の解明

アクチノイドやランタノイドを効率的に分離するための分離法の開発は、使用済み核燃料の処理・処分方法の確立やレアメタルのリサイクル技術等に深く関連しており、非常に重要なテーマである。我々の研究グループでは、その化学的性質の類似性から、相互分離が困難である3価アクチノイドや3価ランタノイドについて、その僅かなイオンサイズ差を認識して特定元素と選択的に錯形成する配位

子PTA (1,10-phenanthroline-2-carboxamide) の開発に成功している。本研究では、その錯形成の元素選択性制御のための新規化合物の設計・開発手法の確立を目的に、放射光XAFS等を用いて構造解析によるイオン認識メカニズムの検討を行い、PTAがそのフェナントロリン部位の僅かな伸縮機構によってイオンサイズを認識していることなどを明らかにしてきた。この伸縮機構の制御を目的に、官能基の電子吸引・供与性の大小に着目して化学修飾を行い、PTAのフェナントロリン部位の2つの窒素原子間の距離を変化させた誘導体を新規に合成した。今年度は、溶液中でのPTA錯体構造について放射光XAFSにより明らかにし、単結晶X線構造解析の結果と併せて議論することでそのイオン認識機構について検討した。その結果、新たに合成した誘導体も同様の伸縮機構によりイオンサイズを認識するものの、フェナントロリン部位の電子密度を最適化することによって、2つの窒素原子間の距離がより大きいイオンとの錯形成にする構造へ変化していることが分かった。本結果より、フェナントロリン部位の2つの窒素原子間の距離を制御することで特定のランタノイドへの選択性を持つ化合物が設計可能であることが示唆された。今後、特定元素に選択性を有する化合物が設計可能になると期待される。

3-2 鉄リン酸塩ガラス中のセリウム元素の化学状態解析

放射性廃液や固体廃棄物のガラス固化技術において、従来のホウケイ酸ガラスの代替として、鉄リン酸塩ガラスが有望視されている。鉄リン酸塩ガラスを廃棄物処分処理のベースガラスとして使用する研究開発は、米国などで進められているが、廃棄物成分がガラス中においてどのような状態で存在するかは、十分な情報が集まっているとは言い難い。そこで我々は、ホウケイ酸ガラス系における廃棄物成分の化学状態のデータをもとに、鉄リン酸塩ガラスにおける化学状態を調べた。この研究は、放射性廃棄物の種類によって、最適なガラス固化処理を選択可能性に貢献できる。

Fe_2O_3 濃度の異なる鉄リン酸塩ガラスに、模擬廃液含有量を変えた試料を作成し、Quick XAFSで化学状態の変化を調べた。その結果、図4に示す通り、ベースガラスに Fe_2O_3 が少なく模擬廃液成分の含有量が少ない30FeP-10Wおよび30FeP-20WではCe-O間距離は約2.40 Åであるが、ベースガラスに Fe_2O_3 が多くなり模擬廃液成分が多くなると、Ce-O間距離が伸びると同時に、配位数も約6から8へと増加した。特に35FeP-30Wおよび40FeP-30Wでは、その第1ピークが大きく成長した。これらの結果は、ガラス中にセリウムが溶け込んだ状態から、結晶性リン酸セリウムの発生に帰属された。結論として、ベースガラス中に Fe_2O_3 が少ないほど、廃棄物成分としてのセリウムをより多く包含できること、廃液成分濃度

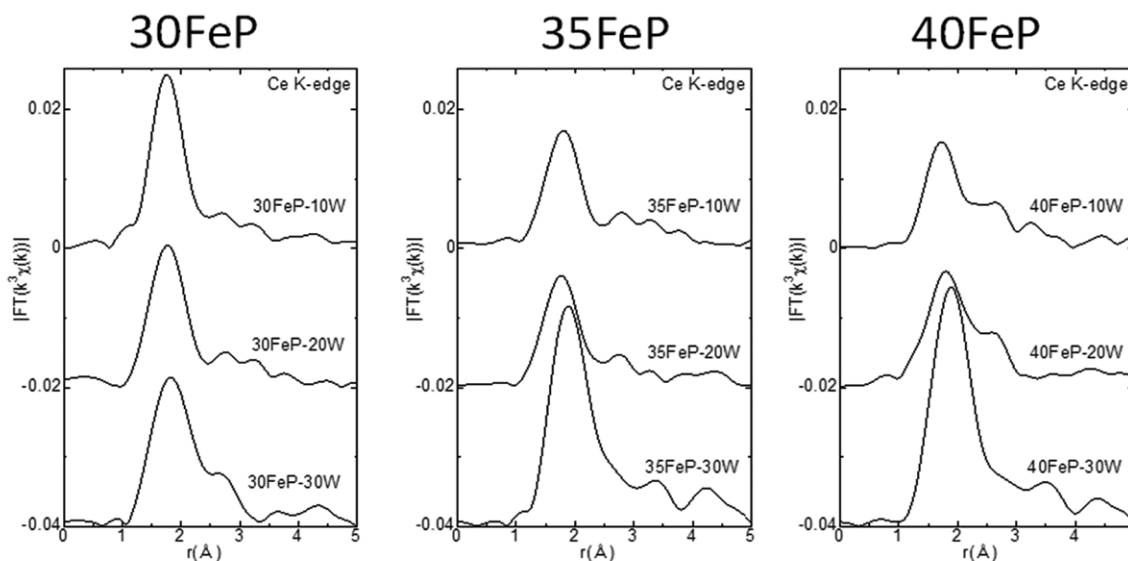


図4 模擬廃液成分含有鉄リン酸塩ガラス試料のセリウムK吸収端EXAFSによる動径構造関数

20wt%まで十分に包含可能なことの2点が判明した。

3-3 難分離性核種セレンの分離に向けたスペシエーション

核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化研究において、高レベル廃液からの電解法や溶媒抽出法を用いた長寿命核種の分離回収技術の開発を行っている。本研究では、長寿命核種であり難分離性のセレン等の分離剤開発のための検討を行った。水溶液中でのセレンの原子価や局所構造等の化学状態を明らかにすることを目的に放射光XAFS実験を行った。その結果、4価のSe化合物を水に溶解させると4価の SeO_3^{2-} として安定に存在するが、6価のSe化合物を水に溶解させた場合には速やかに還元され、4価と6価の中間状態または混合状態となることが分かった。また、0価の単体Seは硝酸に溶解させると速やかに酸化され、4価の SeO_3^{2-} となった。以上の結果より、Se化合物の水溶液中におけるもっとも安定な化学種は4価の SeO_3^{2-} であるが、一定の条件下においてはそれより高い原子価をとる場合があることが分かった。

3-4 高エネルギー XAFS を利用したセシウム含有粘土鉱物の低温昇華処理のその場観察

福島汚染土壌減容化には土壌中の粘土鉱物に固定された放射性Csの除去が必要不可欠である。これに対して、アルカリ塩を添加して加熱処理を行う手法が提案されており高いCs除去率により注目を集めているが、加熱処理中のCs脱離過程の詳細は不明である。そこで我々はCs収着能力が高い風化黒雲母(WB)から混合塩(NaCl-CaCl_2)を用いてCsを除去する際の脱離機構についてその場観察を行い、加熱中のCs局所構造変化を調べた。

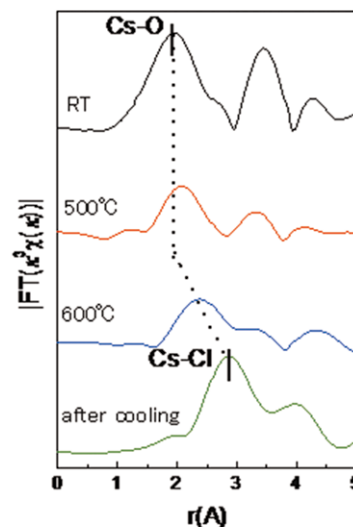


図5 EXAFS関数で得られた実空間の動径構造関数(混合塩添加有の室温、500°C、600°C、冷却後)

非放射性CsをWBに飽和収着し、モル比1:1の NaCl-CaCl_2 混合塩を重量比1:1でWB粉末に添加した。この試料に対して200-700°Cの温度範囲で100°CごとEXAFS測定を行い、混合塩の有無によるスペクトルの違いを比較検討した。また加熱処理後に混合塩を除去した試料に対して通常のXAFS測定と蛍光X線分析(XRF)を行いCs除去率の温度依存性を調べた。その結果、混合塩無添加の場合、200-700°Cの加熱においてCsはほぼ同じ局所構造を示し、Csは熱処理に関わらずWB中に保持されている事が分かった。一方混合塩を添加した場合、加熱するにつれて構造が徐々に変化し、加熱後室温に戻した時は完全に異なる構造を観測した(図5)。XRFによるCs除去率測定とEXAFS解析の結果から、混合塩を添加し

て700°C加熱するとほぼ全てのCsはCs-Clに近い結合距離を示し、700°Cから室温に戻した際にほぼ全てのCsがWBから除去されたことが分かった。一方、400-500°C加熱では、Csはシリカの四面体構造に囲まれCs-O結合を保持していたにもかかわらず、室温への冷却過程において約5割のCsが除去されたことがわかった。以上から我々は低温領域（400-500°C）と高温領域（600-700°C）において異なる2タイプのCs脱離過程が存在すると結論した。

（塩飽 秀啓、岡本 芳浩、小林 徹、
鈴木 伸一、土井 玲祐、本田 充紀）

4. 共鳴非弾性X線散乱法による遷移金属化合物の電子励起状態の研究

実験ハッチ2では、硬X線領域にある3d遷移金属のK吸収端、5d遷移金属のL吸収端を用いた共鳴非弾性X線散乱（RIXS）による研究を行っている。また、同じ非弾性散乱分光器を用いてX線発光分光や高エネルギー分解能蛍光検出法による高分解能X線吸収分光の測定も行うことが可能である。測定対象は、強相関遷移金属酸化物や燃料電池など遷移金属を含んだ実用材料である。前者の測定ではRIXSによって電子励起スペクトルを観測することで、電子状態を明らかにすることを目的としている。一方、後者では硬X線の持つ高い透過能を活かして材料の動作環境下での電子状態を高分解能X線吸収分光などによりその場観測し、機能発現メカニズムの解明を目指している。

RIXSの研究、特に強相関電子系を対象とする場合には、エネルギー分解能を向上させることが重要な技術開発要素である。特に、高品質な分光アナライザーを利用することは、そのための鍵となる部分の一つである。分光アナライザーは、結晶のブラッグ反射の角度分散を利用したものであり、散乱X線のエネルギーを分解することに加えて、結晶を湾曲させることである程度の立体角内のX線を検出器位置に集光させる。高いエネルギー分解能を得るためには、結晶性の良い大型単結晶が得られるSiまたはGeの反射面から背面反射に近いものを選ぶことになり、現実には、吸収端ごとにアナライザーが必要となる。

2016年度は、イリジウムL₃吸収端用のSi(844)反射を利用したアナライザーのエッチング処理を行ったものに更新した。エネルギー分解能を評価するためにカプトンの弾性散乱を測定した結果を図6(a)に示す。以前のアナライザー（図中○）では負のエネルギー側に大きく裾を引いており、結晶中に歪みが残っていると考えられる。それに対し、新しいアナライザー（図中●）では裾がなくなっており、弾性散乱の幅も狭くなっている。半値全幅から見積もった測定系全体でのエネルギー分解能は48.7 meVであった。

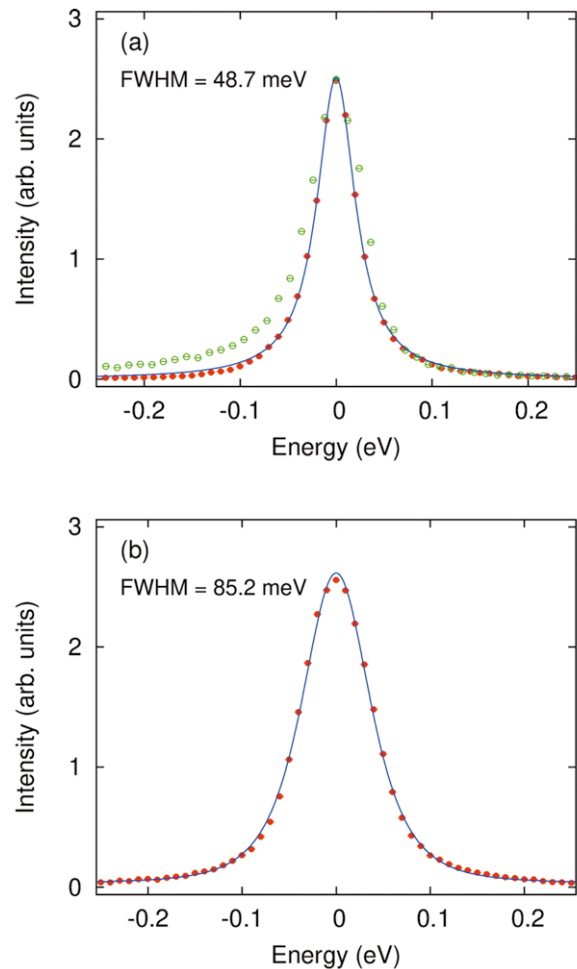


図6 アナライザーの評価するために行なったカプトンの弾性散乱のスキャン
(a) Ir L₃ 吸収端用 Si(844)、(b) Ta L₃ 吸収端用 Ge(840)。
●が実験結果であり、フィッティング（実線）で見積もった半値全幅の48.7 meV、85.2 meVがそれぞれエネルギー分解能に対応する。(a)では以前に使っていたアナライザーの測定結果を○で示して比較している。

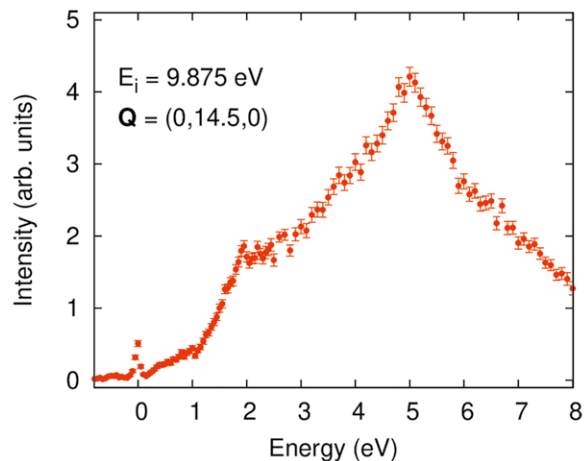


図7 Ta₂NiSe₅のTa L₃吸収端RIXSスペクトル。

イリジウム用Si(844)に加え、タンタルの L_3 吸収端にGe(840)反射を利用したアナライザーを新規導入した。図6(b)にカプトンの弾性散乱の測定結果を示す。Ge(840)反射はSi(844)反射に比べて背面反射から離れているため分解能は低下するが、それでも85.2 meVまで到達することができた。このアナライザーを利用した測定の一例として、層状タンタルカルコゲナイド Ta_2NiSe_5 のRIXSスペクトルを図7に示す。

5d遷移金属化合物では、価電子帯にある5d電子に働く強いスピン軌道相互作用や周りにある陰イオンとの強い電子軌道混成などに由来して新奇な物性が発現し興味を持たれている。

L 吸収端は5d軌道に電気双極子遷移が可能であり、そのRIXSは電子状態を調べる上で有効な実験手法となり得る。今後は、これらのアナライザーを利用して5d遷移金属化合物の物性の解明を目指した研究を進めていく予定である。

(石井 賢司)

5. 表面X線回折計を用いたMBE結晶成長中のその場観察 BL11XUの実験ハッチ3には、半導体結晶成長過程の

動的測定を目的とした分子線エピタキシャル (MBE) 装置とX線回折計とを組み合わせた装置が設置されている^[8,9]。2014年度からは、プラズマ支援窒化物半導体MBE装置が新規に導入され、ヒ素化合物やアンチモン化合物に加え、AlNやGaN, InNを含む広範な材料について、結晶成長中のその場放射光X線回折測定ができるようになった。2台のMBE装置は、1台のX線回折計に対し、半年から1年の間隔で載せ替えがおこなわれている。それぞれのMBE装置は、X線回折計に載せられていない期間も、オフラインで使用する事が可能で、放射光実験に備えた試料作製の予備実験に用いられている。2016年度は、前半と後半にそれぞれ窒化物半導体、ヒ化物半導体に関する実験が進められた。

窒化物半導体については、GaNに加え、AlNやInNの成長について研究をおこなった^[10]。図8に示したのは、X線逆格子マップの $K=0$ におけるHL断面である。回折指数は、(a)、(b)でそれぞれ6H-SiC(0001)基板、2H-GaN(0001)基板に対応している。6H-SiC(0001)上のAlNの成長については、その場放射光X線回折測定により、界面に転位が発生する臨界膜厚が5 nm程度と見積もられた。この値は、半導体ヘテロエピタキシャル膜の

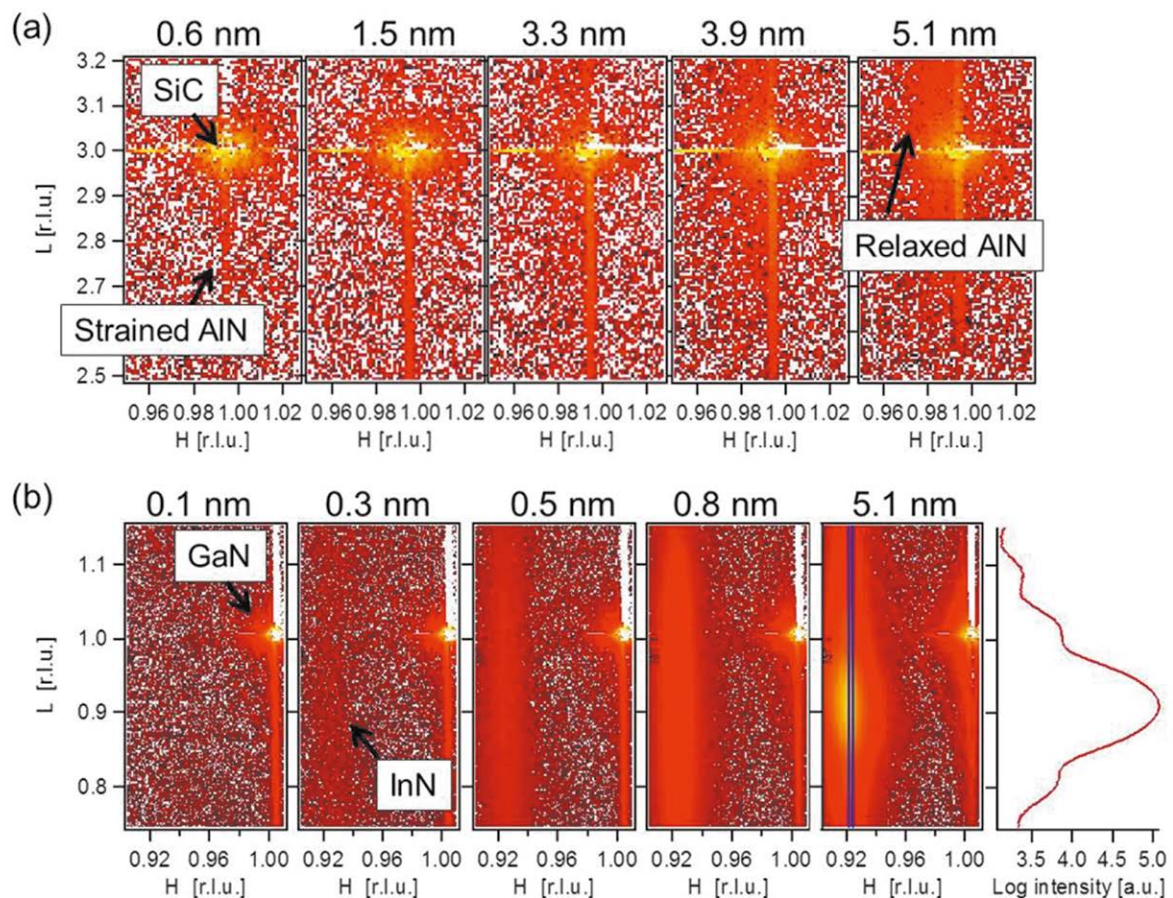


図8 6H-SiC(0001) 基板上のAlN膜成長(a)と、GaN/ α - Al_2O_3 テンプレート基板上のInN膜成長(b)におけるその場放射光X線回折の測定結果。

臨界膜厚の理論の見積もりによく用いられる Matthews & Blakeslee のモデルに比べると、やや小さい。このことは、その場合放射光X線回折は、窒化物膜のひずみを非常に高い感度で検出できる手法であることを示している。一方、図8(b)に示した GaN/ α -Al₂O₃ テンプレート基板上の InN 膜の成長においては、0.3 nm の膜厚から InN 由来の回折ピークをとらえることができ、このときすでに面内方向・表面垂直方向ともに、InN 固有の格子定数を示していた。すなわち、InN はほぼ完全に緩和していた。このような挙動は 6H-SiC(0001) 上の GaN、AlN 膜とは対照的であり、InN と GaN の大きな格子不整合による結果であると考えられる。

ヒ化物半導体については、異種基板上的成長の研究が進められた。シリコン基板上的 III-V 族半導体の成長は、光電子デバイスや安価で高効率な太陽電池などの開発の観点から、長年にわたる重要な課題となっている。平坦な界面を得ることが困難な Si(001) 基板上に代わり、Si(111) 基板上の成長が試みられているが、このときは回転双晶の発生が問題となる。GaAs/Si(111) 成長のその場合放射光 X 線回折による測定から、V/III 比を変えることによって、成長初期の回転双晶ドメインの大きさは変化することがわかり、Si 上の GaAs 膜の高品質化に役立つ知見を得ることができた^[11]。また、スピントロニクス応用に向けて、ハーフメタル強磁性体と半導体のヘテロエピタキシャル界面に関心が集まっている。そのような磁性材料のひとつである MnSb は、In 組成が 50% の InGaAs とほぼ格子整合するため、高品質なヘテロエピタキシャル膜材料の候補として期待が持たれる。そこで、GaAs(111) もしくは In_{0.5}Ga_{0.5}As(111) 上に成長させた MnSb 膜の上にさらに GaAs を成長させるときに生じるひずみの様子がその場合放射光 X 線回折により測定された^[12]。

窒化物半導体を含む III-V 族化合物半導体の結晶成長過程をその場 X 線回折測定できる装置は、世界的に見ても独自性の高い存在であり、文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業の一端を担うため、ビームタイムの一部が国内外の外部ユーザーに対し供用に付されている。2016A・B 期を通じて、窒化物光デバイスの長波長化に向けた GaInN 分子線エピタキシー成長におけるひずみ緩和過程の追跡や、サファイア基板・(AlGa)₂O₃ 基板の表面窒化など、のべ 4 課題が実施された。

(高橋 正光)

参考文献

- [1] T. Mitsui, N. Hirao, Y. Ohishi, R. Masuda, Y. Nakamura, H. Enoki, K. Sakaki, and M. Seto: *J. Synchrotron Radiat.* **16**, (2009) 723.
- [2] T. Mitsui, S. Nakamura, N. Ikeda, K. Fujiwara,

R. Masuda, Y. Kobayashi, and M. Seto: *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, (2016) 054705.

- [3] S. Nakamura, T. Mitsui, K. Fujiwara, N. Ikeda, Y. Kobayashi, and S. Shimomura: *Hyperfine Interactions* **237**, (2016) 157.
- [4] S. Nakamura, T. Mitsui, K. Fujiwara, N. Ikeda, M. Kurokuzu, and S. Shimomura: *J. Phys. Soc. Jpn.* **86**, (2017) 023706.
- [5] S. Nakamura, T. Mitsui, K. Fujiwara, N. Ikeda, M. Kurokuzu, and S. Shimomura: *J. Phys. Soc. Jpn.* **86**, (2017) 084701.
- [6] 中村真一, 三井隆也: 固体物理 **52**, (2017) 551.
- [7] T. Mitsui, R. Masuda, M. Seto, E. Suharyadi, and K. Mibu: *J. Synchrotron Radiat.* **19**, (2012) 198.
- [8] M. Takahashi, Y. Yoneda, H. Inoue, N. Yamamoto and J. Mizuki: *Jpn. J. Appl. Phys.* **41**, 6247 (2002).
- [9] M. Takahashi: *J. Phys. Soc. Jpn.* **82**, 021011 (2013).
- [10] T. Sasaki, F. Ishikawa, T. Yamaguchi and M. Takahashi: *Jpn. J. Appl. Phys.* **55**, 05FB05 (2016).
- [11] H. Suzuki, Y. Nakata, M. Takahashi, K. Ikeda, Y. Ohshita, O. Morohara, H. Geka, and Y. Moriyasu: *AIP Advances* **6**, 035303 (2016).
- [12] P. J. Mousley, C. W. Burrows, M. J. Ashwin, M. Takahashi, T. Sasaki and G. R. Bell: *Phys. Status Solidi B* **254**, 1600503 (2017)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構
量子ビーム科学研究部門
関西光科学研究所 放射光科学研究センター
磁性科学研究グループ

三井 隆也、石井 賢司

コヒーレント X 線利用研究グループ
高橋 正光

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
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
アクチノイド化学研究グループ

塩飽 秀啓、小林 徹、鈴木 伸一
土肥 玲祐、本田 充紀

放射光分析技術開発グループ

岡本 芳浩

BL14B1 QST極限量子ダイナミクスII

1. 概要

BL14B1は偏光電磁石を光源とし、SPring-8では唯一となる白色光と単色光の両方が使えるビームラインである。主要光学系は2枚のX線全反射ミラーと定位置出射2結晶分光器で構成される。白色X線の実験時には、これらの光学素子は光軸上から退避される。高エネルギー白色X線を利用した実験は高温高压その場粉末X線回折測定、および、分散型時分割XAFS測定であり、新規機能性材料の合成条件探索、および、機能発現機構の解明を行う。また、高エネルギー白色X線の高い透過能を利用し、材料中の応力測定を行う。単色X線を利用した実験はおもに粉末X線回折測定とXAFS測定であり、合成された材料の平均構造から局所構造、中距離秩序に至る精密な構造評価、および、化学状態の評価を行う。白色X線と単色X線の測定を相補的・総合的に行うことにより1ビームラインでの材料開発研究の完結が可能となる。本ビームラインでは放射光微細構造解析拠点として独自研究のみならず、共同研究、および、施設共用制度によるユーザー支援を行い、ひるく材料研究の発展に貢献することを目指す。

(齋藤 寛之、米田 安宏)

2. 高温高压合成

高压ステーションでは、キュービックマルチアンビルを用いた高温高压実験が進められている。エネルギー分散法による高温高压下のその場粉末X線回折測定により、合成条件の探索、および、最適化、合成反応機構の解明に関する研究が行われている。新規機能性水素化物を中心に研究を進めている^[1-4]。

鉄錯体水素化物に水素陰イオンを加えることで、これまで報告されている3d遷移金属錯体水素化物中で最も高い重量水素密度を有する錯体水素化物を合成することに成功した。錯体水素化物は18電子則を満たすように組成が制限されるため、錯イオンが決まると、陽イオンの組み合わせが限定される。ここで、水素陰イオンを錯体水素化物中に加えると、陽イオンの組み合わせ数が増大し、組成の自由度が大幅に向上し、これまで合成されていなかった水素化物が実現可能となる。この方針に従い、第一原理計算によって合成可能であることが予測された $\text{Li}_3\text{AlFeH}_8$ の高温高压合成を試みた^[1]。 LiH 、 AlH_3 、 Fe の混合粉末を5 GPa, 600°Cで

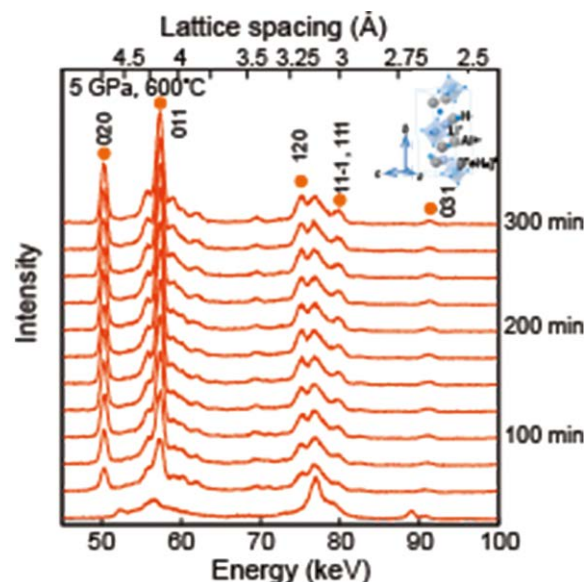


図1 LiH 、 AlH_3 、 Fe 混合粉末を5 GPa, 600°Cで水素化した際に得られたその場粉末X線回折プロファイル。600°Cに加熱後約30分で理論計算予測された新規水素化物 $\text{Li}_3\text{AlFeH}_8$ の単位格子で指数付け可能なブラッグピーク(図中丸印)の生成が観察された。

水素化した。放射光その場観察により得られた粉末X線回折プロファイルの時間変化を図1に示す。第一原理計算による構造最適化によって予想された $\text{Li}_3\text{AlFeH}_8$ の生成をその場観察により確認した。高温高压下で合成された $\text{Li}_3\text{AlFeH}_8$ は常温常圧下に回収することが可能であった。

放射光その場観察技術により開発された大容量試料用高温高压合成セルを用いて、中性子回折実験用の試料合成を行うための技術を開発した。この技術をもとに数10mgの9配位錯体水素化物 $\text{Li}_3\text{MoH}_{11}$ を合成し中性子回折実験を行った。その結果MoのまわりにHが9個配位した特異な構造を有することを明らかにした^[4]。

(齋藤 寛之)

3. 応力測定

構造材料における疲労・破壊メカニズム解明のためには、多結晶粒で構成させる構造材料内の1結晶粒(～10 μm)、さらにその内部のひずみや転位密度分布の導出が必須であり、そのような評価技術としては白色X線と2次元検出器の組み合わせがもっとも簡便である。そこで2016年度も2015年

度より継続してJASRI検出器チームと協力し、現在開発中の高エネルギー認識型X線画像検出器の評価を行った。JASRI検出器チーム担当の検出器の大型化に関しては、2015年度に比べて素子面積が4倍大きい、CeTeを基板センサーとする大面積シングルモジュール型実機（ピクセルサイズ200 μm 、ピクセル数190 $\times$ 200）の開発に成功し、Pilatusと比較して開発中の検出器が高エネルギーに対して非常に敏感であることから幅広いエネルギー範囲での利用が可能であることを確認した^[5]。一方、測定技術開発を担当するJAEA側は、試料を回転させる方法による新たな3次元イメージングの手法開発を実施し、ラウエ斑点から結晶方位、および、検出された回折強度をエネルギースペクトル解析することにより 10^{-3} 程度の精度による格子定数の決定が可能であることを明らかにした。2017年度は本手法を金属材料に適用し、弾塑性変形における内部ひずみの導出を目指す。

核融合炉用ダイバータの構造材料として期待される、繊維強化型SiC複合材料（SiCfSiC）とタングステン（W）との接合材料の界面近傍の反応相をX線回折実験で調べた。接合界面近傍のSEM観察で、接合熱処理下でSiCfSiCが分解して拡散した、Cを含むW相（W-C相）やSiを含むW相（W-SiC）を確認したが、その相に関する知見は未だ得られていなかった。そこで、高原子番号の材料であるWに対して比較的透過力の高い、高エネルギーX線を含む白色X線を用いて界面近傍に対して、X線回折実験を行った。その結果、界面近傍領域においては、複数のWC及び W_2C のピークが確認でき、W-Cが固溶相ではなく、W-Cによる化合物を形成することが分かった。一方で、W-Si化合物に相当するピークは確認できず、SiがWに固溶していることを示唆する結果を得た。

（安田 良、城 鮎美、菖蒲 敬久）

4. 表面回折計

BL14B1に設置されている κ 型回折計を用いて、X線反射率測定により、イオン液体/電極界面のその場構造解析を行った。イオン液体はカチオンとアニオンのみで構成される液体の有機化合物の塩であり、イオン液体/電極界面の様子は、水溶液/電極界面のそれとは全く異なるが、その詳細はまだ十分に理解されていない。そこで界面におけるイオン液体分子の配列構造を、その場構造解析法の1つであるX線反射率測定により解析した。X線反射率強度の電極電位依存性を測定し、その結果を電気化学測定法の1つであるインピーダンス測定の結果と比較すると、インピーダンス測

定では可逆に界面のイオン液体分子の配列構造は変化していることを示しているのに対して、反射率測定の結果は、不可逆に変化していることを示していることがわかった。このことは、電極表面のごく近くに存在するイオン液体分子のみが、可逆に配列構造を変えられることを示唆している。

（田村 和久）

5. PDF

新規に導入した κ 型回折計の最大の特徴は大型の2 θ アームの位置再現性が飛躍的に向上したことである。これによってバックグラウンドの除去の際、ラグランジュ補間の必要がなくなり、PDF解析におけるデータセットの作成が容易になった。また、PDF解析だけでなく、Bragg反射の測定に置いても精密に測定できるようになったため、リートベルト解析による構造パラメーターの信頼性が高まった。図2(a)は高エネルギー粉末X線回折で得られたニオブ酸カリウムのリートベルト解析の結果である^[6]。非常に良いフィット結果が得られている。また、この結果から結晶構造を描画したものが図2(b)である。さらにMEM解析によって得られた電子密度マッピングの結果が図2(c)である。このようにPDF解析として利用する同一のデータセットで従来の結晶構造解析を行うことができるようになった。同一のデータセットで得られた平均構造はPDF解析の初期パラメーターとしても有効で、PDF解析においても利便性が高まっている^[7,8]。

（米田 安宏）

6. XAFS

BL14B1では、白色X線実験ハッチにおいてエネルギー分散型光学系によるXAFS測定が行われていると共に、単色X線実験ハッチにおいて通常型のXAFS測定が実施されている^[9-13]。高速実時間分割測定から低濃度測定まで、各種XAFS測定を実施できる環境が整えられている。

エネルギー分散型光学系では、様々なその場観測条件を整え、各種反応系における実時間分割XAFS測定が行われている。ガスフローメータ、バルブ、ポテンシオスタット、インジェクター等の遠隔操作システムを常備させ、ガス雰囲気下反応、電極反応、溶液滴下による錯形成反応等を対象とした時分割測定を実施してきている。2016年度においては、水素安全対策の1つである水素再結合（水生成反応）触媒に対して、反応中におけるPd触媒の構造変化を2 Hz程度の時間分解能で観測した。結果、水素再結合反応中にPd触媒の水

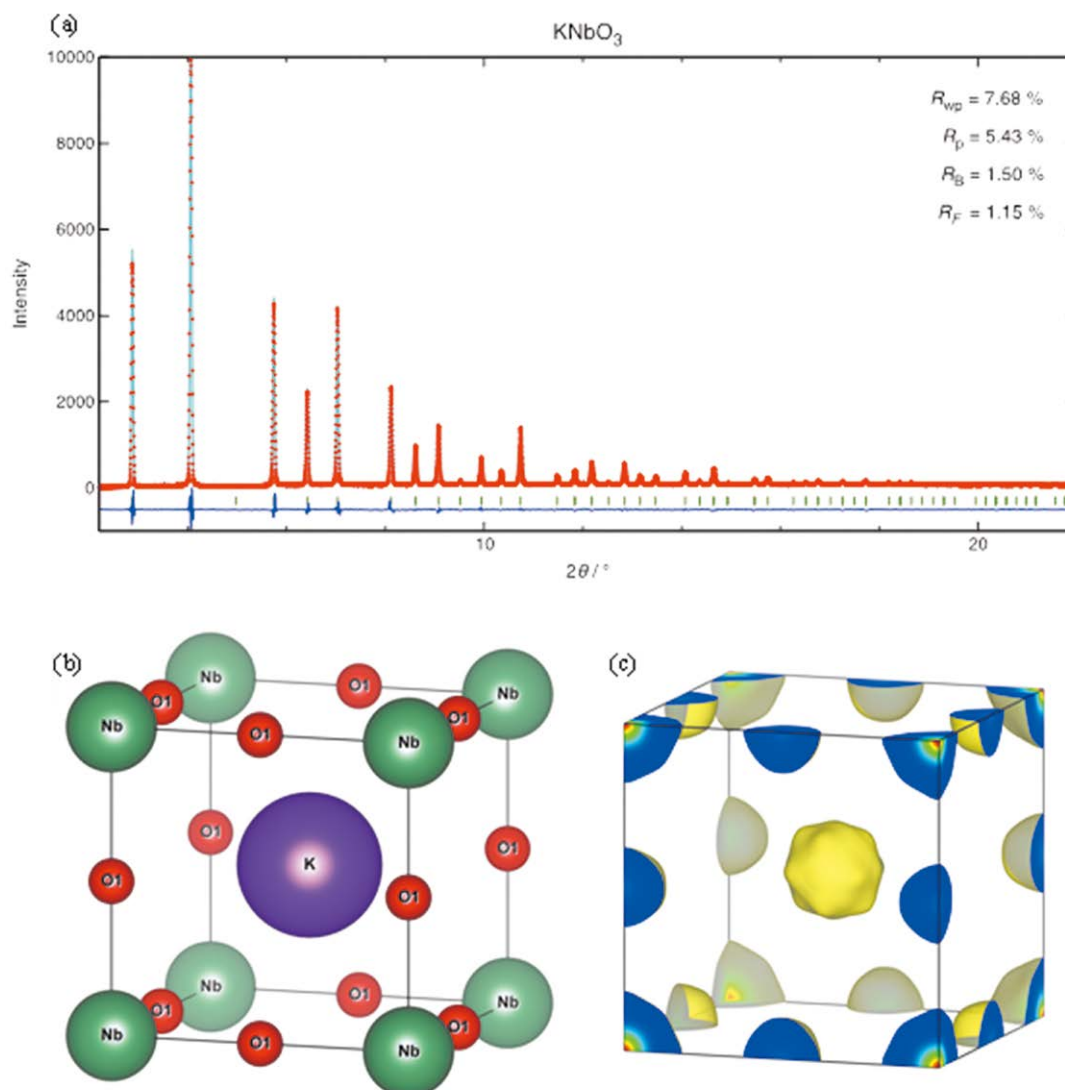


図2 新規回折計の導入によってリートベルト解析などの従来型の結晶構造解析も高エネルギー X線回折によって得られたデータセットを用いて行うことができるようになった。(a) KNbO_3 のリートベルト解析の結果。(b) 解析で得られた結晶構造を描画。(c) MEM解析で得られた電子密度マッピング。リートベルト解析にはRIETAN-FPを、図の描画にはVESTAを使用。

素化は起こらず、触媒の酸化膜表面上で反応が進行することが分かった^[13]。

放射性Csが吸着した土壌の減容化へ向けて、物理粉碎処理を施した際のCs吸着状態に対して、蛍光検出器として36素子SSDを使用し、10 ppmレベルまでの濃度依存局所構造解析を実施した。その結果、Cs元素が粘土鉱物中に安定して存在するには、粘土の層構造が重要であることが判明し、この層構造を破壊することでCsを選択的に回収することができる可能性が見出された。

(松村 大樹、辻 卓也、小林 徹)

参考文献

- [1] H. Saitoh, S. Takagi, T. Sato, Y. Iijima, S. Orimo: *Int. J. Hydro. Energy*, **42**, (2017) 22489-22495.
- [2] H. Saitoh, A. Machida, H. Sugimoto, T. Yagi, K. Aoki: *J. Alloys Compd.*, **706**, (2017) 520-525.
- [3] T. Ogata, T. Sato, S. Takagi, H. Saitoh, Y. Iijima, B. Paik, S. Orimo: *Mater. Trans.*, **58**, (2017) 157-159.
- [4] S. Takagi, Y. Iijima, T. Sato, H. Saitoh, K. Ikeda, T. Otomo, K. Miwa, T. Ikeshoji, S. Orimo: *Sci. Rep.*, **7**, (2017) 44253.
- [5] H. Toyokawa, C. Saji, M. Kawase, S. Wu, Y. Furukawa, K. Kajiwara, M. Sato, T. Hirono,

- A. Shiro, T. Shobu, A. Suenaga, H. Ikeda: *Journal of Instrumentation*, **12**, (2017) C01044.
- [6] T. Nakai, M. Kobune, T. Nagamoto, T. Kikuchi, Y. Yoneda: *Trans. Mat. Res. Soc. Japan*, **41**, (2016) 251-254.
- [7] Y. Yoneda, T. Nagamoto, T. Nakai, M. Kobune: *Trans. Mat. Res. Soc. Japan*, **41**, (2016) 197-200.
- [8] Y. Yoneda, R. Aoyagi, D. Fu: *Jpn. J. Appl. Phys.* **55**, (2016) 10TC04.
- [9] T. Sakamoto, H. Kishi, S. Yamaguchi, D. Matsumura, K. Tamura, A. Hori, Y. Horiuchi, A. Serov, K. Artyushkova, P. Atanassov, H. Tanaka: *J. Electrochem. Soc.*, **163**, (2016) H951.
- [10] R. Lang, T. Li, D. Matsumura, S. Miao, Y. Ren, Y.-T. Cui, Y. Tan, B. Qiao, L. Li, A. Wang, X. Wang, T. Zhang: *Angew. Chem. Int. Ed.*, **55**, (2016) 16054.
- [11] T. Yaita, D. Matsumura, T. Kobayashi, S. Suzuki, T. Tsuji, M. Okumura, M. Machida, R. Motokawa, H. Mukai, T. Kogure: *Global Environ. Res.*, **20**, (2016) 33.
- [12] T. Sakamoto, T. Masuda, K. Yoshimoto, H. Kishi, S. Yamaguchi, D. Matsumura, K. Tamura, A. Hori, Y. Horiuchi, A. Serov, K. Artyushkova, P. Atanassov, H. Tanaka: *J. Electrochem. Soc.*, **164**, (2017) F229.
- [13] D. Matsumura, M. Taniguchi, H. Tanaka, Y. Nishihata: *Int. J. Hydrog. Energy*, **42**, (2017) 7749.

