

SPring-8

SACLA

年報

2017年度



巻 頭 言

国立研究開発法人理化学研究所
放射光科学研究センター長 石川 哲也



2017年はSPring-8が供用を開始してから20年の記念すべき年である。SPring-8は第三世代放射光源としては世界最高エネルギーの電子蓄積リングを持つものとして建設されたが、20年を経過してもその事情は変わっていない。それは、SPring-8で開発された真空封止型アンジュレータがそれまでの放射光施設のコンセプトを変え、3 GeV程度のエネルギーの蓄積リングから、そこそこのX線が得られるようになったためである。かくして世界では、3 GeV規模の「中型放射光施設」の建設ラッシュが始まった。そして最近のアメリカ NSLS-IIや台湾 TPSは、紙の上の性能では

SPring-8を上回っており、スウェーデンのMAX-IVを嚆矢とするマルチバンドアクロマット (MBA) ラティスを用いた、新型蓄積リングでは、電子ビームエミッタンスという指標をとるとSPring-8を遥かに上回るものとなる。このため、世界中の放射光施設がMBA ラティスを用いたアップグレード計画を作り、またそれを用いた新規放射光施設の建設計画も目白押しになっている。

中でも非常に積極的に放射光科学を推進しようとしているのは、お隣りの中国で、既に第三世代放射光源としての上海光源と2つの第二世代光源を合肥と北京に有しているが、北京にMBAによる6 GeV放射光施設を新設し、また合肥の施設もグリーンフィールドでのアップグレードを計画している。加えて、地方政府主導で武漢、西安、重慶、東莞で中型放射光施設建設が計画されており、これらすべてにMBA ラティスが採用されれば（その実現性は極めて高い）、日本を完全に凌駕する放射光大国になることは確実である。SPring-8を最後に「大型放射光施設」の新設は途絶えていたが、北京での6 GeV計画、モスクワでの6 GeV計画、インドでの6 GeV計画と新たな6 GeV放射光施設整備計画が並び、高エネルギー物理用衝突リングから転用されたドイツのPETRA-IIIも6 GeV、アップグレード後のアメリカAPSも6 GeV、また元来6 GeVだったESRFを加え、高エネルギー放射光施設は6 GeVに収斂していく傾向にある。

わが国では、量子科学技術研究開発機構を主体とした中型次世代放射光リングの建設が漸く始まることとなり、これにはSPring-8として出来る限りの協力をしていくことになる。これはMBA ラティスを採用した3 GeV電子蓄積リング光源であり、光子エネルギーの重心はSPring-8より低エネルギー側にくるものの、そこでの輝度はSPring-8の100倍程度になるとされている。SPring-8サイトは当面の間、SPring-8、SACLA、SCSSそして場合によってはNew SUBARUも含めた「総合力」で世界と勝負していくことになるが、遠からずSPring-8のアップグレードを軌道に乗せることが必要になる。その際には、20年間の経験を活かして、引き続き世界をリードできる施設とすることが、産官学のいずれからも求められている。これから数年間、利用者の皆様、登録機関、施設者の間で十分な議論を重ね、低下傾向にあると言われる日本の科学技術を回復基調に戻す原動力となるような基盤施設を作り上げることを目指して、アップグレード計画を考えていきたい。

目 次

巻頭言

理化学研究所放射光科学研究センター長

全体概要

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
8. 情報・ネットワーク	15

SPRING-8

1. SPRING-8の現状と高度化	
1-1. 運転・加速器	16
1-2. ビームライン	21
1-3. 実験ステーション	
1-3-1. 共用ビームライン	
BL01B1 XAFS	26
BL02B1 単結晶構造解析	29
BL02B2 粉末結晶構造解析	32
BL04B1 高温高压	35
BL04B2 高エネルギー X 線回折	37
BL08W 高エネルギー非弾性散乱	39
BL09XU 核共鳴散乱	41
BL10XU 高压構造物性	44
BL13XU 表面・界面構造解析	46
BL14B2 産業利用Ⅱ	48
BL19B2 産業利用Ⅰ	50
BL20XU 医学・イメージングⅡ	53
BL20B2 医学・イメージングⅠ	55
BL25SU 軟 X 線固体分光	58
BL27SU 軟 X 線光化学	60
BL28B2 白色 X 線回折	63
BL35XU 高分解能非弾性散乱	65
BL37XU 分光分析	68
BL38B1 構造生物学Ⅲ	70
BL39XU 磁性材料	73
BL40XU 高フラックス	76
BL40B2 構造生物学Ⅱ	78
BL41XU 構造生物学Ⅰ	80
BL43IR 赤外物性	83
BL46XU 産業利用Ⅲ	86
BL47XU 光電子分光・マイクロ CT	89

1-3-2. 理研ビームライン	92
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	
BL38B2 理研 施設診断ビームライン 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 量子ナノダイナミクスビームライン	
BL05XU 理研 施設診断ビームライン I	
1-3-3. 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	104
BL23SU JAEA 重元素科学 II	110
量子科学技術研究開発機構	
BL11XU QST 極限量子ダイナミクス I	115
BL14B1 QST 極限量子ダイナミクス II	122
兵庫県	
BL08B2 兵庫県.....	125
BL24XU 兵庫県.....	129
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	134
BL16B2 サンビーム BM	137
大阪大学蛋白質研究所	
BL44XU 生体超分子複合体構造解析.....	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
物質・材料研究機構	
BL15XU 広エネルギー帯域先端材料解析.....	147
NSRRC (台湾ビームライン)	
BL12XU NSRRC	149
BL12B2 NSRRC	152
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	156
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.....	158
豊田中央研究所	
BL33XU 豊田	160
京都大学	
BL28XU 革新型蓄電池実用化促進基盤技術開発.....	163
電気通信大学	
BL36XU 先端触媒構造反応リアルタイム計測	166

2. 産業利用	168
3. 委員会活動	171

SACLA

1. SACLAの現状と高度化	
1-1. 運転・加速器	175
1-2. ビームライン・実験ステーション・産業利用	178
2. 委員会活動	181

巻末付録

・ 利用研究状況 (SPring-8/SACLA)	1
・ 論文出版状況 (SPring-8/SACLA)	3
・ 理研組織図	4

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（理研）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（JASRI）によって、2017年度は運営された。

1. 国立研究開発法人理化学研究所

特定放射光施設（SPring-8及び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の提供に責任を果たすとともに、放射光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）、兵庫県（2本）、産業用専用ビームライン建設利用共同体（2本）、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）、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）、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（1本）、国立大学法人東京大学（1本）、株式会社豊田中央研究所（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。

理研 播磨事業所 放射光科学研究推進室

2. 予算

2017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及びSACLA）の施設者である理研に対し、施設の運転・維持管理等に必要な「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」に基づく登録施設利用促進機関であるJASRIに対し、利用促進業務に必要な「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及びSACLAの運営に係る2017年度の政府予算額は、2016年度（149.5億円）を上回る154.2億円となった。

理研 播磨事業所 放射光科学研究推進室

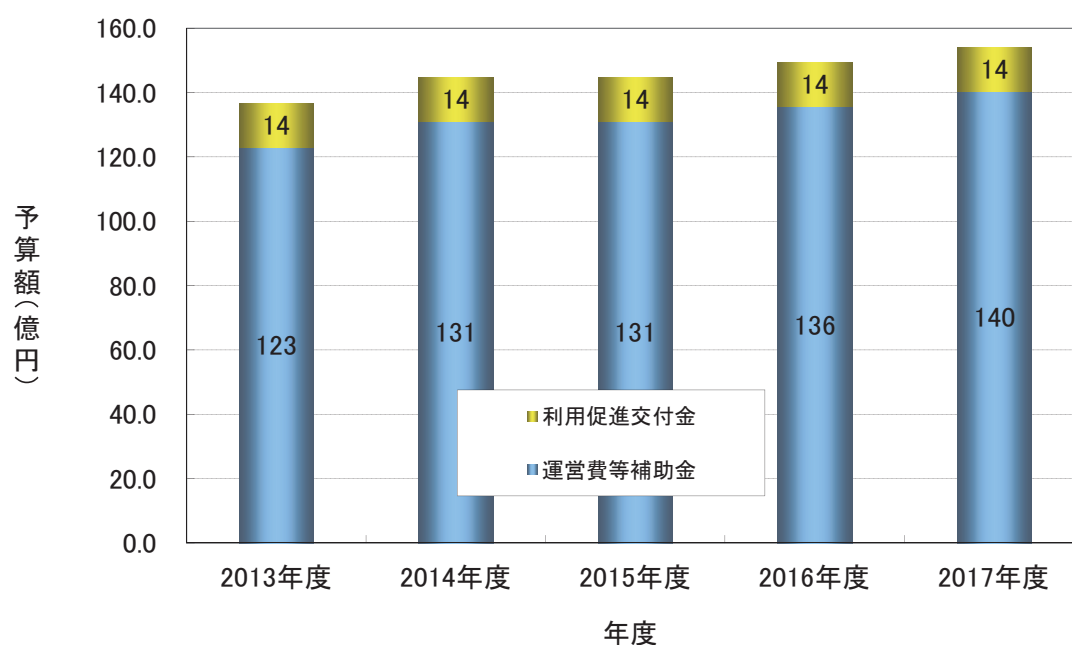


図1 過去5年間の予算推移

3. 国際協力

2017年度末時点で、海外の20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 (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 (APS)	2006	2021
	ブルックヘブン国立研究所 (BNL)・国立放射光源 II	2009	2021
	ローレンスバ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
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、2017年度には以下の機関と協力協定を延長した。

アルゴンヌ国立研究所 (Advanced Photon Source / アメリカ)

放射光科学研究に関する理研、JASRI との3者覚書が

2018年3月で満了となり、締結期間を2021年3月まで3年間延長した。

理研 播磨事業所 放射光科学研究推進室

4. 研究会・国際会議等

2017年度に行われたSPring-8/SACLAに関連する研究会及び国際会議は表1の通りである。

表1 研究会及び国際会議等一覧

開催期間	会議名
2017/9/4-5	SPring-8 シンポジウム 2017
2017/9/13-14	第9回日本放射光学会 放射光基礎講習会
2017/10/14	SPring-8 20周年記念シンポジウム
2017/12/11-12	SACLA Users' Meeting 2017
2017/12/13-15	9th Hard X-ray FEL Collaboration Meeting
2018/1/8-10	第31回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム

1. SPring-8 シンポジウム 2017

「SPring-8 シンポジウム 2017」では、「SPring-8の目指す将来」と題し、持続可能な社会を実現するためにSPring-8が目標にすべき先端性について、基礎科学から産業応用までの幅広い分野の視点から活発な議論が繰り広げられた。

講演では施設側からSPring-8の現状報告や高度化に向けた取組み、SACLAの利用研究、海外施設の動向と国際戦略について、利用者からはSPring-8を利用した最新の研究成果等について発表があり、合計15件の講演が行われた。

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及び高性能化の報告、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、合計97件の発表が行われた。

さらにSPring-8の施設者である理研、登録機関JASRI、そしてユーザーが取り組むべき課題を議論すべくパネルディスカッションが企画された。9名のパネラーから意見表明がなされた後、会場からの様々な意見とともに議論が交わされた。

参加者は2日間で267名であった。

2. 第9回日本放射光学会 放射光基礎講習会

第9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、第8回同様に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。

2日間で基礎編・応用編を合わせて10件の講義が行われ、参加者は69名であった。

3. SPring-8 20周年記念シンポジウム

SPring-8の供用開始20周年を記念したシンポジウム「Synchrotron Radiation for the Future of Humanity」が姫路商工会議所にて開催された。SLAC National Accelerator LaboratoryのJerome Hastings教授が司会を務め、各国の放射光施設の代表者らによるパネルディスカッションの形式で進行された。

第一部は「Light Sources from Concept to Operation and Upgrade」と題して、各施設の成り立ちや光源開発がもたらしてきた成果とその波及効果、施設の高度化等について議論がなされた。また、第二部は「Benefit of the society from the accelerator-based light source」と題して、産業利用を主軸とした議論がなされた。

4. SACLA Users' Meeting 2017

SACLAは2012年3月の供用開始以降、物理学、材料科学、化学、生物学などの様々な分野の研究者に活用されてきた。「SACLA Users' Meeting 2017」では、ユーザー側より研究成果の発表、施設側より運転状況や実験装置の整備状況についての発表が行われた。

双方の発表を通してSACLAの今後の方向性について、世界中の他のXFEL施設と差別化し、よりユーザーのニーズにあった施設へと高度化を図るべく積極的な議論を行う場となった。

2日間を通して19件の発表やSPring-8/SACLAのサイトツアーを実施し、参加者は107名であった。

5. 9th Hard X-ray FEL Collaboration Meeting

世界のXFEL施設（米国LCLS、欧州European-XFEL、韓国PAL-XFEL、スイスSwiss-FEL、中国Shanghai XFEL、日本SACLA）から代表者が参加し、技術協力を目的とした国際会議「9th Hard X-ray FEL Collaboration Meeting」が

SACLAで開催された。

各国のXFEL施設の現状についての発表、Accelerator/Photonに分かれての議論、ポスターセッション、SPRING-8/SACLAのサイトツアーなどが行われた。3日間を通して28件の発表が行われ、参加者は94名であった。

6. 第31回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム

第31回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウムは、日本放射光学会30周年を記念して開催された。初日の午前から5会場による企画講演と一般講演の平行セッションでスタートし、午後にはSLAC National Accelerator LaboratoryのJerome Hastings教授による30周年記念特別講演「Accelerator based X-ray sources/Photon Science with X-Ray Free Electron Lasers」が行われた。また、2日目の午後には、多くの国内・国際学会の中で学会員1,300人規模の放射光学会が、どのような役割を果たすべきかについて改めて考えるシンポジウムとして、30周年特別企画講演「日本放射光学会三十而立」が企画され、7件の講演とパネルディスカッションが実施された。

市民公開講座は、「放射光で輝く!女性研究者」という

テーマで開催され、SPRING-8やSACLAを利用した最新の研究成果について講演が行われた。講演後には講演者2名を含めた合計6名のパネラーによって、会場からの質問を受け付けながらパネルディスカッションが実施された。

3日間を通して、1件の30周年記念特別講演、1件の特別企画講演、4件の企画講演（発表23件と総合討論もしくはパネルディスカッション）が実施された。また、一般講演は9件の招待講演を含む127件の口頭発表（学生49件）、231件のポスター発表（学生77件）、20件の施設報告が行われ、参加者は666名（企業展示の参加者を含めると総数865名）であった。

また、各分野の著名な研究者等を講師として招聘し、SPRING-8のスタッフを対象に最新の研究・技術開発等を紹介頂き、情報交換を行うことでSPRING-8/SACLAにおいて求められる諸科学分野の研究動向に関する理解を高めることを目的としてSPRING-8セミナーが表2の通り開催された。

理研 播磨事業所 放射光科学研究推進室

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263回	2017/4/3	Steven Leake	European Synchrotron Radiation Facility	Nanobeams @ ID01 Beamline in Light of the Extremely Brilliant ESRF	今井 康彦
第264回	2017/5/18	Jonathan Pelliciari	Massachusetts Institute of Technology	Resonant Inelastic X-ray Scattering on Iron Pnictides	石井 賢司 (QST) 櫻井 吉晴
第265回	2017/6/6	Andrés Greco	Facultad de Ciencias Exactas, Ingeniería y Agrimensura	Charge excitations in the t-J model. Possible implications for high-Tc cuprate superconductors	石井 賢司 (QST) 櫻井 吉晴
第266回	2017/5/31	Arndt Last	Karlsruhe Institute of Technology	Refractive X-ray optics developed at KIT/IMT, Germany	田尻 寛男
第267回	2017/6/1	高橋 栄治	理化学研究所	理研におけるアト秒軟X線レーザー開発とその展望	中村 哲也
第268回	2017/9/27	Hendrik Ohldag	SLAC National Accelerator Laboratory	Ultrafast and Very Small: Discover Nanoscale Magnetism With Picosecond Time Resolution Using X-Rays	中村 哲也
第269回	2017/9/29	小原 真司	物質・材料研究機構	不規則系物質の新しいトポロジカル解析ツールとしてのパーシステントホモロジー法	水牧仁一郎
第270回	2017/10/6	Wolfgang Drube	Deutsches Elektronen-Synchrotron	HAXPES and other Photon Science activities at DESY	櫻井 吉晴
第271回	2017/10/9	山崎 裕一	物質・材料研究機構	スパース位相回復法を用いた磁気イメージング	水牧仁一郎
第272回	2017/12/20	Yang Ding	Center for High Pressure Science & Technology Advanced Research	High Pressure Synchrotron Study of Electron Correlated Systems	櫻井 吉晴
第273回	2017/12/4	赤井 一郎	熊本大学	光物性におけるデータ駆動科学	水牧仁一郎

5. 広報活動

2016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、SPring-8及びSACLAの活動情報を発信した。

月13日）と、シンポジウム「Synchrotron Radiation for the Future of Humanity」（2017年10月14日）を行った。

理研 播磨事業所 放射光科学研究推進室

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。2017年度において、理研・JASRIを合わせた発表件数は55件であった。

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10件であった。

3. 一般見学

291件6,409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7,531名であった。

4. 施設公開

2017年4月30日に「Meet the Scientists ～科学と遊ぼう～」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した。来場者数は2016年度を上回る5,982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。

2017年度は、2017年7月4日に播磨高原東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

2017年度は「第10回サイエンスフェアin兵庫」（2018年1月28日）にパネル出展を行い、兵庫県内の高校生を対象にSPring-8/SACLAの普及活動に努めた。

また、SPring-8が供用を開始して20周年であることから、「SPring-8供用開始20周年記念式典」（2017年10

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41次（2017年4月20日許可）及び第42次（2017年11月10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7,054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

2017年度は、公的機関による検査はなかった。また、サイト内の各加速器・施設において放射線管理上の問題はなかった。

2-2. 許認可申請

2017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）

第42次変更許可申請

（申請日：2017年9月27日、許可日：2017年11月10日）

1. 直線加速装置（線型加速器）L3BTへの出射の廃止
2. 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, BL31LEP）