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構

量子ビーム科学研究部門

関西光科学研究所 放射光科学研究センター

高圧・応力科学研究グループ

齋藤 寛之、安田 良、城 鮎美

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

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

環境・構造物性研究グループ

米田 安宏、田村 和久、松村 大樹、辻 卓也

放射光分析技術開発グループ

菖蒲 敬久

アクチノイド化学研究グループ

小林 徹

BL08B2 兵庫県BM

1. はじめに

兵庫県では、産業界における放射光の利用促進を目的としてSPring-8内にBL08B2およびBL24XUの2つのビームラインを設置している。この運営ならびにユーザーへの利用支援を兵庫県立大学放射光ナノテクセンターが行っている。2本のビームラインそれぞれに特徴的な機能を整備し、材料研究の目的に応じた使い分けがなされている。その中でBL24XUではアンジュレタ光源の特性を活かしたX線マイクロビームや高平行X線ビームを技術的な核として、半導体、金属、ソフトマター等の分野における構造評価等で成果を創出している。これに対しBL08B2では、産業界においてスタンダードな分析法として活用されているX線吸収微細構造（XAFS）、小角X線散乱（SAXS）、粉末X線回折、X線トポグラフィ、イメージングの各分析手法を提供している。

2016年度も様々な産業分野においてBL08B2が利用された。さらに新たなユーザーに対する分析機能の高度化・改良に関しても様々な取り組みを行った。光学系および測定系の自動操作化による実験の効率化、その場観察測定を目的とした試料環境の整備、分析機能の複合化促進の整備を行い、ユーザーにとって使い易い実験環境を整えることを目的として計画的に進めてきた。

以下では2016年度におけるBL08B2の活動の詳細を報告する。

2. 産業界ユーザーによるBL08B2利用

2016年度もこれまで同様に利用課題の多くは産業界ユーザーから提案されたものが占めた。利用形態としては、ユーザーが実験責任者となって自ら利用する「一般利用」と、測定代行に相当する「受託研究」の両方において利用実績があった。2016年度の産業界ユーザーの一般利用の統計を図1に示す。ゴムや高分子材料を含む工業材料、半導体材料、電池材料が主な利用分野である。近年はこれらの分野が利用の大半を占める傾向にある。

測定手法の点では、XAFS、SAXS、X線トポグラフィの利用が占め、2016年度は粉末X線回折の手法単体での利用はなかった。産業界としては複合的分析の利用やその場観察に対するニーズが増えており、現有の高分解能粉末X線回折の装置性能の変更を検討し、計画的に装置改造を行っていききたい。

受託研究では、XAFS、SAXS、イメージング利用にて

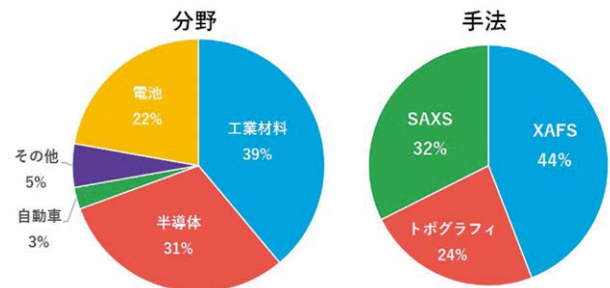


図1 2016年度一般利用の統計

14件の実験を実施した。いずれも数時間の利用時間で完了している。試料数が限られており、かつ一般利用に及ばない実験や迅速な分析実施が求められる場合において、受託研究が利用されている。

一般利用と受託研究のどちらの利用形態においても、ユーザーと実験ステーションの担当スタッフが密にコンタクトを取りながら支援を行っている。支援内容としては幅広く、実験計画の立案、利用手続きや各種申請登録に関するアドバイス、実験準備、測定、データ解析等である。利用課題の募集は随時受け付けており、マシンタイムもSPring-8のサイクル毎にユーザーの要望を最大限取り入れながらスケジューリングしている。産業界が求めるタイムリーな放射光利用に配慮した利用支援、ビームライン運営としている。

3. 各実験ステーションの現状

(1) XAFS

兵庫県ビームラインBL08B2は、質の高いXAFS測定の提供を目的として設計・建設されたビームラインである。産業界ユーザーの使い易さを優先し、ユーザーニーズの高い低温・高温加熱炉等のユーティリティ設備の拡充に努めてきた。特に環境・エネルギー分野問題への応用テーマに対しては、実環境下でのその場測定が行えるよう反応性ガス供給・排気装置を整備した。その場測定だけでなく、ルーチ的な測定ニーズにも対応するため、多数の試料を自動的に連続測定可能とする簡易サンプルチェンジャーも導入している。2016年度の取り組みとして、ユーザーの利便性の向上を目的としたXAFS光学調整の自動化および検出器（イオンチャンバー）用のガス混合システムの導入を行った。

BL08B2では、2結晶分光器の上流側にコリメーション

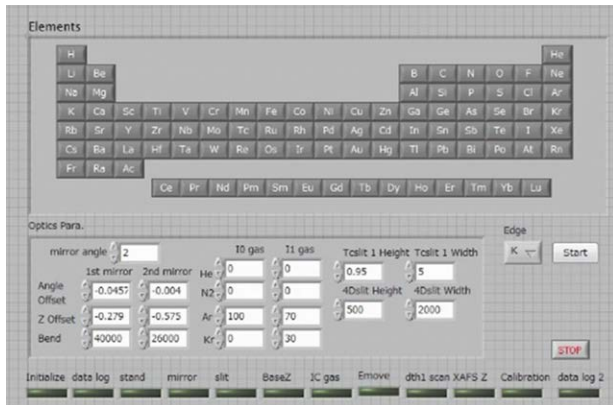


図2 XAFS光学系自動調整ユーザーインターフェース

用ミラー（前置ミラー）を配置し、分光器との組み合わせにより、エネルギー分解能の向上と高調波除去を実現している。分光器の下流側には集光用ミラー（後置ミラー）を配置し、水平ならびに鉛直方向におけるビーム集光を実現している。分光器および後置ミラーと、飛び地の配置であるハッチ間を接続するための遮蔽配管については、前置ミラー反射によるX線光軸方向の変位に追従できるよう傾斜架台および昇降架台を備えている。架台はプログラム上で制御可能である。特にXAFS実験では、測定吸収端（測定エネルギー）に応じて前置ミラーと後置ミラーの角度、二つの分光結晶の平行性、傾斜・昇降架台の角度・高さ、ビーム成形用スリットおよびXAFS測定系位置等を、上流側より順次調整していく必要がある。また標準試料を用いた測定エネルギーの校正も要する。このようにXAFS用光学調整は測定条件の変更の都度、多数のコンポーネントの調整と仕上げ状態の判断が必要であるため、操作に熟練した者しか行うことができなかった。この状況に対してユーザーが簡単にXAFS用光学調整を行えるよう、機器セッティングの自動化システムを開発した。図2に、自動調整用プログラムのユーザーインターフェースを示す。ユーザーは本プログラム上で測定元素ならびに吸収端のタイプを選択し、プログラムの実行ボタンを押すのみとなる。データベース化されたパラメータに基づいて各コンポーネントの自動調整が行われる。その進捗状況はプログラムの画面上で確認できる。

XAFS測定における基本的な検出器はイオンチャンバーである。検出感度を考慮して、計測するX線のエネルギーごとに検出ガスを選択する必要がある。広い計測エネルギー範囲に対応できるよう、複数のガス種および混合比を調整したガスポンペをビームラインに常備していた。高圧ガスの貯蔵量は極力減らす必要がある事情があり、この方針に沿ってイオンチャンバーに流すガス種（He、N₂、ArおよびKr）の流量および混合比を任意の値に調整可能とするためのガス混合システムを導入した。本システムは制

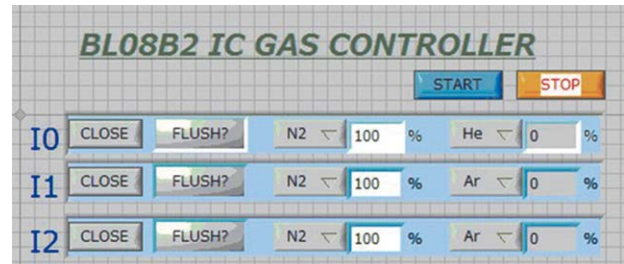


図3 イオンチャンバー用ガス制御用ユーザーインターフェース

御プログラム（図3）を通じて、3か所のイオンチャンバー（I₀、I₁、I₂）に対して独立に供給するガスを調整することが可能である。今後XAFS自動光学調整システムと組合せた操作環境を整備し、自動測定システムの実現を目指す。

(2) 小角X線散乱 (SAXS)

SAXSステーションでは、高分子材料・金属材料・ナノ粒子コンポジット材料等の長周期構造の評価を目的とし、産業界ユーザーを中心に利用展開している。SAXSカメラ長は、標準配置で0.5～6 m、極小角X線散乱測定の長尺配置で16 mを利用可能であり、幅広いSAXS分解能の選択性を有する。実験で使用するX線エネルギーは7～25.5 keVの範囲から選択可能である。また、SAXS/WAXS同時測定、GI-SWAXS、Rheo-SAXS、ASAXS、Quick-XAFS/SAXS/WAXS同時測定の各種複合分析モードを提供しており、これにより産業界の様々な材料構造評価ニーズに対応している。

2016年度も高分子材料を中心に幅広い産業分野での材料開発・分析に利用された。例年通り加熱炉や引張機等を使用したその場観察測定や多検体分析を目的としたサンプルチェンジャーの利用が大半を占めている。特に加熱炉の利用が多く、ビームライン整備の加熱炉ではユーザーから要求される温度変化範囲・速度に対応できない状況となっている。そこで温度制御範囲が-190～600℃である小型冷却加熱炉（リンカム社製10033L）を導入した。この加熱炉は150℃/min.の高速温度変化が可能であり、液体窒素を利用し室温以下でも精密な温度制御が可能である。同時に、SAXS測定時にX線透過率と試料温度を同時計測する自動データロガー、ならびに、加熱炉をホール側へ退避し試料交換を容易にする加熱炉退避機構を導入した。このように加熱炉を使用したその場観察SAXS測定にユーザーが取り組みやすいシステムを構築している。

また、X線低透過率試料（高密度試料）や金属材料の評価を目的とした比較的高いエネルギーでの測定ニーズの増加と、PILATUS-100Kからの検出面積増大を目的とし、Siセンサー厚1 mmのPILATUS3-X-300Kを導入した。これまでのSiセンサー厚0.45 mmのPILATUSと比べて

20 keV 以上で約2倍の量子効率となり、20 ~ 25.5 keV のエネルギー域でも短時間露光で良質なSAXSデータが得られるようになった。また、検出面積の増大による積分情報量の増加により、SAXS散乱曲線において中角度域のノイズ低減と露光時間の短縮が可能となった。特に前述の加熱炉と組み合わせることで、高速な温度変化によるその場観察測定が可能となっている。

(3) X線トポグラフィ

耐高温・低損失パワーデバイスの材料として注目されているシリコンカーバイド(SiC)結晶は広いバンドギャップ、高い熱伝導率、高い絶縁破壊電圧強度など優れた物性値を有しているものの、結晶欠陥の存在により素子面積の拡大が困難となっている。そこで高品質SiC結晶の開発を目的として、結晶欠陥や転位の分布を評価できるX線トポグラフィ実験が実施された。4H-SiCエピタキシャル膜のトポグラフィ像から、形状の異なるコントラストを持つ刃状転位を捉えることで、転位の位置情報と種類情報を得ることができた。これらの結果を基にして、製膜条件等のプロセスの改良を図り、高品質SiC結晶の開発を行っていく。一方、大面積SiC結晶の評価には、そのサイズ(4インチウエハ以上)に対応した測定系が必要となる。現在、幅50 mmのワイドビームを利用しているが不十分である。今後、長ストロークの試料並進ステージを装置に組み込み、検出器と連動する測定システムを構築する予定である。

(4) イメージング

X線イメージングは物質内部の構造を非破壊で可視化できるツールである。中でも三次元空間構造評価が可能なCT法は産業界における利用ニーズが大きい。平板状の試料においてもCT法を利用できるよう、試料回転軸を傾斜させて測定するX線ラミノグラフィの観察機能も供与している。装置上にはユーザーが持込む試料環境制御装置を設置するためのスペースもあり、その場観察による観察も可能である。

BL08B2では偏光電磁石光源からのワイドビームの特徴を活かし、広視野イメージングが可能である。基本的な測定機能としては、X線エネルギーは5 ~ 37 keVから選択可能であり、視野は3 ~ 10 mm角程度を有する。兵庫県ビームラインBL24XUが提供している高空間分解能イメージング(視野:1.3 mm角、0.65 $\mu\text{m}/\text{pixel}$)と相補的に利用することで、幅広い視野レンジでのイメージング計測が可能である。これは兵庫県ビームラインを利用するうえでの利点としているが、広視野と高空間分解能の計測で2つのビームラインを使い分ける必要があるため、同一ビームタイムの間で両機能の利用は難しい。ユーザーの利便性を考慮し、2016年度はBL08B2における高空間分解

能化を検討し、その検証実験を行った。高空間分解能イメージング用の画像検出器にはBL24XUのものを使用した。本画像検出器は、X線を可視光に変換するための単結晶シンチレータ部(GAGG;Ce: Ce添加 $\text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}$)、光学顕微鏡ユニット部、高感度デジタルカメラ部(浜松ホトニクス製ORCA-Flash4.0)で構成されている。光学顕微鏡ユニット部にある対物レンズはNikon製CFI Plan Apo 10x(開口数0.45)を採用している。BL08B2における高空間分解能イメージングの問題点は1枚撮影当たりの長い露光時間である。CT測定では、試料を180度回転させる間に1000枚を超える撮影を行う場合がある。ひとつのCT測定にかける時間を1時間とした場合、構成する1撮影の露光時間が3秒程度となる。この露光時間条件で画像検出器の感度検証を行った。X線エネルギーが12.4 keV以上の条件で、カメラの中心部分の平均計数の飽和度が50%に達した。一方10 keV以下のX線エネルギーの場合は、使用したシンチレータの発光効率が著しく低いため実用的ではなかった。低エネルギー領域でも十分な検出効率を有するシンチレータを整備し、ユーザーの利用に備えたい。

4. 今後の計画

兵庫県ビームラインBL08B2は、様々な産業分野における材料開発を目的に複数の分析手法を産業界に提供している。特に近年では、工業材料、半導体材料、蓄電池材料の各分野における利用が占めている。食品などのその他の産業分野における潜在的ニーズを開拓するため、2017年度からは研修会の開催機会を増やしていく。産業利用では、迅速な材料分析ニーズも高く、受託研究の依頼件数が増加している。来年度以降もこの傾向は続くものと予想されるため、多検体サンプルチェンジャーの整備や、様々な実験条件を想定した試料ホルダーや測定システムの整備も、ユーザーへの調査を行いながら進める。産業界のニーズを先取りするビームライン高度化計画を検討し、ビームライン高度化を実行するための競争的資金の獲得等もユーザーと協力して取り組んでいく。また新たな材料探索のための基盤技術の整備にも目を向けていきたい。

兵庫県立大学

¹産学連携・研究推進機構放射光ナノテクセンター、

²物質理学研究科

李 雷¹、桑本 滋生¹、漆原 良昌¹、
野瀬 惣市¹、横山 和司¹、松井 純爾¹
高山 裕貴^{1,2}、津坂 佳幸^{1,2}、竈島 靖^{1,2}

BL24XU 兵庫県ID

1. はじめに

兵庫県IDビームラインBL24XUは放射光の産業利用推進を目的とし、兵庫県が設置した専用ビームラインである。管理、運営は兵庫県立大学産学連携・研究推進機構放射光ナノテクセンターが行っており、産業界を中心とした県内外ユーザーの受け入れ及び利用支援を行っている。マイクロビームやイメージングによる局所構造の高分解能評価に特化したエンドステーションを整備しており(図1)、比較的大きな試料を観察可能な兵庫県BMビームラインBL08B2と相補的な構造情報を提供する。

光源には8の字アンジュレーターを採用しており、大強度と低負荷の両立のみでなく、半整数次の高調波を利用することで、垂直、水平偏光を選択可能である。ビームラインはタンデムハッチ構成の2本のブランチ(ブランチA、ブランチB)から成り(図1)、ダイヤモンド薄板結晶を利用した長オフセット二結晶分光器により、単色光をブランチA、透過光をブランチBへ同時に供給できる。ブランチAではBonse-Hart型超小角X線散乱(USAXS)、斜入射回折、マイクロビーム小角X線散乱(μ -SAXS)、ブランチBではX線吸収分光、X線顕微鏡、精密X線回折・トポグラフィの各ステーションを運用すると共に、高度化や新規測定技術の開発を継続して進めている。また、産業利用の新たな取り組みとして、2016年度からマツダ株式会社と兵庫県立大学による次世代自動車材料開発を目的とした共同研究が開始され、その専用基盤としてブランチBに硬X線光電子分光(HAXPES)ステーションを新たに整備した。

2. 産業界ユーザーによる利用状況

兵庫県ビームラインでは、「一般利用」の他、測定代行にあたる「受託研究」を行っている。いずれの利用形態においても、スタッフがユーザーと利用計画を密に議論し、装置整備・高度化を行うことで利用成果の創出に努めている。

2016年度の産業界ユーザー一般利用の統計を図2に示す。半導体、素材、自動車、エネルギー、有機材料やヘルスケアと、利用はハードからソフトマターまで多岐に亘った。ただし、ソフトマター系の利用は全体の20%程度であり、今後は利用の少ない食品等の産業分野への支援も検討したい。測定手法は回折・散乱が全体の半数を占め、イメージングと分光がそれぞれ25%程度であった。

受託研究は μ -SAXSとイメージングが対象であり、2016年度は7件の μ -SAXS測定が実施された。不均質系試料の100 nm以下の構造へ高い関心があることが伺える。

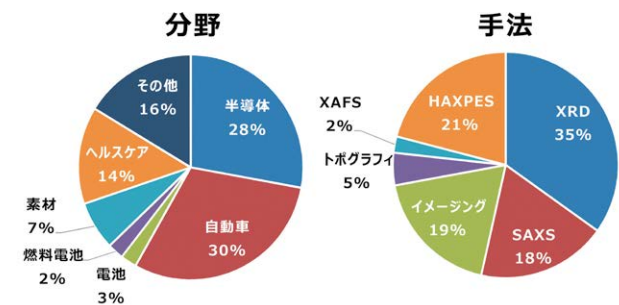


図2 2016年度一般利用の統計

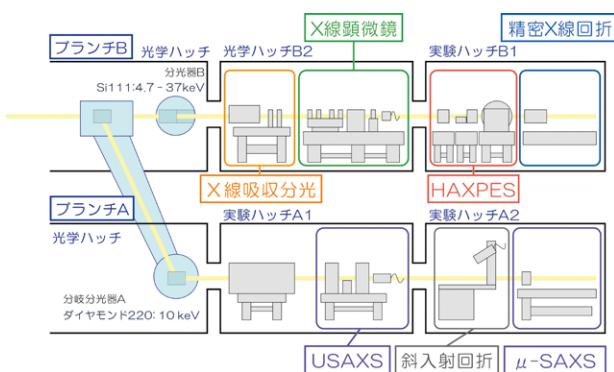


図1 BL24XUの概要

3. 各実験ステーションの現状

3-1 ブランチA

ブランチAは、長オフセットダイヤモンド二結晶分光器のエネルギー変更が困難なため、10 keV 固定にて運用している。

Bonse-Hart型USAXSは、シリコンチャンネルカット結晶を利用したスキャン方式であり、一次元方向のみの測定に限られるが、通常のSAXS光学系では測定が困難な数ミクロンの秩序構造の観察が可能である。現在の測定領域は $q = 0.001 \sim 0.4 \text{ nm}^{-1}$ 、測定時間は約5分である。測定領域を限定することで約90秒間隔の時分割測定を実現

しており、試料の経時変化の追跡も可能である。試料中の凝集体構造や階層構造試料のミクロンオーダーの秩序構造評価に利用されている。

μ -SAXSでは、屈折レンズを利用した集光光学系を採用しており、試料位置にてビームサイズ5～6 μm 角、フォトン数4～5 $\times 10^9$ photons/sのマイクロビームを利用した局所構造評価が可能である。2016年度からは、集光距離の短い屈折レンズに変更することで、新たに2.5～3 μm 角のマイクロビームも選択可能となった。また、小型ズーム顕微鏡を導入し、モニター上で試料へのビーム照射位置を簡便かつ迅速に調整可能となった。SAXSカメラ長は現在0.5～1.1 mを利用でき、WAXSとの同時測定も可能である。カメラ長は、小角分解能向上を目的として、2017年度に1.8 mまでの伸長を計画している。毛髪、カーボンファイバー等の細繊維、電線材料、電池材料、自動車材料の局所構造分析で利用されている。

斜入射X線回折では、試料の表面・界面の結晶構造評価を行っている。回折計に加熱炉を搭載することで半導体試料等の反応過程の観察も可能である。

3-2 ブランチB

ブランチBは、直接水冷型水平分散シリコン二結晶分光器を備えており、基本波で8 keV以上の単色光を利用可能である。ブランチA運用時の利用エネルギーは、基本波10 keVとその半整数次を含む高調波に制限される。

(1) X線顕微鏡ステーション

X線集光ビームやX線イメージング光学系を利用した、サブミクロン～ミクロンの空間分解能と高い時間分解能を有する測定を展開している。また、産業界から需要の大きい数十～数nm分解能での非侵襲観察実現に向けて、2016年度からコヒーレントX線回折イメージング法の開発に着手した^[1] (§4-1)。

集光ビームはゾンプレートにより形成し、広角回折、蛍光X線の点分析、実空間マッピング測定が可能である。ビームサイズや強度、発散角は測定目的に応じてオーダーメイドで最適化可能であり、10 keVや15 keVで0.2～2 μm 程度、 $\sim 10^9$ photons/sのビームが、工業・エネルギー材料、機能性繊維の局所構造分析に利用される。

イメージングでは、投影CTやラミノグラフィ（視野1.3 mm、空間分解能0.65 $\mu\text{m}/\text{pixel}$ ）、ゾンプレート結像光学系による顕微CT（視野200 μm 程度、空間分解能75 nm/pixel）を整備している。数秒の時間分解能での高速投影CT測定も可能である。2016年度にはX線画像検出器を高度化し、像品質の改善を達成した。検出器は間接型を採用しており、投影CTではリレー光学

系に高倍率の光学顕微鏡ユニットを用いているため、画像周辺部の歪曲収差が生じていた。そこで、光学顕微鏡ユニットを結像面のイメージサークルが25 mm ϕ と十分大きいものに変更した。一方、結像CTではシンチレータにX線-可視光変換効率の高い $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S:Tb}$ (P43)を用いていたが、粉状材料であるP43は粒状の感度ムラを生じ、特に低コントラスト試料の測定において試料領域の視認が極めて困難であった。今回、透明単結晶である CsI:Tb を導入することで、ほぼ感度ムラの無い均質な画像が得られ、視認性を大幅に改善した。感度も従来のP43と比べて7 keVで114%、8 keVで80%と高い値を実現した。

(2) 精密回折・トポグラフィステーション

主に半導体結晶の微小領域高感度歪み計測を目的に、微小領域回折実験を行っている。評価ビームは、(+、-、-)配置の2つのチャンネルカット結晶とベントシリンドリカルミラーを組み合わせて形成している。ユーザーは、光学系1（ビームサイズ0.8 $\mu\text{m} \times 1.7 \mu\text{m}$ 、発散角25 μrad ）、光学系2（0.4 $\mu\text{m} \times 1.0 \mu\text{m}$ 、発散角50 μrad ）、光学系3（35 $\mu\text{m} \times 35 \mu\text{m}$ 、発散角3.5 μrad ）から選択して実験できる。焦点には $\theta - 2\theta$ 回折計が設置され、ロッキングカーブ測定や逆格子空間マッピングが可能である。

また、多波回折条件下での前方透過ビームを用いたX線トポグラフィ法（明視野トポグラフィ法）を整備した^[2] (§4-2)。検出器にCMOSカメラを用いるため、現像の必要がなく、高位置分解能のX線トポグラフィ像が取得できる。多波回折条件近傍では、回折ベクトルを容易に変更できるため、速やかなバーガスベクトルの決定が可能である。

(3) X線吸収分光ステーション

XAFSステーションでは、1～2 μm サイズに整形したX線ビームを利用し、微小領域の構造評価法を提供している。主には、第一遷移金属の化学状態を調べる目的である。応用分野はリチウムイオン二次電池、固体燃料電池、陶磁器釉薬の構造評価である。いずれも第一遷移金属を中心とした酸素の配位構造を探りたいとするニーズによる。PILATUS 100Kを利用した二次元粉末X線回折機能も搭載しており、同一ステーション上で局所構造及び結晶構造の両評価が可能である。

(4) HAXPESステーション

産業利用の新たな活動として、マツダ株式会社と当大学は次世代自動車材料の開発を目的とした共同研究を開始した。排ガス浄化用触媒や軽量化向けのカーボン・樹脂複合材料等を研究テーマとし、共同研究専用として雰囲気制御型硬X線光電子分光装置(NAP-HAXPES)を整備した。気

相雰囲気、高温加熱条件における反応過程のその場観察技術や、複合材料の界面における電子状態の評価技術等を確立し、高機能材料のモデルベース開発を目指した材料研究を進める。2016年度夏期停止期間に実験ハッチB1の拡張工事を実施し、チャンネルカット分光素子およびK-Bミラー、NAP-HAXPES装置を整備して2016年秋にコミッショニング行った^[3]。2017年度より本格的な装置利用研究を開始する。

4. 新規測定法の開発整備

μ -SAXSの需要にも表れているように、電子顕微鏡では難しい材料内部の数十～数nmサイズの階層構造や孔構造の可視化に高いニーズがある。また、パワーデバイス等に応用される次世代半導体材料は開発途上であり、高密度の転位を大面積で可視化し、迅速にバーガースペクトルを決定する手法が希求されている。これら産業界のより高度なニーズに応えるべく、大気環境下コヒーレントX線回折

イメージング法^[1]及び明視野トポグラフィ法^[2]の開発整備を行った。

4-1 大気環境下コヒーレントX線回折イメージング法の開発

コヒーレントX線回折イメージング(CXDI)法は、アンジュレーター光の空間コヒーレンスを活用したレンズレスイメージング法である。ミクロンサイズ程度の非晶質試料に空間コヒーレンスの高いX線を照射してコヒーレント回折パターンを取得し、これに位相回復アルゴリズムを適用して試料投影電子密度像を再生する。像形成にレンズを用いないため、X線結像素子の加工技術に制限されない高い空間分解能で、試料内部を非侵襲観察できる。

BL24XUでの構成を図3に示す。微弱な回折パターンを高精度に観測するために、多くの場合試料は真空中に置かれるが、BL24XUでは比較的高エネルギーの8 keVのX線を利用し、試料前後に窒化シリコン製の真空隔壁を置くことで大気中での測定を可能とした。ピンホール-スリット

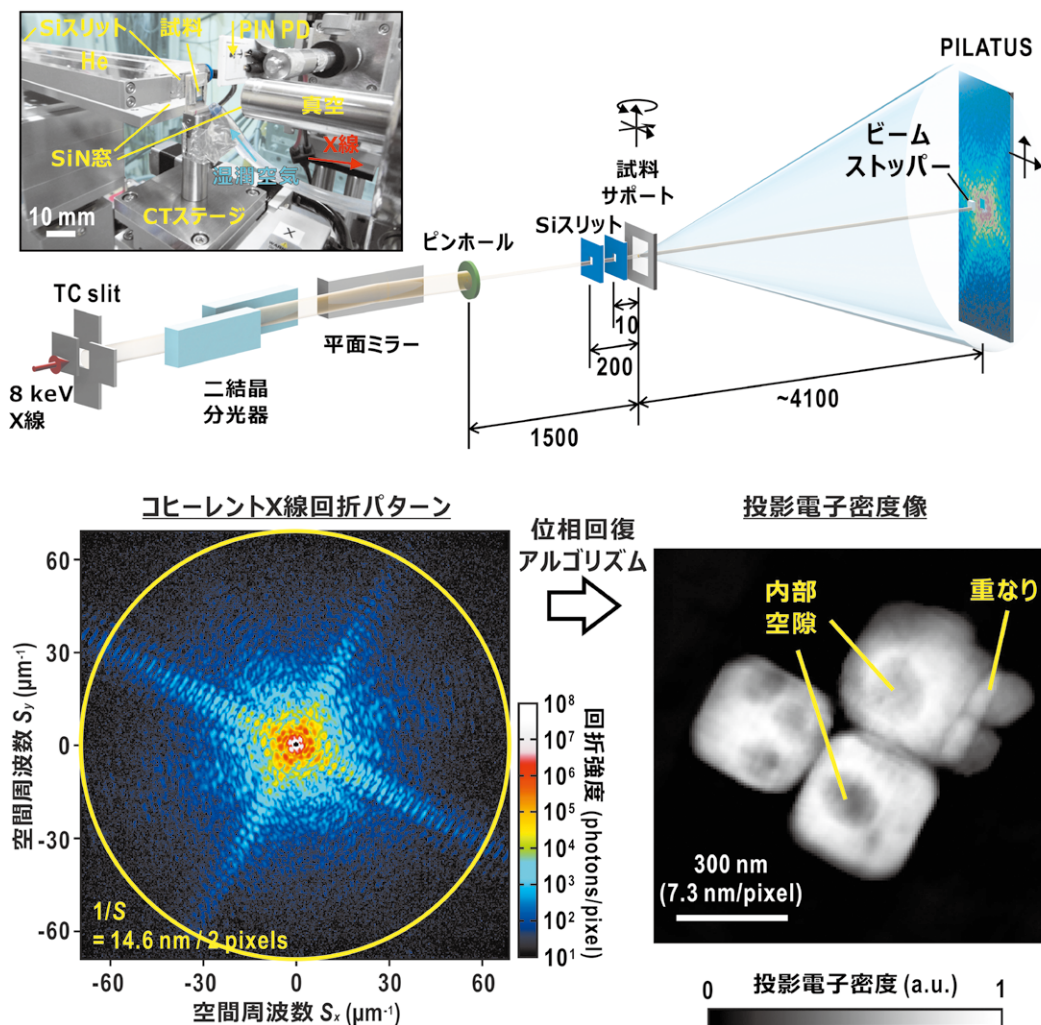


図3 BL24XUに構築した大気環境下CXDI

光学系により約 1×10^{10} photons/16 μm ϕ (FWHM)/s の X線を照射し、試料下流約 4.1 m の位置の PILATUS により空間周波数 $66 \mu\text{m}^{-1}$ (空間分解能 15 nm) までの回折パターンを取得できる。

図3は金コロイド集合体の測定例である。大気中での測定でも鮮明度の高いコヒーレント回折パターンを検出器の端まで観測できた。再生された投影像の空間分解能は 29 nm と見積もられ、電子顕微鏡では観察できない大きさ 100 nm 程の内部空隙や粒子の重なりを明瞭に可視化できた。現状の適用試料はミクロンサイズの孤立粒子に限られるが、2017年度からゾーンプレート集光光学系を利用した走査型CXDI (タイコグラフィ法) の開発に取り組み、非孤立試料の観察へと拡張予定である。

4-2 明視野トポグラフィの Si ウェーハへの適用

一般にシリコン中に存在するミスフィット転位のバーガースベクトル (**b**) は、 $a/2\langle 110 \rangle$ であることが知られている。このバーガースベクトルの決定は、 $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$ だけでなく、 $\mathbf{g} \cdot [\mathbf{b} \times \mathbf{n}] = 0$ ($\mathbf{n}$ は転位線の方向) を満たす回折ベクトル $\mathbf{g}$ で、コントラストが消失することから求められる。シリコンの場合、 $\{111\}$ 面からの回折像だけでなく $\{224\}$ 面からの回折像を取得する必要がある。これらの回折ベクトルを迅速に変更する多波回折としては、図4(a)に示す組み合わせの6波回折が便利である。6波回折の状態からわずか0.1度程度結晶を所定方向に回転すれば、6波回折から希望の2波回折の状態に調整できる。結晶の回転角が0.1度程度なので、回折ベクトルを変更しても透過像はほとんど変化無く、単純にコントラストの消失だけに注意すればよい。

図4(b)、(c) はそれぞれ、 $22\bar{4}$ と $2\bar{2}4$ のトポグラフ像である。図4(c) では、右下降方向の転位線のコントラストが消失しており、この転位線のバーガースベクトル **b** は $a/2[110]$ と決定できた。

結晶中に存在するバーガースベクトルは、結晶系により大きく異なり、今後 GaN や SiC など六方晶系へ応用していく予定である。

5. 今後の計画

今後も産業界ユーザーのニーズを捉え、ユーザーと一体となって利用成果創出とそれに向けた高度化整備を図っていく。材料開発技術の革新に伴い、より微量な成分や微細な構造要素が分析ターゲットとなっており、信号計数率やビームクオリティの向上が必須となる。これを受け、2017年度にプランチ B への液体窒素冷却型二結晶分光器の導入と輸送部光学系配置の変更、大面積光子計数型検出器の導入等を計画している。現状の直接水冷方式では、8の字アンジュレーター光であっても余剰熱負荷による第一分光結晶の湾曲が生じていることが、2015～2016年度のビーム評価により示唆されている^[4]。高度化した BL24XU と BL08B2 の相補利用体制を強化し、放射光を軸とした新たな産業利用体制の構築を進めていく。

参考文献

- [1] Takayama et al., submitted.
- [2] Tsusaka et al.: *Rev. Sci. Instrum.* **87**, (2016) 023701.
- [3] 横山ら: SPring-8利用者情報22, (2017) 30-35.
- [4] Kagoshima et al., *Rev. Sci. Instrum.* **88**, (2017) 086110.

兵庫県立大学

¹物質理学研究科、

²産学連携・研究推進機構放射光ナノテクセンター

高山 裕貴^{1,2}、津坂 佳幸^{1,2}、竈島 靖^{1,2}

漆原 良昌²、桑本 滋生²、野瀬 惣市²

首藤 大器²、竹内 和基²

横山 和司²、松井 純爾²

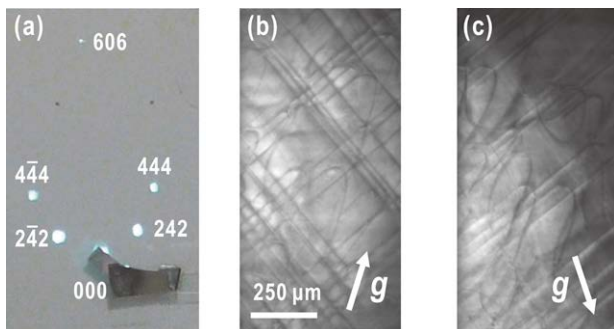


図4 明視野トポグラフィ法

BL12XU NSRRC ID

BL12XU is one of the two contact beamlines operated by National Synchrotron Radiation Research Center (NSRRC, Taiwan). BL12XU has an undulator source and two branches of the mainline and a sideline (see Fig.1). The mainline has been fully operational since 2001 and used by many domestic / international scientists. Inelastic x-ray scattering (IXS) experiments are mainly performed in BL12XU, and also several other experiments, such as high resolution x-ray optics experiment and micro-imaging, are carried out. In the side line, hard x-ray photoemission spectroscopy (HAXPES) is intensively performed. The sideline is partly opened for users. Some adjustments and commissioning are still made by Max-Planck Institute, Dresden.

having small offsets in Bragg angles, and thus the reflections from 15 analyzers are detected at the same time. The detector is working well and many of the experiments are made using this detector.

• High-pressure, high-temperature furnace for supercritical water :

We are challenging to derive attosecond (10^{-18} s) time-resolution response function of supercritical water by IXS. For this goal, we need to collect IXS spectra over a wide range in energy and momentum transfer. We have made a furnace and a sample cell, on which IXS experiments are performed in a wide scattering angle, from 2 to 150 degrees (see Fig. 3). Using an aluminum cell, we achieved 210 C and 5 MPa this year. With further modifications on the sample cells, we will try to increase the

Instrumentation:

We made the following upgrading in 2016.

• 5 × 32-ch strip Si detector :

We are developing a Si strip detector, consisting of 5 sensors having 32 strips of 125 μm wide. The detector are developed for (i) high-resolution (~ 25 meV) non-resonant IXS experiments using five analyzers of diced spherical crystals and (ii) low-resolution (~ 1.4 eV) experiments using 15 analyzers of bent spherical crystals. For the former, the foci of x-rays on the detector are divided into several lines, allowing us to perform a high resolution experiment with 5 sensors simultaneously (see Fig. 2). In the latter, each sensor collects photons from three analyzers

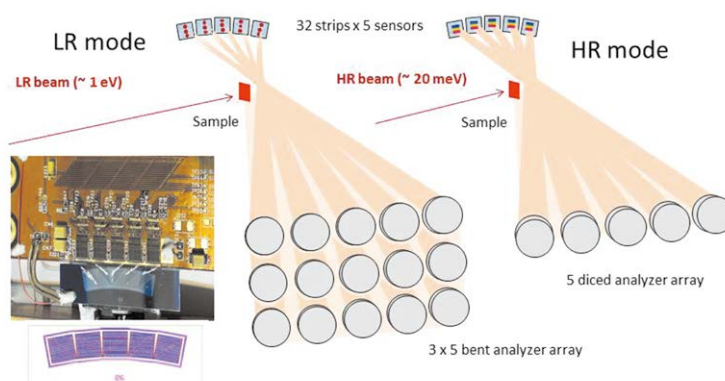


Fig.2 Schematic diagram of IXS experiments with 5 x 32 channel strip detector. Low resolution (LR, $dE \sim 1$ eV) beam irradiates a sample and scattered x-rays are collected by 15 bent analyzers in LR mode while high-resolution (HR, ~ 20 meV) beam and 5 diced analyzers ($dE \sim 15$ meV) are utilized in HR mode. Highest resolution we achieved so far is 25 meV (overall). (channel cut) monochromator, PRP a phase retarding plate, FM a focusing mirror, and IXS an inelastic x-ray scattering spectrometer.

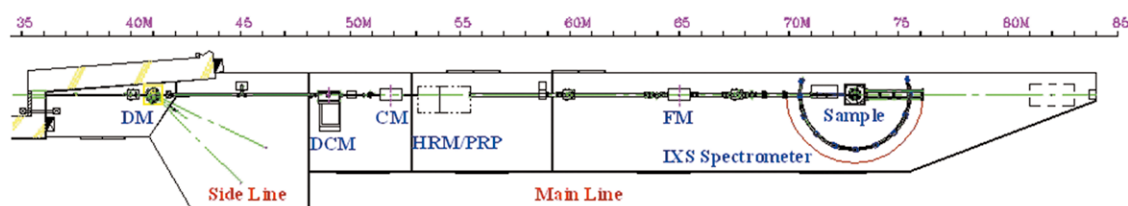


Fig.1 Schematic diagram (top view) of the BL12XU: DM is a diamond monochromator for the sideline, DCM a double crystal monochromator for the mainline, CM a collimating mirror, HRM a high resolution (channel cut) monochromator, PRP a phase retarding plate, FM a focusing mirror, and IXS an inelastic x-ray scattering spectrometer.

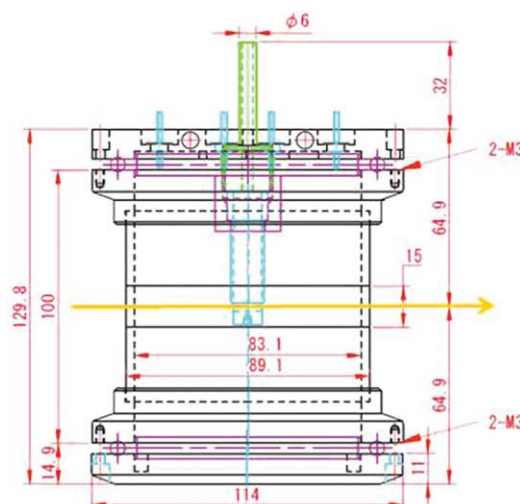
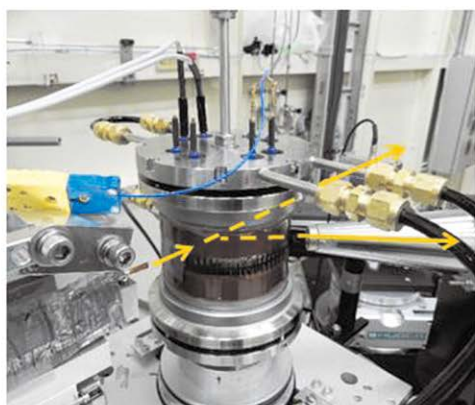


Fig.3 Photo and drawing of high-pressure, high-temperature (< 22 MPa, 370 C) furnace to produce supercritical water. Inner cell seals HP-HT waters. Wide opening is made to cover a wide momentum range.

temperature and the pressure up to 370 C and 22 MPa, at which supercritical water is available.

Experiments:

In 2016, we had 8 experiments of non-resonant IXS, 2 of x-ray emission, 13 of resonant IXS (or resonant emission), 2 of high-resolution x-ray optics, 3 of micro-imaging, and 7 of HAXPES. Interesting examples are introduced below.

• Suppression of X-ray-induced dissociation of H₂O molecules in under pressure:

Fukui et al. investigated molecular dissociation induced by 10 keV x-ray irradiation in dense ice at pressures up to 40 GPa at 300 K. The dissociation yield estimated from the oxygen K-edge x-ray Raman spectra, showed that the molecular dissociation was enhanced up to 14 GPa and gradually suppressed on further compression to 40 GPa (see Fig. 4). The molecular dissociation was detected for a rather narrow pressure span of 2–40 GPa [Fukui et al, Sci. Reports 6:26641 (2016)]

• 1s3p Resonant Inelastic X-ray Scattering of Cobalt Oxides and Sulfides:

In order to establish detailed reference materials for cobalt-based systems, Samarai et al. applied 1s x-ray absorption spectroscopy (XAS) and 1s3p RIXS to cobalt oxides (CoO, Co₃O₄) and sulfides (CoS and CoS₂). The Co³⁺ ions in Co₃O₄ contained a large nonlocal peak intensity in the pre-edge and that the resonant 3p final state of Co₃O₄ was dominated by

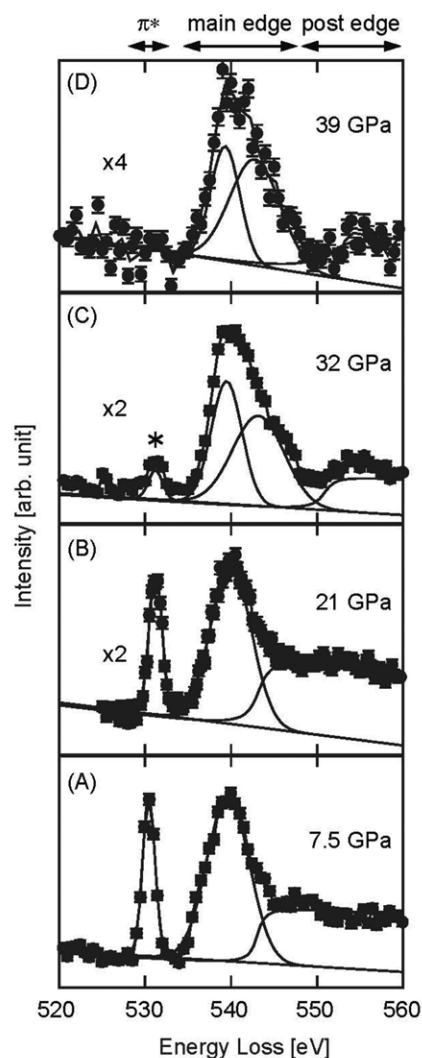


Fig.3 XS spectra on H₂O at high-pressures. As pressure increases, a peak at 530 eV substantially becomes weaker compared to the main peak, representing 2H₂O → 2H₂ + O₂ dissociation suppressed [Sci. Reports 6:26641 (2016)].

the two exchange-split peaks of the tetrahedral Co^{2+} site. In contrast, the 3p final state of CoS and CoS_2 showed a single asymmetric peak due to the large screening of the 3p-3d exchange interaction. [M.Al Samarai et al, J. Phys. Chem. 120, 24063 (2016)]

• **Transparent Conducting Oxide Induced by Liquid Electrolyte Gating :**

Optically transparent conducting materials are essential in modern technology. Recently, it has been shown that ionic liquid gating can induce a reversible, nonvolatile metallic phase in initially insulating films of WO_3 . ViolBarbosa et al. have used hard x-ray photoelectron spectroscopy and spectroscopic ellipsometry to show that the metallic phase produced by the electrolyte gating does not result from a significant change in the bandgap but rather originates from new in-gap states. These states produce strong absorption below ~ 1 eV, outside the visible spectrum, consistent with the formation of a narrow electronic conduction band. [C. ViolBarbosa et al, Proc. Natl. Acad. Sci. 113, 11148 (2016)]

N. Hiraoka, H. Ishii, Y.-F. Liao, M. Yoshimura, T. Tatsumi,
K.-D. Tsuei
NSRRC, Taiwan

BL12B2 NSRRC BM

BL12B2 is one of the two contact beamlines based on the collaborative Memorandum of Understanding between National Synchrotron Radiation Research Center (NSRRC, Taiwan), Japan Synchrotron Radiation Research Institute (JASRI), and RIKEN SPring-8 Center (RSC) since 1998. The user support and end station maintenance of the beamlines have been provided by NSRRC. BL12B2 has been maintained to serve for material science and protein crystallography users since 2000.

The current schematic layout of the beamline is presented in Figure 1. The beamline is equipped with collimating mirror (CM), double crystal monochromator (DCM), and focusing mirror (FM). The measured spot size and total flux of the beam is about $250\mu\text{m}$ square and about 1.5×10^{11} photons respectively at the protein end station at incident photon energy of 12keV. Four end stations, EXAFS, X-ray diffraction, X-ray scattering, and protein crystallography (PX) end stations, are equipped tandemly inside the experimental hutch of BL12B2.

The EXAFS experiment is measured using two ion chambers at EXAFS table located at most upper stream of the BL12B2 experiment hutch. The users can carry out experiment by placing their sample in between these two ion chambers. Powder x-ray diffraction is measured using image plate at XRD table located next to the EXAFS table. X-ray scattering experiment can be carried out using HUBER six circle diffractometer. The sample environment of these two experiments can be changed from 20-400 K. High pressure x-ray diffraction can be carried out using CCD camera at protein crystallography table. Protein crystallography (PX) endstation which is equipped with CCD and SPring-8 standard auto sample changer system has been installed since 2009. The user interface software of PX is SPring-8 standard BSS. Remote

access capability of this PX system has been tested and operated from 2011. The CCD detector has been upgraded from Quantum 210r to Raynox MX225-HE in 2014. The fast read out and wide detection area of the new detector will help user to collect high quality data. In 2016 we prepared electrode(AUTOLAB PGSTAT204(Metrohm)) for in-situ electrochemical experiment which is planning to carry out on 2017.

EXAFS, X-ray diffraction, X-ray scattering end stations are serving for material science users. The material science experiments are covering wide area of topics, such as environmental science, nano science, geophysical science, etc. In 2016, BL12B2 users have published twelve papers in SCI journals. The material science and protein crystallography users have published ten and two papers, respectively. Figure 2 and 3 show the selected result from material science users. Figure 2 shows XANES spectrum of $\text{Ti}_{0.9}\text{Mo}_{0.1}\text{O}_y$ and $\text{Ti}_{0.8}\text{Mo}_{0.2}\text{O}_y$ sample from Prof. B.-J. Hwang(NTUST). They have studied molybdenum doped anatase TiO_2 as a Pt catalyst support which is important for polymer electrolyte membrane fuel cell(PEMFCs)[P1]. Figure 3 shows high pressure x-ray diffraction spectrum of iron based superconductors. They found new insight for possible superconducting origin of $\text{K}_x\text{Fe}_{2-y}\text{Se}_2$ system[P10].

Until 2015 the beamtime had been shared between material science and protein crystallography users as equal amount. Due to completion of 3 GeV Taiwan Photon Source(TPS) at NSRRC, we reconsidered our beamtime distribution from 2016. The most of the beamtime is allocated for material science users. The major users of the B2 beamline in 2016 were from Taiwan. There were also international users from Japan and other places of the world. Users support had been provided by three local beamline scientists and one engineer.

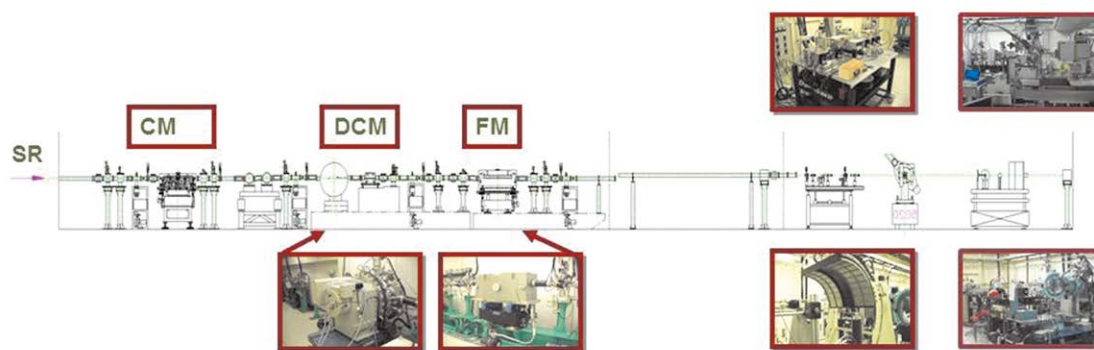


Fig.1 Schematic layout of BL12B2

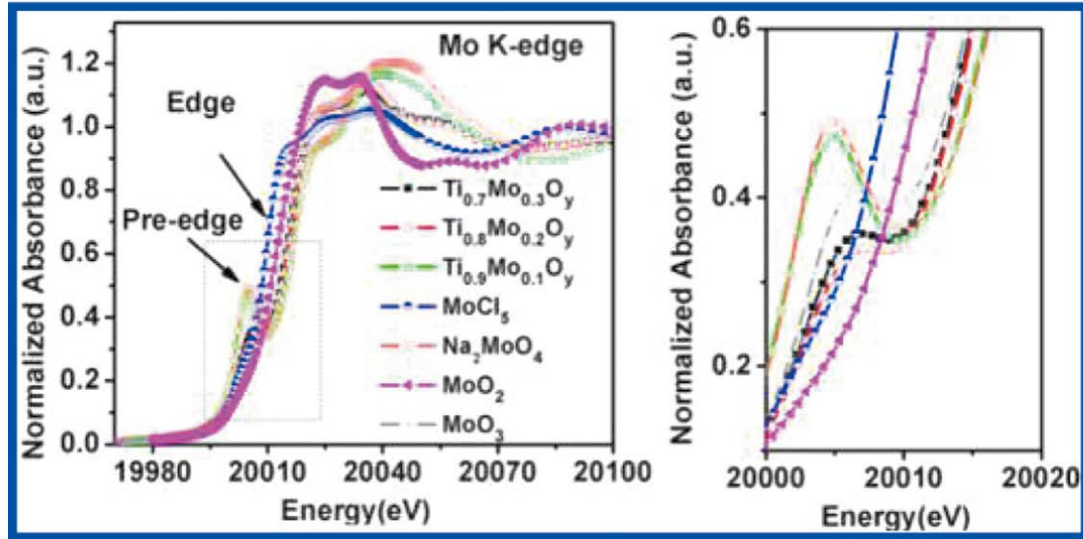


Fig.2 XANES measurements of $\text{Ti}_{0.9}\text{Mo}_{0.1}\text{O}_y$ and $\text{Ti}_{0.8}\text{Mo}_{0.2}\text{O}_y$ sample with Na_2MoO_4 , MoO_2 , MoO_3 and MoCl_3 references.[P1]

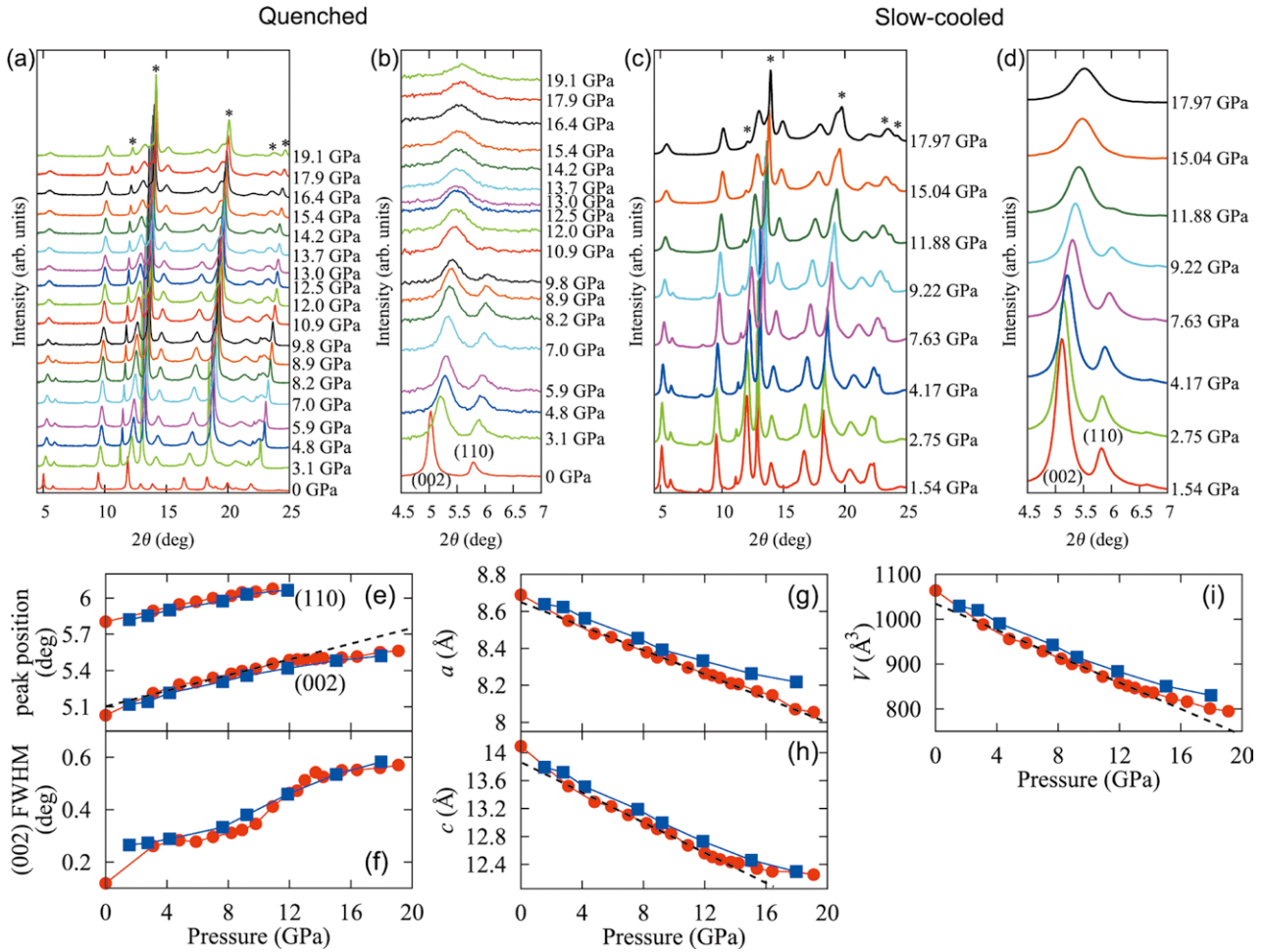


Fig.3 XRD pattern of $\text{K}_x\text{Fe}_{2-y}\text{Se}_2$ single crystals (a) the quenched sample and (c) the slow-cooled sample. (b,d) Enlarged views of (a,c), respectively. Asterisk mark means reflection of NaCl used as the pressure medium of the diamond anvil cell. In the both quenched and slow-cooled samples, the (110) superstructure reflection disappear around 12 GPa. (e–i) Pressure evolution of the peak properties and the structure parameters of the quenched (red circle) and slow-cooled (blue square) samples. (e) Peak position of (002) and (110). (f) Full width at half maximum of the (002) peak. (g) Lattice constant along the a-axis. (h) Lattice constant along the c-axis. (i) Volume. Linear dashed-lines are guides for the eye.[P10]

Publications

Material Science

- [P 1] M.-C. Tsai, T.-T. Nguyen, N. G. Akalework, C.-J. Pan, J. Rick, Y.-F. Liao, W.-N. Su, and B.-J. Hwang
“Interplay between Molybdenum Dopant and Oxygen Vacancies in a TiO_2 Support Enhances the Oxygen Reduction Reaction” *ACS Catalysis* **6**, (2016) 6551.
- [P 2] H. Li, Y. Liu, Y. Chen, S. Wang, M. Wang, T. Xie, and G. Wang
“Biochar Amendment Immobilizes Lead in Rice Paddy Soils and Reduces Its Phytoavailability” *Sci. Rep.-UK* **6**, (2016) 31616.
- [P 3] T.-Y. Chen, P.-C. Huang, Y.-F. Liao, Y.-T. Liu, T.-K. Yeh, and T.-L. Lin
“Shell Thickness Effects on Reconfiguration of $\text{NiO}_{\text{core}}\text{-Pt}_{\text{shell}}$ Anodic Catalysts in a High Current Density Direct Methanol Fuel Cell” *RSC Adv.* **6**, (2016) 72607.
- [P 4] C.-M. Lin, H.-T. Liu, S.-Y. Zhong, C.-H. Hsu, Y.-T. Chiu, M.-F. Tai, J.-Y. Juang, Y.-C. Chuang, and Y.-F. Liao
“Structural Transitions in Nanosized $\text{Zn}_{0.97}\text{Al}_{0.03}\text{O}$ Powders under High Pressure Analyzed by in Situ Angle-dispersive X-ray Diffraction” *Materials* **9**, (2016) 561.
- [P 5] X. Miao, S. Nishiyama, L. Zheng, H. Goto, R. Eguchi, H. Ota, T. Kambe, K. Terashima, T. Yokoya, H. T. L. Nguyen, T. Kagayama, N. Hirao, Y. Ohishi, H. Ishii, Y.-F. Liao, and Y. Kubozono
“Emergence of Superconductivity in $(\text{NH}_3)_y\text{M}_x\text{MoSe}_2$ (M: Li, Na and K)” *Sci. Rep.-UK* **6**, (2016) 29292.
- [P 6] T.-Y. Chen, Y.-T. Liu, P.-C. Wu, C.-W. Hu, P.-W. Yang, L.-C. Hsu, C.-H. Lee, and C.-C. Chang
“Lithiation-induced Crystal Restructuring of Hydrothermally Prepared Sn/TiO_2 Nanocrystallite with Substantially Enhanced Capacity and Cycling Performance for Lithium-ion Battery” *RSC Adv.* **6**, (2016) 48620.
- [P 7] W.-C. Liu, Y.-Z. Zheng, Y.-C. Chih, Y.-C. Lai, Y.-W. Tsai, Y.-Z. Zheng, C.-H. Du, F.-C. Chou, Y.-L. Soo, and S.-L. Chang
“X-ray Multi-beam Resonant Diffraction Analysis of Crystal Symmetry for Layered Perovskite YBaCuFeO_5 ” *J. Appl. Crystallogr.* **49**, (2016) 1721.
- [P 8] K.-L. Lin, C.-M. Lin, Y.-S. Lin, S.-R. Jian, Y.-F. Liao, Y.-C. Chuang, C.-S. Wang, and J.-Y. Juang
“Structural Properties of Pressure-induced Structural Phase Transition of Si-doped GaAs by Angular-dispersive X-ray Diffraction” *Appl. Phys. A-Mater.* **122**, (2016) 117.
- [P 9] T.-Y. Chen, S.-T. Chang, C. W. Hu, Y.-F. Liao, Y. J. Sue, Y.-Y. Hsu, K.-W. Wang, and Y.-T. Liu
“Self-aligned Synthesis of a $\text{NiPt-alloy}_{\text{core}}\text{@Pt}_{\text{shell}}$ Nanocrystal with Contrivable Heterojunction Structure and Oxygen Reduction Activity” *CrystEngComm* **18**, (2016) 5860.
- [P10] Yoshiya Yamamoto, Hitoshi Yamaoka, Masashi Tanaka, Hiroyuki Okazaki, Toshinori Ozaki, Yoshihiko Takano, Jung-Fu Lin, Hidenori Fujita, Tomoko Kagayama, Katsuya Shimizu, Nozomu Hiraoka, Hirofumi Ishii, Yen-Fa Liao, Ku-Ding Tsuei & Jun’ichiro Mizuki
“Origin of Pressure-induced Superconducting Phase in $\text{K}_x\text{Fe}_{2-y}\text{Se}_2$ studied by Synchrotron X-ray Diffraction and Spectroscopy” *Scientific Reports* **6**, (2016) 30946.

Protein X-ray Crystallography

- [P11] H.-H. Chiu, Y.-C. Hsieh, Y.-H. Chen, H.-Y. Wang, C.-Y. Lu, C.-J. Chen, and Y.-K. Li
“Three Important Amino Acids Control the Regioselectivity of Flavonoid Glucosidation in Glycosyltransferase-I from *Bacillus Cereus*” *Appl. Microbiol. Biotechnol.* **100**, (2016) 8411.
- [P12] C.-H. Tu, W.-H. Lin, Y.-H. Peng, T. Hsu, J.-S. Wu, C.-Y. Chang, C.-T. Lu, P.-C. Lyu, C. Shih, W.-T. Jiaang, and S.-Y. Wu
“Pyrazolylamine Derivatives Reveal the Conformational Switching between Type I and Type II Binding Modes of Anaplastic Lymphoma Kinase (ALK)” *J. Med. Chem.* **59**, (2016) 3906.

Y.-F. Liao, M. Yoshimura, T. Tatsumi, C.-J. Chen and
H. Ishii
NSRRC, Taiwan

BL15XU 広エネルギー帯域先端材料解析

1. 概要

本ビームラインは国立研究開発法人物質・材料研究機構（NIMS）の専用ビームラインであり、機構における新規機能性物質・材料の開発を支援するため、1) 硬X線光電子分光法による20 nmにも及ぶ深層の電子構造解析、2) 半導体1次元X線検出器を使った高分解能X線粉末構造解析、3) 8軸X線回折装置を利用した機能性薄膜の構造解析により、高輝度放射光を用いた原子構造並びに電子構造の解析を通じた研究開発を推進している。2016年度も滞りなくSPring-8を利用した研究開発を進め、関連する研究課題の共同研究を推進してきた。ビームタイムの利用および実験装置の整備の一環として、2015年に引き続きナノ粒子、アモルファス材料の短・中距離構造解析が行えるX線全散乱測定によるX線PDF（Pair Distribution Function、2体相関分布関数）解析基盤の整備を行った。

2. ビームタイムの利用状況

2016年度の採択課題数は64件であった。実施課題数は、NIMS内部が27件、NIMS外部が共同研究を含めて37件となり、2015年度に比べるとNIMS外部からの課題が28件から37件と増加した。利用シフト数をプロジェクト別に集計すると、a) NIMS一般課題（33%）、b) 文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム（31%）、c) 東京工業大学元素戦略（19%）、d) ナノ材料科学環境拠点（11%）、e) 共同研究（6%）であり、元素戦略に関連した電子材料を始め、触媒・電池材料、磁性材料、構造材料など出口指向が明確な材料を対象とした課題を実施した。

主たる実験手法はX線回折法（XRD）とX線光電子分光法（XPS）である。XPSの割合は54.3%、薄膜X線回折が25.3%、粉末X線回折法15.8%、残りがX線全散乱法4.6%であった。硬X線光電子分光法とX線全散乱法を含むX線回折法の割合は、2015年度とほぼ同じ割合であった。

実施シフト数を研究の目的や材料別に分類したものが図1である。分野別内訳については2015年度と比べて大きな変化は見られなかった。

なおビームタイムには課題を実施したシフト以外に、XPSとXRDの切り替え時などの調整に要した時間が127.5シフトあり、調整には全ビームタイムの約25%を

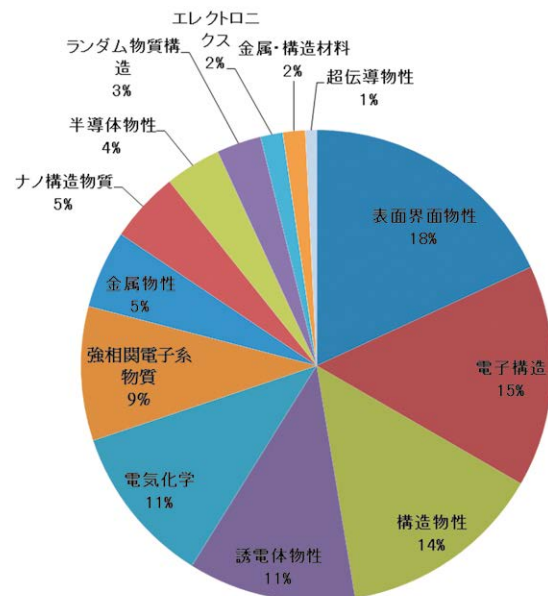


図1 実施内容によるシフト数の割合

利用しているが、その内訳は装置や実験ハッチの切り替えだけでなく、ユーザーの要望する実験装置の調整にも使われた。

2016年度に発行された研究成果は、39報の査読有り論文であった。

3. ビームラインの整備

BL15XUでは高分解能粉末回折計を設置して結晶性の試料の構造解析に活用してきた。しかし近年の物質・材料研究の進展の中で、従来の粉末結晶構造解析では解析が困難な結晶性の低いナノ粒子やアモルファス材料といった物質の原子・ナノスケールの構造解析の需要が増大してきている。このような近年のナノ粒子・アモルファス材料のニーズに対応していくため、2015年からブラッグピークの有無に依存しないX線PDF解析用のX線全散乱測定データ収集の整備を始めた。BL15XUの粉末回折計では機械的な制約から2θ範囲の上限が120°であるため、原子分解能のX線PDF解析において必要な高い散乱ベクトルQ値のデータを得るためには、30 keVといった高エネルギーX線を利用する必要がある。ところがこれまでBL15XUで粉末X線回折実験用に使用していたシリコン半導体検出器Mythen（センサー厚450 μm）では十分な検出効率が得られない。このため、2015年度に高

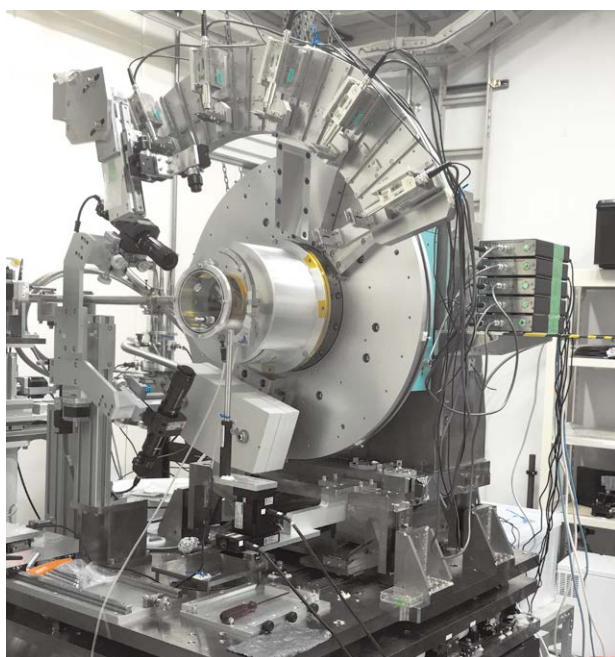


図2 5連装CdTe検出器セットアップ

エネルギー領域で十分な感度を持つCdTe検出器1台を試験的に粉末回折計に搭載してテストを行ったところ、十分なS/Nで広い角度範囲をカバーできることが分かった。この結果に基づき、またX線全散乱測定データ収集のハイスループット化も考慮してCdTe半導体検出器5台を回折計2 θ アームに搭載した測定システムを構築した(図2)。2016年度はデータ収集のための制御ソフトウェアの開発などシステム整備を進めた。

CdTe 検出器にはAmptek 社製XR-100T-CdTeとマルチチャンネルアナライザ(MCA)機能を内蔵したデジタルパルスプロセッサ(Amptek 社製PX5)との組み合わせを採用した。2 θ アーム上に24°または18°間隔で取り付けられた5台のCdTe 検出器は、それぞれ個別のデジタルパルスプロセッサで信号処理が行われる。

CdTe 検出器のエネルギー選別能力を活かしてデータを取得するためには、シングルチャンネルアナライザ(SCA)のエネルギーウィンドウを適切に設定するか、あるいはMCAの出力スペクトルを取得しての散乱X線のエネルギー範囲を切り出す必要がある。PX5デジタルプロセッサに付属のユーザーインターフェースは、ネットワーク経由で各種設定が可能な機能が提供されているものの、MCAの表示画面とSCAの設定機能が連動しておらず、エネルギースペクトルを見ながらSCAの設定を行うことができないなど操作が煩雑で入射エネルギーの変更にCdTe 検出器系を対応させることが容易ではなかった。そこでグラフィカルソフトウェア開発言語LabVIEWを用いてMCA機能とSCA機能の連動を可能にした新た

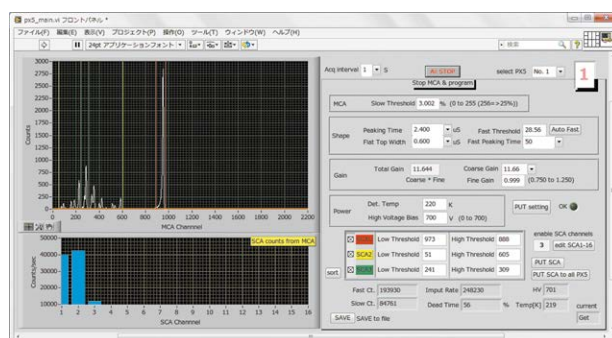


図3 デジタルパルスプロセッサ設定用GUI

なPX5パルスプロセッサ設定用のグラフィカルユーザーインターフェース(GUI)を作成した(図3)。開発したPX5設定用のユーザーインターフェースからは、ネットワーク経由でPX5の各種の設定が可能であるとともに、MCAスペクトル表示画面から、最大16領域のSCAのウィンドウの設定が可能である。

また、これまで粉末X線回折計に利用していた制御ソフトウェアは、キャピラリー試料を交換しながら粉末回折強度データを連続的に自動データ収集するシステムとして構築された物であったため、試料回りの空気からの散乱を低減するためのHeチャンバーの装着を前提していないなどX線全散乱実験に適したものではなかった。そこで新たに全散乱測定専用の制御ソフトウェアを作成した。新たなソフトウェアの開発は、デジタルパルスプロセッサPX5制御用ソフトウェアと同様にLabVIEWを用いた。

微弱なアモルファスからの散乱や結晶のブラッグピークの裾に現れる散漫散乱、あるいはナノ粒子の幅の広いピークを計測するために、装置のバックグラウンドを抑える必要がある。しかし実試料であるナノ粒子のデータにおいて、高角でサンプルからの散乱ではないバックグラウンドの混入と思われる影響が見られた。このためCdTe 検出器の前にある受光スリットを全てダブルスリット化するとともに、サンプルから検出器までに鉛で覆った受光パスを挿入することによりバックグラウンド散乱の侵入を防止する対策を行った。今後は、更なる低バックグラウンド化のために、測定パス上の遮蔽を改良していく予定である。

国立研究開発法人物質・材料研究機構

技術開発・共用部門 高輝度放射光ステーション

勝矢 良雄、坂田 修身

先端材料解析研究拠点 シンクロトロンX線グループ

小原 真司

スプリングエイトサービス(株)

嶋田 恵朋、安田 祐介

BL16XU サンビームID

1. はじめに

BL16XU（サンビームID）は、BL16B2と共に、産業用専用ビームライン建設利用共同体（略称:サンビーム共同体）が建設し、管理運営を行っているビームラインである。サンビーム共同体は12社と1グループの13企業グループが集まり、SPring-8の供用開始1年前の1996年に発足した任意団体で、代表幹事会社を1年任期の各社輪番制とすることで、全ての参画社が当事者意識を有し、その責任を公平に分配することを特徴としている。発足から現在に至るまで複数の社の交代を経験しているものの、20年超の期間に渡って各社の企業活動において直面する技術課題の解決に寄与し続けている。BL16XUはBL16B2と共に、1998年8月に専用ビームライン据付工事着工申請書が承認され、1999年9月より各社の供用利用が開始され^[1-2]、2008年の再契約を挟んで現在に至っている。再契約を契機に2007年度から2008年度にかけて大規模な設備更新・改造を実施し^[3]、また2013年度の間評価を機に、Pilatus検出器、硬X線光電子分光（HAXPES）装置を導入するなど、各社のニーズに合わせた新技術導入および機能向上を図っている。

2. ビームライン・実験装置の概要

BL16XUの基本仕様を表1に、BL16実験ハッチの概略及び内部の機器配置を図1に示す。アンジュレータは施設標準の磁石周期長32 mm より長い40 mmの周期長を有する真空封止型水平直線偏光X線アンジュレータを、またモノクロメータには液体窒素循環間接冷却方式のSi(111)

表1 BL16XUの基本仕様

項 目	事 項
光源	真空封止型直線偏光アンジュレータ 周期長 40 mm / 周期数 112
光子エネルギー	4.5～40 keV
単色器	液体窒素循環間接冷却二結晶 (Si(111))
光子数	～10 ¹² photons/s
ビームサイズ	1.0 mm(H) × 1.0 mm (V)
実験装置	HAXPES装置、8軸回折計、 マイクロビーム形成装置、 蛍光X線分析装置(WDX/EDX) その場計測用ガス設備、加熱ステージ
マイクロビーム形成時	光子数: ～10 ¹⁰ photons/s ビームサイズ: 0.5 mm(H) × 0.5 mm(V) 各マッピング機構 X線回折/蛍光X線分析/XAFS/XMCD

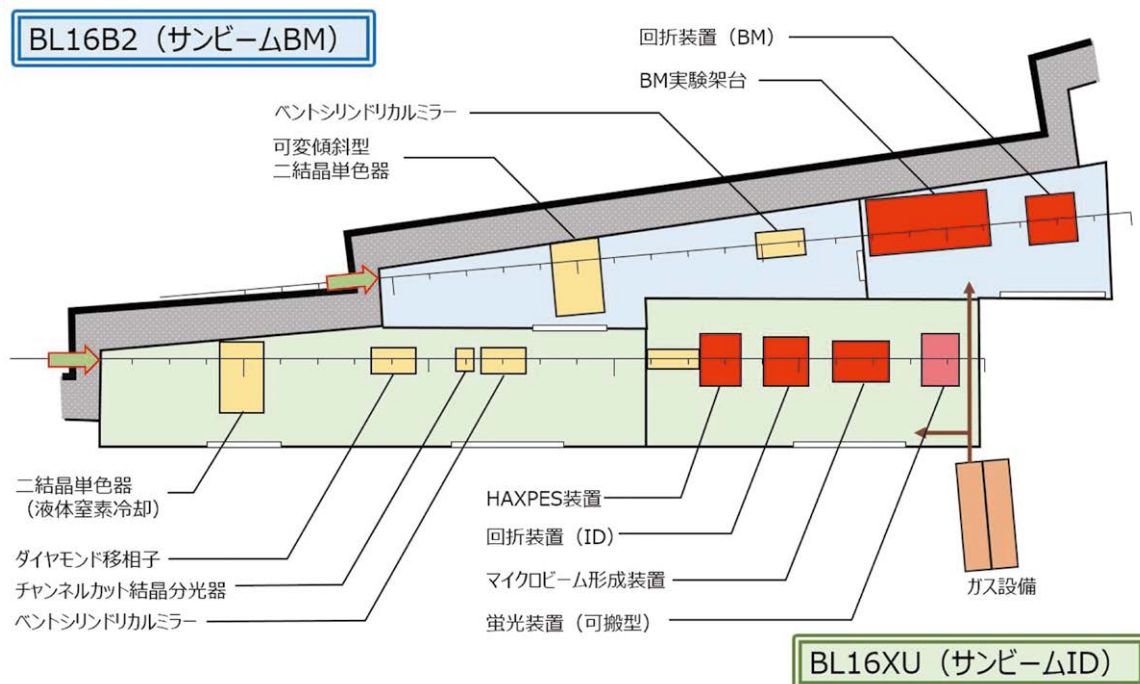


図1 BL16XU およびB2の実験機器配置概略（2017年3月時点）

二結晶単色器を採用している。アンジュレータの仕様は、標準より低いエネルギー範囲の光を求めた創設当初の措置により、モノクロメータの仕様は、より高輝度の光を得るための改造（2007-2008年）による。本モノクロメータとベントシリンドリカルミラーとの組み合わせにより、実験ハッチにはサイズが1 mm角以下の高い位置安定性を持った高フラックスの光が導入されている。光学ハッチには、他にもX線磁気円二色性（XMCD）実験を行うためのダイヤモンド位相子、HAXPES測定のためのチャンネルカット結晶分光器を備えている。実験ハッチ内の設備は、上流からHAXPES装置、8回回折計、マイクロビーム形成装置および可搬式の蛍光X線分析装置を設置している。実験ハッチの最上流にはピンホールチャンバーを設け、HAXPES測定用の縦集光のためのシリンドリカルミラーを設置している。

また、ガス雰囲気下や昇温過程のその場測定を行うための、反応性ガス供給・排気装置や試料加熱装置を備え、X線検出器も高エネルギー回折用途のテルル化カドミウム（CdTe）検出器や、実験効率化に資するピクセル検出器（Pilatus 100K, Mythen 1K）を準備している。

3. 利用状況

BL16XUの第Ⅱ契約期間（2008年度以降）の利用状況について、統計データを示す。ここでの各社利用時間とは、サンビーム参画各社が個別に利用した合計時間を指し、共同利用時間とは参画各社が共同で利用し、ビームラインの実験環境整備や性能維持管理に費やした時間を指す。各社利用時間と共同利用時間の推移を図2に示す。近年、各社利用時間が増加傾向であることがとなっている。一方で、共同利用時間が、2014年度以降ほぼ横ばいとなっており、2012年度以降に導入・立上を実施したHAXPES装置が順調に稼働し、運用できていることが読み取れる。

2015年度から2016年度にかけての各社利用分野の変

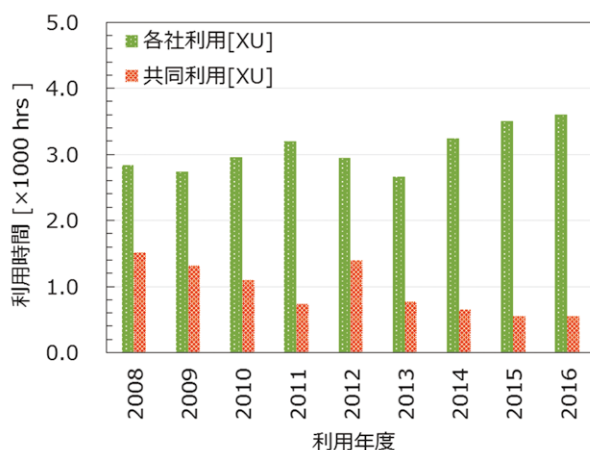


図2 各社利用 / 共同利用時間の推移

遷を図3に示す。サンビーム共同体の放射光利用適用産業分野を大別すると、半導体、電池、素材、触媒・燃料電池及びその他に分類できる。2016年度は2015年度に比べて、電池利用が減退し、素材及び触媒利用が増加している。図4にはサンビームの各社利用技術分野の割合の推移を示す。前節に示したように、サンビームIDにはX線回折装置、蛍光X線分析装置、マイクロビーム形成装置及びHAXPES装置を保有している。2012年度から立上を行ったHAXPES装置は2014年度から供用を開始し、2015A期にかけて利用割合を増加させている。現在ではX線回折とHAXPESがサンビームID利用の大部分を占めており、今後の利用成果を拡大していくには、X線回折の効率化が特に有効と考えられる。

4. サンビーム共同体の成果公開

本項は後述のBL16B2 サンビームBMの活動も含め、『サンビーム共同体』全体の広報活動の概略を示す。

参加企業の各社利用実験に関する成果公開は、原則的に参画各社の責任でなされることとなっている。しかし、輸送機器や電機機器から化学に至る幅広い事業分野にま

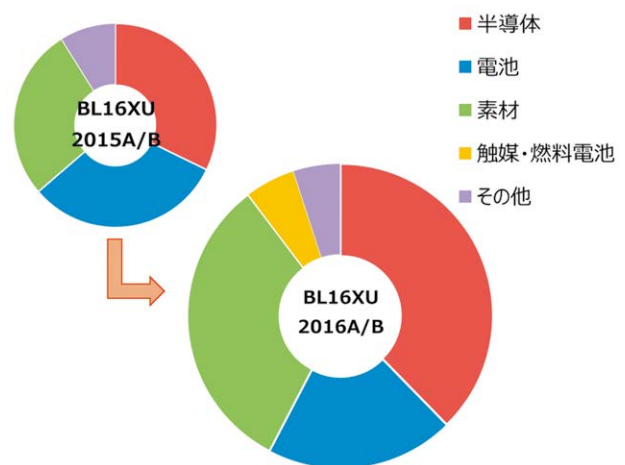


図3 適用産業分野の推移

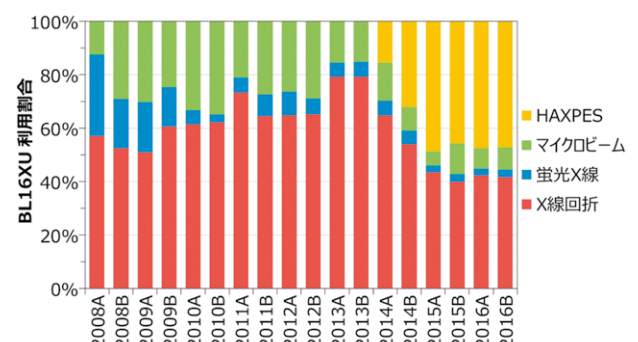


図4 利用技術の利用時間割合の推移

たがるサンビーム共同体が連携してビームライン運営を進めることの相乗効果を示すための広報活動として、SPring-8産業利用報告会に併催する『サンビーム研究発表会』と、2011年から年1巻発刊している『サンビーム年報・成果集』を企画している。

『第1回サンビーム研究発表会』は2001年度に開催するなど、SPring-8産業利用報告会（2004年度から）にも先駆けた広報活動を展開している。2016年度は、第13回SPring-8産業利用報告会が9月7日、9月8日にかけて兵庫県民会館にて開催され、セッションオーガナイザとして参画し、『第16回サンビーム研究発表会』を実施した。口頭発表は、共同作業の内容1件を含む5件の報告を実施し、ガスタービン、電池および電線ケーブルに至る幅広い産業に、放射光利用分析技術が有効であることを示した。ポスター発表は全体93件の約30%にあたる27件を報告しており、この報告数は、参加団体として最大数である。

『サンビーム年報・成果集』は、2010年のSPring-8選定委員会の提言^[4]に沿って、共同体独自の論文形式の成果報告書として企画したもので、2011年度末に第1号を発刊している。内容は、当年度の共同体幹事会社による活動報告、産業貢献度を重視した各社利用成果の論文形式の報告書、先のサンビーム研究発表会の抄録および年度間で創出された広報活動、査読付き論文及び口頭発表等の一覧から構成されており、2012年度にはSPring-8の成果非専有実験課題の成果公開義務を果たす媒体（公開技術報告書）の一つとして、SPring-8成果審査委員会にて認定された。2016年度は、Vol.6を刊行し、27編の利用成果報告を掲載した。年報・成果集は初版300部の発行に加えて、全ての内容をサンビーム共同体のホームページにて公開している^[5]。

5. 研究・技術検討事例

サンビームIDにおける近年の共同検討事例として、サンビーム年報・成果集Vol.5にも報告^[6]したX線異常分散回折測定に関する進捗状況を報告する。

試料物質構成元素の吸収端近傍の異常分散効果を積極的に活用するMAD (Multi-length Anomalous Diffraction) 法やDAFS (Diffraction Anomalous Fine Structure) 法を用いた測定は、物質の相や原子配置のサイト選択性を備えたXAFS (X-ray Absorption Fine Structure) に繋がることから、蓄電池、半導体および磁石等への応用が検討されている。図5に、既報のサンビームIDで計測したDAFS測定結果と転換電子収量 (TEY) -XAFS測定結果の比較データを示す。評価試料はシリコン (Si) 基板上白金 (Pt) 配向膜である。得られたEXAFS振動構造が、測定手法に依らず、概ね一致していることから、入射光学系のエネルギー制御と連動させた回折計制御システムが構築できている

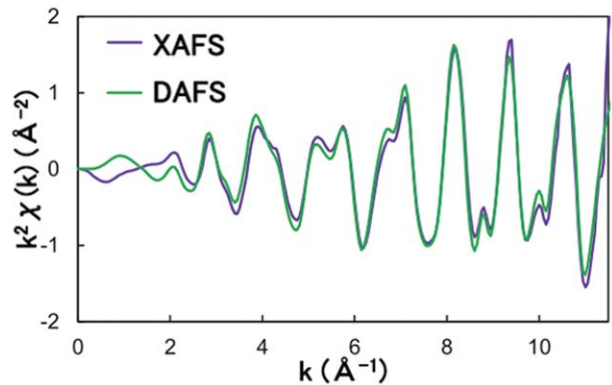
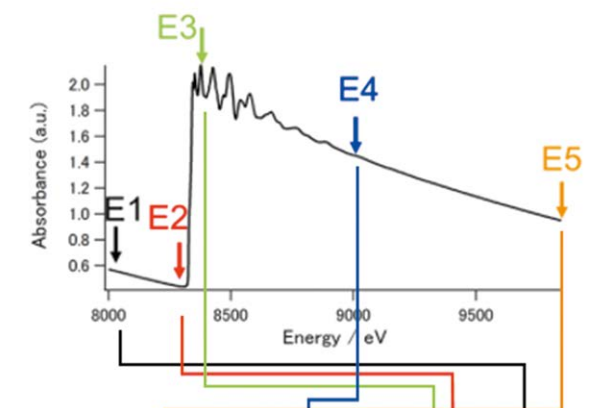


図5 Si基板上Pt膜のEXAFS振動構造TEY-XAFSとPt444-DAFSとの比較

(a) 透過XAFS



(b) 回折ピーク

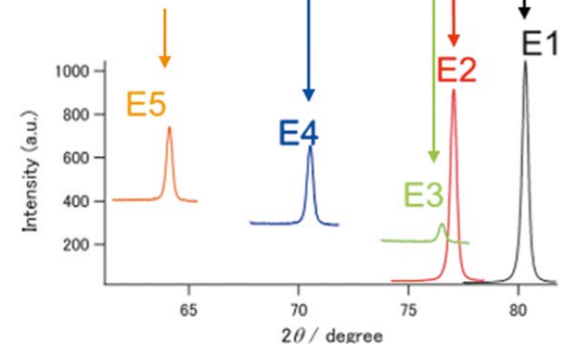


図6 Ni箔を用いたPilatus利用DAFS測定系の検証結果

ことが推定された。しかし、残課題として回折強度の弱い粉末状試料のDAFS測定効率が悪いことが挙げられ、測定効率向上のための活動を進めてきた。

ここでは検出器にDECTRIS社製ピクセルディテクタPilatus 100KをDAFS測定時の検出器として利用した結果を示す。

図6にPilatusを検出器に組み込んだ測定系を用いて測定したニッケル (Ni) 箔の透過XAFS測定結果および、

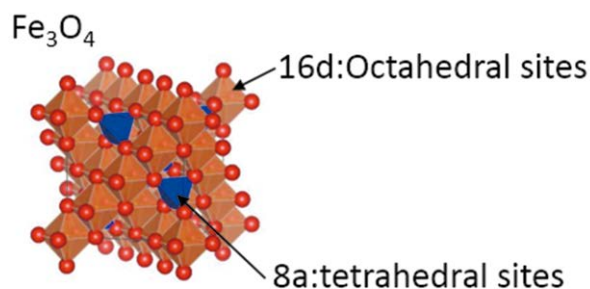
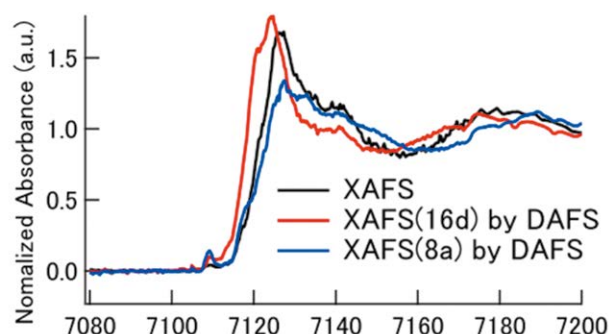
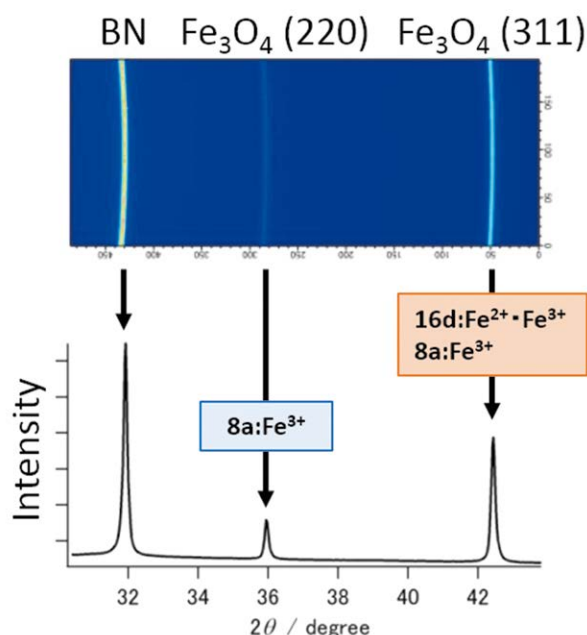
図7 Fe₃O₄の結晶構造概略図9 Fe₃O₄粉末のX線吸収スペクトル透過XAFS、16d-DAFS、および8a-DAFS

図8 Pilatusによる典型的なX線回折ピーク測定結果

Pilatusを用いて検出した特徴的な任意のエネルギーにおけるNi(220)回折ピークの変化を示す。入射X線エネルギーの変化による回折ピーク位置のシフトとともに、異常分散効果による顕著な強度変化を捉えている。

次に粉末試料を用いた測定系の検証結果を示す。検証用試料には“黒さび”となる酸化鉄(Fe₃O₄)粉末と透過率調整用の窒化ホウ素(BN)粉末とを混練した試料を用いた。Δμtを1程度に調整したペレットを形成し、測定に供した。Fe₃O₄は図7のようなスピネル構造を有し、Fe原子には2種類のサイト(16d:八面体サイト、8a:四面体サイト)が存在する。これを用いてサイト選択性の検証(a)透過XAFS測定結果、(b)各測定エネルギー位置のNi(220)回折ピーク位置および回折強度の変化を行った。図8に、Pilatus 100Kの測定視野から得られる典型的な回折ピークを示す。3つの回折ピークが得られ、その回折角から、低角側からBN由来、Fe₃O₄(220)回折

ピークおよびFe₃O₄(311)回折ピークである。8aのみが寄与するFe₃O₄(220)回折ピークと、8aと16dとが寄与するFe₃O₄(311)回折ピークの強度を、入射エネルギーに対してプロットすることで、図9に示すDAFS測定結果の取得に成功した。この結果は、先行研究を行っているBL28XUにおける実験結果^[7]と同様の傾向であることから、測定系として成立していることが確認できた。

以上のように、サンビームIDにおけるDAFS測定の検出器としてPilatus 100Kを利用可能にし、回折強度の弱い粉末試料に対しても効率的な計測を可能とすることが出来た。

今後は、測定の更なる高精度化及び短時間化等の高度化を目指すと共に、電池・半導体・磁石材料をはじめとする産業応用範囲の広い実験系に対し、DAFSの有する相選択性、サイト選択性の有用性を検証し、その結果を共同体内外に発信していく。

参考文献

- [1] 平井康晴: SPring-8利用者情報, Vol.4, No.4 (1999) p.16-19.
- [2] 久保佳実: SPring-8利用者情報, Vol.6, No.2 (2001), p.p.103-107.
- [3] 飯原順次、他: 第22回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム (2009.1.9 ~ 12, 東京大学)11P012.
- [4] 坂田誠: SPring-8利用者情報, Vol.15, No.4 (2010), p.p.313-317.
- [5] 産業用専用ビームライン建設利用共同体研究成果公開ホームページ<https://sunbeam.spring8.or.jp/>
- [6] 野村健二: サンビーム年報・成果集, Vol.5 (2015), p.p. 14-17.
- [7] T. Kawaguchi *et al.*: J. Synchrotron Rad, Vol.21 (2014), No.6, p.p. 1247-1251.