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24回）を開催した。この会議では、SPring-8/SACLAの第42次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

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回の定期測定と積算線量計及び放射線モニタリングシステムによる定常監視を実施し、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2.0 $\mu\text{Sv}/\text{時}$ 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 $\mu\text{Sv}/\text{時}$ 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 $\mu\text{Sv}/\text{時}$ 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 $\mu\text{Sv}/\text{時}$ 、積算線量の結果が0.04 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

2017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 2017年度全放射線業務従事者数

事業所名	SPring-8/SACLA
男（人）	6,114（4,376）
女（人）	940（805）
計（人）	7,054（5,181）

（ ）内は放射光ユーザー数

表2 2017年度一時立入り者数*

事業所名	SPring-8/SACLA
一時立入り者数（人）	15,824 [うち施設公開時5,982人]

*：延べ数

2-7. 特例区域の設定

2017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者数を示す。
〔SPring-8〕

- ①, ③, ④ 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〕

- ② SACLA 相互利用実験施設

表3 2017年度特例区域作業者数

設定期間	SPring-8 (人)	SACLA (人)
① 8/2～9/22	108	—
② 8/2～9/13	—	0
③ 12/23～1/12	12	—
④ 2/19～3/22	62	—
計（人）	182	0

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。2017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法令及び放射線障害予防規程に定められている限度値を大きく下回り、問題のないことが確認された。

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及び修繕を実施し、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。2017年度中に実施した化学関係の許可申請・届出は、以下のとおりである。

(1)許可申請

なし

(2)届出

2017年10月5日 平成29年度麻薬年間届

2017年12月4日 覚せい剤年間報告書

2018年1月30日 平成29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

2017年度は下記委員会を開催し、新規、継続、変更課題含め13件の審査を行い許可した。

2017年 9月12日 第52回遺伝子組換え実験委員会

2017年11月 7日 第53回遺伝子組換え実験委員会
(持ち回り)

2017年11月14日 第54回遺伝子組換え実験委員会
(持ち回り)

2017年11月21日 第55回遺伝子組換え実験委員会
(持ち回り)

2018年 1月12日 第56回遺伝子組換え実験委員会
(持ち回り)

2018年 3月16日 第57回遺伝子組換え実験委員会

4-2. 動物実験委員会

2017年度は下記委員会を開催し、新規課題13件の審査を行い許可した。

2017年 8月30日 第51回動物実験委員会

2018年 3月12日 第52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6月19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

2017年度における高圧ガスの保安管理状況は、以下のとおりである。なお、高圧ガス保安法関係法令が改正（2016年11月1日付）されたことを受け、第一種製造者から第二種製造者となるよう変更手続き（2017年6月1日付）を行った。

(1)届出

・第二種貯蔵所位置等変更届

2017年 5月31日

2017年10月 3日

2017年11月21日

2017年12月20日

2018年2月8日

2018年3月9日

- ・ 高圧ガス保安統括者届書（解任）

2017年6月1日

- ・ 高圧ガス保安統括者代理者届書（解任）

2017年6月1日

- ・ 高圧ガス保安技術管理者等届書（解任）

2017年6月1日

- ・ 高圧ガス製造廃止届書（第一種）

2017年6月1日

- ・ 高圧ガス製造事業届書（第二種）

HIP装置C、ダイヤモンドアンビル試料充填装置、
HIP装置E

HIP装置G 合計4件分。

(2)その他

- ・ 貯蔵状況

2018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542本、貯蔵量2,425.08 m³。最大貯蔵能力に対する貯蔵割合は、96.99%であった（2017年度3月届出時点でのボンベの数は、512本、2,338.42 m³、95.83%）。

6. 課題安全審査

2017B期課題安全審査を2017年6月に、2018A期課題安全審査を2018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、2017年度は構内で発生が想定される事故・災害等に誰でも迅速かつ適切な初動がとれるよう「理化学研究所播磨地区防災マニュアル」を作成し、各研究室や共用部に配付した。また、赤穂消防本部新都市分署の協力を得て、構内に事業所を置く各機関との合同防災訓練を9月8日に実施し、中央管理棟中央部の吹き抜けを利用した負傷者救出、及び火災時における煙の怖さを疑似体験できる煙体験ハウスを設置して訓練を行った。

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

施設管理にあたっては、SPring-8/SACLAの運転及びビームラインにおける利用実験、並びに各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し、大学・研究機関・産業界を含む幅広い利用者に世界最高水準の高輝度X線を提供していくことが常に求められる。

施設・設備の運転においては、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。

保守・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カ年にわたる定期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・省エネルギー対策等に取り組み、良好な研究環境の実現に努めた。

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34,500 kW、業務用電力1,700 kW、合計36,200 kWである。2017年度の電力使用量は、201 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)

表1 電力使用量

単位：GWh

	2013年度	2014年度	2015年度	2016年度	2017年度
特 別 高 圧	179.0	188.6	179.4	180.4	193.4
業 務 用	6.0	6.0	6.0	6.8	7.3
SPring-8全体	185.1	194.6	185.4	187.2	200.7
増 減(±)	-10.0	9.6	-9.2	1.7	13.5

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、2017年度の水道水使用量は268 km³、また下水道排出量は97 km³であった。

(図2、図3、表2、表3参照)

表2 水道水使用量

単位：km³

	2013年度	2014年度	2015年度	2016年度	2017年度
共 用 施 設	201.7	214.0	191.4	196.4	197.0
独 自 施 設	72.3	68.4	68.1	66.0	70.9
SPring-8全体	274.0	282.4	259.5	262.4	267.9
増 減(±)	-24.1	8.4	-22.9	2.9	5.5

表3 下水道排出量

単位：km³

	2013年度	2014年度	2015年度	2016年度	2017年度
SPring-8全体	101.0	109.0	101.0	108.9	97.0
増 減(±)	-30.5	8.0	-8.0	7.9	-11.9

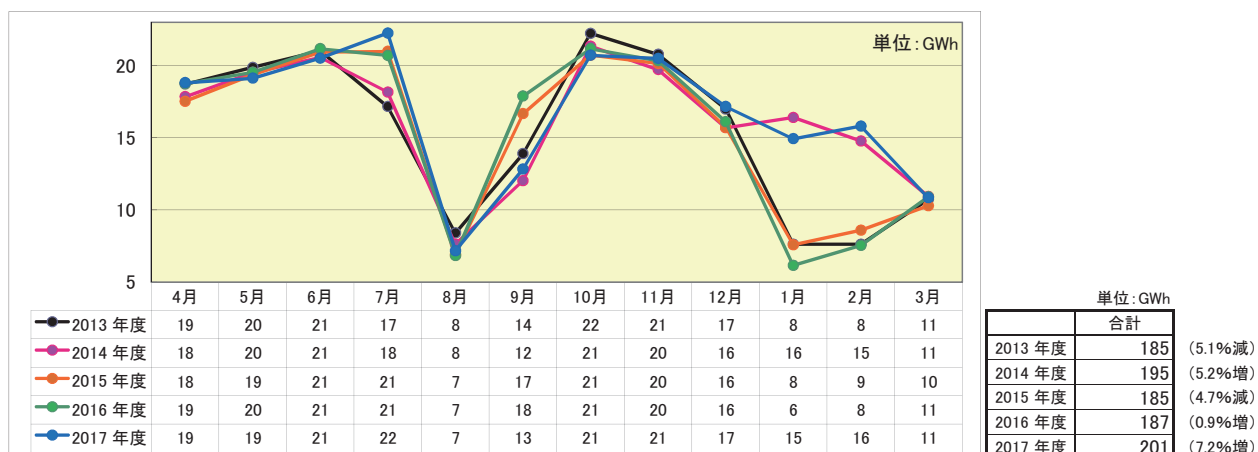
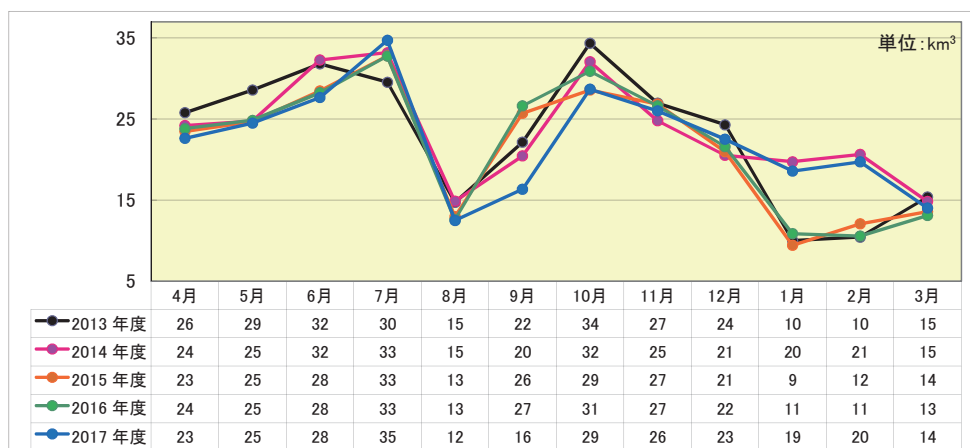
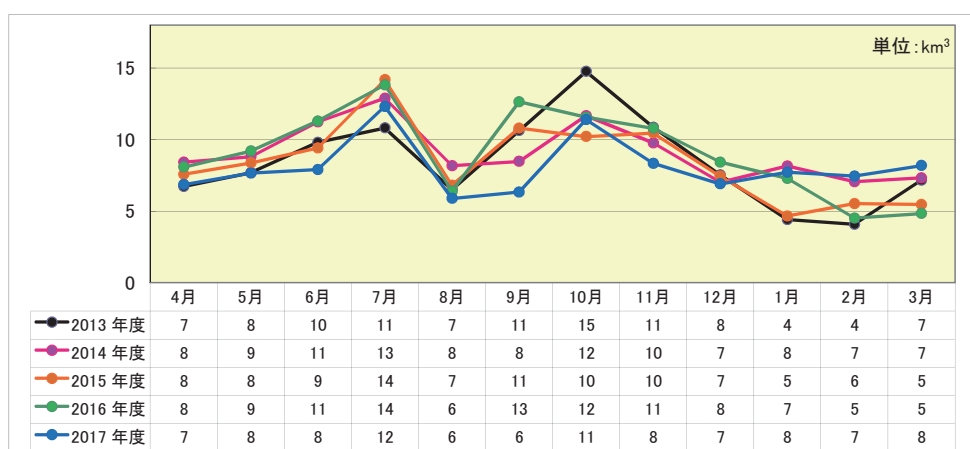


図1 電力使用量の推移（播磨地区全体）



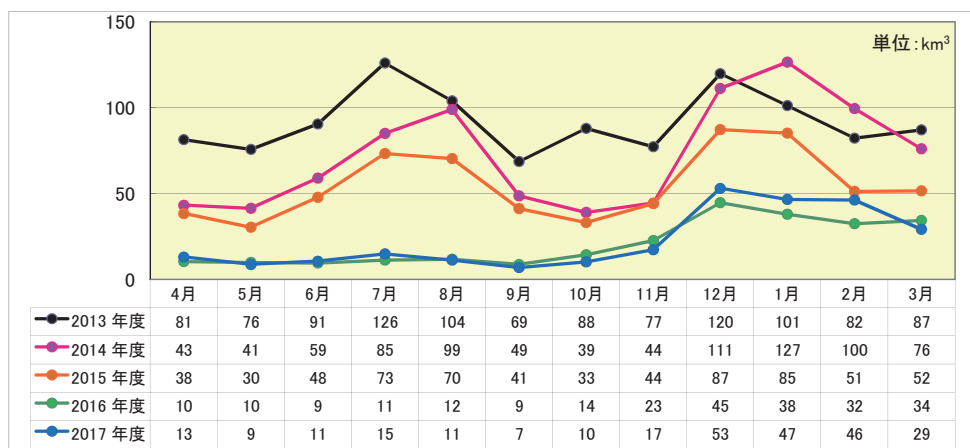
単位: km ³	
	合計
2013 年度	274 (8.1%減)
2014 年度	282 (3.0%増)
2015 年度	260 (8.1%減)
2016 年度	262 (1.1%増)
2017 年度	268 (2.1%増)

図2 水道水使用量の推移（播磨地区全体）



単位: km ³	
	合計
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)
2017 年度	97 (10.9%減)

図3 下水道排出量の推移（播磨地区全体）



単位: km ³	
	合計
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)
2017 年度	268 (8.2%増)

図4 都市ガス使用量の推移（播磨地区全体）

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（13 A）の供給を受けており、2017年度の都市ガス使用量は268 km³であった。

（図4、表4参照）

表4 都市ガス使用量

単位: km³

	2013年度	2014年度	2015年度	2016年度	2017年度
共用施設	445.0	294.8	261.4	222.5	252.5
独自施設	657.0	578.3	392.5	25.2	15.3
SPring-8全体	1102.0	873.1	653.9	247.7	267.8
増減(±)	-287.2	-228.9	-219.2	-406.2	20.1

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、2017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2台設置した。
- 2) 各棟において、トップラナー機器であるパッケージエアコンに更新した。
 - ・蓄積リング棟中央制御室（室外機4台、室内機6台）
 - ・蓄積リング棟Cブロックマシン電源室（室外機4台、室内機2台）
 - ・蓄積リング棟Bブロックマシン電源室（室外機1台、室内機3台）
 - ・研究交流施設管理棟（室外機3台、室内機10台）
 - ・給水施設棟（室外機2台、室内機2台）
 - ・シンクロトロン棟モニター室(3)（室外機1台、室内機2台）
- 3) 構造生物学研究棟共用部分の一部について、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、職場巡視の際に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) 「構造生物学研究棟・物理科学研究棟外壁及び防水改修工事」及び「入射系建屋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、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5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、夏期、冬期及び年度末の点検調整期間に停止させることによりCO₂を年間1,476トン削減した。
- 7) 蓄積リング棟マシン冷却設備の冷却水の除熱を外気温度が低い冬期の間、冷凍機から外気（冷却塔）による方式へ変更し、CO₂を年間368トン削減した。
- 8) 蓄積リング棟の実験ホール系空調機器について、夏期、冬期及び年度末の点検調整期間に運転台数を間引くことによりCO₂を年間745トン削減した。
- 9) 蓄積リング棟マシン収納部系の外調機及び排風機

について、夏期、冬期及び年度末の点検調整期間に運転台数を間引くことによりCO₂を53トン削減した。

- 10) RI実験棟の実験ホール系空調機について、夏期、冬期及び年度末の点検調整期間に運転台数を間引くことにより、CO₂を23トン削減した。
- 11) 蓄積リング棟他マシン収納部のファンコイルユニットについて、夏期、冬期及び年度末の点検調整期間に運転台数を間引くことによりCO₂を31トン削減した。
- 12) 中尺ビームライン実験施設研究棟の外調機について、19時～7時の夜間に停止することによりCO₂を9トン削減した。
- 13) 蓄積リング棟実験ホール及びマシン収納部外調機について、加湿を間引くことによりCO₂を50トン削減した。
- 14) 研究交流施設附属施設、グラウンドの夜間照明・空調を停止した。
- 15) 各棟の居室・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」

2017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、組立調整実験棟の空冷ヒートポンプチラー更新やマシン実験棟パッケージ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、構内電話交換機に付随するサーバ3台について更新を行った。

(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。2017年度は、蓄積リング棟をはじめとする各建屋の漏水部補修、建具・塗装・内装等の修繕を実施し、建築設備の機能回復を図った。また蓄積リング棟・RI実験棟・組立調整実験棟の特定天井を有する部屋を対象として、吊り天井を主とした非構造部材等の安全性を確認する調査業務を実施し

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. クリーンルーム設置工事

次世代大型放射光施設整備に向けた加速器要素機器の研究開発環境を確保するため、光学素子の組立・評価・成膜・精密洗浄、真空機器の調整・保管等を効率的かつ一体的に行うためのクリーンルームを物理科学研究棟1Fに整備した。

4-2. 研究交流施設管理棟エアコン更新工事

経年劣化及び省エネルギー対策として、SPRING-8/SACLAに來所するユーザーが滞在する研究交流施設管理棟のパッケージエアコン（室外機3台、室内機10台）の更新を実施した。

4-3. 入射系建屋外壁及び防水改修工事

経年劣化対策として、入射系建屋を対象に、外壁クラック、シーリング劣化・漏水箇所の改修工事を実施した。

4-4. 動力棟熱源機器更新工事（Ⅲ期）

経年劣化及び省エネルギー対策として、都市ガス利用の既設熱源機器を撤去し、部分負荷運転に対応して効率的に動作する電気式モジュールチラー2台を新たに設置した。

4-5. 蓄積リング棟中央制御室等エアコン更新他改修工事

経年劣化及び省エネルギー対策として、中央制御室にあるパッケージエアコン（室外機4台、室内機6台）の更新を実施した。

4-6. 中央監視設備及び蓄積リング棟付属施設W棟他受変電設備更新工事

経年劣化対策及びシステムの維持管理と監視業務の効率化を図るため、インフラ稼働状況を把握する既存の電力制御監視システム（三菱電機製MELBAS及びFACIMA）、及び特高変電所付属建屋や給水施設棟内の監視盤内機器・配線を更新した。また、蓄積リング棟付属施設W、中尺ビームライン実験施設、食堂棟、給水施設棟の各受変電設備、及び中尺ビームライン実験施設

の非常用発電設備を更新し、各建屋への安定的な電力供給に向けて更新工事を実施した。

4-7. 中尺ビームライン実験施設直流電源装置更新工事

経年劣化対策として、中尺ビームライン実験施設の直流電源装置の更新工事を実施した。

4-8. 食堂棟給湯暖房温水器更新工事

経年劣化及び省エネルギー対策として、食堂棟の温水器更新工事を実施した。

4-9. 蓄積リング棟他空調用ローカルコントローラ更新工事

経年劣化及び省エネルギー対策として、SPring-8の関連建屋に設置されているダイレクト・デジタル・コントローラ（DDC）89台の更新を行い、空調機の熱源機器制御により最適な温湿度条件とするための更新工事を実施した。