サンビーム共同体 2017年度合同部会長
三菱電機株式会社 河瀬 和雅

BL16B2 サンビームBM

1. はじめに

BL16XU（サンビームID）の項に述べたように、BL16B2（サンビームBM）も産業用専用ビームライン建設利用共同体（略称：サンビーム共同体）が建設し、管理・運営を行っている^[1-2]。同共同体は12社と1グループの民間13企業グループで構成する任意団体で、参画企業の事業分野には競合する領域もありながら、放射光利用研究の基盤となる領域については協調して研究開発を推進している世界的にも類をみないユーザーグループである。1996年の発足以来20年超に渡り、権利と義務を公平に分担することを原則とした運営方針に則ることで、今日にまでの継続を達成している。

今日の、放射光利用分析技術は多岐に渡るため、測定手法の高度化は、各社の得手・不得手を補完しあって活動を行っている。今後、益々の普及が見込まれるEV（Electric Vehicle）のような、異なる産業構造の事業者間の交流が不可欠な事業分野において、効率的な研究開発を推進可能なビームラインとなることを目指している。

2. ビームライン・実験装置の概要

サンビームBMの基本仕様を表1に示す。実験機器のレイアウトは、BL16XUの図1を参照されたい。光源は偏光電磁石で、光学ハッチに設置した可変傾斜型Si二結晶単色器により、4.5～113 keV（一次光）までの広いエネルギー範囲の単色X線を利用することができる。単色器の下流には、集光機能と高次光除去機能を備えたベントシリンドリカルミラーが設置されている。実験ハッチには、上流から大型実験架台、6軸回折計を設置している。大型実験架台の天板は平滑な定盤で、実験に必要な

表1 BL16B2（サンビームBM）の基本仕様

項目	事項
光源	偏光電磁石
光子エネルギー	4.5～113 keV
単色器	可変傾斜型二結晶 (Si(111)、Si(311)、Si(511))
光子数	～10 ¹⁰ photons/s
ビームサイズ	0.1 mm(H) × 0.1 mm (V) (ミラー集光時) 60 mm(H) × 5 mm (V) (Si(311)配置)
実験装置	大型実験架台 (各種XAFS測定、X線イメージング) 6軸回折計 雰囲気制御用ガス設備

なステージなどのコンポーネントをエアパッド浮上式とし、簡易に動かせるようにしているため、各種測定法に対応可能なXAFS、X線トポグラフィおよびその他のX線イメージングを短時間で切り替えることが出来る。大型実験架台上では主にXAFS測定を行っている。XAFS用検出器にはイオンチャンバ、ライトル検出器、転換電子収量検出器および19素子Ge半導体検出器を整備している。イメージング用の2次元検出器には、Pilatus検出器、フラットパネルディテクタ、X線イメージインテンシファイア（12インチ径）およびCMOSカメラを整備している。試料ステージは、 $\theta/2\theta$ 型ゴニオメータと、カメラ用ステージを備えている。これらを適宜組み合わせることで、mm角領域の2次元XAFSを行うことができる。

6軸X線回折計は、高エネルギーX線回折が行える他、サンビームの回折装置SG（サブグループ）で整備を進めているDAFS（Diffraction Anomalous Fine Structure）も行えるように制御系も整備している。

共通して、BL16XUと同様、ガス雰囲気下や昇温過程のその場測定を行うための、反応性ガス供給・排気装置や試料加熱装置を備えており、クイックスキャンXAFS（QXAFS）計測系と組み合わせることで、材料の反応過程のその場XAFS測定が実施可能なことも大きな特徴としている。

3. 利用状況

サンビームBMの利用状況について、2008年度以降の利用状況の統計データを示す。各社利用時間と共同利用時

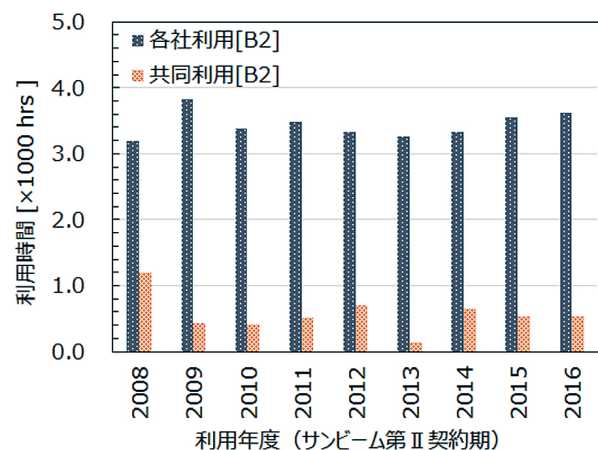


図1 各社利用/共同利用時間の推移

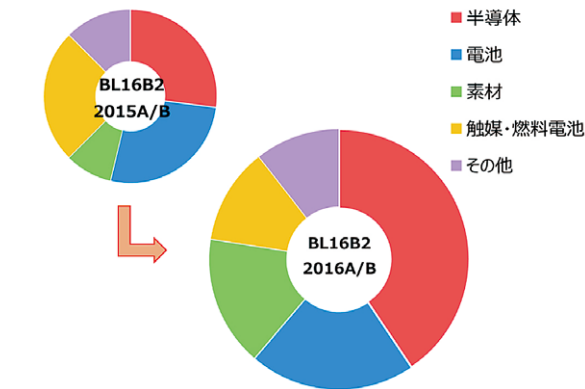


図2 適用産業分野の推移

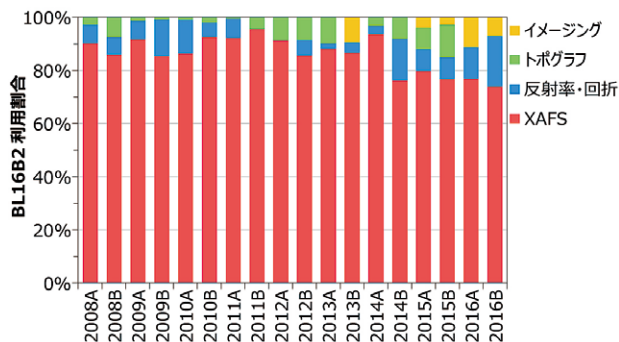


図3 利用技術の利用時間割合の推移

間の推移を図1に示す。年度単位で変動しているが12%程度の時間を共同で利用している。この時間はビームラインの性能保全の他に、産業ニーズの高まった新たな実験手法の整備や産業界が求める測定データ品質を担保するための機器整備や測定系確認などを行っている。

2015年度から2016年度にかけての各社利用分野の変遷を図2に示し、図3には2008年度以降の利用技術の推移を示す。各社適用産業分野の分類は、サンビームIDと同様に半導体、電池、素材、触媒・燃料電池およびその他に大別している。

適用産業分野は、前年度比で半導体と素材分野が増加した一方で、触媒・電池等の適用が減少している。

また利用技術の推移から、サンビームBMで利用頻度の最も高い技術がXAFSであることに違いはないが、2014B期以降で8割を超えていないことが分かった。利用分野と利用技術の前年度差分を統合的に解釈すると、半導体や素材に対する回折・反射率実験が増加していることが推察され、サンビーム共同体の回折装置SGとソフトSGが共同で整備を進めた試料構成元素の吸収端近傍の異常分散効果を積極的に活用したDAFS測定の利用が広がっていることが推察される。サンビーム共同体の利用状況を読み解くことで、刻々と変化する産業ニーズを把握でき、これに最適な実験環境整備を進めていくことができると考えている。

4. 研究・技術検討事例

サンビームID/BMの利用開始より約20年を迎えようする現在において、基幹設備の老朽化対策や代替品の検討は、高精度で高品質な実験データを継続的に得るために必要不可欠な活動である。

ここでは、サンビームのXAFS装置SGが主導的したプログラマブル電流増幅器（Keithley428）の代替機選定活動を報告する。周知の通りKeithley428はSPring-8供用開始時からサイト内の多くのビームラインで用いられてきたカレントアンプだが、メーカーの生産終了に伴って、近年では新規購入はもとより修理対応も困難といった課題がある。

今後も安定したXAFS測定環境を維持するため、Keithley428と同等以上の性能をもつカレントアンプを確保する必要がある。ここでは、都合3機種（#A、#Bおよび#Cと表記）のカレントアンプについて、現行品との性能比較を実施した。

評価試料に標準Cu箔を用い、図4に示す透過XAFS測定配置でのQXAFS測定によって性能比較を実施した。AMP-1はKeithley428固定とし、AMP-2にはKeithley428および前記#A、#Bおよび#Cを用いて測定を行った。なお、カレントアンプの特性に応じてV/Fコンバータの極性等、適宜調整を行っている。積算時間は全て120秒とした。測定結果を重ねて図5に示す。

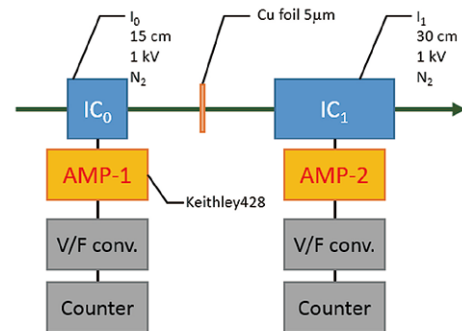
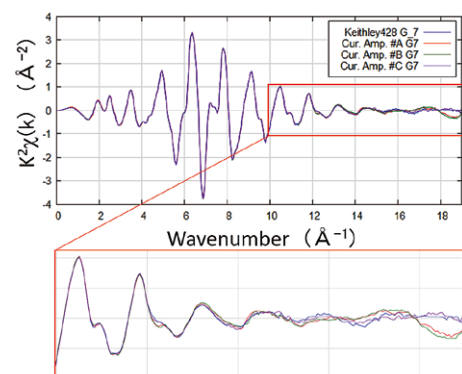


図4 カレントアンプ評価のためのXAFS測定レイアウト

図5 Cu箔のEXAFS振動スペクトル
カレントアンプ依存性（ゲイン）

EXAFS振動スペクトルの波数10以上で機種間差異が確認されたが、そのノイズレベルに大きな違いは認められなかった。代替機種選定を進めるため、ノイズフィルタ機能を持った機種#A、#Bについて、ゲインを変化させて測定したときのノイズレベルを評価した結果を図6に示す。なおノイズフィルタのパラメータ値は同一である。ゲインの増加に伴って両カレントアンプともにノイズレベルの増加が確認されたが、相対的にカレントアンプ#Bの方が小さいと判断し、Keithley428の代替機種として選定した。高輝度放射光のような極限的な分析プローブを、産業界が抱える技術課題の解決に用い続けるには、これらの高度な分析技術の原理を理解するだけでなく、その計測に至るまでの測定系の成り立ちを把握し、測定精度や測定の信頼度についても理解していることが肝要と考える。

各社の極めて重要な事業判断を左右しかねない実験データの取得や、これらの実験データから解析や考察を進めていく上で、上記を理解していることは極めて重要であり、サンビーム共同体の共同体参画各社が連携した実験環境整備活動はこれらの教育の場となっている。今後とも継続することで、サンビーム新規ユーザーの教育を効率的に推進できると考えられる。

参考文献

- [1] 平井 康晴：SPring-8利用者情報，**4** (4)，(1999)
p.p.16-19.
- [2] 久保 佳実：SPring-8利用者情報，**6** (2)，(2001)
p.p.103-107.

サンビーム共同体 2017年度合同部会長
三菱電機株式会社 河瀬 和雅

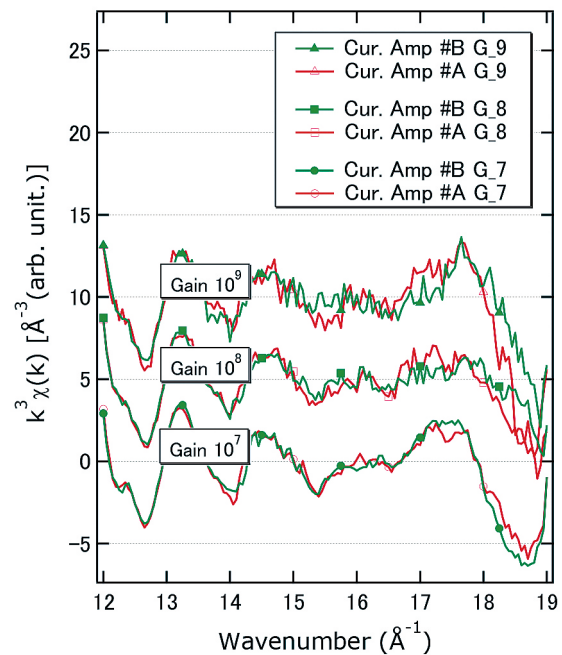


図6 Cu 箔のEXAFS 振動スペクトルゲイン値依存性

BL33LEP レーザー電子光

1. 実験等の実施概要

BL33LEPでは、8 GeV蓄積電子ビームと外部より入射される紫外、または深紫外レーザー光との逆コンプトン散乱によって得られるGeV領域の偏極高エネルギーガンマ線ビーム（レーザー電子光ビーム）を用いて、クォーク核物理実験を推進している。レーザー電子光ビームは、コンプトン端を最大値とした比較的平坦なエネルギー分布を持ち、制動放射によるガンマ線ビームに比して、低エネルギー光子によるバックグラウンド反応が大きく抑えられ、また、広いエネルギー範囲で高い偏極度が得られるという特徴を持つ。電子ビームとレーザーのエネルギーが高いほど高エネルギーのレーザー電子光ビームが得られ、SPring-8の8 GeVという世界最高エネルギーの放射光蓄積電子ビームのおかげでBL33LEP及びBL31LEPでは世界最高エネルギーのレーザー電子光ビームを供給することができる。特に、ほぼ純粋にストレンジクォークと反ストレンジクォークから成る ϕ 中間子やハイペロン共鳴状態の生成閾値を超えるエネルギーを持つことで、ストレンジクォークを持つハドロンを中心に研究を行っており、ペンタクォークやメソン・バリオン共鳴状態等のエキゾチックなバリオンの光生成を通して、ハドロンの構造とそれらの間に働く力をクォークのレベルで解明することを目指している。

BL33LEPにおけるLEPS実験は国際共同研究で進められており、2016年度は日本、韓国、台湾、アメリカ、カナダ、ロシアの19の大学・研究機関から64名の研究者が参加した。液体水素標的システムのトラブルにより約1.5ヶ月間実験を停止していたため、例年より稼働時間は少ないが、年間3070時間の実験を遂行するとともに、装置の維持・改善を共同で行っている。

2016年度のLEPS実験では2015年度に引き続いて、266 nmの深紫外レーザー（OXIDE Frequad-HP 1W）2台を用いた最大エネルギー 2.9 GeVのビームで実験を行った。標的は主に液体重水素標的を用い、ベクトル K^* 中間子を伴う中性子からのハイペロン生成の研究などを目的としている。また、2016年SPring-8夏の学校にはレーザー電子光ビームラインとしては初めてBL実習に参加し、一課題を担当した。

2. LEPS実験での研究成果

最大エネルギー 2.4 GeVのビームを用いた初期の

LEPS実験で測定された、水素標的からの零度 ϕ 中間子生成微分断面積において、 $E_\gamma=2.1$ GeV 近辺にバンプ構造が観測された^[1]。しかし、その原因は未だに良く理解されていない。一つの可能性として同じ終状態（ K^-K^+p ）を取る $\Lambda(1520)$ 生成との干渉効果が考えられたが、陽に終状態3粒子を同定する測定により、干渉効果の影響はバンプ構造を説明できるほどには大きくないことも判明した^[2]。そこで、更に生成機構の詳細を探るため、ビームのエネルギーを2.9 GeVまで拡張した ϕ 中間子光生成測定を、深紫外レーザーを用いて行った。その結果、図1に示すように2.4 GeVより高エネルギーでは零度断面積はゆっくり単調な増加を示し、ジェファークソン研究所のCLASにおいて得られた結果（比較の後方角データからの零度への外挿）と矛盾のないことが示された^[3]。高エネルギー側のデータは既存のPomeron交換+ π, η 中間子交換のモデルで良く記述でき、低エネルギー側のデータはその計算結果と比して明らかに過剰な断面積となっている。その原因としては、通常のPomeronとは異なる新たな多重グルオンの関与やPomeron交換と他の過程との間の干渉、あるいは rescattering と呼ばれる過程などが考えられる。LEPSでは既にヘリウム4標的からのコヒーレントな ϕ 中間子生成（ π, η 中間子交換が起こらない）や重陽子からのインコヒーレントな ϕ 中間子生成のデータ（陽子と中性子で rescattering の効果が異なる）を取得して、解析も進んでおり、多面的にこの問題の解決に取り組んでいる。

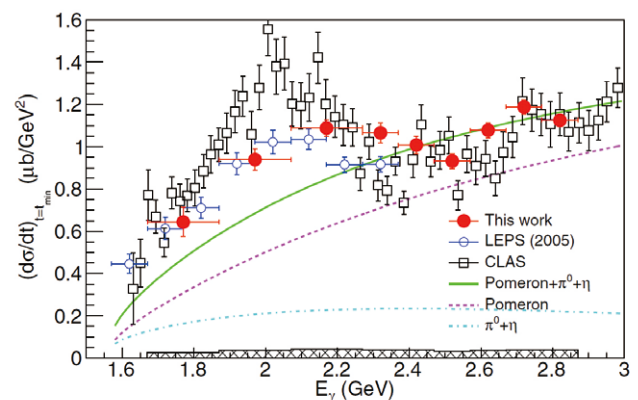


図1 $\gamma p \rightarrow \phi p$ 反応の零度微分断面積のエネルギー依存性。●が今回のデータ。○と□はそれぞれ以前のLEPSのデータとCLASのデータ。実線はPomeron交換+ π, η 中間子交換のモデルでの計算。

参考文献

- [1] T. Mibe et al.: *Phys. Rev. Lett.* **95**(2005) : 182001.
- [1] S.Y. Ryu et al.: *Phys. Rev. Lett.* **116**(2016) : 232001.
- [1] K. Mizutani et al.: *Phys. Rev.* C **96**(2017) : 062201.

大阪大学 核物理研究センター
與曾井 優

BL31LEP レーザー電子光II

1. 2016年度の活動概要

レーザー電子光IIビームラインBL31LEP (LEPS2ビームライン) では、波長355 nmのレーザー光を8 GeVの蓄積電子と逆コンプトン散乱させ、最大2.4 GeVのガンマ線(レーザー電子光)ビームを得ている^[1]。2016年度は、3～4台のレーザーによる同時入射を行い、1.3 GeV以上の標識化エネルギー領域で最大2.2 MHzのガンマ線ビーム強度を得た。LEPS2ビームラインは、蓄積リング長直線部を利用しているため電子ビームの発散角が小さく、生成されたガンマ線ビームが拡がらない。逆コンプトン散乱点から135 m下流の蓄積リング棟外にあるLEPS2実験棟までガンマ線ビームを引き出し、液体水素標的または原子核標的におけるハドロン粒子の光生成実験を行っている。LEPS2実験棟内には二種類の大立体角検出器系を設置し、様々なクォーク核物理研究を推進している。

2016年度前期は、炭素原子核標的(20 mm厚のブロック形状)の周りを覆う高分解能電磁カロリメーターBGOegg^[2]が主体となる実験セットアップ(BGOegg実験^[3])で物理データを収集し、質量が958 MeVである η' 中間子の原子核媒質効果および原子核束縛状態の探索を行った。1 cm³辺り約1億トンという超高密度状態である原子核内では、ハドロン粒子質量の起源と考えられるカイラル対称性の破れが部分的に回復すると予想されており、光生成された η' 中間子の質量が軽くなる現象(原子核媒質効果)、更には質量減少が束縛ポテンシャルの原資となる現象(原子核束縛状態)が起こる可能性が

指摘されている。これらの現象の探索に必要なデータ収集を2015年度に引き続き行い、深い束縛エネルギーを予想する理論を検証するのに十分な統計量を得た。蓄積した物理データは、鋭意解析中である。

2016年度後期は、BGOegg実験に続く第二期の実験セットアップで稼働するLEPS2ソレノイド実験の準備を進めた。この実験プロジェクトでは、1 Teslaの中心磁場を発生する大型ソレノイド磁石(ボア径3 m)の内部に、標的周りを覆う荷電粒子スペクトロメーター系を配置している。ユーザータイムの最終盤に、準備の出来た一部の検出器群を稼働させ、LEPS2ソレノイド実験にとって初めてのデータ収集をテスト的に行った。

2. BGOegg実験の成果

2016年度は、LEPS2ビームラインおよびLEPS2実験棟において実験データ収集を上記の通り行った他、2015年度までにBGOegg実験で収集した実験データの物理解析作業も進展した。図1は使用した実験セットアップを示しており、1320本のBGO結晶で卵型に組み上げられた電磁カロリメーター(BGOegg)が、標的周りの極角24°～144°の領域を隙間なく覆っている。同様のエネルギー領域で使用されている電磁カロリメーターとしては世界最高性能を持ち、エネルギー分解能は1 GeV光子に対して1.3%である。液体水素標的(陽子)で光生成された η 中間子や ω 中間子の複数光子への崩壊を高分解能電磁カロリメーターBGOeggで捉え、該当する中間子の質量

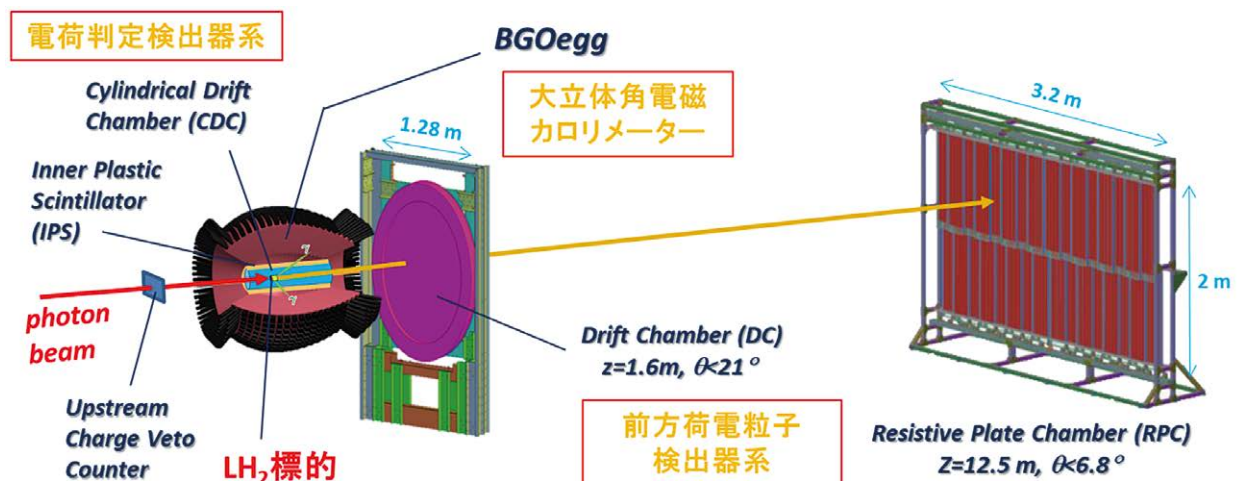


図1 BGOegg実験のセットアップ

ピークを終状態光子の不変質量分布中に観測した。 η 中間子の場合、 $\gamma p \rightarrow \eta p$; $\eta \rightarrow \gamma \gamma$ という光生成・崩壊過程を辿り、548 MeV/c²にある質量ピークを21 MeV/c²の質量分解能でクリアに同定できた。中間子と同時に生成される陽子は、電磁カロリメーター BGOegg または極角 21°以下を覆う荷電粒子検出器(ドリフト・チェンバー)で検出し、生成方向を測定した。標的に入射するガンマ線のエネルギーは、LEPS2 ビームラインに設置されているビーム標識化装置(反跳電子タギング検出器)で測定し、光生成反応で出来た中間子と陽子のエネルギー・検出方向の情報と合わせて、四元運動量の保存則を事象選択条件として要求した。これにより、多重 π^0 中間子生成など、大量のバックグラウンド事象を高い効率で除去できた。

LEPS2 ビームラインで用いるガンマ線ビームは、逆コンプトン散乱されるレーザー光の直線偏光を引き継ぎ、高い偏極率を持つ。ガンマ線ビームの直線偏極方向に対して、上記の中間子がどの方位角へ生成されやすいかの情報(光子ビーム非対称度)は、ハドロン粒子の光生成反応における中間状態のスピ情報を反映している。アイソスピンが0である η 中間子や ω 中間子の光生成では、これらの中間子と陽子の共鳴状態である核子励起状態を中間状態として経由するが、質量スペクトルに対応する重心系エネルギー分布において、共鳴幅の広い核子励起状態が互いに重なり合う。光子ビーム非対称度は、中間子光生成反応の微分生成断面積(中間状態のスピに依存した生成角度分布)と合わせて、核子励起状態の分離・同定に大きな武器となる。図2は、 η 中間子光生成反応の場合に光子ビーム非対称度をプロットしたものである

[4]。正(負)の値は、 η 中間子がビーム偏極と直角(平行)の方向に出やすいことを表し、絶対値が大きいほど方位角分布の非対称度が大きい。重心系エネルギー(E_{CM})と η 中間子の崩壊生成角度(重心系における角度 θ_{CM}^η のcosine)に依って、非対称度の変化が測定されている。これにより、異なる中間状態同士の干渉効果も含めて、未知の核子励起状態を識別でき、ハドロン内クォークの動的構造に対する理解が進展する。

参考文献

- [1] N. Muramatsu, et al.: *Nucl. Instr. Meth. A* **737** (2014) 184; 村松憲仁, 與曾井優, 依田哲彦, 鈴木伸介, 学会誌「加速器」Vol.10 No.3 (2013) 171; 村松憲仁, 中野貴志, 與曾井優, 依田哲彦, 清水肇, 石川貴嗣, 宮部学: SPring-8 利用者情報 Vol.18 No.2 (2013) 75.
- [2] T. Ishikawa et al.: *Nucl. Instr. Meth. A* **837** (2016) 109.
- [3] <http://www.lns.tohoku.ac.jp/~hadron/bgoegg.html>, N. Muramatsu, ELPH Report 2044-13 (2013); N. Muramatsu, arXiv: 1307.6411.
- [4] T. Hashimoto et al.: JPS meeting (Osaka), 19 Mar 2017.
- [5] D. Elsner, et al.: *Euro. Phys. J. A* **33**, (2007) 147.

東北大学 電子光物理学研究センター
村松 憲仁

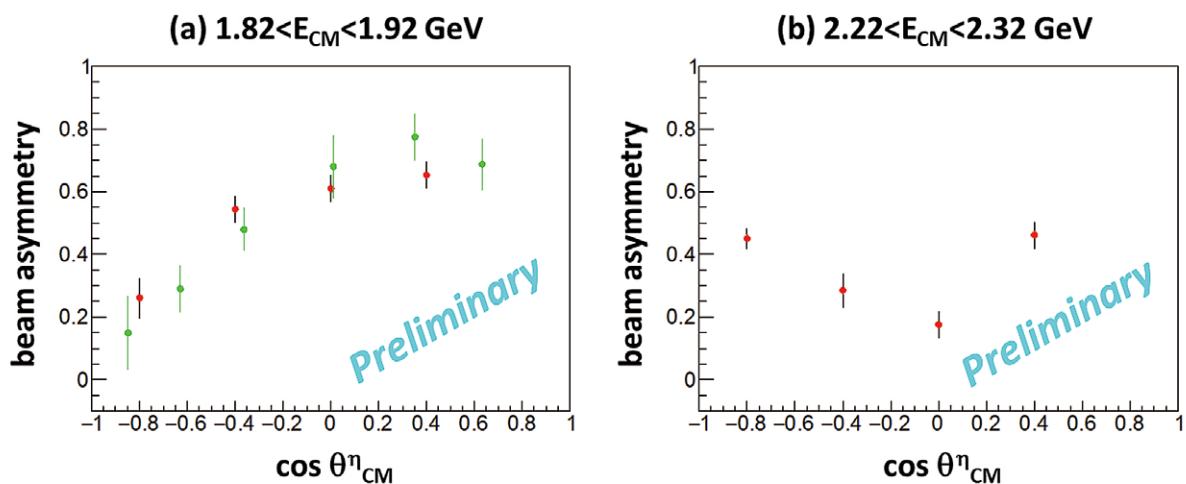


図2 η 中間子光生成における光子ビーム非対称度。(a)と(b)は、異なる重心系エネルギーにおける測定結果を示す。赤点がBGOegg実験による測定であるのに対し、緑点はCBELSA実験^[5]による既存結果を表す。

BL44XU 生体超分子複合体構造解析

1. はじめに

生体超分子構造解析ビームライン (BL44XU) は、生体内の組織化された機能を理解するために、多様な機構で反応系を制御している生体超分子複合体の立体構造をX線結晶構造解析法により解明することを目的として、大阪大学蛋白質研究所が中心となって建設を進めてきた。本ビームラインは、学術振興会未来開拓事業、科学技術振興事業団（現 科学技術振興機構）及び文部省（現 文部科学省）補正予算より援助を受けて、1996年度より建設を始め、1999年秋から正式に利用を開始した。その後も補正予算、総長裁量経費及び蛋白質研究所内予算などの他、タンパク3000やJAXAとの共同研究、ターゲットタンパク研究プログラム、創薬等支援技術基盤プラットフォームなどの外部資金により、検出器や光学系、光学ベンチなどの高度化を進めてきた。

2. ビームラインの概要

SPring-8標準型の真空封止式アンジュレータを光源とし、光学ハッチ内に設置した液体窒素冷却式二結晶モノクロメータで単色化して実験ハッチに導入している。実験ハッチ内には2機のロジウムコートミラーが設置しており、高調波の除去と2次元の集光を行うことができる（図1）。

回折強度データ測定部は、 μ 軸回転機構付高精度ゴニオメータ、可動式ダイレクトビームストッパー及び照明装置を組み込んだファンシーボックス、2次元検出器及び試料冷却装置から構成されている（図2）。

通常は0.9 Åの単色X線を用いて実験を行っているが、この時のサンプル位置でのミラー集光後のビームサイズ (FWHM) は0.06 mm (W) × 0.05 mm (H) である。この波長におけるスリットの開口幅を0.05 × 0.05 mm²とした時のビーム強度は 8.34×10^{11} photons/secである。

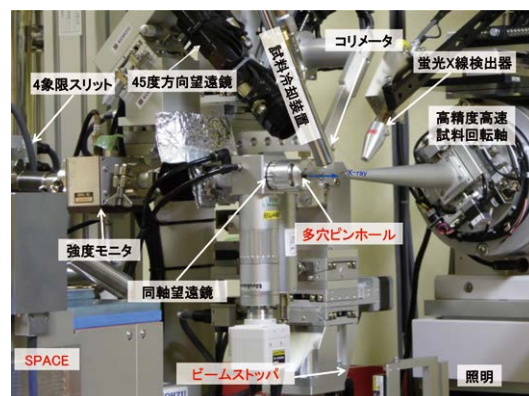


図2 回折強度データ測定部

2-1 ゴニオメータ部

ゴニオメータ部は、高速シャッター、ビーム整形部、高精度・高速ゴニオメータ、同軸望遠鏡等から構成されている（図3）。これらは、すべて光軸調整機構を有している他、高速シャッター以外のコンポーネントはすべて3軸制御可能な共通のステージの上に乗っており、ハッチ外のPCから簡単に光軸調整を行うことができる。

高速シャッターは、1 msecでの開閉の制御が可能であ

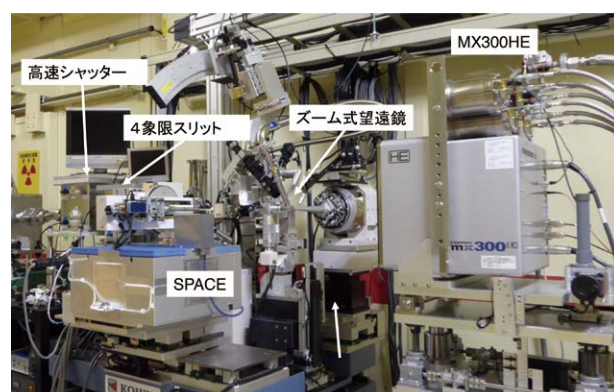


図3 ゴニオメータ部

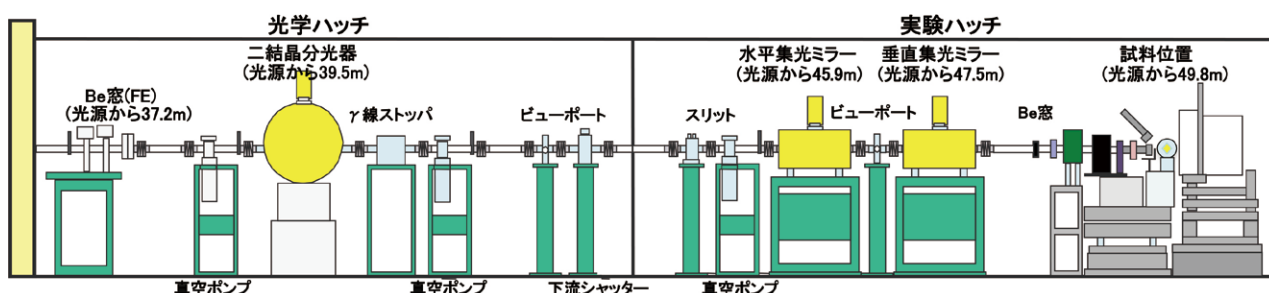


図1 ビームラインコンポーネント

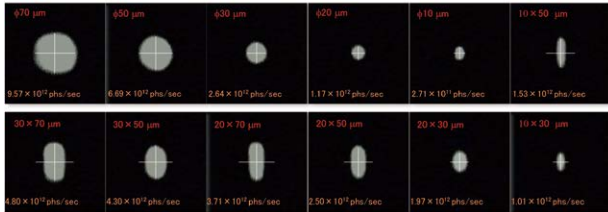
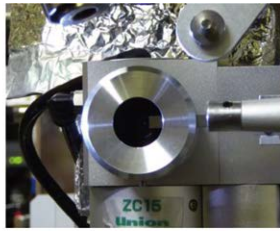


図4 (上) ビーム成形用ピンホールシステム、(下) 様々なピンホール後のビーム形状とビーム強度

る。これにより部分反射の測定精度を上げる他、微小振動写真法への対応が可能となっている。

ビーム整形は、2015年に設置したピンホールを改良し、大きさや形状のバリエーションを12種類に増加させた。その結果、結晶の形や実験により最適なビームのサイズや形状を選ぶことができるようになった(図4)。またピンホール直後に出口スリットを設置することで、ピンホールの寄生散乱や空気散乱を低減している。また可動式のビームストッパーと組み合わせ、400 Å以下の低分解能領域のデータ収集が可能となっている(図5)。

ゴニオメータ部はエアベアリングを利用した高精度・高速型ゴニオメータを利用している。本ゴニオメータは、最大偏心精度が $\pm 1 \mu\text{m}$ 以下で、最大180 deg/secで駆動することができ、inverse beam settingの実験が効率良く行える。さらに、このゴニオメータは、試料回転軸をX線の仮想光軸に対して水平面内に0°から15°まで傾斜(μ 軸)させることが可能である。

ゴニオメータに取り付けた結晶は、同軸望遠鏡によりハッチ内及びハッチ外で観察可能である。また、結晶のセンタリング(及び望遠鏡のズーム比の変更)は制御用PCから行うことができる。

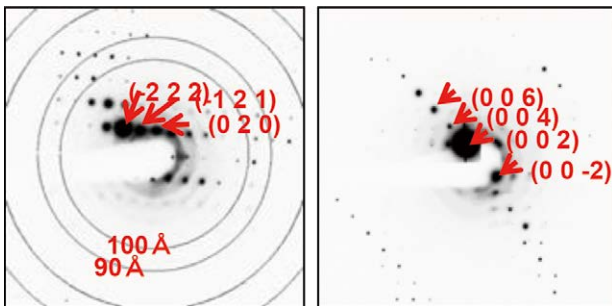


図5 イネ萎縮ウイルス結晶($I222$, $a=768.9$, $b=794.7$, $c=810.4 \text{ Å}$)からの超低分解能データ収集($\lambda=1.9 \text{ Å}$)

2-2 2次元検出器

有効面 $300 \times 300 \text{ mm}^2$ の高感度大面積アレイ式CCD検出器(Rayonix MX-300HE)が利用できる。本検出器の能力を生かすために、創薬等支援技術基盤プラットフォーム事業の支援を受けて開発したカメラステージを利用することで、格子定数が2000 Åの巨大格子定数の結晶から3.7 Å分解能以上のデータ収集が可能となった。また、同時に、光学系のレイアウト変更なしで、0.6 Å以上の超高分解能のデータ収集も可能である。

2-3 試料冷却装置

タンパク質あるいは生体超分子複合体のデータ収集には、試料の冷却は不可欠である。通常は、液体窒素を利用した試料冷却装置を用い100 K付近の温度でデータ収集を行うが、より低温での実験を行うために液体ヘリウムを用いて35 K程度に試料を冷却することも可能な試料冷却装置を利用することができる。窒素とヘリウムの切り替えは実験に応じて簡単にを行うことができる。

2-4 多波長異常分散法への対応

本ビームラインでは、液体窒素間接冷却型二結晶分光器を使用しているため、多波長異常分散法の実験も可能である。通常の利用では、0.7 ~ 1.9 Å領域の実験には、ユーザーによるビーム調整なしで、簡単に多波長異常分散法のための波長校正も含めた波長変更を行うことができる。

2-5 ユーザーインターフェイス

SPring-8の他のタンパク質結晶学用ビームラインで利用されているデータ収集システム(BSS)を導入している。これにより、SPring-8の他のタンパク質結晶学用ビームラインの利用経験があれば、わずかな教育のみで本ビームラインを利用することができる。

2-6 試料マウントロボットSPACEの大容量化

試料交換を簡便にし、利用効率を上げることをめざして、2015年度末に結晶マウントロボットSPACEの大容量化を行い、1度に8個のUni-puckを装着が可能となった。2016年度よりユーザー利用に供している。

3. 共同利用の現状

蛋白質研究所共同研究員として全国の研究者からの共同利用実験を受け入れる体制を整え、全ユーザータイムの約50%を共同利用に供しており、2016年度は、延べ約850人が共同利用枠で利用した。海外からのユーザーに対しては、蛋白研国際共同研究員制度を利用した旅費のサポートも行っている。さらに、台湾国立放射光科学研究センター(NSRRC)との共同研究協定に基づいて、

台湾の構造生物学研究グループに対してビームタイムを提供している。

共同利用実験課題募集は年1回前年度の12月初旬に行われている他、重要な研究成果が期待され新たに結晶ができたものに関しては、緊急課題として随時実験課題を受け入れている（図6）。

4. 創薬等支援技術基盤プラットフォーム

創薬等支援技術基盤プラットフォームの支援業務として、超分子蛋白質（格子定数の大きな結晶）のデータ収集に関する支援を行っており、ビームタイムの10%程度を支援枠として確保している。また、本事業の支援により、2016年度はビーム位置モニターを導入した。

5. 超分子複合体の代表的な成果

Vaultは、分子量1300万の巨大な蛋白質核酸複合体である。Vaultの結晶は、空間群C2に属し、格子定数が $a = 707.2$, $b = 383.8$, $c = 598.5$ Å, $\beta = 124.7^\circ$ の巨大な単位格子からできている。本ビームラインを利用して、3.5 Å分解能の回折強度データの収集に成功し、その原子構造を決定した（Tanaka *et al.*, *Science*, 2009）。

2016年度の主な成果として、DNAの転写、複製、修復過程におけるクロマチンリモデリングに働くFACT蛋白質（Tsunaka *et al.*, *Genes Dev.*, 2016）、細胞の生存、成長、細胞死などに関与し、癌の発生に関与する多機能蛋白質p62/Sqstm1（Siato *et al.*, *Nat. Commun.*, 2016）、蛋白質の寿命を制御する蛋白質分解経路であるN末端則経路で働くN-terminal amidase（Kim *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 2016）などが挙げられる（図7）。

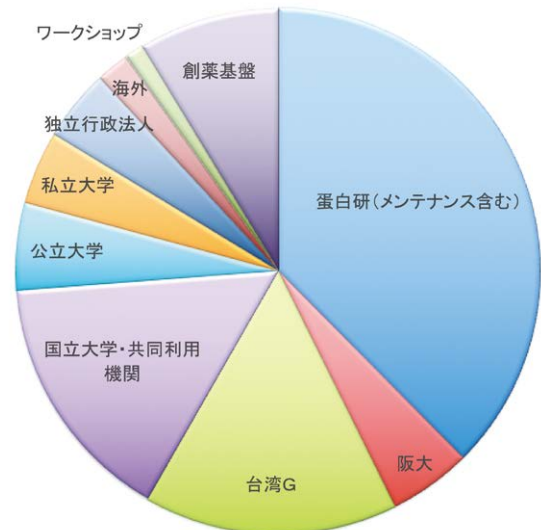


図6 2016年度ビームタイム配分実績

6. 国際共同研究

NSRRCと研究協定を結び、ビームラインの相互利用や高度化に関する共同研究を進めている。

国立大学法人大阪大学
 中川 敦史、山下 栄樹、東浦 彰史
 国立研究開発法人理化学研究所・
 放射光科学総合研究センター
 (公財) 高輝度光科学研究センター
 山本 雅貴
 (公財) 高輝度光科学研究センター
 熊坂 崇

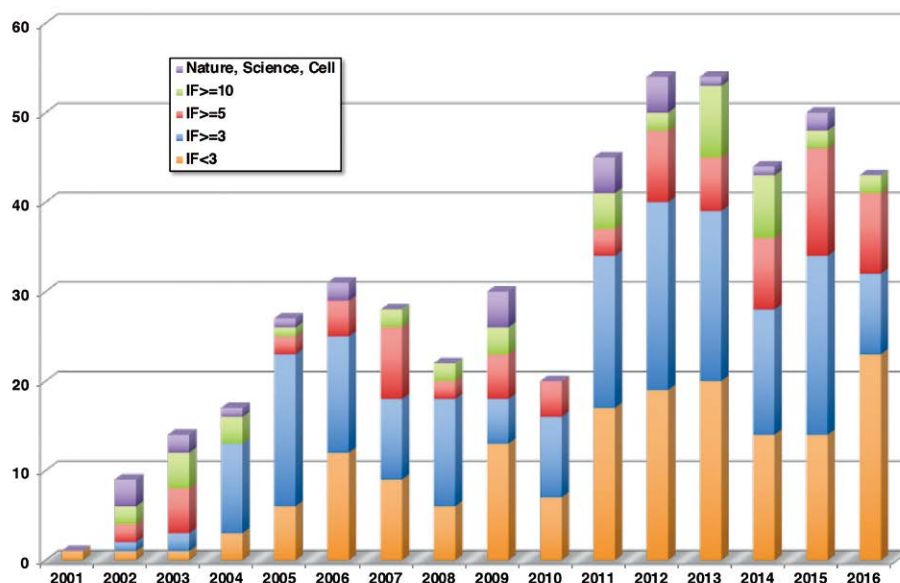


図7：ビームラインを利用した論文数 (IF: Impact Factor)

BL03XU フロンティアソフトマター開発産学連合ビームライン

1. フロンティアソフトマター開発産学連合ビームライン

BL03XUは、我が国初のソフトマター専用ビームラインである。日本の代表的化学・繊維企業と大学等の学術研究者で構成される18研究グループで構成された“フロンティアソフトマター開発専用ビームライン産学連合 (FSBL)”が管理・運営している (図



図1 FSBLのロゴ

1)。高分子を含むソフトマターの構造的特徴は、非常に広い時間・空間スケールで階層構造を形成することである。それぞれの階層構造は独立に存在せず、むしろ構造相関を有しそれらが物性を大きく支配していることが多い。そのため、ソフトマターの構造と物性の相関を明らかにするためには、できる限り広い時間・空間スケールでのダイナミクスおよび構造評価が重要となる。BL03XUにおいては、このようなソフトマターの構造を明らかにするという課題に対して、小角X線散乱法、広角X線回折法を中心とした実験系の整備を進めてきた。本報告では、BL03XUの特徴を述べた後、2016年度に実施した第一ハッチの高度化『GI-SAXSとCTを組み合わせた表面構造の可視化』について記す。

2. 実験ハッチ

BL03XUでは、SPring-8に標準装備された真空封止アンジュレータおよび標準的な輸送チャンネル、二結晶分光器、KBミラーの構成を採用しており、高輝度かつ波長のそろったX線を集光しつつ使用することが可能である。実験ハッチは、上流から、光学ハッチ、第一実験ハッチ、第二実験ハッチの順番でタンデム配置となっている。



図2 FSBLの設備。(A) 第一ハッチ内の試料水平配置型薄膜回折計、(B) 第二ハッチの実験スペースと大型観音屏

第一ハッチ^[1]には、試料水平配置型薄膜回折計 (図2A) が常設されており、これを用いた微小角斜入射小角X線散乱 (GISAXS) 測定、加熱などを行うことで変化する薄膜の構造を追跡する時間分割測定、持ち込み分析装置との同時測定などが可能である。

第二ハッチ^[2]には、3 m × 3 m × 高さ4 mの大型装置設置用スペースおよびそのサイズの装置搬入可能な観音屏をハッチに配置している (図2B)。このため実験レイアウト的に高い自由度を有しており、これまででは行うことが難しかった大型加熱炉や溶融紡糸機などのその場分析が可能となっている。

3. GI-SAXSとCTを組み合わせた表面構造の可視化^[3]

GI-SAXSとは、斜入射小角X線散乱法ともよばれる手法である。シリコン基板上の高分子薄膜などの平滑な試料に対して、わずかに試料を傾けることで微小な入射角をつけて、散乱測定を行う。こうすることで、透過力の強いX線を全反射させることが可能であり、薄膜試料内部の構造情報を計測する手法である。このように、GI-SAXSは薄膜の内部構造などを調べる場合、強力なツールとなる。一方、全反射散乱だけではなく、表面で生じる屈折や多重散乱などを考慮しなければならず、解析方法や解釈が困難であることが問題となっていた。そこで我々は、散乱パターンからコンピュータトモグラフィ (CT) による像の再構築を行うGISAXS-CT法の開発を行った。GISAXS-CT法 (図3) では、GISAXS測定を行ったのち、サンプルを並行に少し動かし (ΔY)、再度GISAXS測定を行う。これをサンプルの端から端まで行い、測定が終わったら、サンプルの配置をわずかに回転させ ($\Delta \theta$)、再度、端から端まで測定を行う。GISAXS-CT法はこれらの散乱像からCT像を再構成する手法である。図4に、本研究で測定したサンプルの顕微鏡図と散乱パターンを示す。中心の顕微鏡図にある、

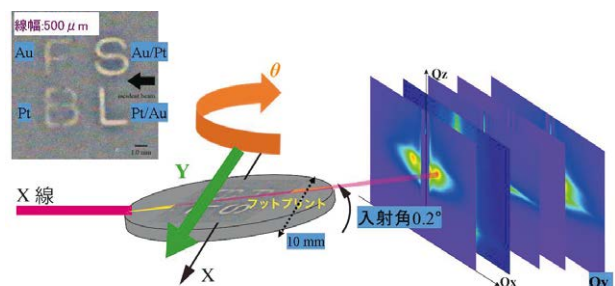


図3 GISAXS-CT法の概略図

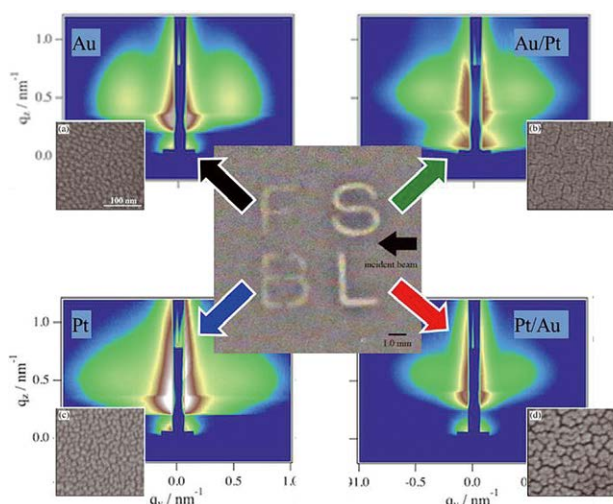


図4 各文字の散乱パターンと顕微鏡図

文字はスパッタ蒸着された金属粒子であり“F”、“S”、“B”、“L”はそれぞれ、金、金/プラチナ、プラチナ、プラチナ/金で構成されるため散乱能が高い。それぞれの粒子のGISAXS像には異なる散乱パターンが出ており、粒子間距離や形状などが“F”、“S”、“B”、“L”でそれぞれ異なっていることが分かる。次に、大量に測定したGI-SAXS像をCT法によって再構築した結果が図5である。これは、測定した全てのGI-SAXS像における特定のピクセル位置から散乱強度を抽出し、これを再構築することで得られた。特定のピクセル位置における散乱強度は、特定の周期距離や形状因子に由来する散乱を意味しており、例えば、金粒子に由来する散乱強度を抽出・再構成することで主に“F”だけが再構成された像を得ることに成功した(図5a)。一方、

通常は一次元解析などでは利用しない微弱な散乱が出現する高波数側のピクセル位置から散乱強度を抽出し、像の再構成を試みた結果、はっきりとしたサンプルの像が出現した(図5d)。これは非常に興味深く、我々が意味のないノイズだと思っていた散乱も、多くの情報を有していることを示唆している。今後は、解析アルゴリズムの選定や効率的な測定系を構築し、最終的には構造の異なる高分子薄膜で同様なGISAXS-CT像の撮影手法構築を目指す。

参考文献

- [1] Ogawa H, Masunaga H, Sasaki S, Goto S, Tanaka T, Seike T, et al.: Experimental station for multiscale surface structural analyses of soft-material films at SPring-8 via a GISWAX/GIXD/XR-integrated system. *Polym J.* 2012;45: pj2012194.
- [2] Masunaga H, Ogawa H, Takano T, Sasaki S, Goto S, Tanaka T, et al.: Multipurpose soft-material SAXS/WAXS/GISAXS beamline at SPring-8. *Polym J.* 2011;43:pj201118.
- [3] Ogawa H, Nishikawa Y, Fujiwara A, Takenaka M, Wang Y-C, Kanaya T, et al.: Visualizing patterned thin films by grazing-incidence small-angle X-ray scattering coupled with computed tomography. *J Appl Crystallogr.* 2015;48:1645-50.

フロンティアソフトウェア開発専用ビームライン産学連合体

代表 石井 孝浩
運営委員長 田中 敬二

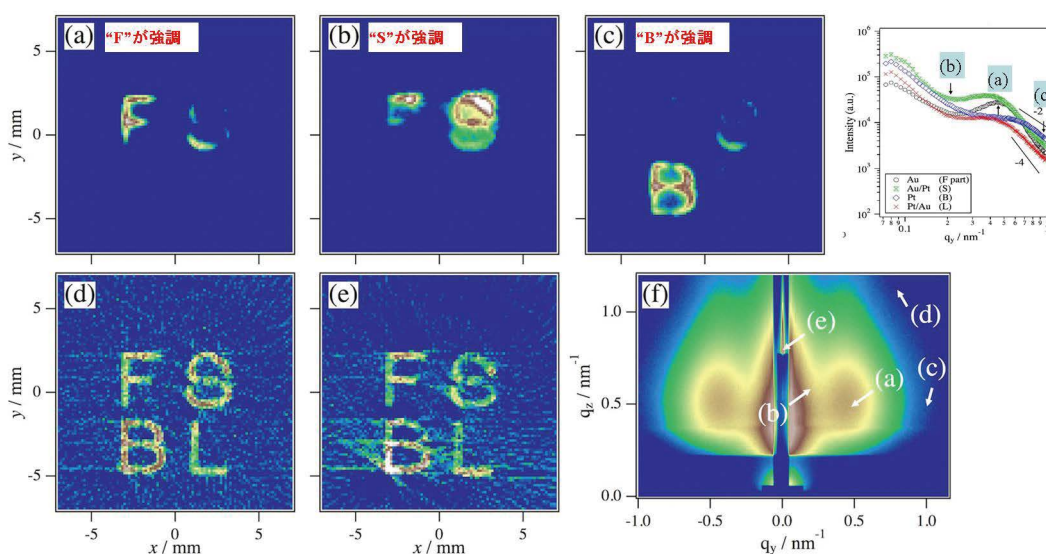


図5 再構成されたCT像。(a,b,c,d,e)の図は(f)の散乱パターンにおける各箇所から再構成された。

BL07LSU 東京大学放射光アウトステーション物質科学

東京大学では2016年12月に東京大学放射光連携研究機構の発展的解消が行われ、同時に東京大学放射光分野融合国際拠点が設立された。SPring-8の長直線部に世界最高水準の軟X線アンジュレータビームライン(BL07LSU)及び先端分光実験ステーションを建設し^[1]、高輝度放射光を利用した先端的研究の展開を目指している。

SPring-8 BL07LSUは高輝度軟X線アンジュレータビームラインとして、(1) 光エネルギー250-2000 eV、(2) 分解能10,000以上、(3) スポットサイズ10 μm 以下(ゾーンプレートで70 nm、ミラー集光で1 μm を記録)、(4) 強度 $\sim 10^{12}$ photons/秒、(5) 偏光の切替を達成している。特に(5)については本ビームラインのクロスアンジュレータによって、偏光スイッチングを世界最速(繰り返し周期:77ミリ秒)かつ偏光状態の変化を連続的に実施することができる。このような光源加速器は世界でSPring-8 BL07LSUでのみ設置されており、2016年度はその特性を活かした新手法の開発を行った。またビームラインBL07LSUでは現在1)時間分解軟X線分光実験、2)3次元走査型光電子顕微鏡、3)超高分解能軟X線発光、4)フリーポートの4つの実験ステーションが設置・整備されており、2016年度も全て共同利用実験装置として開放した。

本稿ではビームライン及び各実験ステーションの最近の動向について報告する。

1. 連続偏光変調を利用した軟X線磁気光学実験法の開発^[2]

軟X線と物質の相互作用は偏光状態によって変化し、磁性研究では物質吸収端での吸収が円偏光(右、左)に依存するX線磁気円二色性(X-ray magnetic circular dichroism, XMCD)がよく知られている。一方、直線偏光した軟X線についても磁性体の透過及び反射によって偏光状態は大きく変化し、吸収端の光エネルギーでは共鳴ファラデー効果や共鳴磁気光学カー効果(resonant magneto-optical Kerr effect, RMOKE)などと呼ばれる。XMCDでは偏光の楕円率が変化し、RMOKEでは旋光性が変化する。ビームラインBL07LSUでは軟X線を直線偏光から円偏光に高速に切り替えることができるのでXMCDとRMOKEを同時に測定することができ、その結果、従来よりも磁性体を正確に評価できる。さらにXMCDとRMOKEの信号は光学定数の虚部と実部にそれ

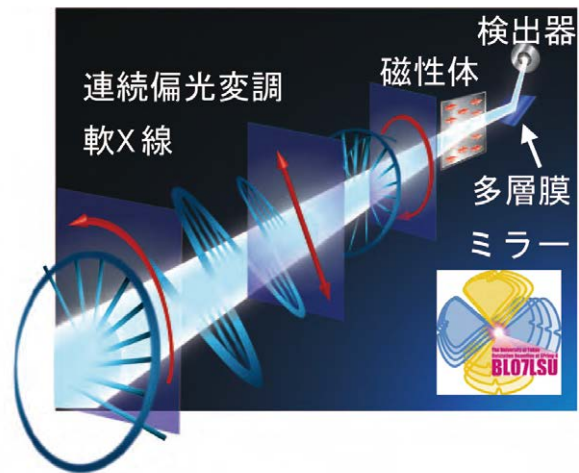


図1 SPring-8ビームラインBL07LSUの連続偏光変調軟X線を用いた磁気光学実験の様子。

ぞれ対応するので、物質と光の相互作用を決める複素誘電率を軟X線領域では世界で初めて直接測定できる。そこで我々は、BL07LSUにおいてクロスアンジュレータを用いたRMOKEの測定技術の開発を進めてきた^[2-4]。

図1にSPring-8ビームラインBL07LSUの連続偏光変調軟X線を用いた磁気光学実験の様子を示す。クロスアンジュレータから発生した軟X線は磁性体表面に照射され、その反射光は多層膜ミラーと検出器から構成されたアナライザーに導かれて解析される。入射する軟X線は時間と共に偏光状態が変化し、それに合わせて信号が検出される。図2はFe L_3 -edge及び L_2 -edgeにおける磁気光学効果の測定結果である。試料は磁束密度 $B = 0.3$ T及び室温の条件下のMgO基板上に成長した30 nm厚のFeナノ薄膜で、偏光スイッチングの周波数は13 Hzで測定が行われた。

図のようにRMOKEに対応するカー回転角(Kerr Rotation Angle)とXMCDに対応する楕円率(Ellipticity)のスペクトルの同時測定が世界で初めて達成された^[2]。全体を見ると L_3 -edgeと L_2 -edgeでカー回転角及び楕円率の符号が反転していることが分かり、さらに微細なスペクトル形状の変化も確認することができる。

このようにカー回転角と楕円率の値が得られると、これらから複素誘電率テンソル非対角成分 ϵ_{xz} の実部(Re)と虚部(Im)を求めることができる^[2]。図3aはその結果であり、 ϵ_{xz} のスペクトルの実部と虚部がKramers-Kronigの関係を満たしていることが分かる。次にFeバ

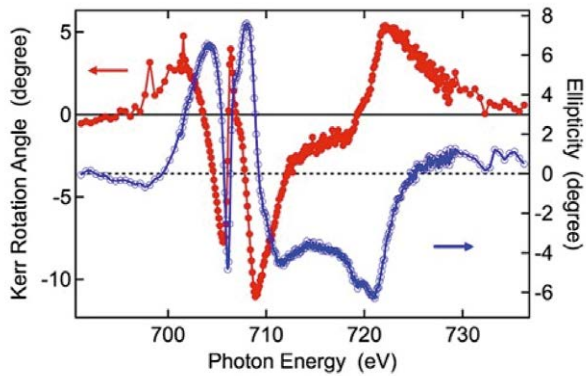


図2 30nm厚のFeナノ薄膜のL殻吸収橋におけるカー回転角(RMOKE)と楕円率(XMCD)スペクトル。

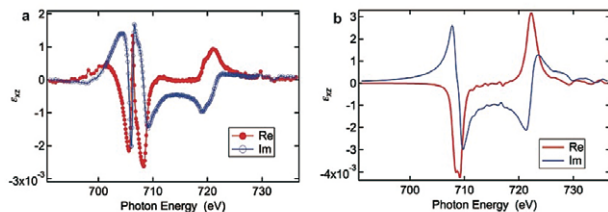


図3 30 nm厚のFeナノ薄膜のL殻吸収橋における軟X線誘電率スペクトル：a. 実験、b. 計算。

ルク構造を元に、第一原理計算を行った本軟X線エネルギー領域における ϵ_{xx} のスペクトルを図3bに示す。Fe L_3 -edge及び L_2 -edgeに対して実部と虚部の符号が反転するだけでなく、数値も定量的にほぼ再現されていることが分かる。一方、実験では L_3 -pre-edgeに急峻なスペクトル変化が存在するが、これは計算で取り入れていなかった薄膜の形状因子による光散乱・回折現象が関係していると思われる。

別視点の磁気信号を同時測定できることはノイズに対する測定データの信頼性を大幅に向上できる。例えば、実部のピークは、虚部ではその微分形のように現れるは

ずである(Kramers-Kronigの関係)。また、誘電率のような基本量は複雑な磁性体でも理論計算で精度よく求められるため、今後本手法によって実験と理論が詳細に直接比較できると期待される。

2. トピックス

SPring-8ビームラインBL07LSUの実験ステーションにおける研究成果の1部をトピックスとして紹介する。

2-1 共鳴軟X線発光MCDによる α - Fe_2O_3 の弱強磁性の起源に関する研究

超高分解能軟X線発光分光ステーション(HORNET)は400–750 eVで $E/\Delta E \geq 8000$ の世界最高エネルギー分解能で軟X線発光分光が行えるのみならず、種々の試料セルを用いて超高真空と大気圧下の両方で分光が行えるという特長を有している。2016年度は、磁場印加下軟X線発光分光システムの開発を進め、永久磁石による磁場発生装置の導入を行った^[5]。これにより、軟X線発光分光で観測されるdd励起の磁気円二色性(MCD)の測定に成功し、種々の磁性体への適用を行った。さらに電場印加システムの組込を行い、電気磁気効果の観測を目指している。

図4に軟X線発光分光用磁場印加システムを示す。磁気回路は、入射X線・散乱X線と平行、もしくは45°の配置が可能。試料への入射角は磁極間で自由に設定できる。本システムを用いた研究成果として、共鳴軟X線発光分光のMCDによって α - Fe_2O_3 の弱強磁性を誘起する電子状態の特定に成功した^[6]。電荷遷移状態へのX線吸収に対応する入射エネルギーでの共鳴励起条件の時、1.8 eVのdd励起に共鳴軟X線発光におけるMCDが観測された。この励起エネルギー依存性に加え、特定の結晶方位でのみ共鳴軟X線発光におけるMCDが観測される

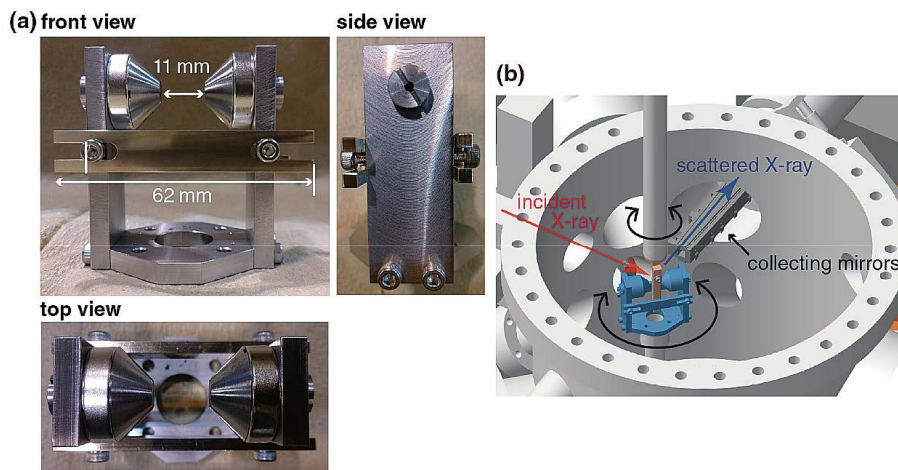


図4 軟X線発光分光用磁場印加システム。(a) Nd-Fe-B永久磁石による磁場発生装置。(b) 磁場印加軟X線発光分光測定のための実験配置。

結晶異方性も示した。実験で観測された共鳴軟X線発光におけるMCDは理論計算で再現され、FeとOに非局在した e_g 軌道でのスピンフリップ励起であることが明らかとなり、 e_g 軌道が α - Fe_2O_3 の弱強磁性を生み出す電子状態であると特定された。

2-2 時間分解・雰囲気光電子分光による触媒研究

時間分解軟X線分光実験ステーションでは超短パルスレーザーと高輝度放射光を組み合わせた時間分解光電子分光実験が実施され、様々な共同利用実験が行われた。図5にその一例を示す。光触媒 TiO_2 について、実際に反応の起こる結晶表面を制御及び評価を行なって、光励起キャリアの寿命を調べた。その結果、寿命は表面での酸素欠陥密度及び表面ポテンシャル障壁の大きさに相関関係があることが定量的に見出され、光励起キャリアダイナミクスの決定因子を解明することができた^[7]。

また、本ビームラインでは東大物性研の吉信・松田（巖）グループらは雰囲気光電子分光（AP-XPS）システムをフリーポートステーションに導入し、それを用いて温室効果ガスの CO_2 分子を CH_3OH や CH_4 などの化学エネルギー材料に変換する触媒反応の研究を実施してきた。遷移金属触媒を中心に反応ガス雰囲気下における金属原子の化学状態（電子状態）変化がリアルタイム観測されており、その反応機構が段階的に明らかにされてきている。

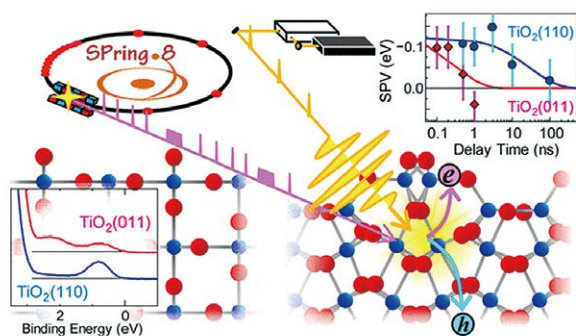


図5 時間分解軟X線光電子分光実験の様子^[7]。実験はレーザーと放射光パルスのポンプ-プローブ法で行われた。

参考文献

- [1] S. Yamamoto *et al.*: *J. Syn. Rad.* **21**, (2014) 352.
- [2] Y. Kubota, Y. Hirata, J. Miyawaki, S. Yamamoto, H. Akai, R. Hobara, Sh. Yamamoto, K. Yamamoto, T. Someya, K. Takubo, Y. Yokoyama, M. Araki, M. Taguchi, Y. Harada, H. Wadati, M. Tsunoda, R. Kinjo, A. Kagamihata, T. Seike, M. Takeuchi, T. Tanaka, S. Shin, and I. Matsuda: *Phys. Rev. B* **96**, (2017) 214417.
- [3] Y. Kubota, M. Taguchi, Sh. Yamamoto, T. Someya, Y. Hirata, K. Takubo, M. Araki, M. Fujisawa, H. Narita, K. Yamamoto, Y. Yokoyama, S. Yamamoto, M. Tsunoda, H. Wadati, S. Shin, and I. Matsuda: *Phys. Rev. B* **96**, (2017) 134432.
- [4] Y. Kubota, Sh. Yamamoto, T. Someya, Y. Hirata, K. Takubo, M. Araki, M. Fujisawa, K. Yamamoto, Y. Yokoyama, M. Taguchi, S. Yamamoto, M. Tsunoda, H. Wadati, S. Shin, and I. Matsuda, *J. Elec. Spec. Rel. Phenom.*, **220**, (2017) 17.
- [5] J. Miyawaki, S. Suga, H. Fujiwara, H. Niwa, H. Kiuchi, and Y. Harada, *J. Syn. Rad.* **24**, (2017) 449.
- [6] J. Miyawaki, S. Suga, H. Fujiwara, M. Urasaki, H. Ikeno, H. Niwa, H. Kiuchi, and Y. Harada: *Phys. Rev. B* **96**, (2017) 214420.
- [7] K. Ozawa, S. Yamamoto, R. Yukawa, R.-Y. Liu, M. Emori, K. Inoue, T. Higuchi, H. Sakama, K. Mase, and I. Matsuda: *J. Phys. Chem. C* **120**, (2016) 29283.

東京大学放射光分野融合国際拠点（東京大学物性研究所）
松田 巖、原田 慈久、和達 大樹

BL33XU 豊田ビームライン

1. はじめに

BL33XU（豊田ビームライン）は、（株）豊田中央研究所が管理・運営するビームラインである。2009年4月にコミッショニングを行い、2009B期より利用を開始した。これまでの6年の間に、当初の計画にあった高速X線吸収微細構造（XAFS）測定技術と3次元X線回折（3DXRD）顕微鏡技術に加えて、X線小角散乱（SAXS）測定および多軸ゴニオメータによるX線回折（XRD）測定も実現してきた。本報告では、豊田ビームラインの現状と主な研究成果を示す。

2. ビームラインの概要

2-1 全体構成

豊田ビームラインは中尺ビームラインで、リング棟内には光学ハッチのみがあり、主な設備はリング棟外の豊田ビームライン実験棟内に設置してある。図1に光学系の概略構成を示す。本ビームラインは、2種類の分光器を有しており、それぞれがほぼ独立した2つの光学系として利用できる。第1光学系（Optics 1）は光学ハッチ内の横振りミラー（M1, M2）、実験ハッチ1内のコンパクト分光器（C-Mono）と高次光カット用の縦振りミラー（M3, M4）からなり、主に高速XAFS測定に用いている。ミラーの湾曲機構を用いることで、試料位置でのビームサイズを0.2～数mmまで可変にすることが可能である。第2光学系（Optics 2）は、基本的には、光学ハッチ内の2結晶分光器（DCM）だけの構成で、高次光カットが必要な場合は縦振りミラー（M4, M5）を用いる。さらに実験ハッチ3にK-Bミラー（KBM）が設置してあり、

最大エネルギー 50 keVで約1 μm のマイクロビームを利用することができる。XAFS以外のほとんどの測定には、後者の光学系を用いている。

2-2 測定手法

現状の豊田ビームラインで利用できる測定手法は、実験ハッチ2でXAFSとSAXS、実験ハッチ3でXRDと走査型3DXRDである。以下に簡単に主な特徴と2016年度の技術的進展を示す。

(1) XAFS

専用に開発したコンパクト分光器による高速測定を特徴としている。コンパクト分光器はSi（111）およびSi（220）のチャンネルカット結晶を、それぞれサーボモーターに直結して最速50 Hzで結晶を回転振動させることで、10 msecでのスペクトル測定を可能としている^[1]。コンパクト分光器で測定できるエネルギー範囲は4.5～45 keVである。計測系には高速な24bit A-D変換器（National Instruments製 PXI-5922）を用いることで高いS/N比での測定を実現している。

各種の*in situ*測定技術も開発しており、リチウム二次電池の充放電に伴う正・負極の状態解析を同時に行うためのXAFS・XRDの同時測定も実現している^[2]。

(2) SAXS

カメラ長は数十cmの広角から4.5 mまでの小角測定が可能となっている。検出器にはDECTRIS製PILATUS 300Kを用いている。SAXSでも各種の*in situ*測定技術を開発しており、最近では樹脂の射出成形時の構造形成過程のその場観察を実施している^[3]。

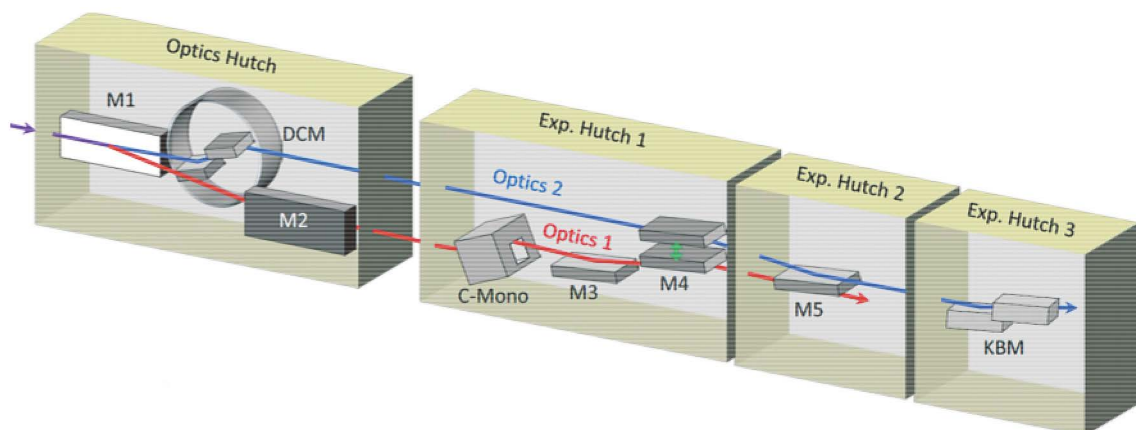


図1 豊田ビームラインの光学系の構成

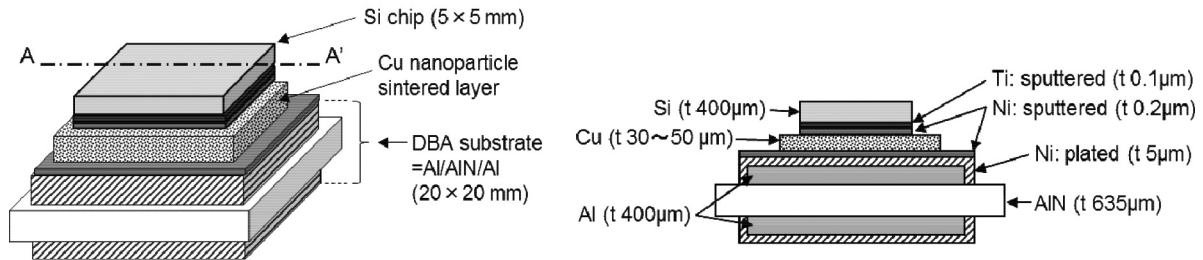


図2 パワーモジュールの構成例
外観（左）、A-A'断面（右）

(3) XRD

水平2θ軸を有するX線回折用の多軸ゴニオメーター（Huber製）を設置している。検出器としてPILATUS等の2次元検出器を用いた回折測定を可能とするため、新規に自転・公転型スパイラルスリットを開発し、試料中の任意のピンポイント領域からの回折ピークの測定を可能としている。スリット形状を検討したことで、測定領域や回折角を変化させた際にも測定領域が一定になるようになっていることに加え^[4]、スリットとPILATUS検出器を水平方向に回転させて測定することにより、広い角度範囲の回折スペクトルの取得を可能とした^[5]。

(4) 走査型3DXRD

多結晶金属の結晶構成を非破壊で解析する3次元XRD手法はいくつか提案・開発が成されているが、我々が必要とする実用的な材料の解析には原理的に困難な点があるため、オリジナル技術として走査型3DXRD手法を開発してきた。2013年度までに原理検証実験を完了し、2015年度に高エネルギーマイクロビームを用いた高分解能での走査型3DXRD解析を実現した^[6]。この手法の特徴は、マイクロビームによる回折情報を用いて再構成していることから、結晶粒の平均情報ではなく空間分布が得られることである。そのため、粒子の平均方位だけでなく粒内の方位分布も得られることにあり、塑性変形による粒内のひずみの分布を得ることも可能である。

(5) トモグラフィ、ラミノグラフィ

非破壊での材料内部の高分解能構造解析ニーズの高まりに対応するため、X線コンピュータトモグラフィ（CT）およびラミノグラフィ観察技術を導入した。CTでは1μm以下の分解能が得られており、近年ラミノグラフィでも約1μmの分解能での構造観察が可能となってきた^[7]。

3. 主な研究成果

(1) ラミノグラフィによるパワーモジュール接合材の内部挙動追跡^[7]

ハイブリッド車を含む電動自動車の重要部品のひとつにパワーモジュールがある。その性能向上と低価格化のため、モジュールの小型化と高温動作化が進むと考えら

れており、熱密度の大幅な増加が見込まれる。将来的には現行のはんだでは耐久性が不十分と見込まれるため、高温でも信頼性の高い接合方法が必要とされている。その一つの候補として、銅や銀のナノ粒子接合法が検討されている。本研究では銅のナノ粒子を接合材としてモジュールを組み、接合材内部の劣化過程を非破壊で追跡観察するための手法を検討した。

パワーモジュールは図2に示すような扁平な構造をしているため、通常のCT法では観察できない。平板形状試料の観察に適したラミノグラフィ法を適用し、最適な観察条件を見出した。試料はSi基板をDBA（Al/AlN/Alの積層体）に銅のナノ粒子で積層したモジュールで、ナノ粒子銅の厚さは30～50μmである（図2）。ラミノグラフィ計測は、29 keVの放射光を用いて、試料を30度傾斜した回転ステージに設置し、3600枚/360°で透過像を撮影した。図3は1.3μm/pixelの条件で測定したナノ粒子銅の断面像を示す。空孔（黒い部分）に加えて20～50μmの明るい領域が観察されている。空孔は焼結時にガスが抜けた領域で、明るい領域は同粒子が密に集合した部分と考えられる。0.33μm/pixelの条件で観察した場合の分解能は1μm程度であった。

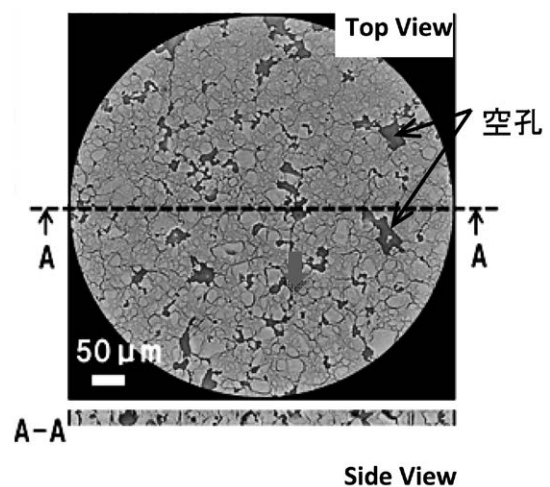


図3 Cuナノ粒子層の再構成像
Si側から見た断面（上）、A-A'断面像（下）

本観察技術により、銅粒子を明確に観察が可能であることが確認された。これにより、パワーモジュールを非破壊のままで、内部で発生する劣化挙動の追跡が可能になった。

(2) コンピケミ薄膜試料に対するハイスループットXRD-XRF同時分析^[8]

近年、マテリアルインフォマティクス (MI) による新規材料探索が検討されている。しかし、現状のデータベースでは新規材料探索に十分なデータ数が登録されているとはいえないため、目的に応じた材料系を大量に作成・計測してデータベースの補完を行うことが必要となっている。今回、この目的のために、インクジェット成膜法で組成を変化させた薄膜を基板上に多点製膜し、XRDと蛍光X線 (XRF) の高速同時計測法を検討した。

試料は市販のインクジェットプリンタのインクタンクに金属硝酸塩水溶液を入れて印刷・焼成することにより成膜した (図4)。XRD計測にはPILATUS 300KをXRF測定には4素子SDDを用いて、1試料あたり数秒で測定した (図5)。これにより、81点/基板試料を15分程度で測定できることがわかった

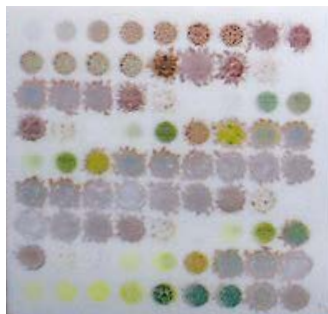


図4 インクジェットプリンタを利用して作成した試料
□ 30×30 mm アルミナ基板上に81種類のライブラリを成膜

参考文献

- [1] T. Nonaka et al.: *Rev. Sci. Instrum.* **83**, (2012) 083112.
- [2] 田辺稔貴, 高木秀樹 他: SPring-8利用課題実験報告書 2015B7001.
- [3] 原田雅史 他: SPring-8利用課題実験報告書 2015A7003, 2015B7003, 7012.
- [4] 木村英彦 他: SPring-8利用課題実験報告書 2014A7012, 2015B7012.
- [5] 木村英彦 他: SPring-8利用課題実験報告書 2015B7012.
- [6] 林雄二郎, 妹尾与志木: SPring-8利用課題実験報告書 2016A7002, 2016B7002.
- [7] 木村英彦 他: SPring-8利用課題実験報告書 2015A7012, 2016A7012
- [8] 田島伸 他: SPring-8利用課題実験報告書 2016B7030

(株) 豊田中央研究所 分析部
堂前 和彦

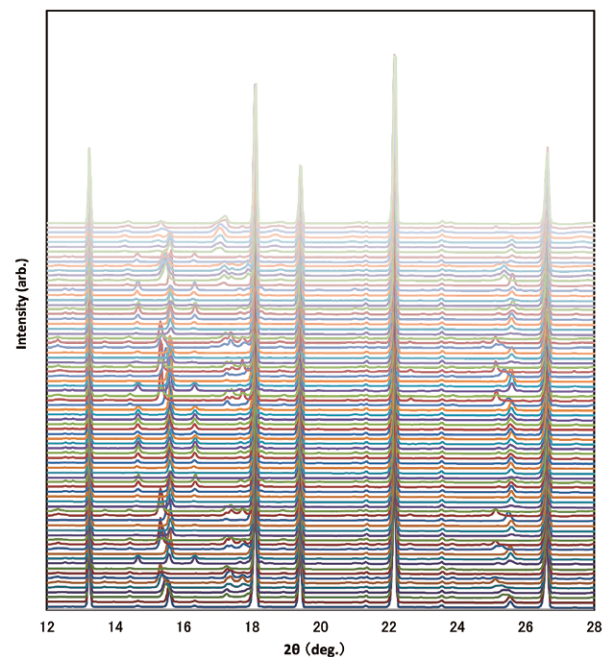


図5 81試料のXRD図形 (測定時間約15分)

BL28XU 革新型蓄電池実用化促進基盤技術開発ビームライン

電気自動車やプラグインハイブリット車などに代表される次世代自動車の研究開発は、二酸化炭素削減のための切り札となる技術開発の1つである。この次世代自動車に共通するコア技術が蓄電池技術であり、蓄電池技術の優劣が次世代自動車の市場競争力を左右すると考えられる。そこで、我々は現状のリチウムイオン蓄電池 (Li ion secondary battery: LIB) を超えるエネルギー密度を持ち、LIB並みの耐久性や寿命を有するポストLIBの研究開発を目的に、NEDOの受託研究として2016年から革新型蓄電池実用化促進基盤技術開発 (RISING2) 事業を行っている。このRISING2は、革新型蓄電池先端科学基礎研究 (RISING) 事業の後継事業と位置付けられ、RISINGで得られた革新型蓄電池の知見を活用し、ナノ界面制御蓄電池や硫化物蓄電池、亜鉛空気蓄電池などの4つの革新型蓄電池を選択して、2030年の車載用蓄電池としての実用化を目指して研究を行っている。RISINGでは、これまでブラックボックスであった蓄電池内部の反応を直接観察するための技術開発のために、2011年よりSPRING-8のBL28XUに革新型蓄電池研究専用のビームラインを建設・運用し、蓄電池反応分析のための高度解析技術の確立とその電池反応分析への展開を推進してきた^[1]。そして、エネルギー分散共焦点回折技術による実電池反応^[2, 3]や、X線回折分光解析による活物質内部の格子位置毎の蓄電池反応観察に基づく蓄電池劣化解析^[4-6]や、硬X線光電子分光による電極表面測定による電極表面被膜の役割解析^[7]などの技術開発を行ってきた。

RISINGでの成果に基づいて、RISING2では幅広い時間スケールにおいて (1) 反応分布発生要因解明、(2) 活物質反応解析と非平衡挙動解明、(3) 電極/電解質界面現象解明の3つの蓄電池研究課題に整理し、これらの課題解決に向けた位置分解能の向上や測定効率の向上による測定時間の改善のための技術開発を進めている。さらに、RISING2では新たに (4) 電解液、電解質、これらの物質と電極界面の非晶質界面層などのランダム系物質形成機構解明と、(5) 蓄電池内部で発生する熱力学的あるいは物理的不安定化現象解明のための技術開発に取り組んでいる。

1. ビームライン光学系の高度化 (高安定、高エネルギー利用)

RISING2での課題解決に向けた位置分解能の向上や測

定時間の改善のために、ビームライン光学系の改良を行った。車載用蓄電池の実用化に向けたエネルギー密度向上のために厚膜化した電極や数cmスケールの実電池の反応分布を分析するためには、高いエネルギーのX線を用いて物質透過能を高める必要がある。これまでBL28XUの光学ハッチ内に設置されているSi (111) チャネルカットモノクロ分光器は、5 keV – 30 keV までのエネルギー領域が利用できたが、より高指数面のSi (220) チャネルカットモノクロ分光器を増設することで5 keV – 42 keVまでの高エネルギーX線が利用可能となった。また、水冷式のM2ミラーを液体窒素冷却に改良することでビーム安定性の向上も試みた。以上のビームライン光学系の高度化により、例えば単セルにおけるエネルギー分散共焦点X線回折では、これまで厚さ100 μm 電極に対して30 μm の空間分解能であったが、高エネルギーの利用も含めた種々の条件を最適化することにより厚さ150 μm 電極に対して20 μm まで空間分解能を向上できた。また、42 keVの高エネルギーX線が利用可能になったことでより厚い実電池の反応分布解析が可能となった。以上のように、高エネルギーX線領域を拡充することにより、より実用的な実電池内部での反応を追跡できる技術開発の基盤を整備した。

2. 全散乱測定によるアモルファス金属多硫化物の充放電メカニズムの解明

近年、革新型蓄電池の有力候補として、高容量化が期待できる硫化物電池が注目されている。中でもアモルファスチタン多硫化物 (a-TiS_4) を代表とする金属多硫化物は正極として高い理論容量 (700 mAh g^{-1}) を有し、遷移金属を含むため、単体硫黄などに比べ高い導電性を示し、また金属-硫黄結合を有するため、電解液中への溶出が抑制されるという利点を持つ。これらの材料に特有な充放電メカニズムを明らかにすることは、高いエネルギー密度を有する電極材料を設計する上で重要であるが、これらの材料はいずれも低結晶性もしくは非晶質であるため、通常の回折法では構造を詳細に検討することが難しい。そこで、X線全散乱による二体分布関数 (pair distribution function: PDF) 法と第一原理分子動力学計算 (density functional theory-based molecular dynamics: DFT-MD) を組み合わせることで、 a-TiS_4 の充放電メカニズムを明らかにした。その結果、 a-TiS_4 の充放電メカニズムは、典型的なインターカレーション型でもなく、コンバー

ジョン型でもなく、両者が混ざりあったものだとわかった^[8]。Li量を制御した各 $a\text{-Li}_x\text{TiS}_4$ ($x = 0 - 4$) 電極に対してPDF解析を行うと、2.0、2.4、3.4 ÅにそれぞれS-S結合、Ti-S結合、第2近接S-S相関に帰属されるピークが現れる。放電にともないS-S結合が減少したことから、S-S結合が解離したことが示唆され、同時にTi-S長の収縮、第2近接S-S長の膨張が確認されたことから、Ti周りのSの配位数が減少することが示唆された。充放電に伴いこの構造変化は可逆的に起きることが分かった。DFT-MDを用いたアモルファス構造のモデル計算でも実験結果をおおよそ再現する結果を得た。さらに、Ti K-edge 及びS K-edge XAFS測定からは充放電前後で両元素の電子状態が連続的に変わり、両元素ともRedox反応に寄与していることが分かった。さらに、Ti K-edgeでは放電に伴いpre-edge領域の強度が減少したことからTi周りの配位数が6配位から減少していることが分かった。また、Tiや Li_2S のようなコンバージョン反応生成物は、XANES及びXRDパターンからは観測されなかったことから、 $a\text{-TiS}_4$ の充放電メカニズムにはアモルファスな宿主構造へのコンバージョン反応とインターカレーション反応の両方が関与していることが示唆された。以上のように、S-S結合の解離／形成とTi配位数の連続的な変化を捉えることで、アモルファス金属他硫化物の特徴的な充放電メカニズムを明らかにすることができた。これらの成果は、革新型蓄電池の今後の電極材料設計に広く適用できる極めて重要な知見である。また、これらのランダム系の構造分析技術は、革新型蓄電池の充放電メカニズムを明らかにするうえで、なくてはならない必須のツールとなることが期待される。

3. 亜鉛空気電池の酸素発生触媒の電子状態解析

近年、革新型蓄電池の有力候補として、高容量化が期待出来る多価金属電極が注目されている。中でも亜鉛負極は高い理論容量 ($820 \text{ mAh Zn-g}^{-1}$) を有しながら比較的高い水素発生過電圧を示すため、伝導率と安全性に優れた水系電解液の利用が可能となっており、ニッケル亜鉛電池、亜鉛空気電池などを中心に研究されてきた。しかしながら、空気極での酸素還元反応 (oxygen reduction reaction: ORR) と酸素発生反応 (oxygen evolution reaction: OER) の大きな過電圧が問題となっており、実用化には貴金属フリーで強アルカリ条件下でも安定且つ高活性な電極触媒の開発が必須である。特にアルカリ中で安定なOER電極触媒は、 RuO_2 や IrO_2 等の貴金属触媒に限られており、より豊富な遷移金属元素からなる高活性触媒が強く求められている。近年我々は、ブラウンミラー型 $\text{Ca}_2\text{Fe}_{2-x}\text{Co}_x\text{O}_5$ ($x = 0 - 1.0$) が非常に高いORR活性を有することを見出した^[9]。特に $x = 1.0$ の $\text{Ca}_2\text{FeCoO}_5$ は、貴金属 RuO_2 や遷移金属酸化物中最高活

性の $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{O}_3$ よりも高い触媒活性を示すことがわかった。ブラウンミラー構造 ($\text{A}_2\text{B}_2\text{O}_5$) は、ペロブスカイト構造 (ABO_3) 群の一つであり、4配位 (T_d : BO_4) と6配位 (Oh : BO_6) の構造が交互に層状となっている酸素欠損を伴ったペロブスカイト構造である。この安定なペロブスカイト格子中に高密度の酸素欠損を有することが高い触媒活性に起因していると考えられ、FeとCoが共存することで極めて高い触媒活性を発現している。そこで、上記材料の4配位と6配位構造中に占める遷移金属の割合を明らかにするために、Fe K-edge及びCo K-edge XAFS測定を行った。その結果、 T_d 配置のFeに起因するpre-edgeピークの相対強度は、Co量が0.5までは一定だが、置換量がさらに増えると減少し始めたことから、Coがまず O_h 層を優先的に置換し、Co量が0.5を超えると T_d 層を置換し始めることが分かった。DFT計算によるエネルギーダイアグラムでもこのようなサイト選択性を支持する結果を得た。このようにBL28XUでは同プロジェクト内で得られた新規材料の研究を迅速に推進できるように、高度解析技術を提供すると共に解析技術のプラットフォーム化を目指して蓄電池課題解決に基づいた解析技術の開発を実施している。

謝辞

本稿で取り上げた研究開発は、NEDOの革新型蓄電池実用化促進基盤技術開発事業 (RISING2) による支援を受け実施した。

参考文献

- [1] H. Tanida, K. Fukuda, H. Murayama, Y. Orikasa, H. Arai, Y. Uchimoto, E. Matsubara, T. Uruga, K. Takeshita, S. Takahashi, M. Sano, H. Aoyagi, A. Watanabe, N. Nariyama, H. Ohashi, H. Yumoto, T. Koyama, Y. Senba, T. Takeuchi, Y. Furukawa, T. Ohata, T. Matsushita, Y. Ishizawa, T. Kudo, H. Kimura, H. Yamazaki, T. Tanaka, T. Bizen, T. Seike, S. Goto, H. Ohno, M. Takata, H. Kitamura, T. Ishikawa, T. Ohta and Z. Ogumi: *J. Synchrotron Radiat.* **21**, (2014) 268.
- [2] H. Murayama, K. Kitada, K. Fukuda, A. Mitsui, K. Ohara, H. Arai, Y. Uchimoto, Z. Ogumi and E. Matsubara: *J. Phys. Chem. C* **118**, (2014) 20750.
- [3] 村山美乃, 北田耕嗣, 福田勝利: 放射光 28, (2015) 161.
- [4] T. Kawaguchi, K. Fukuda, K. Tokuda, K. Shimada, T. Ichitsubo, M. Oishi, J. Mizuki and E. Matsubara: *J. Synchrotron Radiat.* **21**, (2014) 1247.