4-10. 蓄積リング棟防水及び塗装改修工事（Ⅱ期）

経年劣化対策として、蓄積リング棟を対象に屋上防水・塗装・シーリングに係る改修工事を実施した。

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、随時、電子メールの送信や掲示等によって不適切な取扱い事例への注意喚起を行うなど、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]

	2013年度	2014年度	2015年度	2016年度	2017年度
汚 泥	28,546	58,845	16,015	23,505	12,518
廃 油	11,251	1,820	4,193	7,080	3,041
廃 アルカリ	560	412	879	570	73
廃 酸	776	365	466	191	202
廃プラスチック	15,225	16,900	30,131	27,346	21,354
木 く ず	8,799	6,697	7,149	5,370	7,569
金 属 く ず	87,161	69,256	206,606*	132,772	121,964
ガラスくず	1,333	903	739	1,126	1,093
が れ き 類	2,188	68	1,569	982	1,027

※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。

表6 特別管理産業廃棄物 処分量推移

[単位：kg]

	2013年度	2014年度	2015年度	2016年度	2017年度
廃 酸	2,440	580	276	2,488	807
廃 アルカリ	120	58	31	18	708
廃 油	1,359	471	1,051	403	182
汚 泥	1,590	267	221	198	372
感染性廃棄物	29	7	9	3	16
P C B 等	100	-	-	-	-

表7 一般廃棄物（実験動物） 処分量推移

[単位：kg]

	2013年度	2014年度	2015年度	2016年度	2017年度
実 験 動 物	594	516	636	499	410

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、定期的に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、2017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

8. 情報・ネットワーク

1. はじめに

SPring-8/SACLAの情報システムは、理研が施設者として全体的な運営を行い、登録施設利用促進機関であるJASRIが利用促進業務において情報・ネットワーク（以下、「情報システム」）を利用し、両者が必要な連携を行いながらSPring-8/SACLAの利用者へのサービス提供を行っている。

2. 業務分担

情報システム関連業務における理研とJASRIの連携体制の大枠は以下の通りである。

理研

(1)ハードウェアの運営

- (ア) サーバ・ストレージやVirtual Machine (VM) 基盤
- (イ) 有線／無線ネットワーク基盤
- (ウ) 入退館システム

(2)ソフトウェアの整備・管理

- (ア) OSなど
- (イ) ミドルウェア
 - ①Web関連（Apache、CMSなど）
 - ②メールソフトウェア
 - ③VM管理
 - ④認証管理など

JASRI

(1)利用者向けコンテンツの管理

(2)利用者のアカウント管理

(3)spring8.or.jpドメイン、アドレスに係るセキュリティ対応

3. 2017年度に実施した業務内容

2017年度は理研及びJASRIにおいて、SPring-8/SACLAの利用者支援における連携する体制を整えることに注力し、新たなサービスなどの展開は無かったが、SPring-8/SACLAの情報システム運営維持を着実にを行うために以下のような業務を実施した。

3-1. セキュリティ対策

3-1-1. ネットワーク基盤

ネットワーク関連機器（L3スイッチ、無線ネットワーク・コントローラ、ファイアウォールなどのファームウェア）を最新のものにアップデート対応を行い、ネットワークの基盤機器のセキュリティの維持を図った。

3-1-2. メールシステム

SPring-8ドメインで運営する電子メールサービスにおいて、フィッシングメール等への対策のために、電子メールセキュリティアプライアンスを利用することで出口対策、及び注意喚起などの入口対策を実施し、電子メールシステムをよりセキュアな状態で維持している。

3-2. 利用者向けネットワーク運営

実験ユーザー向けに向けて提供している無線LANサービス及びeduroam（Education Roaming、高等教育機関や研究機関等において、国際的に相互利用が可能なローミングサービス）サービスの安定提供を行える運用に努めた。

3-3. 入館管理システム

導入からかなりの時間が経過した入館管理システムにおいて、老朽化対策を実施した。具体的には、2016年から継続的に防滴ボックスの浸水が発生しているため、機器交換と全箇所点検を実施した。また、カードリーダーに設定された解錠施錠モードの切り替え時間の見直しを行った。

3-4. SACLA実験系基盤

3-4-1. アカウント管理とVPN（Virtual Private Network）の提供

SACLA HPC環境にユーザーを新たに54アカウント分、新規発行を行い、HPC環境接続用のVPN環境も同時に提供している。

3-4-2. HPC（High Performance Computing）環境の整備

SACLA HPC環境としては、実験時の専有利用のニーズの増加により新たに16ノードの計算サーバを追加した。

4. 終わりに

SPring-8/SACLAを含めた理研播磨地区の情報システム運営にあたって、長年JASRIが理研の業務委託を受けて行ってきた情報関連サービスを、理研主体で行うための体制変更を行った1年であったが、今後は理研主体でJASRIと連携しつつ、情報システム全体の運営を円滑に行えるように努めていく。

理研 播磨事業所 情報システム室

黒川 原佳

1. SPring-8の現状と高度化

1-1. 運転・加速器

2017年度のSPring-8の加速器の運転状況、及び加速器（線型加速器、ブースター・シンクロトロン、蓄積リング）の概況について報告する。

1. 加速器の運転状況

2017年度のSPring-8の加速器の運転状況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、トップアップ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。

1-1 運転期間・運転モード

2017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。

(a) サイクル数

2017年度は合計8サイクルの運転を実施した。

(b) 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。

(c) 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、年度末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。

(d) 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。

(e) 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。

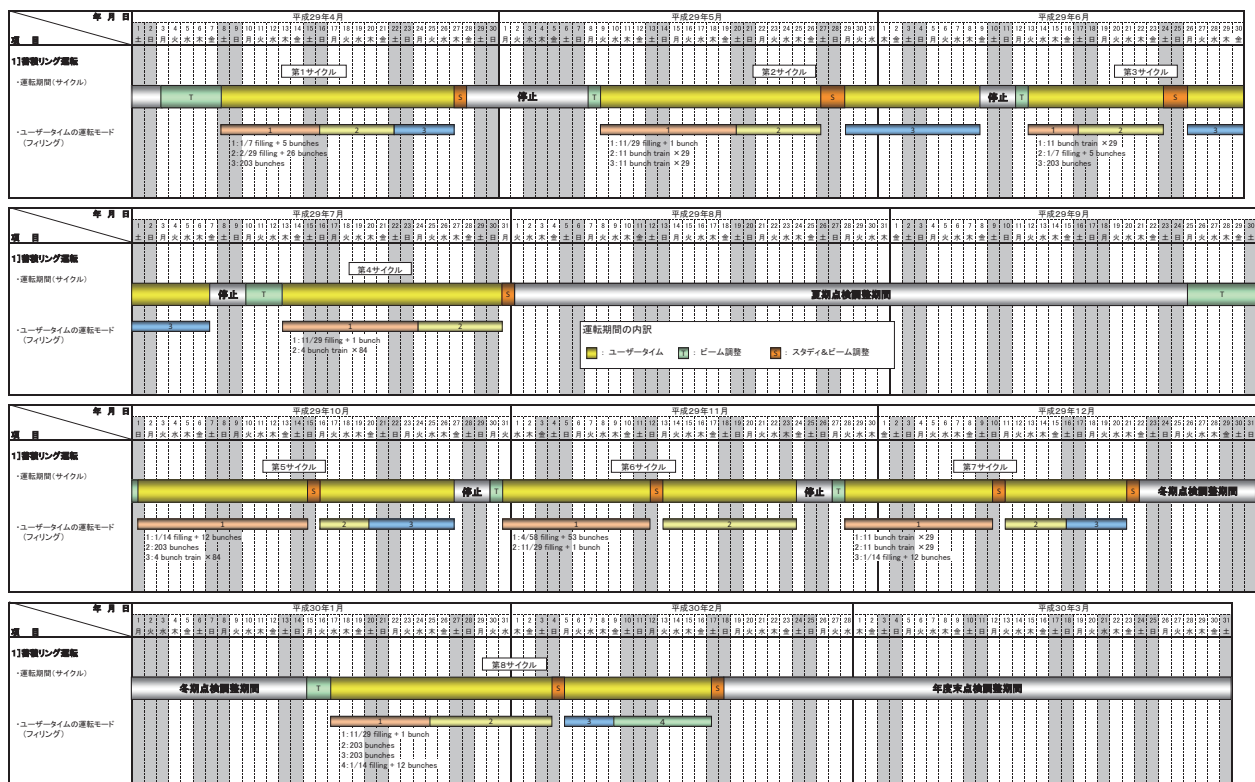


図1 2017年度SPring-8運転実績（期間・モード）

表1 2017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
17-1	600:13	453:30	1:13	1:17	144:13	1/7-filling + 5 bunches 2/29-filling + 26 bunches 203 bunches
17-2	768:27	694:11	1:24	0:25	72:27	11/29-filling + 1 bunch 11 bunch train × 29 11 bunch train × 29
17-3	600:30	525:23	2:14	0:23	72:30	11 bunch train × 29 1/7-filling + 5 bunches 203 bunches
17-4	528:38	428:17	3:10	0:33	96:38	11/29-filling + 1 bunch 4 bunch train × 84
17-5	767:41	593:56	5:36	0:28	167:41	1/14-filling + 12 bunches 203 bunches 4 bunch train × 84
17-6	599:53	552:00	0:00	0:00	47:53	4/58-filling + 53 bunches 11/29-filling + 1 bunch
17-7	600:22	527:29	0:00	0:31	72:22	11 bunch train × 29 11 bunch train × 29 1/14-filling + 12 bunches
17-8	815:54	703:56	15:03	1:01	95:54	11/29-filling + 1 bunch 203 bunches 203 bunches 1/14-filling + 12 bunches
合計時間	5281:38	4478:42	28:40	4:38	769:38	

1-2 運転時間

2017年度の運転実績（運転時間）を表1に示す。主な運転実績のまとめは以下の通りである。

運転時間総計（加速器） 5,281時間38分
（内訳）

- (1)スタディ・装置調整等 769時間38分
- (2)ユーザータイム 4,478時間42分
- (3)ダウンタイム 28時間40分
- (4)フィリング変更 4時間38分
- (5)総運転時間に対するダウンタイムの割合 約0.54%

2. 線型加速器の概況

2004年9月からSPRing-8蓄積リングとNewSUBARUの両方同時のトップアップ運転が始まり、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回または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。

トップアップ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。その対応としてブー

スター・シンクロトロ/ NewSUBARU入射の2 Hz高速切替えを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を重点的にを行っている。近年、冷却水の流量変動が顕著に見られるため、浄化装置のフィルター交換やフィルター槽の清掃などを行ったが、大きな改善は見られなかった。今後も施設管理と共に重点的に対策を行っていく必要がある。

2017年7月に第42次変更申請の許可が下り、使用頻度の低かったL3BTを使用許可より外し、運転を停止した。その結果、この部分のメンテナンスが不要となり、また、この部分の機器を予備品に回すことができた。

3. ブースター・シンクロトロンの概況

ブースター・シンクロトロンの運転は概ね順調であり、積み上げ入射、トップアップ運転共に大きく運転に影響を与えることはなかった。しかし、電磁石系と高周波（RF）系において以下に示すトラブルが発生した。

- ・電磁石及び電磁石用電源系の一次冷却水の温度が設定値の32℃以下となる異常が発生した。原因はPLCのD/Aモジュール故障による二方弁の開度制御が不能

になったためである。ユーザー運転中は手動で2方弁開度を調整し、停止期間にPLCモジュールの交換を行った。

- ・SSBT系偏向電磁石電源2のIPM (Intelligent Power Module) 異常が多発した。この電源は2009年に同箇所についてノイズが原因の異常として修理を行った履歴がある。現在は運転を継続しながら原因調査を進めており、異常箇所を特定後に修理を行う予定である。
- ・クライストロン2系のコレクタ冷却水の流量低下異常が発生した。流量を増加させて一時的な対処を行ったが、流量のばらつきが大きいと流量計と流量調整弁の経年劣化と判断して1系及び2系ともに交換を行った。
- ・クライストロン1系のアノード電圧コントローラからの制御信号が設定値通りにアノード電源に出力されていないため、クライストロン出力が低下する異常が発生した。原因は制御信号モニター用アンプの故障による出力変動であった。このアンプは一時的な監視に使用していたものであり、現在は監視の必要がないため取り外すことで異常を解消している。

4. 蓄積リングの概況

図2に過去5カ年度の運転時間の推移を示す。2017年度のSPring-8加速器総運転時間は5281.6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。2017年度の蓄積リングの運転時間は5270.4時間で、この内4478.7時間（蓄積リング運転時間の85.0%）がユーザータイムに充てられた。2017年度の計画ユーザータイム4512時間に対して利用率としては99.3%となり、過去5カ年度を通して99%を超える高い水準を維持した。

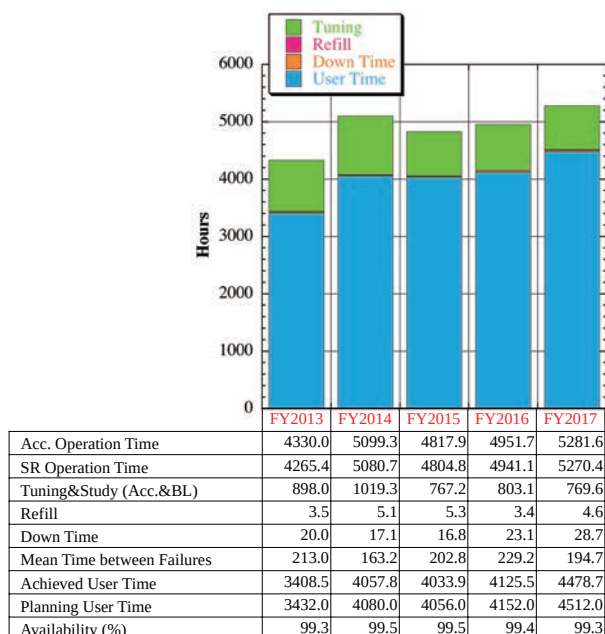


図2 過去5カ年度の運転時間の推移

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（ダウタイム）は計画ユーザータイムの0.64%に当たる28.7時間であり、23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、4.6時間（6回）を再入射に費やした。ダウタイムの内、復旧までの時間が1時間を超えたトラブルが9回（ビームライン：5回、高周波加速システム：3回、瞬時電圧低下：1回）あり、そのうちの主なものとして、2月12日のBL10XUトラブル（3時間23分、トラブル対処後のビーム再入射中に発生した入射バンパ磁石トラブルへの対処時間を含む）、1月22日のBL32B2トラブル（3時間5分、1月20日に発生した入射タイミング系の不具合への対処時間を含む）、2月6日のRF Aステーションのトラブル（2時間44分、トラブル対処後のビーム再入射準備中に発生したシンクロトロンRFトラブル及びBL32B2トラブルへの対処時間を含む）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99.2%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。2017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46.2%（2016年度は58.4%）、ハイブリッドバンチモードが53.8%（2016年度は41.6%）であった。

狭小ギャップとなる多数の挿入光源（ID）を多様なバンチモードの中で運用している現状のユーザー運転を維持する上で、安定な運転条件の見極めが課題となっていた。第4サイクルまでに実施した狭小ギャップIDのビーム運転への影響調査の結果を踏まえて、加速器ビーム調整のベースとする各IDのギャップの値を設定した。第5サイクルの加速器立ち上げ調整から、ベースとするギャップ条件に加えて、ユーザー運転中のIDギャップの予定に関する情報をもとに、ベースより狭くギャップを閉じるIDについて予定される最小ギャップまで閉じた条件にてユーザー運転の安定性（ビーム寿命、入射効率、ビーム不安定性の有無等）に問題のないことを確認するビーム調整を開始した。

第5サイクルの運転では、10月3日に蓄積リングに4

箇所配置されたRFステーションの中の1つであるAステーションの高出力高周波発生装置「クライストロン」が管内真空悪化を起こして停止し、蓄積ビームの一部が失われた。現場で調査をした結果、クライストロンの重故障（要交換）であることが判明したため、Aステーションの即時復旧を断念し、一旦ビームを廃棄してB-Dステーションの3ステーションで運転する設定に切り替えた。3ステーション運用に切り替えた際、ビーム電流100 mAで運転を再開したが、RF関連のトラブルによるビームアバートが発生したため、RFハイパワー系の負荷低減のためその後は蓄積ビームを70 mAに下げて運転を継続した。運転を停止していたAステーションは、クライストロンを交換した後に立上げ調整を実施し、10月15日より通常通りの4ステーションのRFによる100 mAの運転を復旧させた。

第8サイクルでは、1月20日に入射されるバンチが正しいバンチの一つ後ろのバンチにずれる入射タイミング系のトラブルが発生した。この時、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ハイブリッドバンチモード（Hモード）での運転を行っていたが、タイミング系トラブル発生以降は本来の5 mA孤立バンチ部が、一つ後ろのバンチにトップアップ入射が行われることで連続した2バンチとなり、更にその後、この2バンチ部分への入射が困難となった（後日の調査から、ビーム不安定抑制システム（BBFシステム）の設定がバンチ電流により連続した2バンチを含む運転モードと整合しないことが原因と判明した）ため、トップアップ入射が中断した。入射タイミング系の復旧まで100 mAのビーム電流を維持することを優先とし、マルチバンチ部のみに入射を行うトップアップ運転を再開させる対応をとった。故障が疑われたタイミング回路のモジュールを交換した上で入射タイミング系を再調整し、1月22日より通常通りのHモードによる運転を復旧させた。

以下に、蓄積リングを構成する各機器の状況を記す。

高周波系は、2017年度、Low Level RF（LLRF）の更新（デジタル化）の準備を進めた。SPring-8建設期より使用され、老朽化や部品の製造停止が見られはじめていた旧来のアナログ型LLRFを2018年度よりMTCT.4ベースの新システムに更新すべく、RFテストスタンドにて試験運転、調整を行った。準備は概ね順調に行われており、予定通り、2018年3月にAステーションのLLRF系をデジタル型に一新し、問題がなかった場合、B-Dステーションにおいても順次更新を行っていく予定である。