- [5] T. Kawaguchi, K. Fukuda, K. Tokuda, M. Sakaida, T. Ichitsubo, M. Oishi, J. Mizuki and E. Matsubara: *Phys. Chem. Chem. Phys.* **17**, (2015) 14064.
- [6] 河口智也, 福田勝利, 市坪哲, 大石昌嗣, 水木純一郎, 松原英一郎: 放射光 **28**, (2015) 124.
- [7] K. Shimoda, T. Minato, K. Nakanishi, H. Komatsu, T. Matsunaga, H. Tanida, H. Arai, Y. Ukyo, Y. Uchimoto and Z. Ogumi: *J.Mater. Chem. A* **4**, (2016) 5909.
- [8] Atsushi Sakuda, Koji Ohara, Katsutoshi Fukuda, Koji Nakanishi, Tomoya Kawaguchi, Hajime Arai, Yoshiharu Uchimoto, Toshiaki Ohta, Eiichiro Matsubara, Zempachi Ogumi, Toyoki Okumura, Hironori Kobayashi, Hiroyuki Kageyama, Masahiro Shikano, Hikari Sakaebe, and Tomonari Takeuchi: *J. Am. Chem. Soc.* **139**, (2017) 8796.
- [9] Etsushi Tsuji, Teruki Motohashi, Hiroyuki Noda, Damian Kowalski, Yoshitaka Aoki, Hajime Tanida, Junji Niikura, Yukinori Koyama, Masahiro Mori, HajimeArai, Tsutomu Ioroi, Naoko Fujiwara, Yoshiharu Uchimoto, Zempachi Ogumi, and Hiroki Habazaki: *ChemSusChem* **10**, (2017) 2864.

京都大学産官学連携本部
木内 久雄

BL36XU 先端触媒構造反応リアルタイム計測ビームライン

1. 概要

BL36XUは、電気通信大学が中心となり、分子科学研究所、名古屋大学が参画し、新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）プロジェクトの研究開発テーマ「固体高分子形燃料電池実用化推進技術／基盤技術開発／MEA材料の構造・反応・物質移動解析開発／時空間分解X線吸収微細構造（XAFS）等による触媒構造反応解析」から支援を受け建設したビームラインである。BL36XUは、燃料電池の中で、特に自動車や家庭定置用に用いられる固体高分子形燃料電池（PEFC）をターゲットとしており、高い時間・空間分解能をもつ燃料電池計測専用XAFSビームラインと計測機器群を駆使して、燃料電池発電動作下における電極触媒のナノ構造・電子状態変化、化学反応過程および劣化過程をリアルタイムでその場観察し、それらのメカニズムを時間軸と空間軸で解明することにより、燃料電池電極触媒の高性能化および高耐久性を実現するために必要な基盤情報を提供することを目的としている。

BL36XUでは、2016年度は39課題を実施し、順調に運用を行っている。以下に、2016年度に実施した主な計測システムの開発と利用成果について報告する。

2. 新規計測システムの開発・高度化

2-1 *in-situ* 高分解能 XANES 計測システムの開発

燃料電池性能を左右する電極触媒活性は、触媒表面上に吸着する化学種に大きく依存する。このため、表面化学吸着種の解明は、燃料電池電極触媒開発において重要な情報となる。本研究開発では、燃料電池駆動下でPt触媒粒子表面の化学吸着種の直接的な観察を行うことを目的として、*in-situ* 高分解能 XANES 計測システムを構築した。図1に本計測システムの配置を示す。実燃料電池セルから発せられた蛍光X線は8台の湾曲球面アナライザー結晶（Ge 660）により分光され、2次元X線ピクセル検出器により検出される。本計測システムにより、燃料電池の最も一般的な電気化学性能評価法であるサイクリックボルタンメトリー計測を行いながら高分解能 XANES 測定を行うことにより、触媒粒子上の化学吸着種のセル負荷電位依存性を観察することに成功した。

2-2 完全大気圧 HAXPES 計測システムの開発

近年、準大気圧硬X線光電子分光装置の開発により、

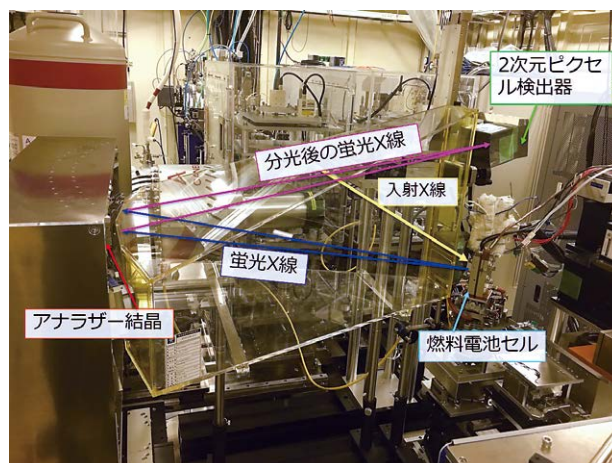


図1 高分解能 XANES 計測システム概観。

ガス雰囲気下の試料に対する硬X線光電子分光測定法が確立されているが、従来報告されている測定ガス圧は最大で15,000 Pa（約0.15気圧）程度であった。BL36XUでは、準大気圧硬X線光電子分光装置の分光器への光電子の取り込み口（アパーチャー）と試料との距離をできる限り短くすることにより光電子の移動距離を短くすると共に、アパーチャーの開口径を小さくする改良を行った。数十 μm の小径のアパーチャーを精密に製作するには高度な加工技術が必要である。本研究開発では、分子科学研究所の機器センターと協力し、まずチタンを円錐形に加工し、その先端に集束イオンビーム加工により30 μm の穴をあけることにより、分光器の先端に取り付けるフロントコーンを作製した。これに併せ、アパーチャーの直径よりも小さくX線を集光し、試料の位置を精密に制御するシステムを整備することにより、完全大気圧下（約100,000 Pa）での光電子分光測定に世界で初めて成功した^[1]。本装置を用いて、触媒反応や燃料電池の電極反応など固体とガスの反応を大気圧下で直接観察することが可能となり、様々な分野に広く利用されていくことが期待できる。

3. 利用成果

3-1 *in-situ* XAFS/XRD 同時時間分解計測による電極触媒の過渡応答過程反応素過程の解明^[2]

BL36XUで開発された*in-situ* 時間分解 XAFS/XRD 同時計測システム（時間分解能：60 ms）を用いて、燃料電池電極触媒Pt/Cの過渡応答過程（0.4 V_{RHE} → 1.4 V_{RHE} → 0.4 V_{RHE} ）の反応素過程の解明に成功した。本計測シス

テムにより、XANESデータからwhite line高さ、EXAFSデータからPt-Pt結合およびPt-O結合の配位数、XRDデータからPt粒子のコア結晶子粒径に対する電位過渡応答に対する時間変化が得られた。これらのデータ群から、過渡応答過程では8つの反応素過程があることが分かり、それらの速度定数が決定された。

3-2 アノードガス交換に伴う触媒劣化過程の解明^[3]

PEFCの起動・停止を想定したアノード極への供給ガス切り替えサイクルがPt/Cカソード電極触媒に及ぼす影響について、100 ms時間分解XAFS計測を用いた検討を行った。PEFC印加電位を0.4 V_{RHE} → 1.0 V_{RHE}あるいは1.0 V_{RHE} → 0.4 V_{RHE}へ瞬時に切り替えた際のXAFSスペクトルを解析すると、アノードガス切り替え回数の増加に伴い、電位変化前後のPt価数、Pt-O結合、Pt-Pt結合のそれぞれの変化量および変化速度定数が減少していくことが分った。この結果から、アノードガス交換に伴う触媒劣化によってPt/Cカソード電極触媒の状態は、(1)元の状態のまま、(2)炭素担体が腐食したために担体からPt粒子が剥がれ落ちた状態、(3)それらの中間の状態、の3つに分類されることが示唆された。

3-3 *in-situ* 投影型CT-XAFS計測による触媒劣化過程の可視化^[4]

劣化過程におけるPEFC電極膜内のPt/Cカソード触媒の3次元化学状態イメージングを行うことを目的として、*in-situ* 角度制限投影型CT-XAFS計測を行った。PEFCに対して、0.6 V_{RHE} – 1.0 V_{RHE} 矩形電位印加による劣化加速試験を20000サイクルまで実施し、劣化前と各劣化段階における電極膜内の同一観察領域に対するPt L_{III}端CT-XAFS計測を、セル電位：1V負荷下で行った。加速劣化試験の進行に伴い、Pt/Cカソード触媒が電解質膜へ溶出し、Ptの価数変化を伴いながら凝集・劣化していく様子を3次元イメージングすることに初めて成功した。

謝辞

BL36XUの維持管理、運営および高度化に当たっては、JASRI、理化学研究所の多くの方々より、多大な協力・支援を頂いている。深く謝意を表したい。BL36XUの運転は、NEDOプロジェクト「固体高分子形燃料電池利用高度化技術開発／普及拡大化基盤技術開発／触媒・電解質・MEA内部現象の高度に連成した解析、セル評価／サブテーマ「MEA劣化機構解明」」から支援を受けている。

参考文献

- [1] Y. Takagi, Y. Iwasawa, T. Yokoyama, *et al.*: *Appl. Phys. Express*, **10** (2017) 076603-076606.
- [2] O. Sekizawa, Y. Iwasawa, *et al.*: *ACS Sus. Chem. & Engineering*, **5.5** (2017) 3631-3636.
- [3] K. Higashi, Y. Iwasawa, *et al.*: *J. Phys. Chem. C*, **121** (2017) 22164-22177.
- [4] H. Matsui, T. Uruga, M. Tada, *et al.*: *Angew. Chem. Int. Ed.*, **56** (2017) 9371-9375.

電気通信大学

岩澤 康裕、関澤 央輝

坂田 智裕、東 晃太郎

電気通信大学、JASRI

宇留賀 朋哉

名古屋大学、理化学研究所

唯 美津木

自然科学研究機構 分子科学研究所

横山 利彦、高木 康多

2-4 制御

1. 制御フレームワーク

1-1 制御フレームワーク整備

加速器及びビームラインをMADDOCA IIフレームワークを用いて運用してきた経験から得られた知見をフレームワークへ反映させた。クライアントライブラリに関しては使用するリソースの削減や異常終了するバグなどの問題を修正した。MADDOCA IIデータ収集フレームワークについては、イベント駆動型データ収集機能の追加、可変長データ収集機能の追加、間引きオプションの追加を行った。また、Equipment Managerに管理オブジェクトを追加し、初期化エラー等の問題発見の容易化や設定のリロード等に対応した。

1-2 データ収集管理GUI

全系のデータ収集系の状態を一括監視、操作するためのユーザインターフェイスを作成し、実運用に提供した。これにより加速器の立ち上げ時や停電後のデータ収集系の一括再起動やトラブル後の復旧作業が容易になった。

1-3 演算型データ収集への対応

例えば、蓄積電流値から演算によって蓄積ビーム寿命を求めているが、このようにデータベース上の1次データを読んで演算して得られる2次データをさらにデータベースに記録する為の汎用的なソフトウェアを整備した。そしてこのデータ収集ソフトウェアを、ビーム寿命の記録や入射に同期したビーム位置データの抽出などに適用した。

1-4 信号登録用Webインターフェイス

データ収集を行う信号については、その収集リストを機器担当者が表計算ソフトを用いて作成し、データベース担当者が整合性等のチェックを行った上でデータベースに反映した後、機器担当者がデータ収集系を立ち上げ、内容の確認を行っている。整合性などに問題があった場合、データベース担当者と機器担当者間で内容の修正、再チェックを行う必要があり手間がかかっていた。このため長期点検調整期間でないと多くの信号登録を行う事は難しかった。

そこで機器担当者が事前にチェックまで行うことができるよう信号登録用Webユーザインターフェイスを作成し、データ収集の信号登録の簡素化・自動化を図った。このシステムでは、現在の信号登録との整合性を確認し

つつ、信号登録ができるようになっており、3月末に導入試験を完了した。

2. 加速器制御系

2-1 計算機制御系

計算機制御系では、加速器及びビームライン制御に関わるサーバ計算機、オペレータ端末ならびにデータベースシステムについて、以下のとおり維持・管理及び高度化研究を行った。

2-1-1 データベースシステムの維持管理・高度化

SPRING-8制御系データベースシステムの動作不具合に対し修正を実施した。このシステムはオンラインデータ参照及びデータ蓄積にKey-Value型NoSQL分散データベースのRedisとApache Cassandraを使用する。RedisとApache Cassandraシステムは共に複数の計算機ノードで冗長構成され、単一障害点を持たないことが特徴で、構成するハードウェアに故障があっても基本的に運用を止めることなく対処・修復できる。

Redis計算機の不具合として、オペレーティングシステムのシステムライブラリのバグにより計算機の1台が動作を停止した件、データ中継プロセスの1つが不正な信号名を扱った際に異常終了した件があった。上記のとおりRedis計算機は冗長構成のため、いずれも加速器運転に支障はなかった。前者はライブラリを最新版に更新し、後者はプログラム修正を行なって不具合を解消した。

Apache Cassandraシステムでは、計算機の3台が同時に約15分間停止し、その間一部のデータが蓄積できなくなるトラブルが発生した。原因は、10 Hzで収集している特定のデータの蓄積サイズが巨大となり、Apache Cassandraサーバが定期的に行うデータ整理プロセスの負荷が上昇したためと判明した。対策として、通常一日毎のデータをまとめてデータセットとして記録する構造を、当該信号については1分毎のデータセットに変更し、データサイズが巨大にならないようにした。

また、SACLAをSPRING-8への入射器として利用する計画に対応するため、SACLAとSPRING-8の制御システムを統合する準備作業を開始した。現在は両者が異なるデータベースシステムで運用されており、制御系統合のためにはデータベースシステムも統一する必要がある。2016年度は両システムの調査とシステム統合にむけた要

件・仕様の検討を実施した。

2-1-2 制御プログラム開発用ファイルサーバ更新

SPRING-8制御中立系ネットワーク上にあるSPRING-8/SACLA加速器制御プログラムのソースコードや、コンパイルした実行形式等を保存する制御プログラム開発用ファイルサーバの老朽更新を行った。

制御プログラム開発用ファイルサーバは、物理ディスク容量9.6 Tbyte（使用可能容量約8 Tbyte）の内5 Tbyte以上を使用しており、特に制御プログラム開発用仮想計算機のイメージファイル領域と、プログラム開発者の作業領域の使用率が90%前後に達していた。今後、新たな制御系フレームワークへの対応のために、制御プログラム開発用仮想計算機のイメージや、プロトタイプを含めた実行形式ファイルの量が大幅に増える事が予定されているため、使用可能領域を大幅に増やす必要があった。

今回の更新に当たっては実装するディスクの単体容量の増加など構成を見直し、従来の2筐体、ラック占有5U構成から、1筐体4U構成とした。データ使用可能領域を約3倍の30 TB以上確保しつつ機器構成を単純化し、ディスク本数を削減することによって、導入コストとランニングコストは削減している。

また機器構成の単純化のため、高価な高回転ディスクは使用せず、仮想計算機のイメージファイル等への高速アクセスは大容量キャッシュメモリによって性能を確保している。

2-2 機器制御系

2-2-1 光伝送ボードスレーブシャーシ老朽化対策

電源及び空冷ファンの老朽化対策、保守性及び管理性の向上のため、2012-2013年度に開発した新型光伝送ボードスレーブシャーシへの更新を行った。2016年度は21台を更新し、これで全64台中57台のシャーシ交換が完了した。残り7台は2017年度に実施する予定である。

2-2-2 VME 計算機老朽化対策

経年劣化が著しい2台のVME計算機（vaceq_11、montune）について、電源やファンの交換が活線で容易に行える新型VMEシャーシに交換した。点検調整期間中に実施した定期点検において不具合が見つかったVME計算機（srmonloss-c-01）のシャーシ用電源を予備品と交換した。

2-2-3 Motor Control Unit (MCU) 用Graphic Operation Terminal (GOT) 老朽化対策

MCUは導入からすでに13年が経過し、本体に取り付けられているGOTの老朽化が著しく、画面が見辛い、バックライトが消えている等、現場操作に支障が出ていた

ため、全22台のMCUのGOTを交換した。従来品はすでに生産中止になっていたため、画面ソフトウェアを拡大するなどの作業を行って後継GOTを採用した。

2-2-4 加速器収納部監視システムの老朽化対策

加速器収納部監視システムは入射器と蓄積リングを合わせて38台のカメラを使用しているが、放射線等の影響で例年35台前後のカメラを交換している。2016年度も故障したカメラ31台の交換を行ったが、使用中のカメラが廃番となって新規購入が出来なかったため、監視システムソフトウェアの必要最低限の改修を施して後継カメラを新たに導入した。

2-2-5 線型加速器ビーム位置モニタ6電極化に伴う制御系更新

線型加速器のビームモニタ6台の6電極化に伴い、64+4 bit デジタル入力光伝送ボード（OPT-RMT DIボード）から128+8 bit デジタル入力光伝送ボード（OPT-RMT DI128ボード）に交換（6枚）し、同期データ収集ソフトウェアの更新も行った。

2-2-6 ブースター・シンクロトロン補正電磁石電源制御ボードファームウェア改修

ブースター・シンクロトロン補正電磁石電源制御に使用しているOPT-RMT COMBOdaoボードは電源の偏差異常を監視し、異常が発生すると出力を0Vにして電源をOFFにする機能を有する。2015年度に電磁石電源本体の更新を行った際に、この機能があることで電磁石電源の調整が滞る事態が発生した。そのため、偏差異常が発生しても電磁石電源をOFFにしないように設定できる機能をファームウェアに追加し実機に適用した。

2-2-7 蓄積リング六極電磁石電源制御の高度化と制御ボードの老朽化対策

2015年度に蓄積リング六極電磁石電源SP2に高度化と制御ボードの老朽化対策を目的としてOPT-RMT DIO Type-B Plusボードを適用した。新規ステータス信号の取り込み（8点）、出力電圧値（16 bit）の取り込みに加えて、電流設定値の20 bit化、電流モニタ値の24bit化の拡張を行い、安定に動作を継続している。2016年度はSP2以外の六極電磁石電源6台についても新電源を導入したため、これに伴い制御ボードも全てOPT-RMT DIO Type-B Plusボードに更新し、SP2と同様の拡張を行った。

2-2-8 施設監視系からのフロントエンド冷却水関係のデータ収集整備

2016年5月に発生したフロントエンド冷却水のトラブル

るに際し、トラブル対処を的確かつ迅速に行えるよう加速器データベースにこれらのデータを蓄積する必要性が生じた。加速器制御系にデータを受け渡す施設側PLCのラダープログラムの改修を理研に依頼し、データ収集ソフトウェアの改修を実施して、2016年8月からフロントエンド冷却水関係のデータ収集を開始した。

2-2-9 SSBTストリップライン、Top-up 電荷積算計のビーム入射同期収集対応

SSBTストリップラインとTop-up 電荷積算計のデータの収集については、入射の有無に関わらず1 Hzでデータを取得しており、データ確認に手間が掛かっていた。加速器部門からの要望により、データベースに蓄積されたこれらのデータからビーム入射時のデータのみを抽出して、データベースに書き込むソフトウェアを整備した。

2-2-10 蓄積リングビーム寿命のデータベースへの書き込み

従来は2次処理をしたプロセスデータについてはデータベースに書き込まないという方針があり、蓄積リングのビーム寿命は利用者各自で計算をして利用していた。しかしながらビーム寿命は加速器の重要なパラメータの一つであり、挿入光源のギャップ等との関連を直ぐに調べられるようデータベースに蓄積したいという要望が加速器運転員、及び加速器部門からあった。データベースに蓄積された蓄積電流データを読み出してビーム寿命を計算し、データベースに書き込むソフトウェアを整備した。

2-2-11 蓄積リングRFクライストロン電源更新に伴う制御系整備

2015年度に引き続き、2016年度は蓄積リングAステーション及びBステーションのRFクライストロン電源を更新した。それに伴ってFL-netを用いた制御系への更新を行った。新クライストロン電源内に設置されたPLCを2015年度に整備したFL-netネットワークに接続し、制御ソフトウェアを整備した。

2-2-12 Solaris OS に起因する24日問題への対策

マルチコアCPUとSolaris OS (32bit版) の組み合わせに起因する問題として、起動から24日後に全てのプロセスの実行が一時的にフリーズする現象がある。これに対する恒久対策として、Solaris OSを64 bit化する作業を行った。合計13種類のデバイスドライバと28ホストの64 bit化作業が完了した。64 bit化が実施できなかったマルチコアCPUホストについてはシステムのHZ値を1000から500に変更する対策を実施した。

2-2-13 ローエンド機器制御プラットフォーム整備

規格が制定されてからすでに30年が経過したVME 計算機のローエンド代替プラットフォームとしてLinux PLCを検討している。2016年度はOPT-RMT DI/DOボード用のAPI関数の移植整備を行い、PLC版光伝送マスターモジュールからSSBT電磁石電源等の制御が可能となった。

2-2-14 データ解析ソフトウェアMADOCA連携

数値解析ソフトウェアであるGNU Octave/MATLABをMADOCA制御系で直接利用出来るよう、機器やデータベースへのアクセスするためのMEX形式及びOct形式のWrapper関数を整備した。またGNU Octaveをオペレータコンソールにインストールし、MADOCAのクライアントとして利用出来るよう整備した(図1)。

2-2-15 MADOCA Ready Deviceの拡充整備

ビーム位置モニタ用信号処理システムであるLibera Brilliance+などのEPICS Ready DeviceをMADOCA制御系から簡便に利用できるよう、MADOCA-to-EPICS Gatewayを整備した(図2)。EPICSチャンネルアクセスに対応した汎用EM関数を整備し、プログラミングすることなくコンフィギュレーションファイルの設定のみでEPICS Ready Deviceの制御が出来るようになった。また従来1レコードあたり30ms程度要していたチャンネルアクセスの処理を1ms以下に改善するなど大幅なスループットの向上を実現した。これを蓄積リング34セルに設置のLibera Brilliance+、SSBT既設のLibera Brillianceや、数台の新設のLibera SPARKなど、異なるプラットフォームのdeviceに適用した。34セル設置のLibera Brilliance+用に整備したソフトウェアの構成を図3に示す。また同期

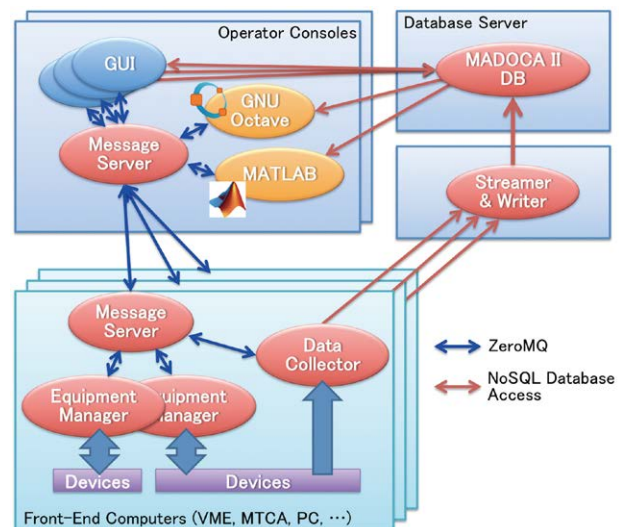


図1 MADOCA制御システムでGNU Octave/MATLABをMADOCA制御システムのクライアントとして利用

データ収集系にも適用できるよう、EMからIOCへのチャンネルアクセス操作をコールバック関数で実装するためのプロトタイプ実装を行った。

2-3 インターロック

2-3-1 加速器安全インターロック

2016年度の運用状況は大きなトラブルも無く順調であった。年1回の定期点検と年2回の自主検査を実施した。自動表示装置の劣化対策を行った。具体期には装置内部のLED表示灯と直流電源を20式交換し、これにより線型加速器、シンクロトロン、蓄積リング、L3BTエリアの劣化対策が完了した。

ビームインターロックモジュール (BIM) の劣化対策を行った。2016年度は7式のモジュール交換を実施し、全BIMの劣化対策を完了させた。

第39次変更許可申請において、シンクロトロン蓄積エネルギー超過を今後監視しないことが決定された。これに対応しインターロックシステムの改造を行った。

2-3-2 放射線データ収集システム

放射線データ収集システムは2016年度も安定に稼働した。年1回の定期点検を実施した。システムの健全性表示機能の一部に不具合が見つかり、正常であるにもかかわらず異常を示す事象がみられた。これはシステム間

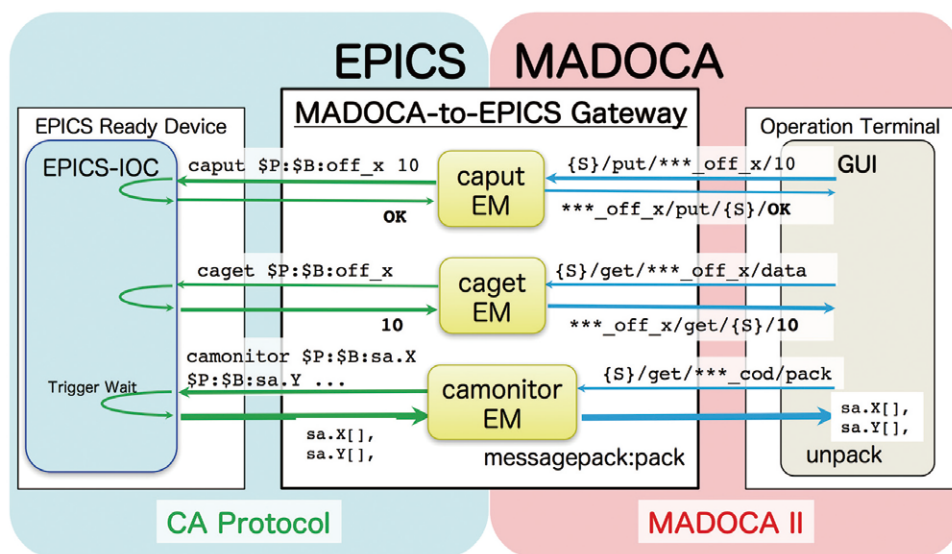
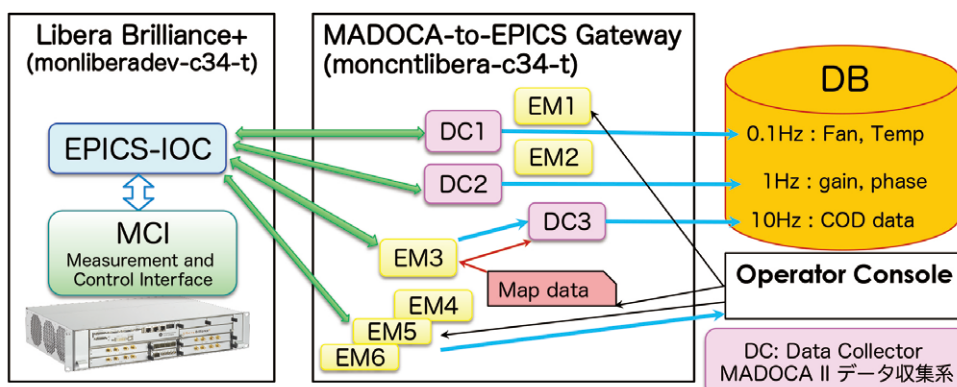


図2 MADOCA-to-EPICS gatewayの構成



- em1, dc1 : poller1 0.1Hz (status, clock), parameter set
- em2, dc2 : poller2 1Hz (maxadc, gain, phase)
- em3, dc3 : poller3 10Hz (COD mode data acquisition)
- em4 : SP mode data acquisition
- em5 : Fast acquisition 10kHz。10秒分のデータをEMでまとめて取得。
- em6 : ADC, TBT_Window, PM data

図3 蓄積リング34セルに設置した Libera Brilliance+ 用の制御ソフトウェア

ネットワーク通信時間のゆらぎに起因するものと判明した。既に対策を完了し、現在は正常動作している。

2-3-3 入退室管理システム

現行システムを導入し10年間、機器製造販売メーカーが指定する保守方法を採用し保守を実施してきたが、保守点検状況、使用状況、修理状況等を評価し保守計画及び点検の内容の見直しを実施した。その結果、保守費用の削減を行うことができた。また、ソフトウェアに関しても安定利用を継続させるために改修を検討した。2017年度詳細設計を行いシステムの改修を実施する予定である。

2-3-4 ビームライン・インターロック

インターロックシステムのソフトウェア及びハードウェアに対して計画的にメンテナンスを実施し59ビームラインを安定稼働させることができた。高度化としては、保守が容易に行える事を目的にオペレーション端末に履歴機能と時刻同期機能を導入した。

また、多くの電子部品が生産終了となり、保守が困難になりつつある。それに加え近年電子部品がICチップを搭載する等高機能化を果たしている。しかし、高機能部品は、放射線環境下において脆弱になったという一面を持つため、これまで以上に機器の選定、設置位置・放射線遮蔽などの検討を重ねていく。

2-3-5 ニュースバル 入退室管理システム・加速器安全インターロックシステム・BL01Aインターロックシステム・放射線モニタデータ収集システム

ニュースバル入退室管理システム、ニュースバル加速器安全インターロックシステム及びBL01Aインターロックシステムは2016年度も大きなトラブルも無く順調に稼働した。ニュースバル入退室管理システムは管理サーバが老朽化していたため、後継機に更新した。

ニュースバル放射線モニタリングシステムの老朽化により更新が予定されているが、後継機には放射線量積算機能が実装されていないため、線量積算・データ収集機能を持つニュースバル放射線モニタデータ収集システムを開発し仮運用に入った。2017年度中に本運用を行う予定である。

2-4 ネットワーク

2-4-1 SPring-8高性能化への対応

蓄積リングA及びBステーションのクライストロン電源更新に伴うFL-net制御導入に対応するためのネットワークを整備した。また、蓄積リングRFテストスタンド室の運転のため、テストスタンドネットワークを整備した。

2-4-2 制御ネットワークの老朽化対策

ネットワークシステムの老朽化対策のため、蓄積リングノードスイッチ3台、制御計算機室4台、機器ラック19台のネットワークスイッチを更新した。放射線による故障・劣化が進んでいた蓄積リング収納部のメンテナンス用無線LANシステムについて、基地局本体を収納部外に設置できる漏洩同軸アンテナ方式の機器を2台、170mの区間に導入した。

2-4-3 その他

2015年度に導入したOA-LAN用及び制御LAN用に引き続き、BL-USER-LAN用及び入退LAN用のネットワーク機器死活監視システムを、オープンソースの死活監視システム（Zabbix）及びコンフィグ収集システム（Oxidized）に代替した。

3. ビームライン及び実験ステーション制御

3-1 点検保守、障害対応

・電源障害対応

2016年7月4日4:45頃 ID45制御用VMEの電源故障が発生した。ID及びBL制御用VMEは3台の冗長化電源を採用しており、1台故障しても2台で運用が継続できるようになっているが、今回の故障では1次側の故障のため、ヒューズが溶断して電源が落ちた。3台の電源全て及びヒューズの交換で復帰した。

故障した電源を回収して調査したところ、1次側の平滑用電解コンデンサが破裂していた。当該電源は動作中の温度が60℃程度と比較的高い状態にあるため、コンデンサの経年劣化と考えられる。

同時期に導入したVME電源に関しては同様に経年劣化を起こしている可能性が高いため、運転停止後の夏期点検調整期間に挿入光源及びBL制御用VMEの全電源約300台について平滑化コンデンサに異常がないか目視点検を実施した。結果として全数異常なしであったが、これは故障が前兆なく起こる可能性が高いことを示しているため、特に10年以上稼働している挿入光源制御用VMEの約半数の電源について予備的交換を行った。

・定期保守作業

夏期点検調整期間において挿入光源及びBL制御機器に関して、ハードウェアメンテナンスを実施した。リップル測定等で異常の見つかったVME電源1台、回転異常、回転音異常のあった空冷ファン7台を交換した。

3-2 FE/TC 制御VMEのMADOCA IIへ移行

2016年度、劣化対策のためCPUボードを交換した20BLの制御用VMEに関しては、OSをSolaris9から

Solaris10にバージョンアップするとともにMADOCA IIへの移行を行った。CPU交換を行わなかったVMEに関してはSolaris9のままであり、MADOCA IIの動作が未検証であったためMADOCAのまま運用していた。夏期点検調整期間中にSolaris9での動作検証を行い、問題がなかったためSolaris9で動作しているVMEに関してもMADOCA II移行作業を完了した。

3-3 ビームライン変更、改造対応

・BL05SS改造対応

BL05SSに小角散乱ステーションを整備するため、光学系にX線ミラー2台とスリット1台が増設された。これに対応するためBL05SS制御VMEに2枚のパルスモータコントローラボードを追加した上で、制御ソフトウェアにミラー、スリットを追加した。また挿入光源も加速器診断用から通常の放射光実験用のものに変更されたため、制御用ハードウェア及びソフトウェアの更新を行った。

・XBPMデータ収集へビーム位置情報の追加

XBPMは2つ（偏向電磁石ビームライン）もしくは4つの電極（挿入光源ビームライン）によりX線ビームの裾野が誘起する光電流を測定することにより、計算によりビーム位置を求めるものである。これまでデータ収集系では個別の電極の出力値のみをデータベースに記録していたが、データベース利用者の利便性向上のため計算により求められるビーム位置も記録するよう機能向上を行った。

・その他

BL32B2の改造対応（ミラー追加及びコンポーネント入れ替え）、BL32XUへのミラー追加、BL20XUの分光器更新、BL41XUスリット追加に対応して、VME及び制御計算機のソフトウェア更新を行った。

3-4 実験ステーション制御

・汎用データ収集用ソフトウェア

BL14等で利用されている遠隔実験システムの実験データリポジトリシステム等を拡充し、要請があったビームラインへの適用を拡大している。BLの間でシステムが汎用化・共通化されることで各種データ連携を推進できる。この四半期では遠隔制御用カメラストリーミングのフレームワーク化を行った。また、利用研究促進部門と連携して、MADOCA IIを利用したカメラデータ収集系の整備を進め、模擬EMによる動作確認まで完了した。

3-5 その他

Eiger検出器のテストのためBL26B1のタンパク質結晶回折ステーション制御用汎用計測制御用コンピュータ

(Blanc4)のセットアップを実施した。またBL04B2の回折計リプレース対応のため、ステーション制御用PC及びVMEの設定変更、ソフトウェア更新を行った。

3-6 検出開発（2次元型CdTe検出器）

本開発では、X線受光センサーにCdTeを採用することで20～150 keVに渡る広いエネルギーレンジで高検出効率を確保するとともに、ASICには窓型コンパレータによりエネルギー弁別されたX線光子数をカウントする回路系を搭載し、各ピクセルが独立したフォトンカウンティング型検出器として動作する放射光実験用の2次元検出器の高性能化を行っている。2015年度までに2 cm×2 cmのCdTeセンサーにSP8-04F10K ASICを1素子接合したシングルモジュール型検出器及びシングル用ボードを2×2枚並べたマルチボード型検出器を完成させている。2016年度は4 cm×4 cmセンサーにASICを4チップ搭載した大面積型検出器（図4）を製作し、QST極限量子ダイナミクスIIビームライン（BL14B1）を用いて高エネルギー白色ラウエ実験に対する評価実験を行った。センサーサイズは4 cm×4 cmを最終仕様とし、今後はこのセンサーをタイル状に複数並べることでより更なる面積の拡大を計画している。



図4 4 cm×4 cm大面積型検出器。右上にX線検出部がある。

制御・情報部門
松下 智裕

2-5 情報・ネットワーク

1. ネットワーク

1-1 特高第一変電設備・CVCF電源更新への対応

特高第一変電設備およびCVCF電源更新に伴う停電にあたり、対外ネットワーク接続（SINET5）および平日業務を継続するために必要な電源系統の整備とネットワーク接続系統の切り替えを実施した。

1-2 情報・ネットワークシステムの老朽化対策

ネットワークシステムの老朽化対策のため、情報計算機室3台、中央管理棟2台、研究交流施設6台、正門守衛所1台、ユーティリティ管理棟1台のネットワークスイッチを更新した。ライセンス期間終了に伴いメールセキュリティゲートウェイの更新を行った。新機種ではアンチウイルス・アンチスパム機能に加え、メールコンテンツフィルタに対応した機器に更新した。

1-3 実験計測データ解析用計算機基盤のネットワーク構築

ビームライン実験計測システムから創出される大容量の実験データをSPring-8サイト内で解析を行うための解析用計算機基盤の整備に伴い、セキュアな広帯域ネットワークを構築した。今後、サイト外からの利用のためのVPNシステムの導入を計画している。

1-4 その他情報セキュリティに関する対応

近年の情報セキュリティリスクへの対応として、メールフィルタリングシステムの更新を行った。加えて、SPring-8の情報基盤である認証システムの老朽化対策を行い、高度なセキュリティ維持のための対応を行った。

2. 情報システム

2-1 老朽化した情報基盤の更新

情報基盤システム用ハードウェアについて、老朽対策として運用開始後6～8年を経過した機器について老朽代替を実施した。

対外中立用ストレージは、SPring-8 OA-LANと外部インターネットの間にセキュリティ確保のために設けられたネットワーク中立ゾーンに接続する、外部公開サーバ群が共用するデータストレージである。主に外部公開サーバの、仮想化されたイメージファイルや、各サーバ上のコンテンツデータを保存している。

今回の更新に当たっては構成を見直し、従来のストレージにおける複雑な構成を単純化し、また用途に対して必要十分な性能を確保した上で、導入コスト・ランニングコストを大幅に低減させた。従来のストレージでは保存するデータの用途に応じ、本体内蔵の高回転SASディスク12基、同増設用の外付けFCディスク7基、コンテンツデータ用の外付け大容量SATAディスク14基を使い分けていた。一方、今回の更新では、高信頼性が保証されるようになった大容量ディスク12基に統一した上で、容量は約1.5倍を確保した。また仮想計算機イメージファイルなどの高速アクセスに対しては、キャッシュメモリ容量と10 Gbit/sのネットワーク帯域で対応している。

2-2 実験データ配送サービスの運用開始

2012年より導入した実験データリポジトリ用グラスターファイルシステム用のストレージは、2015年度以降実験データ配送サービス用のストレージとしても活用してきた。本ストレージについて使用機材の老朽化により2015年からストレージキャッシュ、RAIDコントローラーに障害が見られるようになり、補修部品の入手も困難となった。

更新に当たっては必要十分な性能を精査し、IOやストレージコントローラーの点数が多いInfiniBand方式の分散ストレージから、対外中立用ストレージ同様の大容量キャッシュメモリを持つNASストレージに変更した。またストレージで用いるNAS OSや、高速なRAID方式（ストライピングと冗長パリティ二重化）についても、対外中立用ストレージと合わせ、管理の容易化を図っている。

2-3 入館管理システムの老朽化対策

入館管理システムの建屋外カードリーダーにおいて2016年9月の大雨時に、防滴ボックスの漏水が原因とみられる機器の一時的な異常が発生した。屋外カードリーダーを総点検したところ、屋外防滴ボックスの前面扉パッキン、並びにアクリル窓のシーリングが劣化しており、庇等がない設置場所においては防滴ボックス内に少量の湿潤が存在する事が確認できた。

そこで入館管理システムの長期安定的な運用を継続するため、共用施設46か所、理研独自建屋10か所のカードリーダー防滴ボックスについて、扉パッキンの交換とアクリル窓シーリングの打ち直しを実施した（図1）。