電磁石系は、昨今、老朽化に伴う小さなトラブルが散見されている。2017年度も、電源動作不良による電源

停止や複数箇所における冷却水配管の漏水などが生じており、特に冷却水配管の漏水については、建設以来20余年の運転の中で冷却水配管（特にゴムホース部）が放射線により劣化し、稀に漏水に達している。放射線劣化が大きいと考えられる箇所から順に配管の交換を行っており、引き続き、長期安定運転に向けた保守作業を行う。

真空系は目立った老朽化もなく、順調に運転に供している。詳細な事象としては、L1冷却水系（真空・磁石用の冷却系）のストレーナにおけるパッキン損傷、及びストレーナ目詰まりを停止時の保守で発見し、ストレーナ交換、フラッシング等の対処を行った。

モニター系では、BBFシステムの信頼性向上のため、長期点検期間毎に擬似信号を用いて入出力信号のタイミング並びに出力信号のレベル等を確認する点検を実施し、不調が疑われたアンプ等の交換を行った。また、BBFシステムの運用を合理化するために、フィードバック用デジタル信号処理回路のゲイン及び遅延時間などの主要設定を加速器制御系から遠隔操作し、設定値の履歴を制御系データベースで管理するための制御ソフトを整備した。

5. 加速器制御の概況

2017年度はSPring-8とSACLAの制御の統合に向けてSPring-8蓄積リング制御システムの入れ替えを行った。2016年度までのSPring-8とSACLAの制御系ではデータ管理の方法や使用するデータベースに相違があり統合するための問題となっていた。これらを解消するための手段として制御システムの入れ替えを計画し、前段階として比較的サイズが小さく作業量が少ないSCSS+の制御システムを2017年度夏期停止期間に入れ替えて、新しいデータベースシステムが加速器制御システムとして適用可能であることを確認した。SCSS+の運用を通して問題点の洗い出しや移行に関する手順を検討し、2017年度夏期停止期間及び2017年度冬期停止期間の2回に渡って制御系移行のためのリハーサルを行い、2017年度末停止期間にSPring-8蓄積リング制御システムの入れ替えを行った。2018年度夏期停止期間にはSACLAの制御システムを入れ替えてSACLA/SPring-8の制御系を統一して相互運用を確立することを予定している。今後の予定として2019年1月をめどに制御系を統一することで中央制御室からSACLA/SPring-8を一つの加速器として扱えるように環境を整備していく。データの管理としてSACLA/SPring-8で使用されているデータベースを各加速器で占有する必要がある部分と共通して使用する必要がある部分にサーバーを分割して運用に合わせた管理ができる環境を構築することを考えている。ハードウェアに関しては2017年12月から2018年3月にSPring-8の高

周波加速空洞の老朽化対策としてLow Level RF制御系を現状のVMEシステムからMTCA.4を使ったシステムの構築を行った。今後はこのシステムをベンチマークとして高信頼と高速・広帯域を兼ね備えたシステムの構築を進めていくことができると考えている。

JASRI 光源基盤部門

鈴木 伸介、青木 毅、高野 史郎
渡部 貴宏、後藤 俊治

理研 放射光科学研究センター

先端光源開発研究部門 制御情報グループ

福井 達

スプリングエイトサービス 施設管理部

瀧元 久也

1-2. ビームライン

1. 概要

SPring-8においては、現状で57本のビームラインが稼働中である。供用開始20年が過ぎ、利用動向などを考慮した一層のビームライン・実験ステーションの改廃の議論と実施が重要になっている。2017年度にはアンジュレータビームラインにおけるタンパク質結晶構造解析のアクティビティを増やすため、理研ビームラインBL45XUをタンパク質微小結晶構造解析の共用ビームラインに転用することが決まった。挿入光源及び光学系の改造を含む改修の準備がはじめられた。2018年12月末から改修工事が行われ、2019年度前半にはタンパク質結晶構造解析ビームラインとして、利用運転が再開される予定である。

既設ビームラインの挿入光源、フロントエンド、光学系及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、高性能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。高性能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性能化を推進している。

2. 挿入光源

2-1 維持管理

老朽化に伴い故障の頻度が高まってきている挿入光源(ID) 関連機器について、点検作業を強化すると共に、故障が発覚した際の迅速な復旧に努めている。

(1) インターロック用BPM信号再調整

急激な軌道変動に伴う各種問題を回避するためのインターロック用ビームポジションモニター (BPM) について、経年変化と思われる信号の有意な変化を確認したため、原点の再調整を行った。

(2) 磁石冷却水系

真空封止型アンジュレータ用永久磁石の温度安定化のために使用している冷却系統について定期点検を頻繁に行い、故障の早期発見に努めている。

(3) ステアリング磁石電源

ギャップ開閉に伴う軌道変動を補正するための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を防止するため、当該ファンの交換作業

を継続して行っている。

(4) エンコーダの故障検出

ギャップ値を検出するためのロータリーエンコーダが放射線損傷により故障する事象が目立ってきており、これを事前に検知するための方法を検討している。

2-2 高性能化

継続して開発を進めている磁場吸引力相殺型アンジュレータについて、蓄積リングでの運用を目指して実証機の製作に取り掛かった。本実証機には、吸引力相殺による駆動架台の軽量・簡素化の他、従来の機械及び磁石列構造を抜本的に見直した設計がなされている。これにより、真空封止型アンジュレータの製造に必要な費用の軽減及び関連作業の効率化が図られている。2017年度は、駆動架台本体の製造の他、モジュール化した磁石列の製作及びこれに基づく磁場調整作業の確立、新型形状変換部の製作や試験等を行うとともに、これらが連携してアンジュレータとして機能することを確認した。その後、超高真空に対応するための加熱排気を行い、SPring-8蓄積リングにおける要求仕様を十分に満たすことを確認した上で、同収納部への設置及びアラインメント作業を2017年度末停止期間に実施した。

3. フロントエンド

3-1 改造・保守作業

(1) ベリリウム窓の交換

ビームライン担当者及び光学系チームからの要求により、BL40B2、BL41XUのベリリウム窓を最新仕様(高純度・高面粗度型IF-1)のものに交換した。

(2) 真空系関連保守作業

ユーザー運転中にフロントエンド最上流真空セクションの2台の電離真空計のフィラメントが共に切れた場合の対応について関係者と協議を行い、手順書を纏め関係者に周知した。

(3) X線ビームポジションモニター関連保守作業

BL07LSUのX線ビームポジションモニター(XBPM)の経年劣化による暗電流増加に対処するために、セラミック溶射部の絶縁破壊が生じにくい形状に改良した「改良型ブレード」に交換した。また、XBPMを用いた定点観測で使用される「ID一斉操作GUI」において、

いくつかの機能を付加させることにより約10分の時間短縮が可能となった。

3-2 高性能化

(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

2016年度に導入したBL13XU/ダイヤモンドモニター用画像収集システムの運用を開始し、Zrフィルターをビーム位置に同期させた画像の取得に成功した。その後プロファイル測定を定期的に行い、ビーム中心の定量的変化を見積もった。

(2) 高熱負荷機器用銅材料の内部残留歪み評価

2017年度は約300℃で圧縮歪みが付与された無酸素銅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。今回の実験では2次元検出器Pilatus3X CdTe 300Kを使用し、これまでよりも詳細な回折プロファイルを測定することができた。フーリエ解析法による結果、圧縮歪みが0.9%から3.8%に変化するのに対して、転位密度は $1.3 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$ から $4.2 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ となった。

(3) パルスモード計測型光位置モニターの開発

2016年度にBL02B1に設置したパルスモード型XBPMを用いて総合評価試験を行い、目標である単極性の短パルス（半値全幅0.8 ns）の出力信号を観測し、安定性の観点からも実現可能であることを実証した。パルス波高は蓄積リングのバンチ電流値に比例し、光電子収集電極の電圧調整で出力波形を制御できることを確認した。

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

2017年度は、2016年度末に安定化された4ビームライン（BL19LXU、BL20XU、BL29XU、BL41XU）の分光器の振動を評価することに加え、ビームイメージの評価を行った。安定化は具体的に、振動体の剛性向上として、冗長な第1ティルトステージの排除、及び、第2ティルトステージの高剛性化と、新たな低振動フレキシブルチューブの導入を行った。結晶冷却用の配管を1/2インチと1/4インチに分歧し、1/2インチを第1結晶、1/4インチを第2結晶の冷却に使用した。このことにより第2結晶への流量が抑えられ、第2ティルトステージの振動が更に抑制されると期待された。また、低振動配管の内部構造の変更により、低振動と低圧力損失を更に向上させた。

次世代SPring-8分光器の振動として、二結晶間の相対角度ずれを50 nrad以下に抑えることを目標としてい

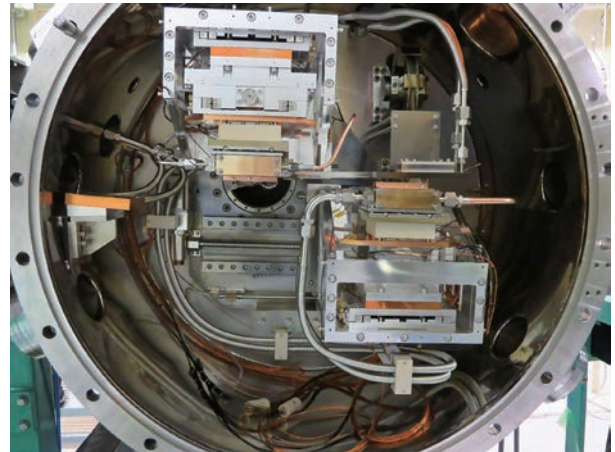


図1 BL35XU分光器内部
T1をなくし、T2をワイド型チルトステージとした。

る。安定化された分光器の振動計測を行い、BL19LXUで55 nrad、BL20XUで85 nrad、BL29XUで100 nrad、BL41XUで111 nradという値を得ている。参考に、2011年の時点では振動は800 nradを超えていた。

振動の抑制によって、光学素子の非均一性や表面汚染に起因するビームイメージの斑が固定され、目立つようになってきた。分光結晶の表面汚染によるビームイメージの劣化が認められ、ステージに使用されているグリースの変更を検討した。ミラー表面の汚染も深刻であり、後述の真空系の更新や光学ハッチの清掃を進めた。フロントエンド部のベリリウム窓の不均一性による縞模様の発生も認められた。

振動低減はまだ目標値には達していないが、一定の効果が認められたため、3ビームライン（BL09XU、BL10XU、BL35XU）に同様の安定化対策を行った。その際、BL10XUでは、汚染対策として、分光器を完全に分解清掃し、フッ素を使用しないグリースを投入した。BL35XUでは、Y1軸を除いて分解清掃・脱フッ素化し（図1）、Y1軸に関してはビームラインで旧グリースの拭き取り・脱フッ素グリースの塗布を行った。2018年度に効果を確認する予定である。

また、液体窒素循環装置の定期保守、分光器5台（BL02B1、BL14B2、BL19B2、BL37XU、BL39XU）の動作確認及び定期保守を行った。動作不良のあったBL02B1分光器のステージを修理した。

4-2 ミラー光学系の高性能化

(1) 軟X線ビームライン用 Wolter 型サブミクロン集光光学系の導入

軟X線ビームライン用後置集光ミラーとして2016年度にモノリシックな部分 Wolter ミラーの設計検討を行い、2017年度にはミラーの製作と調整、並びにビームラインへの設置と利用まで完了した。Wolter

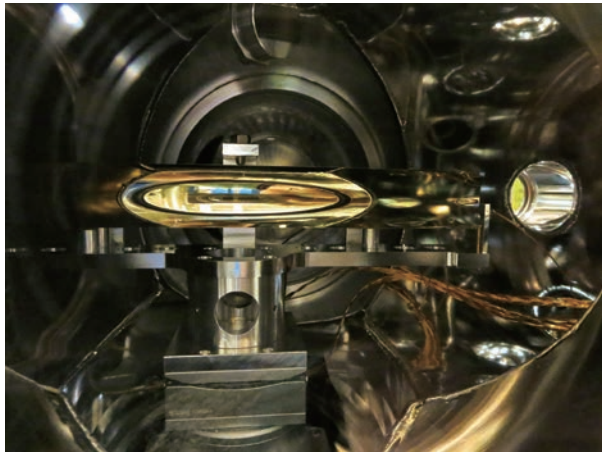


図2 BL25SU光電子分光装置内に設置された Wolter ミラーと超高真空対応調整機構

ミラー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ておりコマ収差が小さい。BL25SUa ブランチの光電子分光実験で常用される回折格子分光器の分解能から求められる出射スリットサイズは、垂直方向数十 μm 、水平方向数百 μm のビームサイズである。これを光源として、試料位置で垂直方向サブミクロン、水平方向ミクロンオーダーの微小集光が求められた。ビームを用いた試作ミラーの評価と、ミラーの製造経験をもとに、挑戦的ではあるが2017年度内に製作可能なレベルの形状及び形状誤差を探索しつつ、シミュレーションを併用して形状を決定している。Wolter ミラーの試作とビームラインでの集光評価実験を繰り返すことでミラーの加工及び計測技術の向上に取り組み、2017年度に垂直方向0.32 μm で水平方向3.4 μm の集光サイズが達成された。あわせて、設計通り、大きな許容設置誤差（ピッチング許容誤差: $\pm 0.8 \text{ mrad}$ ）を確認した。

本ミラーはワーキングディスタンスが250 mm であり、超高真空雰囲気的光電子分光装置に対しては短いため、実験装置と同じ超高真空容器内に組み込まれている（図2）。マイクロビーム角度分解光電子分光装置の設計と設置作業に協力し、BL25SUにて本装置にインストールしたミラーの集光調整後、利用実験に供している。

4-3 光学素子評価及び製作環境の高度化

SPring-8実験ホールの光学系・輸送系開発・維持管理エリア付近へ次期計画試験ハーフセルを2017年度末に設置し試験を行うことが決まった。このため、当該開発・維持管理エリアの設備の移設とSPring-8/SACLA 光学系・輸送系の開発・維持管理拠点の整理統合を目的として、物理科学研究棟に新たなクリーンルームが2017年9月までに整備され、移設後の装置の立上げ調整が進めら

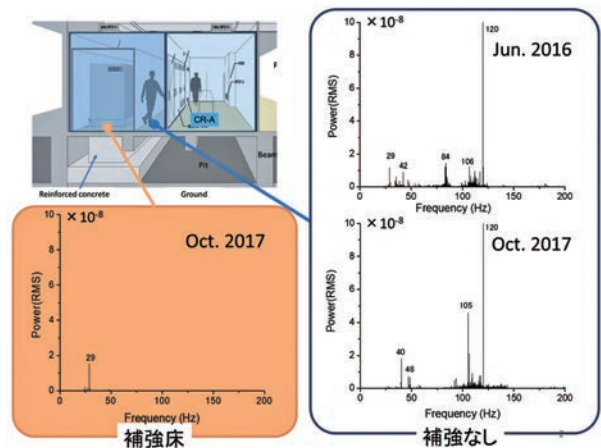


図3 新設クリーンルーム床面補強床部の振動レベル

れた。成膜装置、高精度表面形状計測装置、光学素子洗浄装置などは特注あるいは開発装置であり、環境に敏感であるので、組み直し、再設置作業を順次進めている。

低次の絶対形状の評価には、低振動かつ温度・湿度の変化を避けなければならない。物理科学研究棟地下にはユーティリティピットがあるため、クリーンルーム整備前の振動レベルは実験ホールなど従来環境と比べて格段に高いものであったが、地盤から補強コンクリートを打ち、精密計測装置設置部の低振動化を実現した（図3）。一方、計測の多くは空気揺らぎに敏感であるため、大風量による温・湿度制御は不向きである。このため従来、自作の超精密恒温恒湿室を装置と一体で整備してきたが、これらをすべて解体し、新たな建屋・クリーン環境での再構築と整備を急いでいる。

既設のクリーンルームではパーティクル管理されているが、光学素子の汚染源となりうる有機物汚染が管理されていない。新クリーンルーム建設においては、低コストながら発塵・有機物汚染を最小化するような建材の選択、施工管理と、ベーク処理及びフィルター設置により、総有機物量を従来クリーンルームの2桁程度抑制している。光学素子表面の特にコーティング面に対して活性で汚染が進みやすいため、継続的かつ簡易の評価方法の確立を検討している。

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（スクロール型）の老朽化に伴う保守コストを抑制するため、これまでに7本のビームラインで先行導入試験を行った結果、電気ノイズ、メンテナンスフリー及び放射線環境の観点で光学ハッチ内での利用が可能と見込まれた。そこで、スクロール型ポンプの寿命を鑑みながら、ルーツ型粗排気ポンプへの一斉更

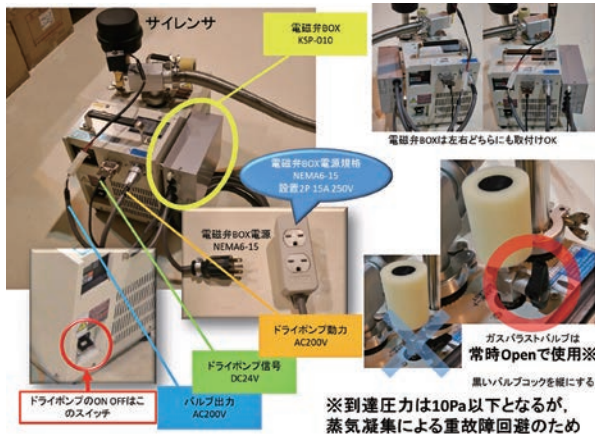


図4 新たに標準化された光学ハッチ・輸送系用ルーツ型粗排気ポンプK15型外観と配線

新を開始した。

この際、排気ユニットやスクロールポンプスイッチボックスの端子台を中心とした1次電源ラインを整理し、ターボ分子ポンプ、粗排気ポンプ及び真空ゲージと、次項目のイオンポンプについてもすべて共通のコネクタ取り合いとなるように整理した(図4)。また付属部品を含めSPring-8環境における低ノイズかつ長期間メンテナンスフリーの粗排気ポンプの規格を定め、29本のビームライン光学ハッチ・輸送系への設置を行った。

(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。いずれも回転型の排出ポンプであり、光学ハッチ内の振動源、騒音源、発熱源となっており、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。これらの問題点を解消すべく2016年度には溜め込み型のイオンポンプの導入を検討し、BL19LXU、BL32B2の光学ハッチ内真空セクションにて試験導入を行った。

2017年度には試験運転を開始し、従来と変わらず良好な真空性能が確認されたことから、BL13XU、BL29XU、BL41XUに関しても光学ハッチ内の主排気ポンプをイオンポンプ化し運転を開始している(図5)。また、この際に光学ハッチ内天井、側面、床面の清掃を行い、さらにハッチ内を土足禁止とすることで光学素子の汚染低減に向けた取り組みを開始している。

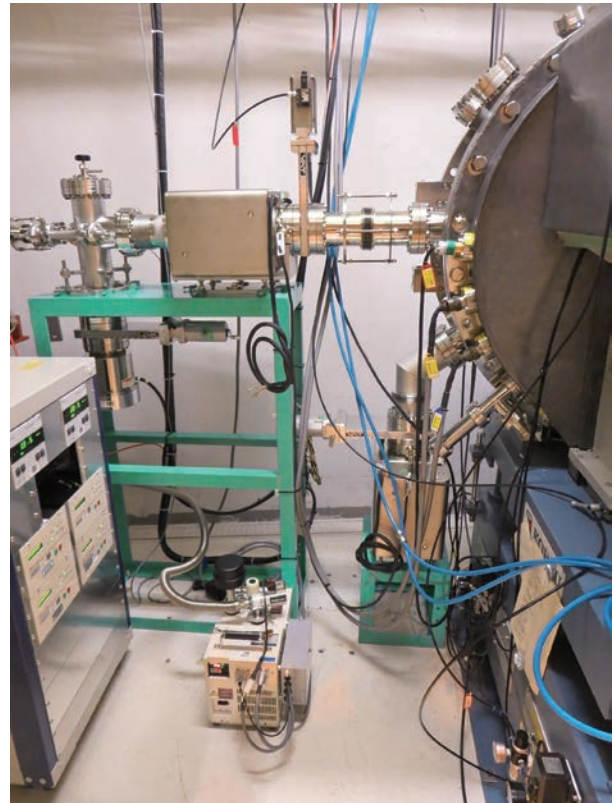


図5 BL41XUに導入されたイオンポンプと制御ラック及びK型ドライポンプ

5. 遮蔽

5-1 ビームライン遮蔽ハッチ保守

(1)不具合対策・部品交換

BL10XU実験ハッチ2、BL15XU光学ハッチ、BL19B2実験ハッチ2、BL19B2実験ハッチ3、BL23SU光学ハッチ、BL26B1実験ハッチ1、BL28B2実験ハッチ1、BL28B2実験ハッチ2、BL32B2実験ハッチ2、BL40XU光学ハッチに関して不具合対策、部品交換などの保守を実施した。

(2)自動扉保守

全共用ビームラインに対し、自動扉リニアガイドの摺動部点検・グリスアップを実施した。

(3)自動扉制御盤改修

BL13XU実験ハッチ4、BL37XU実験ハッチ3、BL39XU実験ハッチ2、BL46XU実験ハッチ2に関して自動扉制御盤の改修を行った。

(4)改造申請への対応等

BL32B2、BL36XU、BL10XUに関して改造申請への対応等を行った。

5-2 申請時遮蔽計算

第42次変更許可申請において、L3BTへの出射の廃止に伴う線量評価見直し、BL24XUの出力の下方修正及び光学ハッチから実験ハッチへの変更に伴う線量計

算を行った。第43次変更許可申請においては、SACLA 50 MeV ダンプ撤去に伴う申請書上の変更箇所について安全管理室及びインターロックチームと検討を行い、BL10XUのID交換（出力の下方修正）に伴う遮蔽計算を実施した。また、第44次変更許可申請に備えて、BL45XU改造に伴う遮蔽計算を実施した。

5-3 ビームライン放射線漏洩検査

BL09XU（ID最小ギャップ変更）、BL19LXU（ID最小ギャップ変更）、BL20XU（局所遮蔽付け直し）、BL32B2（実験ハッチ2増設）、BL36XU（検出器遮蔽体補修）のサーベイを行った。

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 光源基盤部門

田中 隆次、高橋 直、大橋 治彦
山崎 裕史、仙波 泰徳、竹下 邦和
成山 展照、後藤 俊治

1-3. 実験ステーション

1-3-1. 共用ビームライン

BL01B1

XAFS

1. 概要

BL01B1では、広いエネルギー領域（3.8～117 keV）にわたって、微量元素測定や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。2017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、マニュアルなどの情報はBL01B1のホームページ（<http://bl01b1.spring8.or.jp/>）に掲載されている。2017年度における主な活動状況は下記の通りである。

2. XAFS-IR同時計測システムの開発

BL01B1では、化学反応が進行中の試料に対する *operando* XAFS計測システムの整備を進めている。2017年度は、固体触媒などの表面反応過程において、固体表面の状態や吸着種の動的観察に有効な赤外線吸収分光計測（IR）を同時に行うことが可能な、XAFS-IR同時計測システムの開発を行った。本計測システムの構築により、同一条件下で試料表面の状態や吸着種と電子状態および構造の動的変化を同時に測定することが可能となるため、より詳細な機能発現機構のモデルを構築することが期待される。また、個別の計測データ間で生じる測定条件の微妙な違いがなくなるため、計測データの信頼性が向上する。

本同時計測システムは、透過XAFS計測システムおよび拡散反射型IR計測システムから構成される。図1に示すように、本システムは新たに製作した昇降機構付定盤上に構築し、既存の実験定盤の下流側に設置した。図2に拡散反射型IR計測システムの機器配置を示す。拡散反射型IR計測システムは、赤外線分光装置、拡散反射光学装置、赤外光を輸送するための平板、放物面ミラー、赤外線検出器から構成される。拡散反射光学装置は、X線が透過するように装置内の楕円面ミラーにX線透過用の穴が開けてあり、X線光軸上に配置することによって、試料上にX線と赤外光が照射されるようになっている。赤外線検出器には、微弱な赤外光を高感度に検出し高速スキャンが可能なMCT検出器を使用する。赤外線光学系は、CO₂および水蒸気による赤外線の吸収を防ぐために、光学系全体をアクリルカバー内に格納し、窒素発生装置によって窒素ガスパージする。現在、本計測システムは立ち上げ過程にあり、XAFS-IR同時計測データが測定されつつある状況である。今後は、高効率な計

測制御システムの構築や低ノイズIR計測のための装置の改良、2016年度に導入した反応ガス制御・分析装置と組み合わせた *operando* 計測・制御システムの構築を図る予定である^[1]。

3. ガス供給排気装置の高性能化

触媒や電池材料などの反応ガスを使用する *in-situ* 実験では、これまでは少流量の反応ガスを使用することが大半であったが、近年、実用環境下に近い測定条件でその場観察を行うために、大流量でのガス利用の要望が増加している。BL01B1では、反応器からの排出ガスを希釈処理装置によって爆発下限界の1/2以下に希釈処理した後、排気設備によって毒性ガス除害装置を経て屋外に連続的に排気している。しかし、実験ハッチから除害装置間の配管径が細いために排気口では十分な排気流量が得られていなかったため、使用できるガス流量が制限

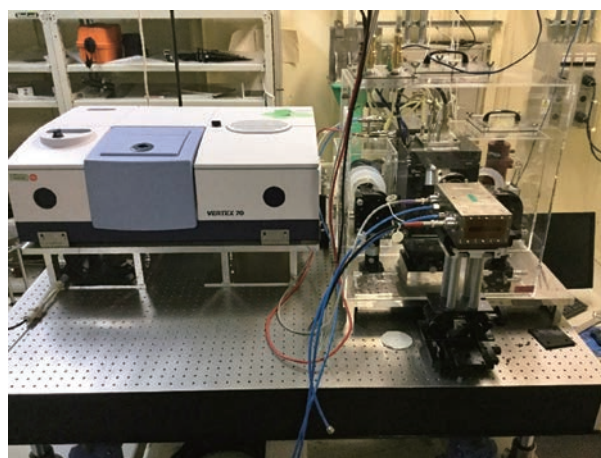


図1 XAFS-IR同時計測システムの概観

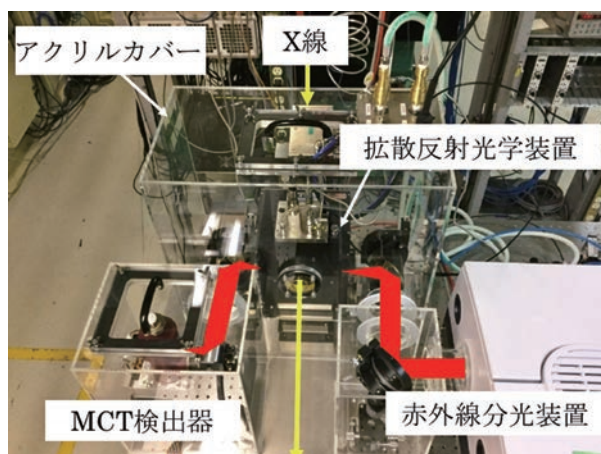


図2 拡散反射型IR計測システムの機器配置

されていた。また、2016年度に導入した反応ガス制御・分析装置のうちガスクロマトグラフィーにおいて、排気側でのガスの滞留による圧力変動により、クロマトグラムのベースラインに周期的なノイズが生じるといった問題があった。そこで2017年度では、実験ハッチから除害装置間の配管を3/8インチ管から1インチ管への変更および排出ガスおよび希釈処理用窒素ガスの導入方法の改良を行った。これにより、希釈処理用窒素ガス流量25 L/minにおいても排出ガス投入口で十分な排気流量が得られるようになり、上記問題が解消されるとともに可燃性ガスをこれまでの2.5倍の流量で使用することが可能となった。また、同時に使用する可燃性ガスの種類が増加してきていることから、可燃性ガス供給ラインを1系統増設した。

4. *In-situ* XAFS/XRD同時計測システムの開発

BL01B1では、2014年度より反応過程にある試料に対し*in-situ* XAFS/XRD同時計測システムの開発を進めている。本計測システムの構築により、XAFSからは、測定対象元素の化学状態および局所構造情報が得られる。また、XRDからは、試料の結晶子部位の結晶構造に関する情報（結晶系、結晶子サイズ、結晶格子長、結晶の生成・消滅等）が得られる。両データを統合して解析することにより、反応過程にある測定試料に対し、より詳細な構造・化学状態変化のモデルを構築することが期待できる。また、本計測システムにより、同一観察領域に対して連続的に同一条件下で測定することが可能となるため、個別計測で問題となる観察領域や測定条件の微妙な違いに由来する計測データの偏差を考慮する必要がなくなり、測定の信頼性が向上する。2017年度までに、測定セルを作製して試料環境制御（ガス制御、温度制御）でのテスト測定を行い、XAFSとXRDの両データを統合的に解析することにより、単独データの解析では得ることが困難な混合状態に対する構造情報を得ることに成

功している。到達温度は650℃で、温度ステップは50℃であった。2017年度は、600℃以上の高温下で試料温度を10℃刻みで精密調整する手順を確立し、温度依存構造変化を高精度に計測することを目的として高性能化を実施した。

試料を開発した温度・ガス雰囲気制御可能な*in-situ*セルにセットし、試料下流に設置したイオンチェンバーおよびPILATUS 100 K検出器を用いて、XAFSスペクトルおよび回折X線をそれぞれ計測した。回折X線計測の際、ビームストップは、試料直下流に設置し、自動ステージを用いて最適位置へ調整を行った。計測する回折角に合わせ、試料-検出器間距離を調整した。試料セルの昇温にはロード型ヒーターを用い、熱電対により試料近傍の温度計測を行い、フィードバック制御し温度制御する方法を採用した。温度制御の精度を上げ、また、急激な温度変化を避けるため、最大出力を80%とし、新たなPIDを作成した。

次に、本計測システムに対するテスト計測の結果について以下に述べる。テスト試料は、2016年度までと同じく、1 wt% Ru (PPh₃)₃Cl₂/zeoliteペレットを用いた。測定は、試料のガス雰囲気として100 mL/min Heフロー下で行った。15分程度の計測でXAFS、XRD共に解析に十分な質のデータを得ることができ、温度に依存したXAFS、XRDの変化を確認することができた。また、600℃以上の温度領域においても測定時の温度変化が数度以下となり、安定した測定を行うことができた。2016年度までに昇温過程の*in-situ*計測では、XAFS、XRD共に、650℃においてRu金属の生成を示す変化が生じていることを報告した。図3(a) - (c)にRu (PPh₃)₃Cl₂/zeoliteの*in-situ* XRDパターン（Ru金属の(100)面近傍）および*in-situ* XANESスペクトルとその拡大データを示す。図3(a)より、610℃からRu金属の生成を示す変化が生じていることがわかった。また、図3(c)より、600℃から650℃のスペクトルに等吸収点が見られたた

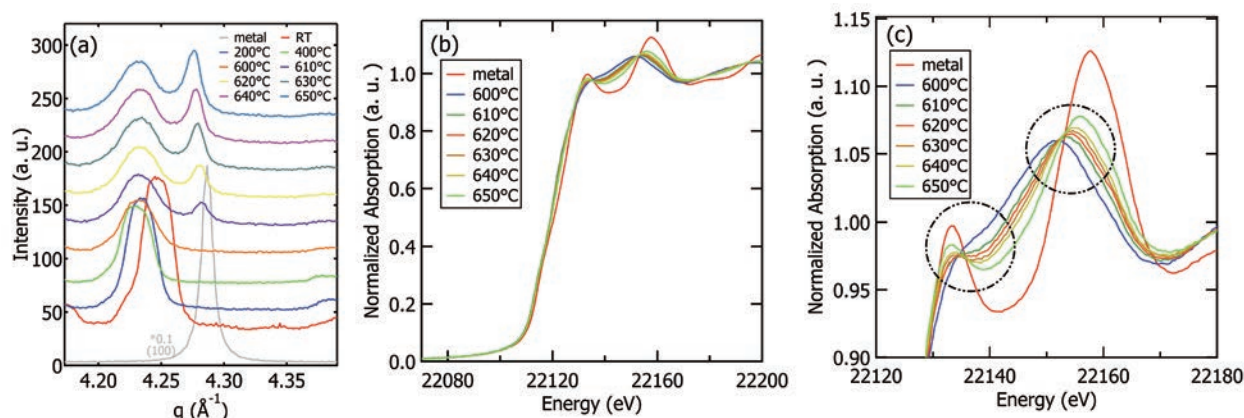


図3 Heフロー下での室温、200℃、400℃、600℃、610℃、620℃、630℃、640℃、650℃の1 wt% Ru (PPh₃)₃Cl₂/zeoliteペレットに対するXRDプロファイル (a)、XANESスペクトル (b) とXANESスペクトルを拡大したもの (c)。

め、610℃からはRu金属が生成しつつも、600℃までのナノクラスタが残っていると予想される。

本件により、*in-situ*下で同一試料に対するXAFSとXRDを同時系列計測することにより、どちらか一方の計測では得られない情報の入手や、誤ったデータ解釈が防げるなど、その有用性が再確認された。今後、幅広く利用が展開されることが期待される。また、現在、加熱機構およびセル設計の変更など、到達温度向上に向けた検討を進めている。

References:

[1]SPring-8・SACLA年報、2016年度, 31-32.