図1 入館管理システムカードリーダー防滴ボックスの補修状況

2-4 フィッシングメール、標的型攻撃メール増加への対応

2016年度も継続してフィッシングメールや標的型攻撃メールが増加した状態が継続した。特に、不正メール大量送信のブラックリストに載っていない計算機を乗っ取って、成りすましのメールを送り付ける手法が主流となっている。この場合、メールセキュリティアプライアンス装置をすり抜けて、各メールユーザーの受信フォルダに通常着信してしまうので、サイトへのフィッシングメール着信が判明次第ただちに注意喚起を行うことが重要になった。

そこで2015年度に引き続き、入り口対策として職員に対しての注意喚起、情報提供の呼びかけと情報提供窓口の周知を随時実施した。

制御・情報部門

松下 智裕

3. 重点研究

3-1 産業新分野支援課題

1. はじめに

2014年度より2年間にわたり新たな領域指定型重点課題として、これまで放射光利用が少なかった産業分野のSPring-8利用拡大を目指して産業新分野支援課題を実施し、主に食品加工分野での新規利用者を獲得することができた。食品加工は産業別GDPが最大であることから、まだまだ多数の潜在的利用者があるものと期待して、産業新分野支援課題を2017年度まで更に2年間延期することとした。課題の募集、審査、実施及び報告は2015年度までの産業新分野支援課題を踏襲し、一般課題とは若干異なった制度となっている。以下、産業新分野支援課題の特徴を記す。

1-1 募集の対象

本課題の目的に沿って、SPring-8での放射光利用実績の少ない産業分野の研究開発に関する課題を募集の対象としている。2016年度、該当する産業分野として例示した対象を食品・食品加工、金属加工、資源開発、資源再生に変更して募集した。これまでどおり例示以外の分野の課題でも放射光利用実績が少ない産業分野も対象としているが、例示された分野に該当しない場合は、課題申請の際に放射光利用実績の少ない産業分野であることの説明を求めている。なお、2016年度の募集からは産業利用分野の一般課題と同様に実験責任者もしくは共同実験者に産業界、もしくは産業界に準ずる機関に所属する者が含まれていることを申請要件とした。

1-2 対象ビームライン、シフト数割合、及び募集

産業利用ビームラインI (BL19B2)、II (BL14B2)、III (BL46XU) を対象に、ユーザー実験に供するビームタイムのうち20%以内（施設留保を含めたユーザータイムの16%以内）を配分する。募集は産業利用分野の一般課題と同時期に半期を2回に分けて年4回行う。なお、1期募集において後述の通期課題の2期分のシフト数も含めた合計シフト数が半期を通じたビームタイムの上限に達した場合は2期に募集を行わない。

1-3 通期課題

1期、2期の両方で利用実験を行いたい場合は、その都度新規課題としての応募が必要であるが、継続的・計画的な実施により一層の成果創出が期待される課題は、“通

期課題”とし1期応募の折に2期分のシフト数も含めた申請を受付ける。なお、2期は通期課題の募集は行わない。

1-4 審査

産業新分野支援課題のためのビームタイムがあらかじめ確保されているため、一般課題（産業利用分野）に先んじて課題審査委員会産業利用分科会が審査を行う。更に、産業新分野支援課題として不採択となった課題は、自動的に一般課題（産業利用分野）として、他の一般課題と一緒に改めて審査される。

産業新分野支援課題においては一般課題（産業利用分野）の観点に加えて研究対象がSPring-8での放射光利用の新規な産業分野に該当するかどうかも含めて審査する。なお、課題実施計画の水準が低いと判断された場合や、対象としている分野が産業新分野支援課題の趣旨に適合しないと判断された場合は、応募課題のシフト数が上限以下の場合でも不採択となる。

1-5 報告

WEBより提出するビームタイム利用報告書、利用実験課題報告書に加えて課題実施後約2～3ヵ月以内に所定の書式の産業新分野課題実施報告書を提出する。更に、この報告書はSPring-8/SACLA利用研究成果集として審査を受けることも可能である。なお、一般課題とは異なり採択後に成果専有課題への変更は認められない。

2. 応募・採択状況

2-1 2016A利用期

産業新分野支援課題の応募数、採択数ともに直前の2015B期（応募数20件、採択数14件）よりも少なくなっているが、第1,2期ともに前年同期の2015A期（応募数16件、採択数12件）とほぼ同じである（表1）。なお、BL19B2は2016A第2期に採択課題に配分されたビームタイムが供給予定ビームタイムよりも少なく追加募集を行った。追加募集には産業界から1件が申請され、採択されている。産業新分野支援課題で採択された課題の多くは食品加工に関する課題であり、残りは資源開発に分類される課題であった。食品加工分野の拡大は産業新分野支援課題の実施と並行して行ったマイクロビーム回折などの利用技術開発の効果と考えている。

2-2 2016B 利用期

産業新分野支援課題の応募数、採択数は直前の2016A期の約2/3、前年同期の2015B期の約半分で、これまでで最も少なくなった。なかでも産業界の課題の申請数減少が著しく、それに伴って採択数も大幅に減少し2016B期で採択された産業界より申請された産業新分野課題は1課題にとどまった(表2)。申請数、採択数と同様に採択率も36.4%と従来の半分以下であった。産業新分野支援課題での主な不採択理由は、同課題の趣旨に適していない(従来よりSPring-8利用が少ない産業利用分野に該当しない)であり、一般課題として再審査されたが、一般課題で採択されたものは産業界から提案された2課題のみであり、学官より申請され一般課題で再審査された

5課題は全て不採択となった。結果的には産業界より産業新分野支援課題に申請された3課題は一般課題採択も含めて全課題が採択(最終採択率100%)となる一方、学官から申請された課題の採択率は37.5%と極めて低くなった。なお、産業新分野支援課題の対象分野(食品加工)に該当する内容の課題が産業界より一般課題に申請され、採択となった。このことは、食品加工分野の利用者は課題申請経験が薄く、利用制度についての理解が行き届いていないことを示しているものと考えられる。利用制度の周知に向けて更なる努力が必要である。

産業利用推進室
廣沢 一郎

表1 2016A期 研究機関別応募・採択結果

募集時期	機関分類	応募数	採択数*	採択率 (%)
第1期募集	学 官	5	3	60.0
	産業界	3	2	66.7
	合 計	8	5	62.5
第2期募集	学 官	5	4	80.0
	産業界	3	2	66.7
	合 計	8	6	75.0
総 計		16	11	68.8

* 応募数は産業新分野支援課題で不採択となり一般課題で再審査された課題を含む。

** 採択数は産業新分野支援課題で不採択となり一般課題で再審査されて採択となった課題を含まない。また、第2期追加募集で申請、採択となった1件を第2期分に含めている。

表2 2016B期 研究機関別応募・採択結果

募集時期	機関分類	応募数	採択数*	採択率 (%)
第1期募集	学 官	7	3	42.9
	産業界	1	0*	0.0*
	合 計	8	3	37.5
第2期募集	学 官	1	0	0.0
	産業界	2	1*	50.0*
	合 計	3	1	33.3
総計		11	4	36.4

* 産業新分野支援課題で不採択となり、一般課題として再審査され採択された課題は採択数から除外している(第1期一般課題採択 産業界1課題、第2期一般課題採択 産業界1課題)。

3-2 社会・文化利用課題

1. はじめに

特定先端大型研究施設の共用の促進に関する法律（共用促進法）の対象であるSPring-8の目的はその共用による科学技術の振興であり、国際競争力の飛躍的な向上につながる研究成果を世界に先んじて創出することが期待されている。これまでに、成果拡大を積極的に図る観点から、卓越した成果の見込まれる分野や、科学技術・産業振興施策に沿った分野を重点領域として設定してきた。その一方で、国費により整備・運営されるSPring-8においては、上記重点領域の研究活動に加え、利用成果が広く国民に享受され、また、支持される研究活動を推進する観点も極めて重要である。そのため、SPring-8にて実施される利用研究課題のうち、国民の関心や社会的要請が高い事項に係る研究を新重点領域として設定した。これにより、利用研究の新規性や社会的意義等が、既存の利用分野等に係る利用研究と同列に評価することが難しい利用研究を、社会・文化利用課題として2015A期より、特に戦略的に推進することとした。

2. 公募概要（支援対象分野、ビームライン）

社会・文化利用課題では、社会的関心や要請の高い領域として、以下の例を挙げて課題公募を行った。

（1）国民生活の安心・安全に関すること

〈課題・キーワード〉 環境保全・除染、防災、土木、科学捜査、食の安全（産地判別技術）

（2）文化的関心に対応すること

〈課題・キーワード〉 美術・芸術、文化財、考古学、古生物学（化石等）、宇宙科学

（3）その他国民の関心の高い科学技術

〈課題・キーワード〉 食品科学（農・水・畜産物）、生活の科学

募集対象としたビームラインは、産業利用ビームライン3本を除く共同利用課題を受け付けているビームラインすべてで、理研ビームラインと加速器診断ビームラインも含めて32本となった。ビームタイムの上限は、どのビームラインにおいても、共用に供出するビームタイムの8%程度とした。さらに、これら32本のビームライン合計で、共用ビームラインが供出する全ユーザータイムの4%を上限として設定したが、実際の課題募集ではこの上限には達しなかった。また、修士・博士課程の学生が主体的に研究を行う課題として、大学院生提案型課題

の応募も可能とした。

社会・文化利用課題の課題審査には、「社会・分科利用分科会」及びレフェリーを新たに設けた。当該課題の特性（その新規性や社会的な意義等が、既存の利用分野等に係る利用研究と同列で評価することが困難であること）を踏まえ、当該申請課題のレフェリー科学審査は絶対評価のみとし、相対評価は行わないこととした。レフェリーは広範囲の審査領域をカバーできるように、多分野の研究者に依頼した。

一般課題における利用研究課題選定の基準は以下の通りとなっている。

（1）科学技術の妥当性として、以下の（イ）から（ニ）のうち、いずれかに該当すること。

（イ）研究課題の先端性及び当該研究課題を含む科学技術分野の発展性ないしは新分野開拓への寄与

（ロ）期待される研究成果の基礎的研究分野及び基盤的技術開発分野への貢献度

（ハ）期待される研究成果の産業基盤技術としての重要性及び発展性

（ニ）研究課題の社会的意義及び社会経済への寄与度

（2）研究手段としてのSPring-8の必要性

（3）提案課題の実施及び成果の利用が平和目的に限定される等、科学技術基本法や社会通念等に照らして、当該利用研究課題の実施が妥当であること。

（4）実験内容の技術的な実施可能性

（5）実施内容の安全性

社会・文化利用課題のレフェリー科学審査は、（1）の（イ）～（ニ）のうち該当する項目全ての絶対評価を二人のレフェリーで行った。最終的に分科会における課題審査は、（1）および（2）～（5）の評価結果を踏まえて総合的に行った。

さらに、重点課題における採択機会確保の観点から、他の領域指定型重点課題と同様、社会・文化利用課題として審査のうえ不採択となった課題は、自動的に一般課題で再度審査を行うこととした。この場合に備えて、各課題について一般課題としてのレフェリー科学審査も既存の分科会レフェリーに依頼して行った（一般課題としての審査分科会は、申請者が申請時に選択する）。この場合の審査は他の一般課題と同じ基準とし、相対評価を実施した。分科会は社会・文化利用分科会を先に開催し、その結果不採択となった課題について、その後に関

る一般課題審査分科会で審査を行った。

3. 応募・採択状況

社会・文化利用課題として、2016A期は20課題の応募があり、文化財科学11課題、環境科学4課題、古生物学5課題だった。17課題が社会・文化利用課題として、1課題が一般課題として、2課題が大学院生提案型課題として採択された。2016B期は24課題の応募があり、文化財科学18課題、環境科学3課題、古生物学2課題、考古学1課題であった。このうち21課題（うち2課題は、申請者の都合により実施されず）が社会・文化利用課題として、2課題が一般課題として採択された。

社会・文化利用課題の利用シフト数はビームラインごとに上限が定められており、一つのビームラインに利用希望が集中するとビームタイムが不足して不採択となる課題が出てくる。これらは一般課題として再び審査されており、そこで一般課題のレフェリーの評価に基づいて不採択となったものが、最終的に不採択課題となる。2016B期は1課題が不採択となった。

研究内容の傾向としては、文化財を対象とした課題では、青銅剣、日本刀や火縄銃などの金属工作物、ガラス工芸品などを対象とし、新石器時代から近代まで、西オリエントから日本までの広範な時代と地域をまたがった研究が行われている。環境問題をテーマとする課題では、福島第一原発の事故と関連したセシウムについての研究が多かった。2016A期からは化石に関する課題申請も増加している。

測定手法について、蛍光X線分析、マイクロCT、赤外分光分析が主要なものであった。特に、高エネルギーX線を利用した希土類の蛍光X線分析や高分解能CT撮影はSPring-8に特徴的なものである。微量元素の蛍光X線分析は、環境関連の試料や微量文化財の分析に多く利用されている。

本重点利用課題は、2017年度も継続して募集を行う。

利用研究促進部門

八木 直人

4. 産業利用

1. 概況

2014年度より2年間にわたり新たな領域指定型重点課題として、これまで放射光利用が少なかった産業分野のSPring-8利用拡大を目指して産業新分野支援課題を実施し、主に食品加工分野での新規利用者を獲得することができた。食品加工は産業別GDPが最大であることから、まだまだ多数の潜在的利用者があるものと期待して、産業新分野支援課題を2017年度まで更に2年間延期することとした。なお、2016年度からは産業新分野支援課題も産業利用分野の一般課題と同様に、実験責任者もしくは共同実験者に民間企業等に所属する者が含まれていることを申請要件とした。

産業利用分野の一般課題は2015年度に上記の申請要件を加えたことによって2015年度は応募数、採択数ともに2014年度よりも大幅減少となったが、2016年度は2015年度とほぼ同じ水準であった。

産業界が実施する課題（民間企業が実験責任者の課題）における成果専有課題の割合は約62%にまで増加し、成果公開優先利用課題を含めた有償利用課題の割合は約68%に達した。なお、全共同利用実験課題に占める産業界が実施する課題の割合は、成果専有一般課題の増加によって約17%にまで回復した。

2. 支援活動

2-1. 体制

それぞれ専門分野をもつコーディネーターを配置して、次節で述べている活動を実施すると共に、ユーザー課題に対しては1グループ2チーム体制の下で、産業利用I、II、IIIの3本のビームラインに加えて、金属分野のユーザーによる利用が定着した白色X線回折による金属材料の局所応力測定を実施している白色X線回折ビームライン（BL28B2）の産業利用分野課題の実施支援と技術開発を外来研究員も含めて実施した。

2-2. 利用促進

産業界の利用促進を図ることを主な目的として、①重点研究課題として領域指定された「産業新分野支援課題」の推進、具体的にはコーディネーターや研究員及び技術員による食品加工や金属加工、資源開発、資源再生分野の利用開拓に向けた啓発・普及活動、②新規及び既存の利用者に対する申請から実験準備、実施、実験後の解析

と全般に渡る支援、③産業界、及び産業利用分野での利用者を対象にした講習会、研修会、報告会・ワークショップ実施の3項目を軸にして利用促進活動を進めた。また、再委託機関として参画している文部科学省先端研究基盤共用・プラットフォーム形成事業「光ビームプラットフォーム」への協力活動の一環として、光ビームプラットフォームの成果報告会において産業新分野支援課題の実施例の紹介を行った。

3. コーディネーター活動

SPring-8を利用する民間企業の主な業界分野について電子デバイス、金属材料、日用品を含む有機材料化学の専門家からなる3名のコーディネーターと触媒が専門の客員主席研究員が、課題申請前の事前相談、実験準備、実験立会実施、実験後の相談など、実験課題全般に渡って相談・指導・支援を行っている。特に、SPring-8/SACLA利用研究成果集の審査過程で著者に示された査読コメントに対応するための改訂の提案を行うなど、実施報告支援に重点的に取り組んでいる。以上のような利用者ごとの個別相談に加えて、SPring-8利用推進協議会との共催で行う研究会（金属材料1回、グリーンサステナブルケミストリー1回、次世代デバイス1回、粉末材料構造解析1回、計算科学2回）の企画・運営を通じて放射光利用に関する知識と成果を幅広く紹介するなど、民間企業の潜在的ニーズ発掘や新たなユーザー開拓など利用拡大を図った。

4. 課題実施状況

4-1. 産業新分野支援課題

新しい産業創生を目指した産業分野の研究開発を促進するため、SPring-8での放射光利用に新規に取り組む産業分野の課題に重点的な支援を行うことを目的に2014年度から2年間にわたり実施領域指定型の重点研究課題「産業新分野支援課題」は2016年度より更に2年間延長して実施した。

産業新分野支援課題はSPring-8での放射光利用実績の少ない産業分野の研究開発に関する課題を募集の対象としている。該当する産業分野の例として食品加工、金属加工、資源開発、資源再生を挙げて募集しているが、この限りではない。例示された分野に該当しない場合は、課題申請の際に放射光利用実績の少ない産業分野である

ことの説明を求めている。また、2016年度より実験責任者及び共同実験者の所属機関に関する要件を一般課題（産業利用分野）と同様とした。

産業新分野支援課題は産業利用ビームラインI (BL19B2)、II (BL14B2)、III (BL46XU) を対象に、ユーザー実験に供するビームタイムのうち20%以内（施設留保を含めたユーザータイムの16%以内）とし、一般課題と同時期に半期2回、年4回の募集を行った。実施された産業新分野支援課題は2016A第1期が5課題、第2期が6課題、2016B第1期が3課題、第2期が1課題で2016A期は2015A期とほぼ同じであったが、2016B期は2015B期よりも著しく少なかった。

4-2. 一般課題（産業利用分野）

2015A期から一般課題（産業利用分野）は実験責任者もしくは共同実験者に民間企業もしくは、それに準じる機関（民間企業からの委託による試験・研究・開発を事業に含んでいる機関、及び地方自治体が設置している公設試験場）に所属する者が含まれていることを申請要件とした。2015年度はA期、B期とも2014年度と比較して約20%の減少となったが、2016A期は応募、採択課題数ともに2015年度とほぼ同じで2016A期は応募課題数103、採択課題数85、2016B期は応募課題数131、採択課題数84であった。

4-3. 成果専有課題及び成果公開優先利用課題

有償利用の課題のうち産業界は主として成果専有課題を利用し、大学等の研究機関は成果公開優先利用課題が中心である。その一方で数は少ないながらも大学や公的研究機関も産業分野の成果専有課題を実施している。産業界が実施した成果専有課題でも産業利用以外の分野に分類されている課題も若干存在するが、産業利用分野の成果専有課題は主として産業界により実施されている。2016A, B期ともに産業界が実施した成果専有課題実施数は2015年度とほぼ同じ69課題と89課題であった。

5. 講習会・研修会・ワークショップ・報告会

産学官全利用者を対象に潜在的ニーズとSPring-8の計測技術の高度化を勘案しながら、産業利用推進室が中心となってXAFSデータ解析の講習会を1回、ビームラインでの測定実習を行う研修会を4回（BL19B2 2回、BL14B2 1回、BL46XU 1回）実施した。ワークショップ・報告会では、サンビーム、兵庫県、豊田中央研究所と合同で第13回SPring-8産業利用報告会を兵庫県民会館で開催し248名が参加した。

6. 全体状況

産業利用Iビームラインが供用を開始した2001年度以降における実験責任者が民間企業に所属している共同利

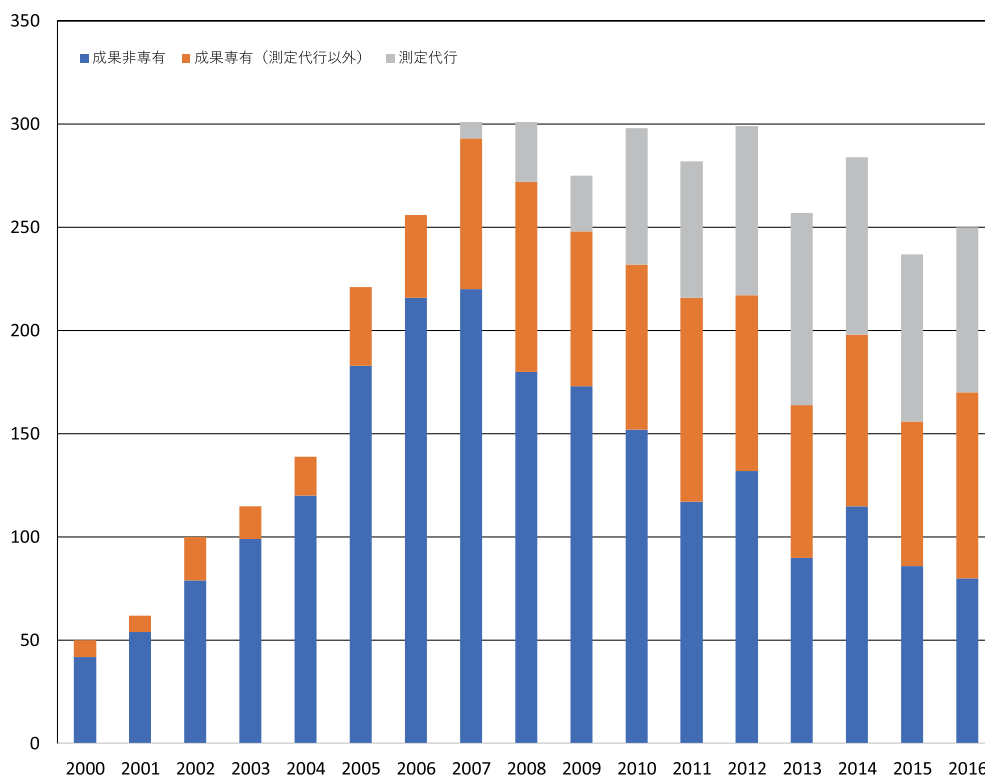


図1 民間企業実施課題数課題種別年次推移

用研究課題数年次推移（課題種別）を図1に示す。全課題数は2001年度から産業利用II、IIIビームラインがそろって供用を開始した2007年度まで単調に増加し、それ以降は2014年度まではほぼ一定の水準で推移してきたが、2015年度は2014年度に比較して約17%の減少となった。2016年度は測定代行以外の成果専有課題の増加により2013年度程度までに回復した。その一方で成果非専有課題は2015年度よりも更に減少し、産業界が実施する成果専有課題の割合は63%（成果公開優先利用課題を含む有償利用課題は68%）にまで達した。

図2は2016年度に実施された実験責任者が民間企業に所属する全課題（成果専有課題と成果非専有課題の合計）が実施されたビームラインの割合、図3は2016年度に実施された実験責任者が民間企業に所属する成果専有課題が実施されたビームラインの割合を示している。民間企業が3本の産業利用ビームラインで実施した成果専有及び非専有課題の割合は約62%（図2）、成果専有課題は約65%であった。

産業利用推進室
廣沢 一郎

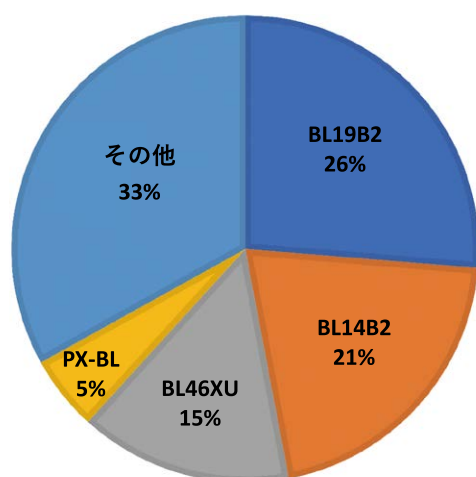


図2 2016年度 ビームライン別民間企業実施全課題（専有と非専有の和）数割合

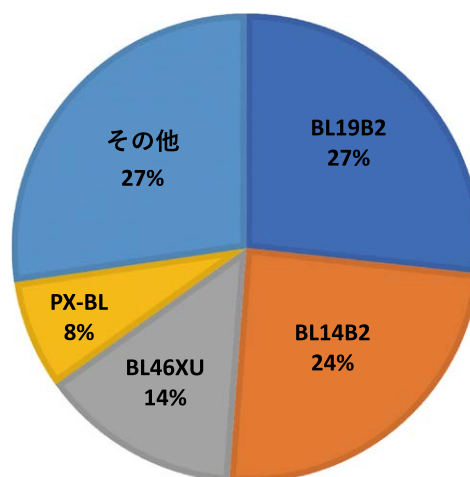


図3 2016年度 ビームライン別民間企業実施成果専有課題数割合

5. 委員会活動

2016年度のSPring-8委員会活動について、公益財団法人高輝度光科学研究センター（以下「JASRI」という。）の登録施設利用促進機関（以下「登録機関」という。）としての利用促進業務に係る委員会の開催状況を以下に示す。各委員会のうち、公開している委員会名簿は章末に掲載する。

1. 委員会の概況（JASRIの登録機関としての利用促進業務に係る委員会）

「特定先端大型研究施設の共用の促進に関する法律（平成6年法律第78号）」（以下「共用法」という。）第16条の規定により登録機関が利用者選定業務を行う際に意見を聴く委員会として「SPring-8選定委員会」を設置・開催した。また、JASRI理事長が登録機関として利用者を選定するため、利用研究課題を審査する「SPring-8利用研究課題審査委員会」、専用施設を審査する「専用施設審査委員会」、パートナーユーザーの審査等を行う「パートナーユーザー審査委員会」、新分野創成利用研究グループ等を審査する「新分野創成利用審査委員会」および成果の公開に関する事項の検討等を行う「SPring-8/SACLA成果審査委員会」を、それぞれ設置・開催した。

また、利用支援業務（研究開発、技術支援、情報支援等）の最適化のために、その業務の実施状況、技術開発の現状と将来計画を報告し、有識者より科学技術上の助言を受けることを目的として、「科学技術助言委員会」を設置・開催した。

2. 委員会開催状況

以下に開催状況を示す。

第23回SPring-8選定委員会

〔開催日〕 2016年7月11日（月）

〔開催場所〕 ステーションコンファレンス東京（東京都）

〔議 題〕

審議事項

1. 2016B期SPring-8利用研究課題選定について
2. 2017A期以降のSPring-8利用制度等について
3. 2017A期SPring-8利用研究課題の募集および選定について
4. 専用施設の評価・審査結果について

報告事項

1. 重点領域（重点グリーン／ライフ・イノベーション推進、およびスマート放射光活用イノベーション戦略推進）指定終了後報告について
2. 成果の発表等状況について
3. JASRIのビームタイム利用について

第24回SPring-8選定委員会

〔開催日〕 2017年2月6日（月）

〔開催場所〕 ステーションコンファレンス東京（東京都）

〔議 題〕

審議事項

1. 2017A期SPring-8利用研究課題選定について
2. SPring-8共用ビームライン（PX-BL）成果専有利用の運用変更について
3. 2017B期SPring-8利用研究課題の募集および選定について

報告事項

1. 成果の発表等状況について
2. JASRIのビームタイム利用について

第25回SPring-8利用研究課題審査委員会

〔開催日〕 2016年6月30日（木）

〔開催場所〕 SPring-8

〔議 題〕

1. 平成28年度後期（2016B）SPring-8利用研究課題の選定
2. 2016A第II期 産業利用ビームラインI、IIおよびIIIの課題の選定について
3. 2016A時期指定課題および測定代行課題の選定について
4. 2016A期 PX-BL課題のシフト配分について
5. 既採択長期利用課題について
6. 2017A期以降のSPring-8 利用制度について

第26回SPring-8利用研究課題審査委員会

〔開催日〕 2017年1月25日（水）

〔開催場所〕 SPring-8

〔議 題〕

1. 平成29年度前期（2017A）SPring-8利用研究課題の選定
2. 2016B第II期産業利用ビームラインI、IIおよび

IIIの課題の選定について

3. 2016B時期指定課題および測定代行課題の選定について
4. 2016B期PX-BL課題のシフト配分結果について
5. 既採択長期利用課題について
6. SPring-8共用ビームライン (PX-BL) 成果専有利用の運用変更について

第23回専用施設審査委員会

[開催日] 2016年5月24日 (火)

[開催場所] SPring-8

[議 題]

1. 台湾NSRRCのBM (BL12B2)・ID (BL12XU) の中間評価
2. JAEA4BLの次期計画の再審査 (新法人へ一部BLの移管後の計画)

第24回専用施設審査委員会

[開催日] 2016年6月13日 (月)

[開催場所] SPring-8

[議 題]

1. 先端触媒構造反応リアルタイム計測ビームライン (BL36XU) 改造計画の書面審査について
2. JAEA重元素科学 I・IIビームライン (BL22XU・23SU) および QST極限量子ダイナミクス I・IIビームライン (BL11XU・14B1) の次期計画・実行計画の審査について
3. 革新型蓄電池先端科学基礎研究ビームライン (BL28XU) の中間評価

第8回パートナーユーザー審査委員会

[開催日] 2016年5月27日 (金)～6月7日 (火)

[開催場所] - (メールによる書面審査)

[議 題]

1. 既採択パートナーユーザーのビームタイム配分

第9回パートナーユーザー審査委員会

[開催日] 2016年8月8日 (月)～10日 (水)

[開催場所] - (メールによる書面審査)

[議 題]

1. 指定パートナーユーザーの指定辞退について

第10回パートナーユーザー審査委員会

[開催日] 2016年12月7日 (水)

[開催場所] SPring-8

[議 題]

1. 2015年度採択パートナーユーザーの延長面接審査

(3件)

2. 2017年度新規申請パートナーユーザーの面接審査 (2件)
3. 既採択パートナーユーザー課題 (3件) のビームタイム配分

第11回パートナーユーザー審査委員会

[開催日] 2016年12月13日 (火)

[開催場所] SPring-8

[議 題]

1. 2017年度新規申請パートナーユーザーの再審査 (1件)

第3回新分野創成利用審査委員会

[開催日] 2016年6月13日 (月)

[開催場所] SPring-8

[議 題]

1. 2016B期「新分野創成利用」研究グループの面接審査 (1件)
2. 2016B期 新分野創成利用課題のビームタイム配分

第4回新分野創成利用審査委員会

[開催日] 2016年12月1日 (木)～6日 (火)

[開催場所] - (メールによる書面審査)

[議 題]

1. 2017A期の既採択新分野創成利用課題のシフト配分

第10回SPring-8/SACLA成果審査委員会

[開催日] 2016年6月24日 (金)

[開催場所] SPring-8

[議 題]

1. 2011B期以降の論文等成果登録状況について
2. 大学院生提案型課題 (旧萌芽) の成果公開について
3. SPring-8/SACLA利用研究成果集のDOI取得と査読完了案件の審査について
4. 公開延期申請状況の報告と再延期申請の対応について
5. ユーザー向け成果登録状況の情報サイトの進捗について

第11回SPring-8/SACLA成果審査委員会

[開催日] 2016年12月12日 (月)

[開催場所] SPring-8

[議 題]

1. 2011B期以降の論文等成果登録状況について
2. SPring-8/SACLA利用研究成果集の査読完了案件の審査

3. 公開延期申請状況の報告（5 年超再延期申請を含む）
4. 大学院生提案型課題（旧萌芽）の成果公開についての対応
5. 認定済み公開技術報告書について
6. その他（成果関係統計資料他）

渡辺 義夫 公益財団法人
科学技術交流財団
あいちシンクロトン光センター
リエゾン（副所長格）

第2回科学技術助言委員会

[開催日] 2016年8月23日（火）、24日（水）

[開催場所] SPring-8

[主なプログラム]

1. JASRI の活動報告
2. 施設報告
3. 利用促進①
4. 利用促進②
5. 講評と質疑

3. 委員会名簿（2017年3月末時点で公開している委員会名簿）

2015 年度～ 2016 年度 SPring-8 選定委員会

(委 員 長) 佐々木 聡 国立大学法人東京工業大学
応用セラミックス研究所 教授

(委員長代理) 中川 敦史 国立大学法人大阪大学
蛋白質研究所 教授

(委 員) 片桐 元 株式会社東レリサーチセンター
常務取締役

金谷 利治 大学共同利用機関法人
高エネルギー加速器研究機構
物質構造科学研究所
J-PARC MLF ディビジョン
教授 ディビジョン長

栗原 和枝 国立大学法人東北大学
多元物質科学研究所 教授

坂田 誠 国立大学法人名古屋大学
名誉教授

谷一 尚 山陽学園大学 副学長 教授

藤原明比古 関西学院大学 教授

水木純一郎 関西学院大学 教授

矢野 映 株式会社富士通研究所
取締役

山田 和芳 大学共同利用機関法人
高エネルギー加速器研究機構
物質構造科学研究所 所長

横溝 英明 一般財団法人
総合科学研究機構（CROSS）
中性子科学センター
理事 センター長

2015 年度～2016 年度 SPring-8 利用研究課題審査委員会

(委 員 長) 中川 敦史 国立大学法人大阪大学
蛋白質研究所 教授

(委 員) 岩田 忠久 国立大学法人東京大学
教授・専攻長

大谷 栄治 国立大学法人東北大学
教授

片岡 幹雄 国立大学法人
奈良先端科学技術大学院大学
理事・副学長

河田 洋 大学共同利用機関法人
高エネルギー加速器研究機構
教授

木村 昭夫 国立大学法人広島大学 教授

小森 文夫 国立大学法人東京大学 教授

後藤 俊治 公益財団法人
高輝度光科学研究センター
光源・光学系部門長
兼 加速器部門長

坂田 修身 国立研究開発法人
物質・材料研究機構
技術開発・共用部門
高輝度放射光ステーション長

櫻井 吉晴 公益財団法人
高輝度光科学研究センター
利用研究促進部門長

穴戸 哲也 公立大学法人首都大学東京
教授

白井 幹康 国立研究開発法人
国立循環器病研究センター
肺高血圧症先端医学研究部
特任研究員

杉本 宏 国立研究開発法人
理化学研究所
放射光科学総合研究センター
専任研究員

鈴木 謙爾 公益財団法人特殊無機材料
研究所 代表理事

土山 明 国立大学法人京都大学 教授

花木 博文 公益財団法人
高輝度光科学研究センター
安全管理室長

平井 康晴	公益財団法人 佐賀県地域産業支援センター 九州シンクロトロン光 研究センター 所長	花木 博文	公益財団法人 高輝度光科学研究センター 安全管理室長
廣沢 一郎	公益財団法人 高輝度光科学研究センター 産業利用推進室長	廣沢 一郎	公益財団法人 高輝度光科学研究センター 産業利用推進室長
藤原明比古	関西学院大学 教授	松下 智裕	公益財団法人 高輝度光科学研究センター 制御・情報部門長 (2015.6から)
松下 智裕	公益財団法人 高輝度光科学研究センター 制御・情報部門長	八木 直人	公益財団法人 高輝度光科学研究センター タンパク質結晶解析推進室長
村上 洋一	大学共同利用機関法人 高エネルギー加速器研究機構 副所長・教授	渡辺 義夫	公益財団法人科学技術交流財団 あいちシンクロトロン光センター リエゾン (副所長格)
八木 直人	公益財団法人 高輝度光科学研究センター タンパク質結晶解析推進室長	2015年度-2016年度パートナーユーザー審査委員会 (委員長) 村上 洋一 大学共同利用機関法人 高エネルギー加速器研究機構 副所長・教授	
2015年度～2016年度 専用施設審査委員会 (委員長) 雨宮 慶幸 国立大学法人東京大学 教授 (委員長代理) 渡邊 信久 国立大学法人名古屋大学 教授		(委員) 金谷 利治 大学共同利用機関法人 高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 J-PARC MFL デイビジョン 教授・デイビジョン長	
(委員) 石川 哲也	国立研究開発法人 理化学研究所 放射光科学総合研究センター センター長	後藤 俊治	公益財団法人 高輝度光科学研究センター 光源・光学系部門長 兼 加速器部門長
入船 徹男	国立大学法人愛媛大学 地球深部ダイナミクス 研究センター センター長	坂井 徹	公立大学法人兵庫県立大学 教授
岡島 敏浩	公益財団法人 佐賀県地域産業支援センター 九州シンクロトロン光研究 センター ビームライニンググループ グループ長	櫻井 吉晴	公益財団法人 高輝度光科学研究センター 利用研究促進部門長
後藤 俊治	公益財団法人 高輝度光科学研究センター 光源・光学系部門長 兼 加速器部門長	佐藤 衛	公立大学法人横浜市立大学 教授
櫻井 吉晴	公益財団法人 高輝度光科学研究センター 利用研究促進部門長	野村 昌治	大学共同利用機関法人 高エネルギー加速器研究機構 理事
壽榮松宏仁	国立大学法人東京大学 名誉教授	平谷 篤也	国立大学法人広島大学 教授
田中良太郎	公益財団法人 高輝度光科学研究センター 制御・情報部門長 (2015.6まで)	廣沢 一郎	公益財団法人 高輝度光科学研究センター 産業利用推進室長
		松下 智裕	公益財団法人 高輝度光科学研究センター 制御・情報部門長

松原英一郎 国立大学法人京都大学 教授
八木 直人 公益財団法人
高輝度光科学研究センター
タンパク質結晶解析推進室長

2015年度-2016年度新分野創成利用審査委員会

(委員長) 下村 理 大学共同利用機関法人
高エネルギー加速器研究機構
名誉教授
(委員) 足立 伸一 大学共同利用機関法人
高エネルギー加速器研究機構
物質構造科学研究所 教授
後藤 俊治 公益財団法人
高輝度光科学研究センター
光源・光学系部門長
兼 加速器部門長
櫻井 吉晴 公益財団法人
高輝度光科学研究センター
利用研究促進部門長
佐藤 勝昭 国立研究開発法人
科学技術振興機構
研究広報主監
並河 一道 国立大学法人東京学芸大学
名誉教授 研究員
西 敏夫 国立大学法人東京工業大学
特任教授
廣沢 一郎 公益財団法人
高輝度光科学研究センター
産業利用推進室長
水木純一郎 関西学院大学 教授
八木 直人 公益財団法人
高輝度光科学研究センター
タンパク質結晶解析推進室長

2015年度-2016年度SPring-8 / SACLA成果審査委員会

(委員長) 坂田 誠 国立大学法人名古屋大学
名誉教授
(委員) 櫻井 吉晴 公益財団法人
高輝度光科学研究センター
利用研究促進部門長
杉本 宏 国立研究開発法人
理化学研究所
放射光科学総合研究センター
専任研究員
巽 修平 川崎重工業株式会社
技術研究所

テクニカルアドバイザー

廣沢 一郎 公益財団法人
高輝度光科学研究センター
産業利用推進室長
藤原明比古 関西学院大学 教授
松田 巖 国立大学法人東京大学
物性研究所 准教授
矢板 毅 国立研究開発法人
日本原子力研究開発機構
物質科学研究センター
ディビジョン長
八木 直人 公益財団法人
高輝度光科学研究センター
タンパク質結晶解析推進室長
矢橋 牧名 公益財団法人
高輝度光科学研究センター
XFEL利用研究推進室長

2016年度科学技術助言委員会

(委員長) 雨宮 慶幸 国立大学法人東京大学
大学院新領域創成科学研究科
教授
(副委員長) 下村 理 大学共同利用機関法人
高エネルギー加速器研究機構
名誉教授
(委員) 石川 哲也 国立研究開発法人
理化学研究所
放射光科学総合研究センター
センター長
岩田 忠久 国立大学法人東京大学
大学院農学生命科学研究科
教授
上田 潔 国立大学法人東北大学
多元物質科学研究所 教授
佐々木 園 国立大学法人京都工芸繊維
大学 繊維学系ナノ材料
物性研究室 教授
佐野 雄二 内閣府 革新的研究開発
推進プログラム (ImPACT)
プログラム・マネージャー
高尾 正敏 国立大学法人大阪大学
経営企画オフィス 特任教授
高原 淳 国立大学法人九州大学
先端物質化学研究所
所長・教授
月原 富武 公立大学法人兵庫県立大学
特任教授・国立大学法人

	大阪大学 名誉教授
中川 敦史	国立大学法人大阪大学 蛋白質研究所 教授
沼子 千弥	国立大学法人千葉大学 大学院理学研究科 准教授
濱 広幸	国立大学法人東北大学 電子光理学研究センター センター長・教授
平井 康晴	公益財団法人 佐賀県地域産業支援センター 九州シンクロトロン光 研究センター 所長
古川 和朗	大学共同利用機関法人 高エネルギー加速器研究機構 加速器研究施設 加速器第5研究系 研究主幹・教授
古屋 和彦	富士フイルム株式会社 参与
松原英一郎	国立大学法人京都大学 大学院工学研究科 教授

(委員会名称、委員所属・役職は2017年3月末時点又は
退任時のもの)

JASRI 研究支援部
JASRI 利用推進部

1. 施設運営の概況

1-1 施設運転状況

当初の計画通り SACLA の共用運転を実施した。

1. 利用運転期間・運転条件

2016年度のSACLAの各ユニットの利用運転期間の運転条件を表1に示す。

表1 2016年度SACLA運転実績（期間・条件）

ユニット	期間	エネルギー (GeV)	繰り返し (pps)	波長 (keV)	平均レーザー強度 (μJ)
16-1	2016/04/01 00:00 ~ 2016/04/13 10:00	7.80	30	10.0	600
		7.80	30	10.0	600
		7.60	30	9.5	580
16-2	2016/04/13 10:00 ~ 2016/04/22 22:00	8.00	30	12.0	380
16-3	2016/05/06 9:00 ~ 2016/05/20 10:00	6.52	30	7.0	430
		6.52, 6.97	30	7.0, 8.0	430
		6.04	30	6.0	480
16-4	2016/05/20 10:00 ~ 2016/06/02 10:00	7.79	10,30	10.0	600
		7.79	10	10.0	600
		6.66, 7.42	30	7.3, 9.0	520
		7.79	10	10.0	620
16-5	2016/06/02 10:00 ~ 2016/06/15 10:00	5.19	30	4.5	600
		7.90	30	11.2	440
		7.41	30	9.1	480
16-6	2016/06/15 10:00 ~ 2016/06/30 10:00	7.60	30	9.5	580
		4.93	10	4.0	450
		4.93	10	4.0	450
		5.51	30	5.0	510
		7.95	30	11.0	420
16-7	2016/06/30 10:00 ~ 2016/07/13 10:00	7.00, 7.47	30	9.05, 9.05/8.05	170 ~ 450
		6.66	30	7.3	550
		6.97	30	8.0	500
		6.52	30	7.0	520
		6.52	30	7.0	520
		7.80	30	10.5	490
16-8	2016/07/13 10:00 ~ 2016/07/23 19:00	7.80	30	10.5	520
		5.78	30	5.5	670
16-9	2016/07/25 18:00 ~ 2016/07/29 13:00	-	-	-	-
16-10	2016/09/15 12:00 ~ 2016/09/28 10:00	8.00	30	15.0	100
		7.41, 8.00	30	9.0, 15.0	100 ~ 240
		8.00	30	12.0	230
16-11	2016/09/28 10:00 ~ 2016/10/12 10:00	8.00	30	9.05, 9.05/8.05	160 ~ 360
		8.00	30	11.0	320
		8.00	30	13.4	230
		7.70	30	7.0	480

16-12	2016/10/12 10 : 00 ~ 2016/10/26 10 : 00	7.70	30	7.0	480
		7.70	30	7.0	480
		7.8, 8.0	30	7.3, 10.8	380 ~ 500
		6.10	60	4.5	500
16-13	2016/10/26 10 : 00 ~ 2016/11/09 10 : 00	8.00	30	12.0	320
		7.83	30	10.0	480
		7.83	30	10.0	480
		7.71	30	9.8	460
16-14	2016/11/09 10 : 00 ~ 2016/11/24 10 : 00	7.85	30	10.0	440
		5.76	30	4.0	370
		5.76	30	4.0	370
		7.76, 7.80	30	7.1, 9.0	390 ~ 510
		7.80	30	8.0	490
16-15	2016/11/24 10 : 00 ~ 2016/12/07 22 : 00	7.80	30	10.0	440
		6.99, 7.81	30	6.1/5.9, 7.2/9.4	100 ~ 200
		6.40	30	5.0	480
		7.77	30	8.0	480
		7.77	30	8.0	480
16-16	2016/12/07 22 : 00 ~ 2016/12/20 12 : 00	7.62	30	7.0	430
		7.62	30	7.0	430
		7.90	30	11.0	320
		7.84	30	10.0	430
		7.84	30	10.0	430
		7.84	30	10.0	430
16-17	2017/01/31 12 : 00 ~ 2017/02/15 10 : 00	7.03	10	8.1	470
		6.52	30	7.0	480
		6.52	30	7.0	480
16-18	2017/02/15 10 : 00 ~ 2017/02/24 17 : 00	6.52	30	7.0	480
		6.52	30	7.0	480
		5.78	30	5.5	480
16-19	2017/02/27 10 : 00 ~ 2017/03/16 17 : 00	7.41	30	9.1	360
		7.80	30	15.0	140
		7.84	30	13.4	260
16-20	2017/03/18 17 : 00 ~ 2017/03/22 17 : 00	-	-	-	-
16-21	2017/03/30 9 : 00 ~ 2017/04/01 00 : 00	-	-	-	-

1-1. ユニット数

2016年度は合計21ユニットの運転を実施した。

1-2. ユニットの構成

各ユニットは利用運転、利用調整運転、施設調整運転で構成している。

1-3. 利用調整運転及び施設調整運転

利用研究のために高強度・短波長のX線レーザーを安定に供給するための機器の設置、調整、確認等を実施するための期間で、利用者へのX線レーザーの提供は行わなかった。

1-4. 運転条件等

利用運転期間中は、波長範囲4.0 ～ 15.0 keV、パルスエネルギーサブミリジュールで24時間連続運転を行った。

2. 運転時間

2016年度の運転実績（運転時間）を以下に示す。

運転時間総計	5,861時間
(内訳)	
(1) 利用運転時間	4,026時間
(2) 利用調整運転時間	1,749時間
(3) 施設調整運転時間	710時間
(4) ダウンタイム	130時間
(5) 総運転時間に対するダウンタイムの割合	約2.22%

理研 放射光科学研究推進室

1-2 利用研究状況

1. 2016年度の利用統計

2016年度の利用期間は2016A期（2016.3～7）と2016B期（2016.9～2017.3）である。2015年度から調整運転を開始していたBL1（軟X線FELビームライン）について、2016A期より共用に供出した。

※1 2016A期より導入。成果（査読付論文等）公開義務が無い代わりにビーム使用料（税込1,098千円/2時間）が課せられる。ビームタイム配分は2時間単位。当面、日本国内に法人格を有する企業による（申請者（実験責任者）が当該企業に所属する方）に限る。

2. 供用開始から2016年度までの利用推移

2012年3月よりSACLAの供用が開始された。利用期については年間をA期、B期の2期に分けて設定し、利用研究課題は利用期ごとに公募・選定のうえ実施されている。2016年度は2016A期に成果を公開せずに専有することが可能な成果専有利用制度（※1）、2016B期に随時応募可能な成果専有時期指定利用制度（※2）をそれぞれ導入した。

※2 2016B期より導入。利用の時期が制限される公募方式の成果専有利用制度とは別に、申請を随時受け付けており、申請された課題は順次審査される。ビームタイム配分や応募資格は成果専有利用制度に準じるが、ビーム使用料は（税込1,647千円/2時間）が課せられる。

表1 応募・採択状況（申請課題を実験責任者の所属で区分）

利用期	課題種	産業界		大学等教育機関		国公立試験研究機関等		海外機関		計		採択率 (採択/応募)
		応募課題数	採択課題数	応募課題数	採択課題数	応募課題数	採択課題数	応募課題数	採択課題数	応募課題数	採択課題数	
2012A	重点戦略課題（成果非専有）	1	1	30	10	12	7	12	7	55	25	45%
	一般課題（成果非専有）	1	1	14	5	8	5	4	2	27	13	
2012B	重点戦略課題（成果非専有）	3	1	22	14	11	7	13	5	49	27	55%
	一般課題（成果非専有）	3	1	7	3	5	2	4	2	19	8	
2013A	重点戦略課題（成果非専有）	1	1	26	11	15	8	17	4	59	24	41%
	一般課題（成果非専有）	1	1	10	3	6	2	9	3	26	9	
2013B	重点戦略課題（成果非専有）	1	1	28	12	17	11	22	6	68	30	44%
	一般課題（成果非専有）	1	1	9	3	7	4	14	3	31	11	
2014A	重点戦略課題（成果非専有）	1	1	18	12	12	8	18	7	49	28	57%
	一般課題（成果非専有）	1	1	3	2	5	3	8	2	17	8	
2014B	重点戦略課題（成果非専有）	1	1	29	11	16	12	24	5	70	29	41%
	一般課題（成果非専有）	1	1	7	2	8	7	14	2	30	12	
2015A	重点戦略課題（成果非専有）	0	0	26	12	19	11	21	10	66	33	50%
	一般課題（成果非専有）			7	2	7	5	10	3	24	10	
2015B	重点戦略課題（成果非専有）	0	0	23	13	18	12	22	10	63	35	56%
	一般課題（成果非専有）			8	3	8	4	11	5	27	12	
2016A	重点戦略課題（成果非専有）	3	2	25	15	12	7	25	10	65	34	52%
	一般課題（成果非専有）	2	1	6	4	4	2	16	5	28	12	
	一般課題（成果専有）	1	1							1	1	
2016B	重点戦略課題（成果非専有）	3	3	29	18	17	13	36	8	85	42	49%
	一般課題（成果非専有）	2	2	9	16	10	8	23	4	44	20	
	一般課題（成果専有）	1	1							1	1	

3. 利用研究課題の推移

2016年度の応募・採択状況を表1、課題実施状況を表2に示す。

2016A期においては申請65課題のうち34課題が、2016B期においては申請85課題のうち42課題がそれぞれ選定され、利用研究が行われた。なお、利用研究課題には、2012年度に開始された文部科学省委託事業「X線

自由電子レーザー重点戦略研究課題」に係る課題も含まれる。2016年度に新規利用制度として導入された成果専有利用制度においてはA期・B期ともに1課題、成果専有時期指定課題においては2016B期に1課題が実施された。

理研 放射光科学研究推進室

表2 課題実施状況（実施課題を実験責任者の所属で区分）

利用期	課題種	産業界		大学等教育機関		国公立試験研究機関等		海外機関		計		延べ 来所者数
		実施課題数	実施シフト数	実施課題数	実施シフト数	実施課題数	実施シフト数	実施課題数	実施シフト数	実施課題数	実施シフト数	
2012A		1	2	10	50	7	42	7	32	25	126	297人
	重点戦略課題（成果非専有）			5	34	2	12	5	20	12	66	
	一般課題（成果非専有）	1	2	5	16	5	30	2	12	13	60	
○上記のほか、JASRI スタッフによるインハウス課題が計 4 課題（計 14 シフト）実施。												
2012B		1	4	14	76	7	44	5	30	27	154	461人
	重点戦略課題（成果非専有）			11	64	5	32	3	18	19	114	
	一般課題（成果非専有）	1	4	3	12	2	12	2	12	8	40	
○上記のほか、JASRI スタッフによるインハウス課題が計 4 課題（計 16 シフト）実施。												
2013A		1	2	11	48	8	44	4	23	24	117	268人
	重点戦略課題（成果非専有）			8	34	6	34	1	7	15	75	
	一般課題（成果非専有）	1	2	3	14	2	10	3	16	9	42	
○上記のほか、JASRI スタッフによるインハウス課題が計 4 課題（計 10 シフト）実施。												
2013B		1	2	12	54	10	55	7	28	30	139	410人
	重点戦略課題（成果非専有）			9	42	6	35	4	12	19	89	
	一般課題（成果非専有）	1	2	3	12	4	20	3	16	11	50	
○上記のほか、JASRI スタッフによるインハウス課題が計 4 課題（計 14 シフト）実施。												
2014A		1	2	12	61	8	43	7	41	28	147	400人
	重点戦略課題（成果非専有）			10	51	5	28	5	29	20	108	
	一般課題（成果非専有）	1	2	2	10	3	15	2	12	8	39	
○上記のほか、JASRI スタッフによるインハウス課題が計 5 課題（計 15 シフト）実施。												
2014B		1	2	11	54	12	58	5	26	29	140	430人
	重点戦略課題（成果非専有）			9	45	5	27	3	15	17	87	
	一般課題（成果非専有）	1	2	2	9	7	31	2	11	12	53	
○上記のほか、JASRI スタッフによるインハウス課題が計 4 課題（計 9 シフト）実施。												
2015A		0	0	12	54	11	48	10	42	33	144	527人
	重点戦略課題（成果非専有）			10	44	6	26	7	32	23	102	
	一般課題（成果非専有）			2	10	5	22	3	10	10	42	
○上記のほか、JASRI スタッフによるインハウス課題が計 4 課題（計 12 シフト）実施。												
2015B		0	0	13	56	12	54	10	42	35	152	552人
	重点戦略課題（成果非専有）			10	39	8	34	5	21	23	94	
	一般課題（成果非専有）			3	17	4	20	5	21	12	58	
○上記のほか、JASRI スタッフによるインハウス課題が計 4 課題（計 12 シフト）実施。												
2016A		2	5	15	77	7	29	10	47	34	158	538人
	重点戦略課題（成果非専有）			11	56	5	19	5	20	21	95	
	一般課題（成果非専有）	1	5	4	21	2	10	5	27	12	63	
	（成果専有）	1	0.17							1	0	
○上記のほか、JASRI スタッフによるインハウス課題が計 3 課題（計 10 シフト）実施。												
2016B		4	8	18	90	13	66	8	33	43	197	650人
	重点戦略課題（成果非専有）			12	59.92	5	19	4	17	21	96	
	時期指定課題（成果専有）	1	0.17							1	0	
	一般課題（成果非専有）	2	8	6	30	8	47	4	16	20	101	
○上記のほか、JASRI スタッフによるインハウス課題が計 4 課題（計 12 シフト）実施。												

2. SACLAの現状と高度化

2-1 運転・加速器

2016年度はBL2、BL3の2本のXFELビームラインにより、ユーザー運転をスタートさせた。7月中旬からはBL1での軟X線 (SX) FELのユーザー利用も開始された。図1に2本のXFELビームラインと1本のSXFELビームラインが整備されたSACLA施設 (2017年3月現在) の模式図を、表1に2016年度の運転統計データを示す。BL2/BL3の利用運転時間は昨年度同様に全運転時間の約60%程度となった。SACLAの全運転時間は減少したものの、BL1のユーザー利用時間を含めれば、全体で4000時間以上の利用運転時間を確保することができた。2015

表1 SACLAの運転統計

	FY2016
Total Operation Time per Fiscal Year (Achieved / Planned)	5861 / 5934 hr
Operation Rate	~98.8%
Machine Tuning Time	90 hr
BL Tuning, Preparation & R&D Time	2369 hr
User Experimental Time (BL2,3+BL1)	4026 hr BL2,3=3402 hr BL1=624 hr
Downtime in User Experiments	101 hr (BL2,3) 29 hr (BL1)
Laser Availability	~97% (BL2,3) ~95% (BL1)

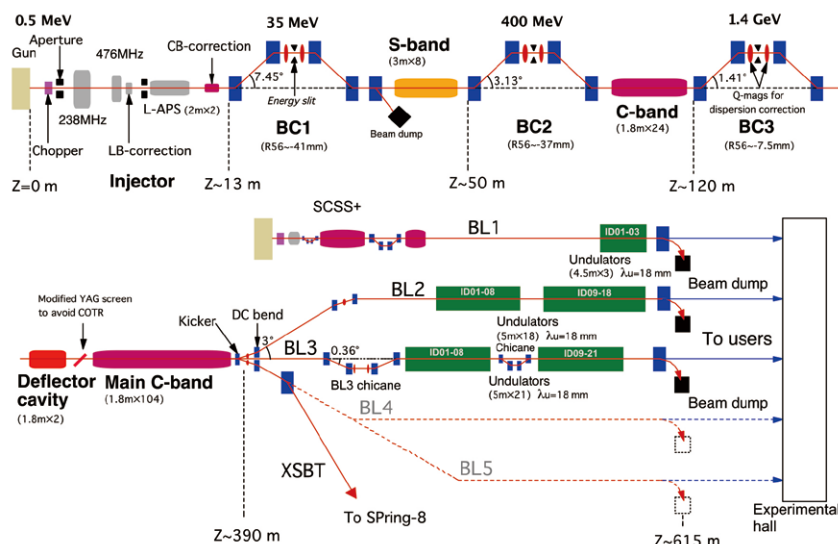


図1 2017年3月時点でのSACLA施設の模式図。

2本のXFELのビームライン、BL2とBL3とSXFELビームラインBL1が同時に利用可能である。BL2へのビーム輸送路は、レーザーパルス振り分けによりフル性能のXFELを提供できるように対称性の高いビーム輸送路の入口と出口にDBAセルを配置した輸送路に置き換えられている。BL1はSACLAの線型加速器から物理的にも、インターロッキング的にも切り離され、専用のBL1専用加速器により単独で運転が可能になった。

年度に引き続き、通年に亘り高いレーザー強度を安定的に提供することができ、2016年度後半からはBL2/BL3において60Hzの繰り返しでユーザー実験にレーザーを提供した。実験時のレーザー利用率はBL1、BL2/BL3共に95%を超える高い値となった。

BL2とBL3の2本のXFELビームラインにパルス毎にレーザーを振り分ける運転^[1]は実現したものの、ユーザー運転への導入には至っていない。その理由は、BL2へのビーム輸送路においてCoherent Synchrotron Radiation (CSR) によるビーム品質の劣化が無視できず、BL3単独運転時に得られるレーザー性能を、BL2/BL3を用いたレーザー振り分け運転で提供できないからである。この課題を克服するため、CSR抑制の詳細な検討が実施され、ビームスイッチャードを含むBL2へのビーム輸送路の大幅な改造が必要である事が分かった。CSRによるビームへの摂動はシステムティックであり、主要な発生源であるビーム偏向部で加わる摂動を相殺する配置を取ること、さらに輸送路全長に亘り、CSR放射の状況が変化しないよう、パンチ長を一定に維持すること ($R_{56} = 0$) が本質的に重要である。これにより10 kA程度の高いピーク電流を輸送しても電子ビームの品質を維持できることがシミュレーションで明らかになった。一方でこの条件を満たすには、現状の上流から下流に向かってアンバランスに配置されたビーム偏向部を大幅に組み変える必要がある。輸送路改造の概要は、先ず、振り分けパルス磁石も含め、上流の3度曲げの部分に位相差 π のDouble Bend Achromat (DBA) で構成する。各偏向磁石の偏向角は同一の1.5度とし、2つの偏向磁石からの摂動の大部分をDBAセル内で相殺する。中央の収束4極磁石にオフセットを与える事で逆偏向磁場を加え R_{56} の値もゼロにすることが可能になる。下流の-3度曲げ戻す部分も同様に位相差 π のDBA (各偏向磁石の偏向角は-1.5度) で構成し、2つのDBAの位相差を π の奇数倍に合わせる。これにより、1つのDBAセルの2台の偏向磁石を通過する際の電子

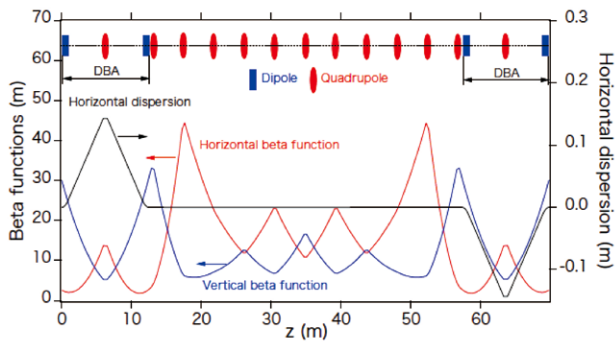


図2 CSRによるビーム質の劣化を抑制するため、新しく設計されたDDBAビーム輸送路。

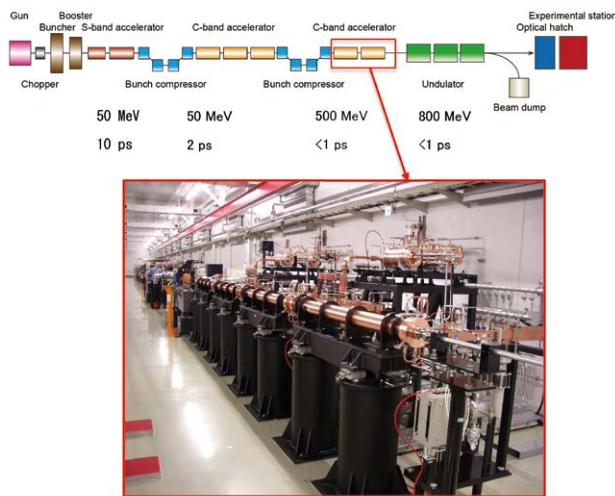


図3 BL1専用加速器システムに新に追加されたC-band加速器2ユニット。これにより最大加速ビームエネルギーが800 MeVまで引き上げられた。

ビームのエネルギー偏差による「摂動相殺のおつり」まで取り除くことが原理的に可能になる。設計したBL2ビーム輸送路のオプティクスを図2に示す^[2]。このCSR抑制型Double DBA (DDBA) ビーム輸送路の実現で最も高いハードルは、8 GeVの電子ビームを、 $+1.5^\circ$ 、 0° 、 -1.5° の3方向に任意のパターンで正確に、最大60Hzで蹴り出すキッカーを駆動する高出力パイポラパターン電源の開発である。このため、2016年度初めからこの電源の開発に着手した。一方で2016年夏に、新しいビームスイッチヤードを構築するスペースを確保するため、加速器最後尾のC-band加速システム2ユニットを上流の旧暗電流除去シケインのスペースに移設した。2016年冬期停止期間には、図2に示すDDBAビーム輸送路を加速器トンネルからアンジュレータホールにかけて建設した。改造後の年明けの運転では、先ずは改造したシステムを用いて、BL2、BL3それぞれの単独XFEL運転を再現し、これまで通りのユーザー運転を保障することを優先した。これにより、短パルス高出力XFELのパルス振り分け運転の実用化を2017年度以降に目指せる体制を整えた。

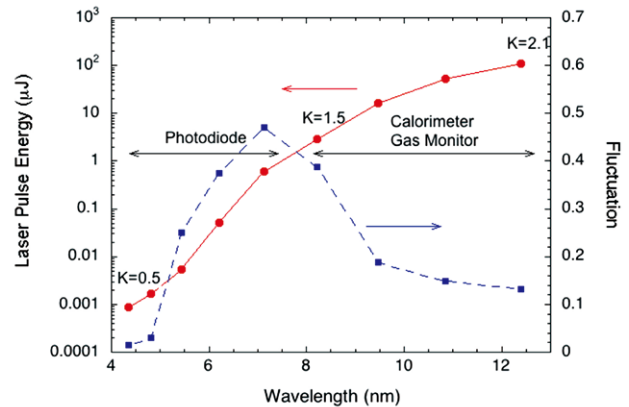


図4 BL1において実測されたレーザーのゲインカーブ。図中の赤丸はレーザーのパルスエネルギーの平均値を、青四角はパルスエネルギーの変動幅(r.m.s.値)を示す。この測定に於いて、電子ビームのエネルギーは780 MeV、電荷量は0.23 nCであった。

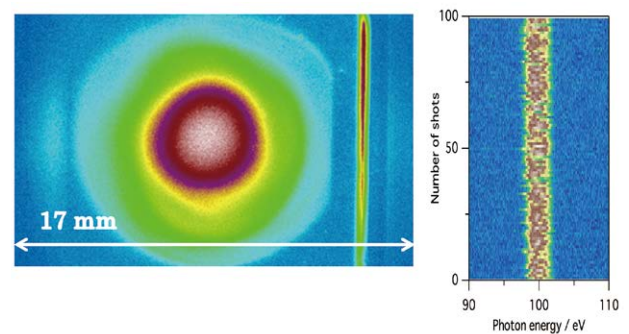


図5 FEL発振波長12 nm (100 eV)においてBL1光学ハッチ内のCe:YAG screenで計測されたビームプロファイル(左)とスペクトルの安定性(右)。

BL1では、最短波長30 nmのSXFELをユーザー実験に提供するため、昨年度からビーム調整が続けられてきた。5月には、レーザーのパルスエネルギーで20～30 μJが安定に再現良く提供できる目処がつき^[3,4]、何回かのテスト利用を経て、7月15日から本格的なBL1のユーザー利用を開始した。BL1はRF高出力系が既に改善されており、レーザーの繰り返しは60Hzで運用されている。夏期停止期間に、BL1専用加速器の最大ビームエネルギーを500 MeVから800 MeVに引き上げるエネルギー増強改修(図3参照)を実施し、SXFELの最短波長を10 nm前後まで低減可能とした。夏期停止期間明けのレーザー再現化、レーザー短波長化の調整も順調に進展し、2016年末までには、13 nmの波長においてパルスエネルギーで100 μJを安定に出力できる状態となった。2016年の冬には、BL1とSACLAを繋いでいたビーム輸送路を撤去すると共に、インターロックにおいてもSACLAから切り離して独立なシステムとした。図4にK値を用いたゲインカーブを、図5に典型的なレーザープロファイルとレーザー波長の安定性を示す。2016年度秋以降、10～

60 nmの波長範囲で安定なSXFELをユーザー実験に提供できるようになった。

References

- [1] T. Hara et al.: *PRAB* **19**, (2016) 020703.
- [2] T. Hara et al.: *Proc. of 13th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Chiba, Japan*, (2016) pp. 282-285.
- [3] T. Inagaki et al.: *Proc. of 13th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Chiba, Japan*, (2016) pp. 286-290.
- [4] T. Sakurai et al.: *Proc. of IPAC2016, Busan, Korea*, (2016) pp. 757-759.

国立研究開発法人理化学研究所
放射光科学総合研究センター
XFEL研究開発部門

田中 均

2-2 ビームライン・実験ステーション

SACLAは、2016年度も安定的に利用運転が実施された。並行して、ビームライン・実験ステーション・関連システムの開発と高度化が行われた。さらに、SACLAで本格的な産業利用を推進するための調査研究として「SACLA産業利用推進プログラム」が実施された。

2-2-1 ビームライン・実験ステーション・関連システムの開発と高度化

2016年度に実施された、ビームライン・実験ステーションに関する主な開発と高度化項目を下記に示す。

- a) BL1の整備と立ち上げ。2016年7月より、軟X線FELビームラインとしての共用運転を開始した。
- b) 500 TWレーザーシステムの立ち上げ
- d) DAPHNISシステム、アライバルタイミングモニター等の共通実験基盤システムの高度化
- e) MPCCDの高度化
- f) DAQの高度化
- g) FX10の運用

2-2-2 SACLA産業利用推進プログラム

SACLAは極めて高い輝度、短いパルス幅、高い空間コヒーレンス特性を持つ、新しいX線光源であり、幅広い先端科学に革新をもたらすとともに、高度な産業の発展に貢献すると期待されている。一方で、既存光源の能力を遥かに超えたSACLAを駆使した研究活動を行うためには、利用装置・手法の検討と開発からはじめの必要があり、企業が主体となった利用を行うためのハードルは依然高い。

この状況を変革し、SACLAを使った産業イノベーションを進めて行くために、2014年度より、RSCは「SACLA産学連携プログラム」を実施してきた。これは、施設者・大学・研究機関・企業が連携しながら、SACLAの産業利用振興に必要な調査研究を行なうものである。3年目となる2016年度は、「SACLA産学連携プログラム」と名称を変更し、企業単独での応募も受け付けることとした。公募、審査を経て、以下の5件が採択され、SACLAの実地研修を含むプログラムを実施した。企業の研究者に、SACLA利用を体験・評価頂くことにより、実験中のみならず事前の試料準備、事後のデータ解析も含めたシステムを構築していく上で極めて有益な情報を得ることができた。2017年度以降も継続して実施する予定である。

1. X線自由電子レーザーを用いた鉄鋼材料中転位挙動・炭素拡散のフェムト秒動的観測」

課題代表者：新日鐵住金 株式会社 技術開発本部

先端技術研究所 米村 光治

参画機関：国立大学法人 大阪大学

2. 「創薬ターゲット蛋白質のシリアルフェムト秒X線結晶構造解析」

課題代表者：国立研究開発法人 理化学研究所

SACLA利用技術開拓グループ

グループディレクター 岩田 想

参画機関：東レ 株式会社

第一三共R Dノバーレ 株式会社

味の素 株式会社

3. 「XFELを用いた自動車用ナノマテリアルの形態や状態の把握」

課題代表者：国立大学法人 北海道大学

電子科学研究所 教授 西野 吉則

参画機関：トヨタ自動車 株式会社

国立大学法人 京都大学

4. 「持続可能社会実現に向けたタイヤゴム材料へのXFEL検討」

課題代表者：住友ゴム工業 株式会社

研究開発本部 分析センター

岸本 浩通

5. 「光触媒反応に関わる電子・構造ダイナミックス」

課題代表者：国立大学法人 東北大学

多元物質料研究所 教授 上田 潔

参画機関：株式会社 豊田中央研究所

国立研究開発法人理化学研究所

放射光科学総合研究センター

XFEL研究開発部門

ビームライン研究開発グループ

矢橋 牧名

3. 委員会活動

2016年度のSACLA委員会活動について、公益財団法人高輝度光科学研究センター（以下「JASRI」という。）の登録施設利用促進機関（以下「登録機関」という。）としての利用促進業務に係る委員会の開催状況を以下に示す。各委員会のうち、公開している委員会名簿は章末に掲載する。

1. 委員会の概況（JASRIの登録機関としての利用促進業務に係る委員会）

「特定先端大型研究施設の共用の促進に関する法律（平成6年法律第78号）」（以下「共用法」という。）第16条の規定により登録機関が利用者選定業務を行う際に意見を聴く委員会として「SACLA選定委員会」を設置・開催した。また、JASRI理事長が登録機関として利用者を選定するため、利用研究課題を審査する「SACLA利用研究課題審査委員会」を設置・開催した。

なお、SACLAおよびSPRing-8の両利用促進業務に係る委員会、すなわち、成果の公開に関する事項の検討等を行う「SPRing-8/SACLA成果審査委員会」、および利用支援業務の最適化のため科学技術上の助言を受けることを目的に2015年度より設置した「科学技術助言委員会」の活動内容等については、SPRing-8委員会活動ページにて掲載している。

2. 委員会開催状況

以下に開催状況を示す。

第13回SACLA選定委員会

〔開催日〕2016年8月5日（金）

〔開催場所〕ステーションコンファレンス東京（東京都）

〔議題〕

審議事項

1. 2016B期SACLA利用研究課題の審査結果について
2. 成果専有利用制度の導入について
3. 2017A期SACLA利用研究課題の公募について

報告事項

1. SACLA現状について
2. 成果の発表等状況について
3. JASRIのビームタイム利用について

第14回SACLA選定委員会

〔開催日〕2016年1月13日（金）

〔開催場所〕ステーションコンファレンス東京（東京都）

〔議題〕

審議事項

1. 2017A期SACLA利用研究課題の審査結果等について
2. 2017B期SACLA利用研究課題の公募について

報告事項

1. SACLAの現状について
2. 成果の発表等状況について
3. JASRIのビームタイム利用について

第11回SACLA利用研究課題審査委員会

〔開催日〕2016年7月26日（火）

〔開催場所〕SPRing-8/SACLAサイト

〔議題〕

1. SACLAの現状について
2. 2016B期SACLA利用研究課題（成果非専有）の審査及びビームタイム配分について
3. 2016B期SACLA利用研究課題（成果専有）の審査結果について
4. 2017A期SACLA利用研究課題の公募について

第12回SACLA利用研究課題審査委員会

〔開催日〕2016年12月27日（火）

〔開催場所〕SPRing-8/SACLAサイト

〔議題〕

1. SACLAの現状について
2. 2017A期SACLA利用研究課題（成果非専有）の審査及びビームタイム配分について
3. 2016B期SACLA利用研究課題（時期指定課題）の審査結果について
4. 2017B期SACLA利用研究課題の公募について

3. 委員会名簿（2017年3月末時点で公開しているSACLA選定委員会名簿）

2015年度-2016年度SACLA選定委員会

（委員長）坂田 誠 国立大学法人名古屋大学
名誉教授

（委員長代理）雨宮 慶幸 国立大学法人東京大学 教授

(委員) 上村みどり 帝人ファーマ株式会社
生物医学総合研究所
上席研究員

妹尾与志木 株式会社豊田中央研究所
シニアパートナー

月原 富武 公立大学法人兵庫県立大学
特任教授

豊島 近 国立大学法人東京大学
分子細胞生物学研究所 教授

水木純一郎 関西学院大学 教授

三間 罔興 光産業創成大学院大学
特任教授

宮永 憲明 国立大学法人大阪大学
レーザーエネルギー学研究センター
教授

村上 洋一 大学共同利用機関法人
高エネルギー加速器研究機構
物質構造科学研究所
副所長・教授

2015年度-2016年度SACLA利用研究課題審査委員会

(委員長) 雨宮 慶幸 国立大学法人東京大学 教授

(委員長代理) 西堀 英治 国立大学法人筑波大学 教授

(委員) 足立 伸一 大学共同利用機関法人
高エネルギー加速器研究機構
物質構造科学研究所 教授

後藤 俊治 公益財団法人高輝度光科学
研究センター
光源・光学系部門長
兼 加速器部門長

近藤 公伯 国立研究開発法人
量子科学技術研究開発機構
量子ビーム科学研究部門部長

近藤 寛 慶應義塾大学 教授

坂田 修身 国立研究開発法人物質・
材料研究機構
技術開発・共用部門
高輝度放射光ステーション長

佐藤 衛 公立大学法人横浜市立大学
教授

繁政 英治 大学共同利用機関法人
自然科学研究機構
分子科学研究所 准教授

千田 俊哉 大学共同利用機関法人
高エネルギー加速器研究機構
構造生物学研究センター
教授・センター長

登野 健介 公益財団法人高輝度光科学
研究センター
XFEL利用研究推進室
実験技術開発チーム
チームリーダー

中川 敦史 国立大学法人大阪大学
蛋白質研究所 教授

西野 吉則 国立大学法人北海道大学
教授・センター長

濡木 理 国立大学法人東京大学 教授

初井 宇記 公益財団法人高輝度光科学
研究センター
XFEL利用研究推進室
先端計測・解析技術グループ
グループリーダー

花木 博文 公益財団法人高輝度光科学
研究センター 安全管理室長

菱川 明栄 国立大学法人名古屋大学
教授

平井 康晴 公益財団法人佐賀県地域産業
支援センター 九州シンクロ
トロン光研究センター 所長

前仲 勝実 国立大学法人北海道大学
教授

松田 巖 国立大学法人東京大学
物性研究所 准教授

水木純一郎 関西学院大学 教授

矢橋 牧名 公益財団法人高輝度光科学
研究センター
XFEL利用研究推進室長

山川 考一 国立研究開発法人
量子科学技術研究開発機構
関西光科学研究所
レーザー医療応用研究グループ
グループリーダー

山下 宏一 国立研究開発法人理化学研究所
播磨事業所 安全管理室長

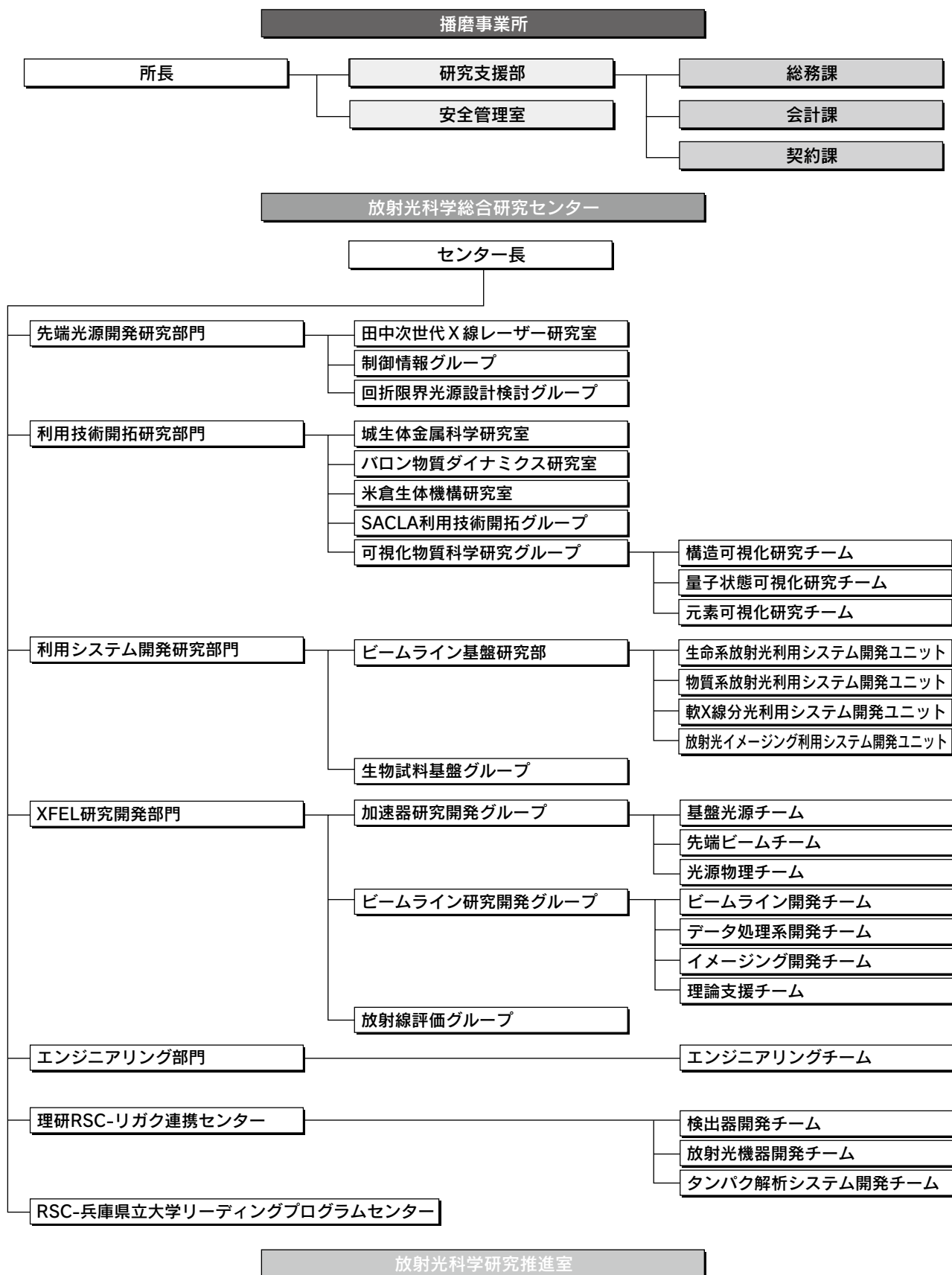
米田 仁紀 国立大学法人電気通信大学
レーザー新世代研究センター
センター長・教授

(所属・役職は2017年3月末時点のもの)

JASRI 利用推進部

組織図

理化学研究所 播磨地区 組織図【2016年4月現在】



年別査読有り論文発表登録数（2017年3月31日現在）

		Beamline Name	Public Use Since	～2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	Total	
Spring-8	Public Beamlines	BL01B1 : XAFS	(1997.10)	244	54	59	58	75	65	73	92	72	69	16	877	
		BL02B1 : Single Crystal Structure Analysis	(1997.10)	98	10	13	19	12	18	36	43	34	37	5	325	
		BL02B2 : Powder Diffraction	(1999. 9)	307	66	65	67	82	59	96	70	76	79	18	985	
		BL04B1 : High Temperature and High Pressure Research	(1997.10)	117	14	20	21	22	16	20	19	16	16	3	284	
		BL04B2 : High Energy X-ray Diffraction	(1999. 9)	123	17	26	28	23	28	28	33	35	33	4	378	
		BL08W : High Energy Inelastic Scattering	(1997.10)	96	8	12	12	20	19	15	13	19	13		227	
		BL09XU : Nuclear Resonant Scattering	(1997.10)	78	12	9	9	13	13	15	14	18	12	1	194	
		BL10XU : High Pressure Research	(1997.10)	198	33	24	34	31	28	20	28	23	22	7	448	
		BL13XU : Surface and Interface Structure	(2001. 9)	76	28	16	18	25	6	16	20	23	31	6	265	
		BL14B2 : Engineering Science Research II	(2007. 9)		2	16	25	32	36	52	53	59	42	10	327	
		BL19B2 : Engineering Science Research I	(2001.11)	82	22	20	18	35	53	56	61	62	54	20	483	
		BL20B2 : Medical and Imaging I	(1999. 9)	121	26	14	16	25	34	28	25	32	15	2	338	
		BL20XU : Medical and Imaging II	(2001. 9)	54	24	24	36	28	20	40	44	37	28	5	340	
		BL25SU : Soft X-ray Spectroscopy of Solid	(1998. 4)	211	24	21	20	25	22	24	30	20	17	5	419	
		BL27SU : Soft X-ray Photochemistry	(1998. 5)	200	36	15	22	31	18	40	33	22	34	5	456	
		BL28B2 : White Beam X-ray Diffraction	(1999. 9)	55	16	14	9	15	9	21	18	20	15	2	194	
		BL35XU : High Resolution Inelastic Scattering	(2001. 9)	41	19	5	9	12	8	13	13	15	12	4	151	
		BL37XU : Trace Element Analysis	(2002.11)	49	13	12	22	23	13	31	28	30	20	3	244	
		BL38B1 : Structural BiologyIII	(2000.10)	182	45	53	47	46	60	58	48	62	49	10	660	
		BL39XU : Magnetic Materials	(1997.10)	114	15	27	15	19	21	19	25	18	19	10	302	
		BL40B2 : Structural Biology II	(1999. 9)	234	25	30	43	42	43	70	54	50	49	14	654	
		BL40XU : High Flux	(2000. 4)	56	9	13	11	13	18	36	19	29	30	5	239	
		BL41XU : Structural Biology I	(1997.10)	383	61	78	65	66	53	65	55	57	54	9	946	
		BL43IR : Infrared Materials Science	(2000. 4)	40	13	10	5	8	11	8	11	17	13	7	143	
		BL46XU : Engineering Science Research III	(2000.11)	46	19	13	20	22	15	36	27	52	40	6	296	
		BL47XU : HXPES・MCT	(1997.10)	144	22	27	27	28	17	35	36	25	23	9	393	
	Public Use at Other Beamlines	BL11XU : Quantum Dynamics	(1999. 3)	9	4											13
		BL14B1 : Materials Science	(1998. 4)	35	3	3	3	2	1		1					48
		BL15XU : WEBRAM	(2002. 9)	24	5	2	1	1	1		1					35
		BL17SU : RIKEN Coherent Soft X-ray Spectroscopy	(2005. 9)	1	4	2	1	7	6	11	11	5	2	1	51	
		BL19LXU : RIKEN SR Physics	(2002. 9)	5							1	1	1		8	
		BL22XU : Quantum Structural Science	(2004. 9)	4	1					1					6	
		BL23SU : Actinide Science	(1998. 6)	38	4	2	2		2	3	2				53	
		BL26B1 : RIKEN Structural Genomics I	(2009. 4)					3	8	2	8	5	12	3	41	
		BL26B2 : RIKEN Structural Genomics II	(2009. 4)				1		5	3	4	7	8		28	
		BL29XU : RIKEN Coherent X-ray Optics	(2002. 9)	8	4	1					1				14	
		BL32XU : RIKEN Targeted Proteins	(2010.10)					5	5	8	9	13	5	1	46	
		BL44B2 : RIKEN Materials Science	(1998. 5)	13	1								4	1	19	
		BL45XU : RIKEN Structural Biology I	(1997.10)	61	4	11	8	9	6	7	9	12	18	3	148	
		Subtotal				3547	663	657	692	800	737	986	959	966	876	195
Contract Beamlines		BL03XU : Advanced Softmaterials	(2009.11)				1	5	8	24	21	14	17	3	93	
		BL07LSU : Univ. Tokyo Synchrotron Radiation Outstation	(2009.11)				1	5	6	10	12	11	16	6	67	
		BL08B2 : Hyogo Prefecture BM	(2005. 9)				1	1	3	6	7	5	5	3	31	
		BL11XU : Quantum Dynamics		50	7	7	9	6	13	16	14	8	16	4	150	
		BL12B2 : NSRRRC BM	(2001. 9)	87	9	7	28	13	25	22	21	22	24	2	260	
		BL12XU : NSRRRC ID	(2003. 2)	18	8	5	15	10	14	11	16	17	14		128	
		BL14B1 : Materials Science		55	18	16	18	16	11	10	15	19	14	6	198	
		BL15XU : WEBRAM	(2001. 4)	66	17	28	35	50	41	59	56	46	49	5	452	
		BL16B2 : Sunbeam BM	(1999. 9)	28	3	6	6	5	3	3	6	3	9	1	73	
		BL16XU : Sunbeam ID	(1999. 9)	25	1	6	5	2	2	2	3	4	8	1	59	
		BL22XU : Quantum Structural Science		31	5	9	15	10	10	14	19	15	14	1	143	
		BL23SU : Actinide Science		85	25	22	15	22	20	17	27	19	23	5	280	
		BL24XU : Hyogo Prefecture ID	(1998.10)	111	7	8	5	6	7	8	5	4	5		166	
		BL28XU : RISING	(2012. 4)							3	9	5	5		22	
		BL31LEP : Laser-Electron Photon II	(2013.10)								1				1	
		BL32B2 : Pharmaceutical Industry	(2002. 9) - (2012. 3)	15	6	1	2	3				1			28	
		BL33LEP : Laser-Electron Photon	(2000.10)	24	3	5	8	2	3	4	3	2	1		55	
		BL33XU : Toyota	(2009. 5)					2	5	2	8	4	10	2	33	
		BL36XU : Catalytic Reaction Dynamics for Fuel Cell	(2013. 1)							1	7	6	7	1	22	
		BL44XU : Macromolecular Assemblies	(2000. 2)	122	22	30	20	48	57	58	46	54	41	12	510	
Subtotal				717	131	150	184	206	228	270	296	259	278	52	2771	
RIKEN Beamlines		BL17SU : Coherent Soft X-ray Spectroscopy		20	18	13	12	10	13	3	7	4	6		106	
		BL19LXU : SR Physics		50	5	11	7	8	11	12	13	9	2	1	129	
		BL26B1 : Structural Genomics I		99	23	13	14	7	8	7	4	5	3		183	
		BL26B2 : Structural Genomics II		24	19	6	18	18	19	13	4	3	5	1	130	
		BL29XU : Coherent X-ray Optics		105	14	9	15	8	16	14	9	10	10		210	
		BL32XU : Targeted Proteins						2	9	8	8	8	7	1	43	
		BL43LXU : Quantum NanoDynamics										1	1		2	
BL44B2 : Materials Science			165	15	10	9	12	11	13	12	17	14		278		
BL45XU : Structural Biology I		146	16	9	8	9	9	10	9	12	3	1	232			
Subtotal				609	110	71	83	74	96	80	66	69	51	4	1313	
SACLA	Public Beamlines	Beamline Name	Public Use Since	～2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	Total	
		BL2/BL3 : XFEL2/XFEL1	(2012. 3)							1	13	26	37	44	4	125
Hardware / Software R & D					355	22	34	35	35	56	65	12	34	35	3	686
NET Sum Total					4438	798	800	871	943	923	1172	1069	1105	1025	213	13357

査読有り論文発表等：査読有りの原著論文、査読有りのプロシーディングと博士論文、Spring-8/SACLA 利用研究成果集

Technical Journal : JASRI が認定した企業等の公開技術報告書

NET Sum Total : 実際に登録されている件数（本表に表示していない実験以外に関する文献を含む）

複数ビームライン（BL）からの成果からなる論文はそれぞれのビームラインでカウントした。

このデータは論文発表等登録データベース（<http://user.spring8.or.jp/?p=748&lang=ja>）に 2017 年 3 月 31 日までに登録されたデータに基づいており、今後変更される可能性があります。

・Spring-8 または SACLA で成果を論文等にする場合は必ずビームライン名および課題番号の記述を入れて下さい。

SPring-8・SACLA 年報 2016年度

平成30年3月

理化学研究所

(問合せ先)

理化学研究所 放射光科学研究推進室

〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1

電話 (0791) 58-0900 FAX (0791) 58-0800

e-mail : harima-suishin@riken.jp

理化学研究所
RIKEN