JASRI 利用研究促進部門

宇留賀 朋哉

分光解析 I グループ

加藤 和男、伊奈 稔哲

BL02B1 単結晶構造解析

1. 概要

BL02B1は、偏向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(水平)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)ハイブリッド型半導体検出器
- (3)多軸回折計

図1に、光学系・実験ステーションレイアウトを示す。

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

2017A期、2017B期合わせて45課題が実施された。採択率は、2017A期、2017B期それぞれ、81.0%、82.6%であった。図2（左図）に、2017年度のBL02B1の審査対象課題の応募・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39課題・採択35課題、国立研究機関等が、応募3課題・採択3課題、海外機関が、応募3課題・採択2課題であった。図2（右図）に、2017年度の本ビームラインの研究手法割合を示す。構造解析が最も多く、応募32課題・採択28課題、精密構造解析が、応募11課題・採択10課題、歪み・応力が、応募2課題・採択2課題であった。本ビームラインでは、継続して2014年度から2018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2015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 / 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性能化が期待される。また、成果公開優先利用課題は2課題、大学院生提案型課題は6課題、成果占有課題利用は1課題が実施された。

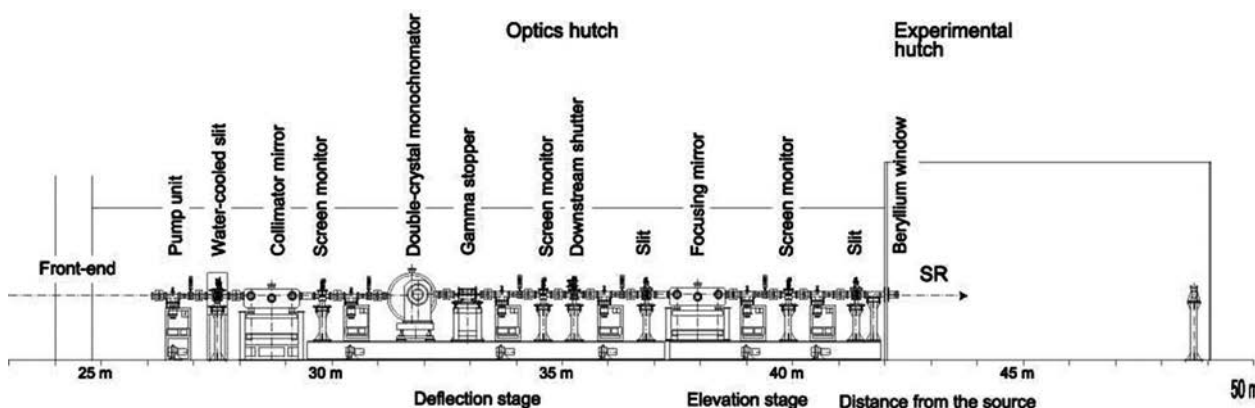


図1 BL02B1 光学系・実験ステーションレイアウト

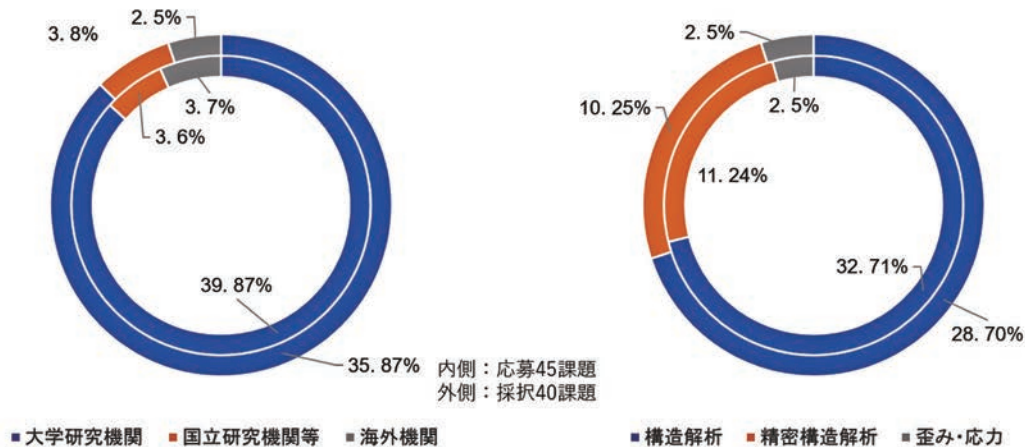


図2 2017年度のBL02B1の審査対象課題の応募・採択課題数の機関割合（左図）、研究手法割合（右図）。

3. BL02B1の整備状況

BL02B1では、高エネルギー X線を活用した高分解能単結晶構造解析による機能可視化技術の高性能化を目的として、DECTRIS社製の2次元ハイブリッド型ピクセル検出器PILATUS 3 X CdTe 1Mを導入した。本検出器は、CdTe結晶をX線検出素子として用いることによって、高エネルギー X線領域においても、シリコン結晶に比べて、非常に高い検出効率でシグナルを観測することが可能である。また、検出器面積は、 $83.8 \times 33.5 \text{ mm}^2$ の10個のセンサーモジュールを 2×5 で配置することにより $168.7 \times 179.4 \text{ mm}^2$ となっている。

これまで、BL02B1では、大型湾曲イメージングプレート（IP）カメラによって、超精密構造解析を推進してきたことにより、他の放射光施設が追従できない精密なその場観察の構造解析や電子密度分布の直接可視化などの研究成果を創出してきた。IPは、積分型の検出器として、湾曲などの形状にも対応でき、さらに、大面積でも高い均一性を有することから、優れた統計精度による計測が可能である。しかしながら、デメリットとして、大検出面積の読み取り、消去に掛かるタクトタイムが10分近くあり、動的な超精密構造解析を行うことは、現実的には困難であった。

今回、導入した検出器は、0.95ミリ秒の読み出し時間と500 Hzまでのフレームレート的能力を有しており、これまで断念していた動的な電子密度解析による構造物性研究を推進することが可能となる。また、本検出器は、光子計数型であり、原理上、ノイズのないシングルフォトンカウンティングとIPと同等の20 bitのカウンタレンジを有していることから、電子密度の可視化で要求される広いレンジのシグナルを1ショットの回折イメージで測定することが可能である。

図3に導入した検出器を組み込んだ回折計システムを示す。本回折計システムの設計では、既存の大型湾曲

IPカメラは、これまで通り使用することができ、新規に導入した検出器と容易に切り替えて実験することが可能である。

高速検出器で実現可能なシャッターレス測定では、各回折イメージを測定する際にシャッターの開閉、回折計のポジショニング、及びイメージ読み取りのタクトタイムが不要であり、目的の1つであるデータ計測時間を既存の装置と比較して1/10以下に短縮することが可能になる。さらに、10倍以上高効率な時間分解計測により、今後、電子密度分布レベルでの構造ダイナミクス解析の実験計画の立案も視野にいれることができる。

本検出器システムのコミッショニングにより、シャッターレス測定が回折計のポジショニング、シャッターの開閉時間、イメージの読み取りのタクトタイムを削減できることを確認し、測定時間を大幅に短縮することが可能になった。例として本検出器と既存のCCD検出器との比較のために、標準試料シチジンの微小単結晶を用いて、 $d > 0.77 \text{ \AA}$ の分解能全領域を測定したところ、データ計測時間は、CCDの場合には最速でも1時間30分程度かかっていた。一方、同様の分解能全領域をPILATUSによって測定したところ、5分程度に劇的に

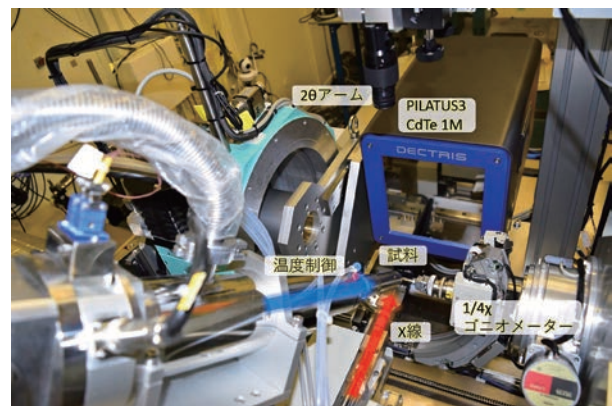


図3 新規に導入したハイブリッド型ピクセル検出器PILATUS 3 X CdTe 1Mの回折計システム

短縮できることがわかった。これは、当初目的の1つとしていたデータ計測時間を1/10以下にすることを達成したことになる。また、CCDは、ダイナミックレンジが標準的に16 bitであり不足しているレンジ分は、アプソーパーを用いた回折イメージを足し合わせることでより疑似的に20 bitにしていたが、本検出器は、一度の測定で20 bitのダイナミックレンジの回折データを観測することができる。

データ処理ソフトウェアは、これまで主にRAPID-AUTO (Rigaku) で行っていたが、これに加えて、CrysAlisPro (Rigaku)、APEX3 (Bruker)、HKL2000 (HKL) などのソフトウェア群にも対応したデータフォーマットを提供することが可能になった。それぞれのデータ処理ソフトウェアは、得手不得手があり、また、ユーザーによっては、これまで使い慣れたソフトウェアを使用したいなどの要望を実現することができた。

4. まとめ

既設の大型湾曲IPカメラは、導入から10年が経ち、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急務となっていた。2017年度に、理研からの支援を受け、高エネルギー X線対応のCdTeのハイブリッド型半導体検出器の導入に至った。近年、サイズの大きいCdTeの素子の作製が可能になり、高エネルギー X線対応のハイブリッド型半導体検出器の開発が急速に進んでいるが、今回、導入した検出器は、その中でも $83.8 \times 33.5 \text{ mm}^2$ の10個のセンサーモジュールを組み合わせることで大面積検出器を実現している。現時点では、このクラスの検出器は、世界の放射光施設でも数台しか導入されておらず、高エネルギー X線を用いた最先端計測による研究成果の創出が期待できる。

JASRI 利用研究促進部門

回折・散乱Iグループ 結晶構造解析チーム

杉本 邦久、安田 伸広

回折・散乱IIグループ 低次元・非周期構造チーム

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は偏向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線ビームの平行化およ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、分光結晶としてSi (111) 結晶を用いている。利用可能なX線のエネルギーは、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、SPring-8 Web Site内のBL02B2概要ページ(本稿最後にURLを記載する)および*Rev. Sci. Instrum.* 88, (2017) 085111を参照されたい。実験ステーションには、 2θ 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

2017A期、2017B期合わせて66課題(成果非専有利用課題)が実施された。採択率は、2017A期、2017B期それぞれ、70.0%、84.8%、課題あたりの2017A期、2017B期の平均シフト数は両期とも5.0シフトであった。2017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74課題・採択58課題、国立研究機関等が応募5課題・採択4課題、海外機関からは応募4課題・採択2課題、産業界においては応募2課題・採択2課題であった。本ビームラインの研究分野割合については、無機系結晶が最も多く応募64課題・採択47課題、有機・分子系結晶について応募11課題・採択11課題、低次元系、表面界面構造・ナノ構造・機能性界面・薄膜材料等に関しては応募5課題・採択5課題、産業利用が応募2課題・採択2課題、高分子が応募1課題・採択1課題、非晶質、高圧物性を扱う研究はそれぞれ応募1課題・採択0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、精密構造解析研究およ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4課題、成果占有時期指定課題が1課題、成果公開優先利用課題については3課題実施された。

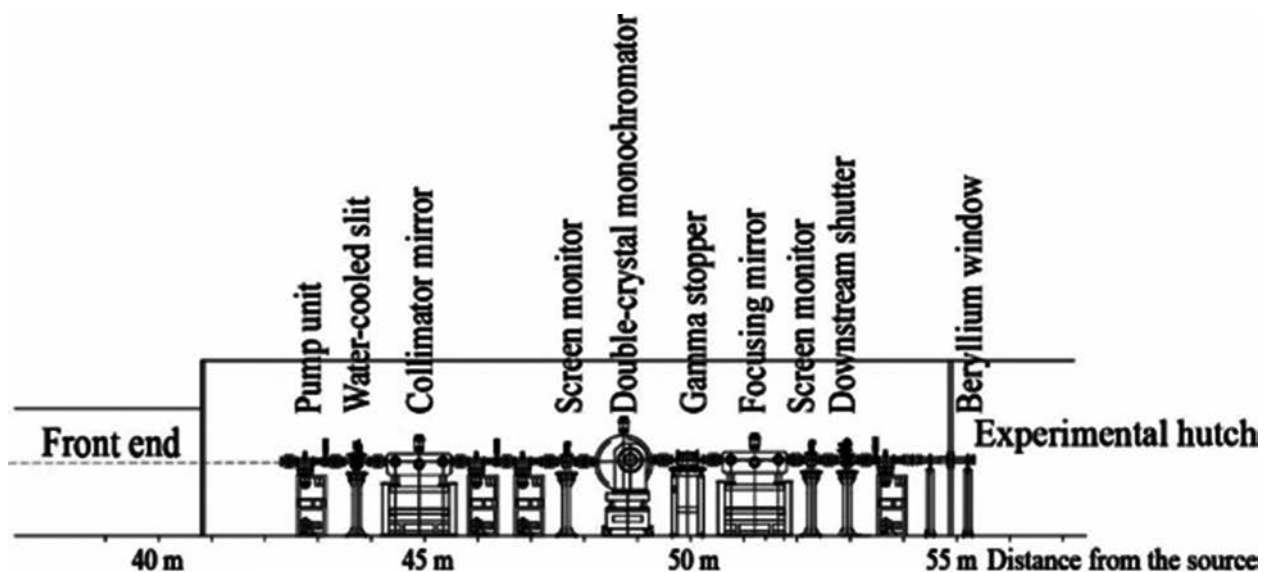


図1 BL02B2 光学全体レイアウト

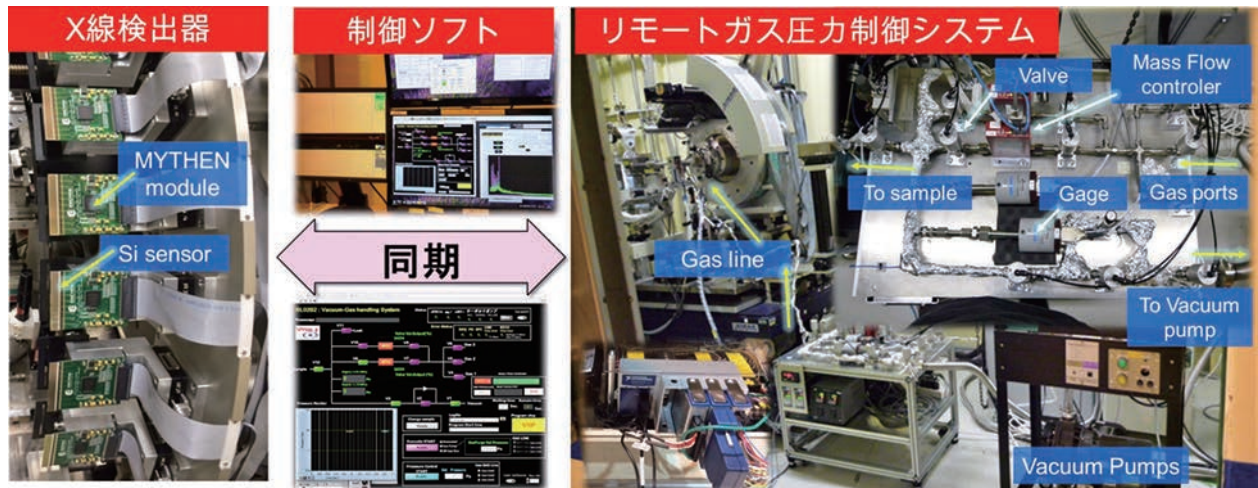


図2 リモートガスハンドリング装置と制御ソフトウェア

3. BL02B2の整備状況

これまで粉末回折ビームラインBL02B2では精度よく粉末回折データの強度を観測し、静的な電子密度分布を可視化や精密な原子配列を議論するために、イメージングプレート二次元検出器と大型デバイシェラカメラを組み合わせ、幅広い構造物性研究分野で多くの実績を挙げてきた。最近、時間分解能が必要となる外場下でのその場測定や使用動作下でのオペランド測定等の研究に対応するために、多連装一次元半導体検出器を導入し、2016年にその検出器と連携した試料交換ロボットを導入することにより全自動粉末回折計測システムの開発を行ってきた。これにより、現在、高精度粉末回折データ取得のハイスループット化が実現している。

一方で、ナノ空間を有するゼオライトや高いガス吸着能を持つ多孔性配位錯体、陰イオン交換性を持つ層状複水酸化物を利用したCO₂を始めとする温室効果ガスや有害溶媒蒸気の効率的な分離技術、環境、資源、エネルギー保全などを考慮した複合機能の材料開発において、ガス雰囲気や蒸気圧・溶媒下でのその場高精度粉末回折計測は極めて重要であり、ユーザーの要望が大変多い状況であった。しかし、試料のガス圧力制御や溶媒蒸気雰囲気の変更作業は、ハッチ内での設置作業や複雑なバルブ開閉操作手順を踏む必要があり、特に、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するなど、負担を強いる現状であった。そこで2017年度は、ガス雰囲気制御下でのその場計測の自動化を目指し、ガス圧力を自動調整し、試料へと導入するリモートガスハンドリングシステムと既設の一次元半導体検出器とが同期したその場構造計測装置の開発、ガス試料セルの開発、ソフトウェアの整備を行った。さらに、X線検出器と連動しミリ秒・秒オーダーでのガス圧力制御下での時間分解測定環境についても整備を実施した。開発を行ったリモートガスハンドリングシステム

およびLabviewにより作成した制御ソフトを図2に示す。ガスハンドリングシステムはswagelok製のエアバルブおよび繋手、SUS配管、ガス圧力読み取りにはガス種に依存しない絶対圧トランスデューサー、ガス流量制御にマスフローコントローラーを導入し、配管内の湿度・温度計測を可能とするためのインライン温湿度計も組み込んだ。ガスラインの排気には、スクロールポンプおよび外部制御可能なターボ分子ポンプを接続しており、10⁻⁵ Pa程度までの真空を制御可能である。エアバルブの動作には圧縮空気を用いている。すべての計測・制御機器はNational instrumentのDAQデバイスに接続し、制御PCからの外部制御を可能としている。ガス試料セルは、ガラスキャピラリーに特化したセルを用いており、O.D.0.4, 0.5 mmおよび、キャピラリーのファネル (O.D.3 mm) をそのまま接続することが可能なセルを整備した。リモートガスハンドリングシステムでは、1~130 kPaのガス圧制御が可能である。実際の実験では、ユーザーはガスラインを選択しPC上での設定圧力を入力するだけで、ガラスキャピラリー内のガス雰囲気を自在に制御することができる。さらに粉末回折測定と同期するためのソフトウェアも整備しており、ミリ秒・秒オーダーでのガス圧力制御下での時間分解計測環境も整備した。なお、本開発装置はすべて自作であり、ユーザーの要望にフレキシブルに対応することが可能である。このリモートガスハンドリングシステムの開発により、従来、新規ユーザーには敷居が高かったガスや溶媒雰囲気下での高精度XRD計測環境を提供することができるだけでなく、構造ダイナミクスをキーワードとした様々な環境下でのガス吸脱着の前駆現象や、過渡的な構造変化計測をミリ秒から秒オーダーでの時間分解能で実施可能となっている。

4. まとめと展望

2017年度はリモートガスハンドリングシステムを開発し、一次元半導体検出器および、電動化された低温・高温窒素吹付装置、高温チャンバーを組み合わせることによって、幅広い温度領域で、優れた時間・角度分解能を有する粉末回折データが取得できるその場計測環境を整備した。さらに、従来手動で行ってきた作業バルブ操作などを自動制御することにより、人的なオペレーションミスや試料交換時のタクトタイムを軽減することが可能となり、限られたビームタイム内で実験に割ける時間の増加が見込まれ、non-ambient条件下での多試料の粉末回折実験の迅速化も期待できる。本システムを用いることで、物性科学、材料科学、材料・デバイス開発、学術分野から産業応用など、様々な分野における機能性材料の構造評価に対して高効率化が期待される。今後、ミリ秒～秒オーダーでの高いS/N比の高精度粉末回折データ取得に向けたX線強度の増強を行うための水平方向の集光に着手し、また、高エネルギーX線に対する高効率計測を行うためのCdTeやGaAsベースのハイブリッド型二次元検出器を整備することにより、過渡的な構造変化や化学反応過程における粉末試料のデバイリングの可視化を図り、汎用性に優れ、かつユーザーフレンドリーなビームラインの運営を目指す。これにより、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。

[BL02B2 概要ページ]

http://www.spring8.or.jp/wkg/BL02B2/instrument/lang/INS-0000000409/instrument_summary_view

JASRI 利用研究促進部門

回折・散乱Iグループ 結晶構造解析チーム

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 高温高压

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線を用いた高温高压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川井型高压発生装置（DIA型プレス、光学ハッチ2）とSPEED-Mk.II川井型高压発生装置（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以上の高压高温実験の他に、D-RAM（メインラムとは独立して可動する差動ラム）を使用した高压変形実験を行うことも可能である。

2017年度の高性能化として、高計数率Ge-SSDシステムの導入、超音波エコー測定システムの更新、光学ハッチ2精密ステージ用制御ソフトウェアの開発、大容量NASストレージの導入を行った。また、高額消耗品として、SPEED-1500用1段アンビルの交換、単色X線ビームモニター用GAGG蛍光体の交換等も実施した。

2. BL04B1の利用状況

2017A期、2017B期合わせて30課題（含1年課題）が実施された。採択率は、2017A期、2017B期の平均として52%であった。重点課題としては、愛媛大学のPU課題『大容量高压装置を活用した地球および関連物質の高温高压物性研究の推進』が実施された。2017期も2016期と同様に地球惑星科学分野がメインであったが、物質材料科学分野の海外からの新規ユーザーを複数件実施した。

3. 高計数率Ge-SSDシステムの導入

BL04B1ではエネルギー分散法によるX線回折測定を主要な測定手法としている。回折X線のエネルギースペ

クトル測定にはGe-SSDを使用しているが、ガラス（メルト）試料や高選択配向性試料の測定時にはしばしばDead timeが高くなり測定時間が非常に長くなる問題があった。こうした問題を解決するため、高計数率に対応したGe-SSD検出システムを導入した。

今回導入したGe-SSD検出器（CANBERRA社製EGX10-06）はGe結晶直径10 mm、結晶厚は6 mmで既設のGe-SSDとほぼ同等の有効径と感度を有している（図1）。本検出器の最大の特徴はI-TRP方式のプリアンプを搭載しており、2 Mcps以上の高カウントレートの入力に対応している。また、パルスチューブ式の電気冷却装置によって、液体窒素補充による中断無しに安定した長時間計測が可能となっている。また上記の検出器の性能を最大限に活用すべく、Quantum DETECTORS社製のXspress3 mini高速マルチチャンネルアナライザーも導入した。

既設システム（Ge-SSD（GL0110P、CANBERRA社

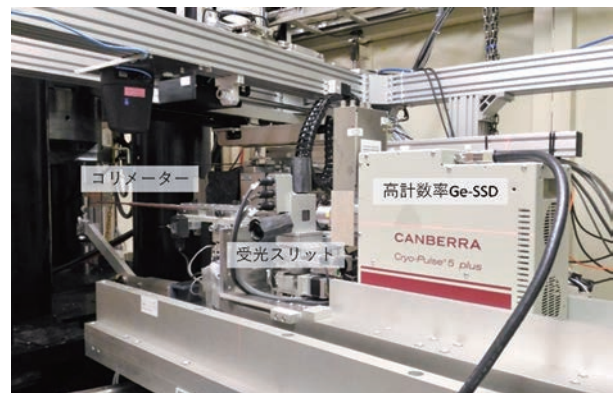


図1 高計数率Ge-SSDの設置状況

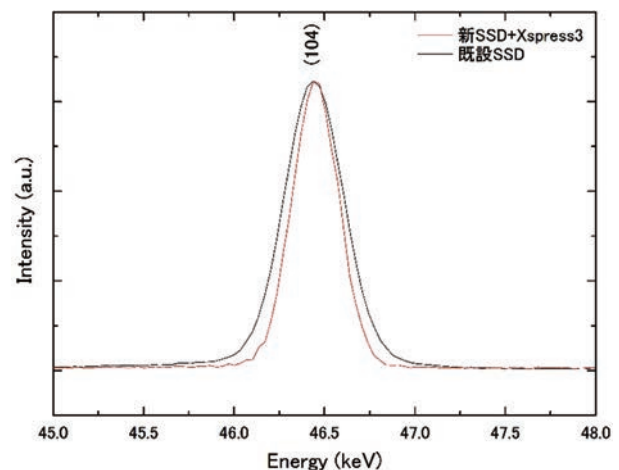


図2 Al_2O_3 (104) ピーク幅の比較

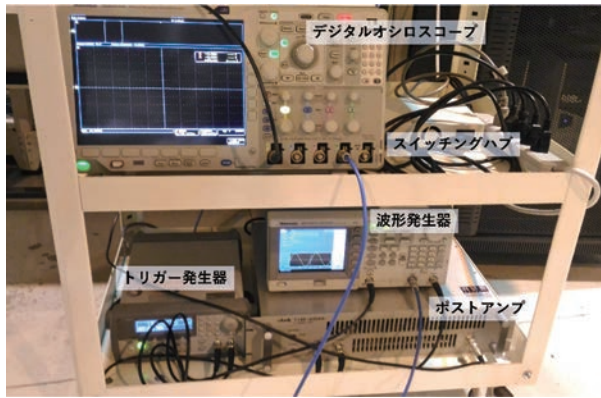


図3 新たに導入した超音波エコー測定システム

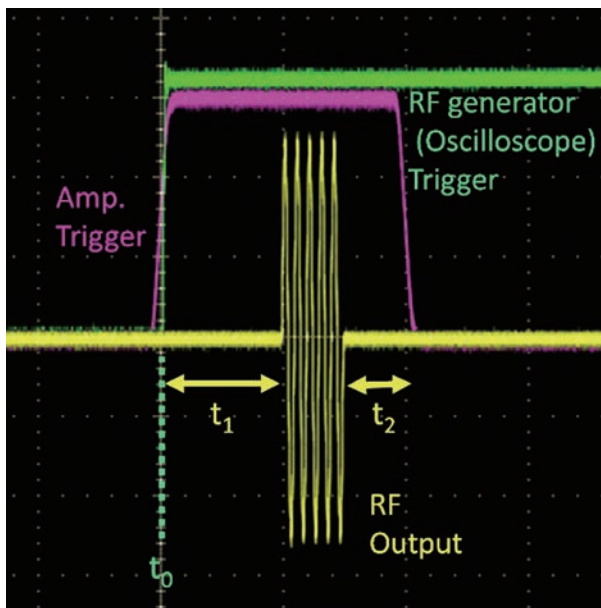


図4 制御用トリガー及び超音波ドライブ用RF信号

製)、アンプ (2026、CANBERRA 社製)、ADC (8715、CANBERRA 社製)、AIM (556A、CANBERRA 社製)) と新システムのテスト測定の結果、高計数率検出器は既設システムに較べて Dead time の大幅な低減が確認できた。特に SiO_2 ガラス試料を使用した高フラックス条件での Dead time の差は大きく、既設システムでは全く測定不可能な条件でも、新システムでは問題なく測定可能であった。更に、 Al_2O_3 の回折線のうち 104 面の回折線を比較したものを図2に示す。FWHM (keV) はそれぞれ、0.392 (既設 SSD)、0.306 (新 SSD+Xpress3) となり、既設システムと比較して半値幅が小さく高エネルギー分解能を有することを確認した。

今後、本システムの設置・調整を経て本格的なユーザー利用に供していくが、本機器の導入によって従来は測定困難であった高選択配向性試料の測定が可能になるばかりでなく、将来高フラックス光源と組み合わせることで、高速時分割測定や、試料の 2 次元 (3 次元) XRD マッピングが可能になると期待される。

4. 超音波エコー測定システムの更新

BL04B1 では、高圧下での試料の弾性率測定のため、超音波エコー測定装置 (愛媛大学 GRC の持ち込み物品) がユーザー利用に供されている。しかしながら、設置から 10 年以上経過し、一部動作不具合が生じ、またシステム OS に Windows XP を使用しているため、所内 LAN に接続できず、データ転送や自動測定に不都合があった。そこで、デジタルオシロスコープと任意波形発生器を 2017 年度新規に導入・更新した (愛媛大学 GRC の持ち込み物品)。デジタルオシロスコープには Tektronix 製の MDO4104C を導入した。本製品の周波数帯域は 1 GHz であり、 ~ 100 MHz の超音波波形測定に十分高い時間分解能を有している。任意波形発生には同じ Tektronix 製の AFG3251C を使用して 120 MHz までの正弦波バースト波形を発生できる。これらオシロスコープ、波形発生器および既設のバイアスゲート付きアンプの同期のためのトリガー源として、Agilent 製の 33210A を利用している。これらの機器はすべて LAN 接続によって PC に接続され、新たに開発した制御ソフトウェアによってシーケンシャルに自動的にデータ収集が行える (図3、4)。

5. その他の高性能化等

今後の複合測定自動化を進めるために、2017 年度はステッピングモーターコントローラ (ツジ電子製: PM16C-16) と新たに制御用ソフトウェアを開発した。既設システムはレガシーインターフェースである GPIB 通信規格を採用しており、ケーブル長やデータ転送速度の制限によって、安定的かつ迅速なステージ移動ができなかった。今期導入した上記コントローラは LAN 通信を採用しており、ケーブル長の制限がほぼ存在しない。また、16 ch のモーターを同時駆動でき、測定の迅速化に有用である。一方、近年計測機器の高分解能化や時分割測定の普及によって測定データ量は増加の一途をたどっている。測定データの安全かつ高速な保存のために、データストレージとして大容量 NAS (ニューテック製: Cloudy III-LC NAS 2 TB $\times$ 12 台) を導入した。

JASRI 利用研究促進部門

回折・散乱 I グループ 極限構造物性チーム

肥後 祐司、丹下 慶範

BL04B2 高エネルギー X線回折

1. 概要

高エネルギー X線回折ビームライン BL04B2 は、60 keV 以上の高エネルギー X線を用いた非晶質物質の Pair Distribution Function (PDF) 解析、実材料内部の評価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・非晶質回折実験等が実施されている。本ビームラインは高エネルギーかつ高強度の X線利用を優先し、ミラーレス光学系を採用しているため、検出器サイドでのエネルギー分別による高次光除去が必要となる。そのため、ポイント型検出器の多連装システムが整備され、測定のスループット向上が図られてきた。一方で、これまで展開されていなかった秒オーダーの時分割 PDF 解析について、2次元検出器を利用し技術基盤構築を開始した。2017 年度においては、1) 二軸回折計ポイント型検出器多連システムの液体窒素自動供給装置の整備、2) 大面積 2次元検出器を用いた時分割 PDF 解析環境の構築が実施された。これら 2 点の高性能化について詳細を記す。

2. ポイント型検出器多連二軸回折計の液体窒素自動供給システムの整備

図 1 に BL04B2 の検出器多連二軸回折計へ組み込まれた液体窒素自動供給システムを示す。2016 年度からの二軸回折計の改良により、ポイント型 CdTe 検出器を 8° 間隔で 4 台、Ge 半導体検出器を高角側に 3 台、合計 7 台並べることが可能となった。現在は、CdTe 半導体検出器 4 台、Ge 半導体検出器 2 台によりユーザー実験を運営している。Ge 半導体検出器は毎朝液体窒素の供給を必

要とし、これまで BL 関係者が不在の場合、ユーザーに補充を依頼していた。しかし、Ge 半導体検出器数の増加により、従来のような運用方法による人的負担及び、測定時間ロスの増加が予想されたため、2017 年度より液体窒素自動供給システムによる補充を開始した。当初、液体窒素メインタンクから Ge 半導体検出器までの配管が長い影響で、配管内に残留した空気が干渉し、供給開始直後に検出器が液体窒素不足状態と誤認識するトラブルが発生、測定が不可能な状況となった。そこで、検出器直前にバルブを配置し、配管内が十分冷却された後バルブが開くようシステムを改良した結果、7 日間毎メインタンクを 1 回満杯にすることで、毎日 1 回の検出器への液体窒素自動充填が可能となった。本システムの整備により、ユーザーは液体窒素の補充に煩わされることなく実験に集中できるようになった。なお、本整備は物質・材料研究機構の小原真司 主幹研究員 (JASRI 客員研究員) との共同で実施された。

3. 大面積 2次元検出器を用いた時分割 PDF 解析環境の構築

理研からの支援を受け、大面積かつ高速連続露光の機能を兼ね揃えた 2次元検出器を BL04B2 の下流へ導入し、時分割 PDF 解析環境の構築を進めた (図 2)。2017 年 12 月に本装置の時間分解能について評価を実施したところ、標準試料シリカガラスで 1 分積算すれば、BL04B2 の既設同種装置 2 時間積算と同等の統計精度の PDF 解析が可能であった。その結果を図 3 へ示す。ポイント型検出器を 2次元検出器に置き換えることで時間分解能を

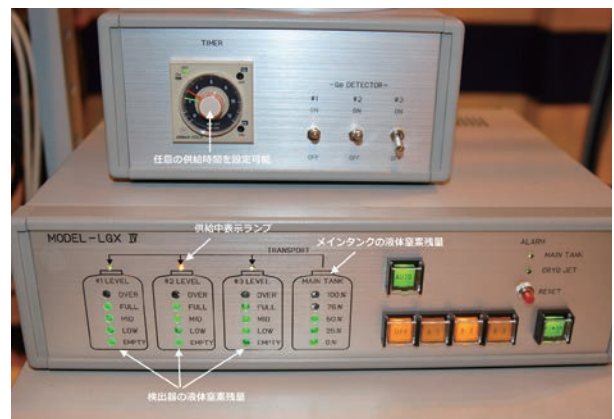
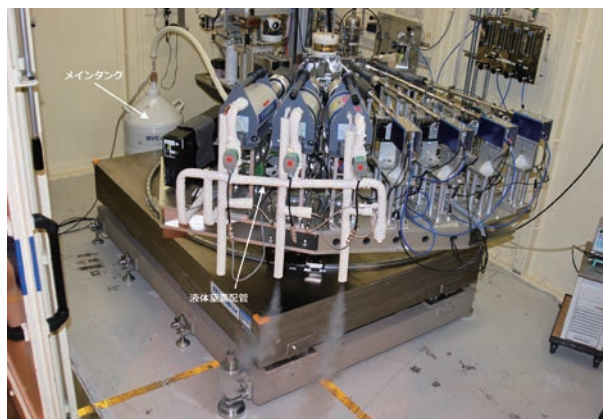


図 1 (a) BL04B2 の多連検出器装置へ組み込まれた液体窒素自動供給システムの稼働状況
(b) 液体窒素自動供給システムの制御器

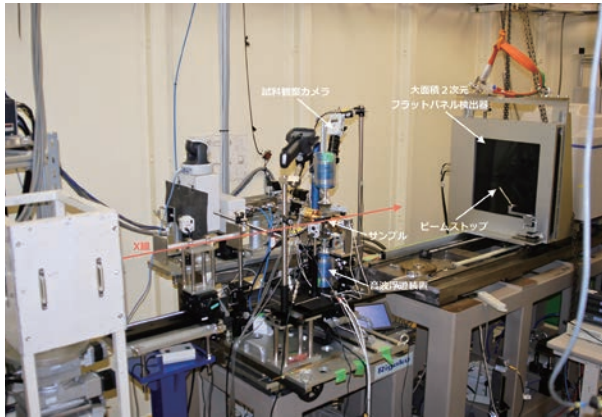


図2 大面積2次元フラットパネル検出器をBL04B2へセットアップした様子

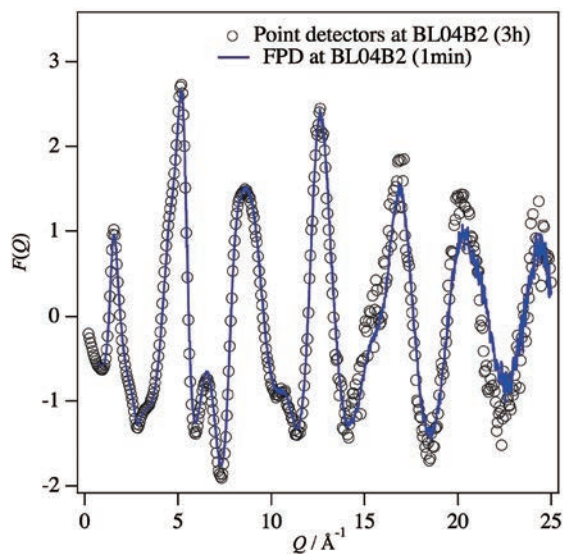


図3 測定検出器の違いによるSiO₂ガラスの構造因子F(Q)の比較

丸：ポイント型検出器多連2軸回折計
線：2次元検出器システム

更に上げることが原理的には可能である。しかし、現在は2次元検出器全面のデータを用いたPDF解析ができず、分オーダーの測定時間が必要となる。今後、2次元画像データ処理に関する開発を進め、全面を利用した秒オーダーの時分割PDF解析環境を実現する予定である。一方、冒頭で述べたように、本装置から得られたデータには高次光成分が15%程度含まれている。そのため、これまでBL04B2で展開されていた高精度PDF解析の定量性を本装置により達成することは難しい。しかし、非晶質材料の分オーダーの経時変化を観察することは可能である。観察したい構造（変化）現象に合わせて測定装置を使い分け、非晶質構造解析に関する研究が進展することを期待する。

JASRI 利用研究促進部門

回折・散乱IIグループ 低次元・非周期構造チーム

尾原 幸治、Bagautdinov Bagautdin

回折・散乱Iグループ 極限構造物性チーム

河口 沙織、大石 泰生

技術グループ 技術支援チーム

竹本 道教

BL08W 高エネルギー非弾性散乱

1. はじめに

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。

2017年度に実施された課題数は計38件、内、一般利用研究課題は19件、社会・文化利用課題6件、新分野創成利用課題3件、長期利用課題2件、成果公開優先課題2件、成果占有時期指定課題1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7件（内、波長分散型スペクトロメータ使用4件、エネルギー分散型検出器使用3件）、磁気コンプトン散乱実験16件、蛍光X線分析6件、イメージング1件、高エネルギーX線回折9件であった。2017A期より、高エネルギーX線回折測定装置の導入を行ったため、X線回折実験課題数が増加し、将来的には、全体のビームタイムの1/3程度にまで増える予定である。

2. 超伝導マグネット用チラーの更新

実験ステーションA用に磁気コンプトン散乱実験で使用する高速磁場反転超伝導マグネットが導入されている。本機は、液体ヘリウムを再凝縮器で循環させており、この再凝縮器用のコンプレッサーとマグネット用バイポーラ電源の冷却用にチラーを用いている。2017年5月頃から経年劣化により、このチラーの冷却能力が低下したため、磁場を安定して印加することができなくなった。症状としては、約1時間MCP測定をすると、バイポーラ電源の温度上昇異常により電源がOFFになり、磁場印加が出来なくなってしまう。2017年度では、この温度上昇を回避するために、ABBA（A: +2.5 T, B: -2.5 T）を1cycleとするMCP実験において、1cycle毎に磁場を30秒間落とすwait timeを測定シーケンスに導入することにより、電源OFFになることを回避した運転を行った。2017年度末にチラーの更新が完了した。

今回の故障機器は、汎用品であるチラーであったため修理可能であったが、本マグネットは納品から20年が経過しており、冷凍機本体やマグネットコイル等は、既

に部品や線材等が入手不可であるため、修理対応除外品となっている。また、磁気コンプトン散乱実験用として同時期に導入した10素子Ge半導体検出器においても分解能劣化が顕著になってきている。これらの機器の後継機への早急な更新が求められる。

3. 高エネルギーX線回折測定装置の立上げ

結晶周期性を持たない非晶質材料の構造解析手法として、全散乱計測からの二体分布関数（Pair distribution function, PDF）解析が挙げられる。このPDF解析は広い逆（ Q ）空間領域の回折データを必要とするため、わずかな散乱角度で広い Q 空間領域をカバーできる100 keV以上の高エネルギー・高強度X線利用が好まれる。ゆえに、BL08Wにて、理研からの支援を受けて、大面積かつ高速連続露光の機能を兼ね揃えた2次元検出器、及びカメラ長と検出器位置の変更を容易にした架台を導入し、時分割PDF解析（高エネルギーX線回折）装置を整備した（図1）。2018年2月に本装置の時間分解能について評価を実施したところ、標準試料シリカガラスで30秒積算すれば、BL04B2の同種装置2時間（7,200秒）積算と同等の統計精度のPDF解析が可能であることを確認した。さらに、トライアル的な測定として、分子性ガラスの構造緩和過程観察、高分子形燃料電池膜の劣化過程観察、ゼオライトの原料調整過程観察、ナノ粒子複合体とポリマー間の結合状態変化過程観察などの一般課題が実施された。種々のプロセスにおいて、これまで見ることのできなかった構造変化が観測されており、本装置を用いた非晶質材料の秒・分スケールの構造変化に関



図1 大面積2次元検出器を利用した時分割PDF解析装置のセットアップ

する研究展開が今後期待される。

JASRI 利用研究促進部門
回折・散乱IIグループ

辻 成希、尾原 幸治

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光源とする硬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。

ビームライン全体に共通する項目として2017年度は7月にアンジュレータの最小ギャップを9.6 mmから8.58 mmに変更した。これにより低エネルギー側は5 keVまでのX線の利用が可能となった。また2017年度末の停止期間中に光源基盤部門により、ビームラインモノクロメータの低振動化のための改造が行われた^[2]。2017年度の各実験手法による高性能化は以下のとおりである。

2. 核共鳴散乱

核共鳴散乱では、放射光を励起光としたメスbauer効果測定が行われており、主として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bauer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、同様にフォノンが観測可能な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メスbauer効果測定に利用されている。

2017年度は、核共鳴散乱実験ステーションの高性能化として集光屈折レンズによる核共鳴散乱用マイクロビームの生成や高エネルギー核種用エネルギー領域メスbauer分光装置の整備を行った。

集光レンズによる核共鳴散乱用マイクロビームの生成

2016年度にはHAXPES用のKBミラーを利用することにより、ミラー反射率44%、ビームサイズ4.2 μm (鉛直) $\times$ 10.2 μm (水平) のビームを得て、Fe-57における核共鳴線 (14.4 keV) に対しては良好なマイクロビームが利用できる環境となった^[3]。このHAXPES用のKBミラーはFe-57以外の核種、特にFe-57核以外の高エネ

ルギー核種に対応していないため、微小なビームを必要とする高エネルギー核共鳴散乱実験においては大きな制約となっていた。高エネルギー核種に対してKBミラーを整備する必要性はあるものの、全ての微小ビームを必要とする実験に対してKBミラーが必要でない。現状のユーザー利用を考えると、調整時間が短時間で済み、集光・非集光ビームの光軸が変わらない集光光学系の利用の方がむしろ望ましい。そこで、集光サイズにおいてはKBミラーに劣るが、簡便に集光ビームが得られ、比較的容易に高エネルギーにも対応できる集光レンズを整備した。

2017年度整備した集光光学系は、15 keV 付近 (Fe-57核用)、22 keV 付近 (Sm-149核用)、30 keV 付近 (Th-229 m核用) を対象とした集光レンズである。これらの3種類のレンズは一つのホルダーに収納されており、個々の集光レンズを実験ごとに設置する場合に比べて、光学系の変更に伴う設置及び調整時間の大幅な短縮が期待される。また、Fe-57核用とTh-229 m核用の集光レンズはFe-57核 (共鳴エネルギー: 14.4 keV) 及びTh-229 m核 (共鳴エネルギー: 29.2 keV) に特化されている。一方、Sm-149核用は、集光位置が色収差により若干異なるが、Eu-151核 (共鳴エネルギー: 21.5 keV)、Sm-149核 (共鳴エネルギー: 22.5 keV) 及びSn-119核 (共鳴エネルギー: 23.9 keV) に利用が可能である。

集光レンズの性能に関して、Th-229 m核用を例として示す。測定は、集光レンズを光源から約49.3 m位置に設置し、スリットのナイフエッジスキャンによって行った。図1にTh-229 m核の共鳴エネルギーである29.2 keVにおける集光レンズからの各距離における鉛直方向ならびに水平方向のビームサイズを示す。鉛直、水平方向のいずれもレンズから12.8 mの定盤中央の典型的な試料位置近くにおいて集光点を持つ。定盤中央におけるビームサイズはTh-229 m核の共鳴エネルギーにおいて半値幅で41 μm (鉛直) $\times$ 149 μm (水平) である。Fe-57核の共鳴エネルギーの14.4 keVでも同様な測定を行い、110 μm (鉛直) $\times$ 155 μm (水平) という結果が得られている。この鉛直方向のビームサイズは今後、高分解能モノクロメータの前に置かれる鉛直方向平行化レンズと組み合わせることにより改善される見込みである^[3]。

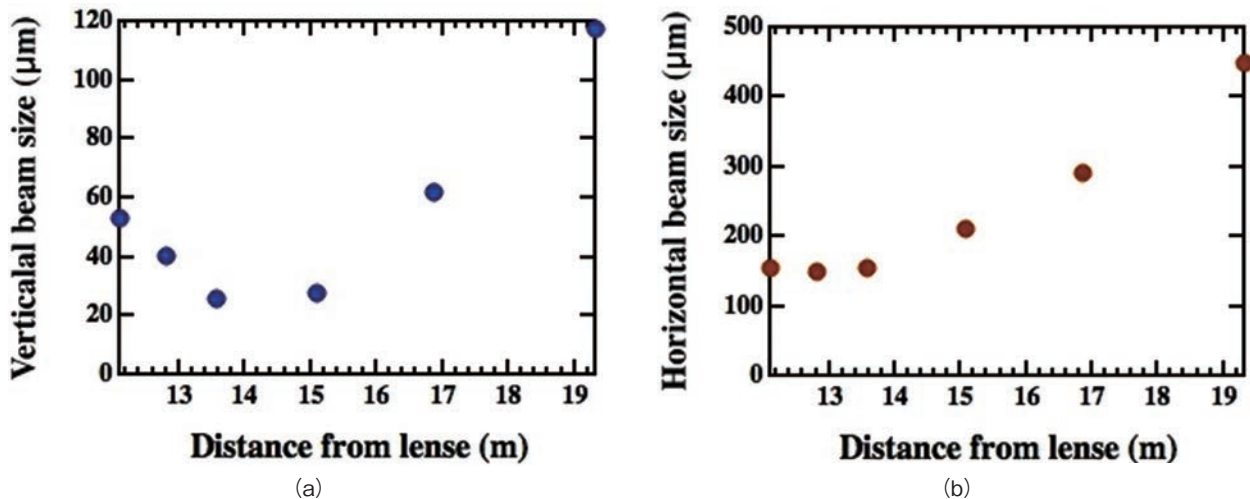


図1 エッジスキャンにより測定されたTh-229 m核用集光レンズからの各距離における29.2 keV X線の (a) 鉛直方向、(b) 水平方向のビームサイズ

高エネルギー核種用エネルギー領域メスbauer分光装置

エネルギー領域メスbauer分光は放射線源を用いた実験室系のメスbauer分光からの直感的な解釈が可能である。近年、本手法の利用拡大が進んでいるが、実験室系のメスbauer分光ユーザーを含めたポテンシャル・ユーザーによる更なる新規ユーザーが期待される手法である^{[4][5]}。また、本手法はエネルギー領域メスbauer分光法と相補的で従来利用されてきた核共鳴前方散乱実験とは異なり、大電流の単バンチX線を必ずしも必要としない。このため、次期光源で運転モードにおいて単バンチの電流値において制限があっても、本手法は核と電子の相互作用である超微細相互作用を用いた物性研究の手法として期待される。

エネルギー領域メスbauer分光では、共鳴核を含む透過体及び散乱体を光軸に配置して実験を行う。物性研究に利用する際には、透過体と散乱体のいずれか一方に測定したい試料をマウントし、他方に参照物質をアナライザーとしてマウントする。高エネルギー核種の場合には、共鳴時の反跳エネルギーが大きいために、メスbauer効果の起こる確率である無反跳分率が小さくなる。無反跳分率は一般に低温で増大することが知られているので、スペクトルを効率的に測定するためにはアナライザーを低温に保つ必要がある。例えばこれまでに利用実績のあるGe-73（共鳴エネルギー：66.7 keV）、Ni-61（共鳴エネルギー：67.4 keV）やYb-174（共鳴エネルギー：76.5 keV）などでは、メスbauer効果を観測するために少なくとも30 K以下が必要となる。

そこで、当該手法の開発や検出効率の向上を共に進めてきた京都大学の瀬戸グループの協力を得て、図2に示すような、BL09XUで既存のヘリウムフロー型の冷凍機を使用したメスbauer分光装置を整備した。液体ヘリウムの流量0.55 L/hourで参照試料の温度を約28 Kに保

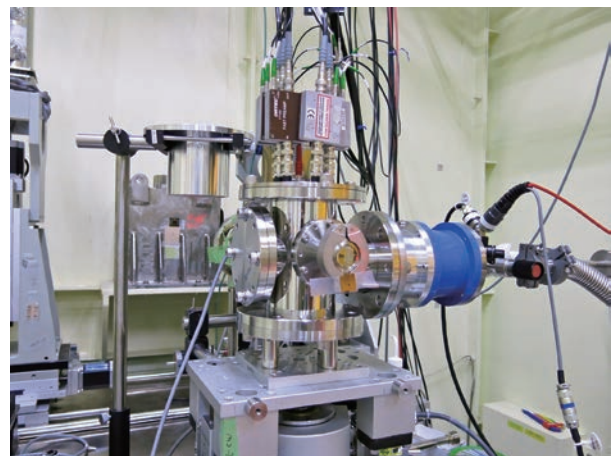


図2 高エネルギー核種用エネルギー領域メスbauer分光装置。

持し、100 Lのデュワーで標準的なビームタイムである約1週間の連続測定が可能である。今後はヘリウム循環型冷凍機と組み合わせ、無冷媒化した分光装置の開発を進める予定である。

参考文献

- [1] Y. Yoda et al., *Nucl. Instrum. Methods A*, **467-468** (2001) 715.
- [2] 田中 隆次 et al., *SPring-8・SACLA年報 2016年度* p. 26.
- [3] 依田 芳卓 et al., *SPring-8・SACLA年報 2016年度* p. 45.
- [4] R. Masuda et al., *Sci. Rep.* **6**, 20861 (2016) .
- [5] S. Tsutsui et al., *J. Phys. Soc. Japan* **85**, 83704 (2016) .

(依田 芳卓、筒井 智嗣)

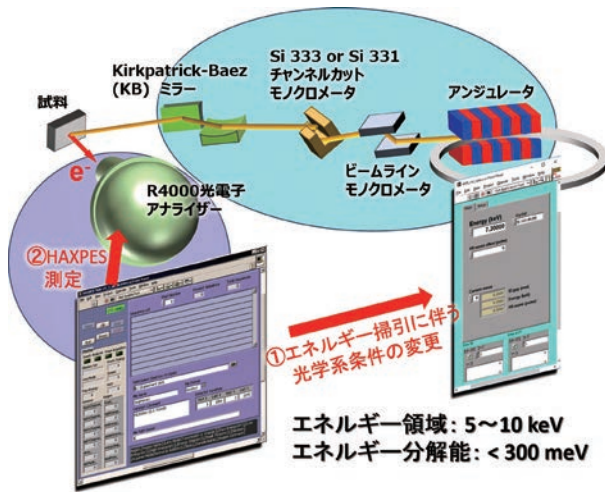


図3 共鳴HAXPES計測の自動化の概要

3. 硬X線光電子分光

BL09XUのHAXPESは長尺KB集光ミラー機構構築を中心とした光学整備が行われ、2014年度後期からHAXPES利用研究に供されている。BL47XUと比較して、30倍程度の光電子検出増大と100 meV程度の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 μm (鉛直) $\times$ 15 μm (水平) 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。特に共鳴HAXPES計測に関しては、2017年度から、関係するパートナーユーザー (PU) 課題「強相関電子系における量子臨界現象解明のための共鳴硬X線光電子分光および発光収量X線吸収分光の構築」(研究代表: 三村功次郎 (大阪府立大学)) がスタートした。

本稿では、2017年度のHAXPES実験ステーションの整備・高度化として、PU課題のもとで開発を進めている共鳴HAXPES計測技術のうち、エネルギー掃引時の光学系条件変更を含めた共鳴計測の自動化、及び、共鳴計測のエネルギー範囲拡大について紹介する。

共鳴計測の自動化

BL09XUの共鳴HAXPES計測では、エネルギー変更ごとに、1) アンジュレータギャップ、2) ビームラインモノクロメータ、3) 高分解能チャンネルカットモノクロメータ、4) KBミラー位置の全光学系の調整に加え、5) シエンタオミクロン社製R4000光電子アナライザーを用いた光電子計測が行われる。2016年度までに、1) ~4) の光学系調整の部分に関しては、一つのLabVIEWプログラムから一括制御できていたものの、5) の光電子計測と組み合わせるには至っていなかった。新たに、アナライザー電源ユニットの外部制御を可能にするとともに、図3のように、シエンタオミクロン社のSESWrapperライブラリを使用してR4000アナライザー

を制御するプログラムを作成し、さらに、そのプログラムから上述の光学系制御プログラムを呼び出すことにより、共鳴HAXPES計測に必要な要素全ての自動化を実現した。これにより、これまで入射光エネルギーの変更に必要だった操作が無くなり、省力化だけでなく、測定時間の短縮、誤操作防止など、ユーザービリティが飛躍的に向上した。

共鳴計測のエネルギー範囲の拡大

BL09XUでは、これまで、アンジュレータギャップの制限により、6 keVが最小エネルギーであったが、CeやVなど、軽希土類、軽遷移金属の共鳴測定の需要の高まりを受け、先に述べたようにアンジュレータのギャップ制限を緩和し、5 keVを最小エネルギーに変更した。さらに、これを受け、これまでSi333だけであったチャンネルカットモノクロメータに、Si331を追加導入し、低エネルギーでの高分解能計測 (エネルギー分解能: < 300 meV) が可能になった。これにより、共鳴計測で利用できるエネルギー範囲は5~10 keVとなり、遷移金属、希土類のほぼ全ての元素が対象となった。上述の計測自動化も相まって、当初は、強相関電子系にフォーカスしていた共鳴計測も、触媒系や鉄鋼材料など、幅広い物質材料への利用拡大が進んでいる。

(保井 晃、高木 康多)

JASRI
利用研究促進部門
回折・散乱IIグループ

依田 芳卓、筒井 智嗣

分光解析IIグループ

保井 晃、高木 康多

BL10XU 高圧構造物性

1. 概要

高圧構造物性ステーションBL10XUは、周期長24 mmの真空封止型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線を利用した高圧X線回折計測が可能な共用ビームラインである。研究対象分野は、主に高圧物性や材料科学、地球惑星科学分野であり、関連する広範な研究分野の高圧研究も実施されている。高圧発生装置ダイヤモンドアンビルセル（DAC）と冷凍機または近赤外線レーザー加熱を組み合わせることにより、1万気圧から数百万気圧の圧力領域において、極低温から数千度での多重極限環境下における結晶構造解析が可能である。2017年度においては、半期毎に17・24件の一般課題・大学院生提案型課題および長期利用課題1件（2017A期）、重点パートナー課題1件が実施された。

BL10XUでは、高圧極限環境下でのその場粉末X線回折に関する精密化と高効率化のため、X線入射光学系や高精度高安定回折計・検出器ステージ架台、X線回折用フラットパネル検出器などの計測基盤機器が整備されてきた。最近、極低温下における200万気圧領域での低温高圧X線回折実験や電気伝導度測定との同時計測が開始されている。試料サイズの微小化に加えて、電極などの構造体の組み込みによる試料部の複雑化のため、X線プローブの高空間分解能力が望まれている。また、高圧下におけるアモルファスや液体などの非晶質物質に関する高圧X線回折の利用ニーズが増加しつつある。2017

年度は、それらの要求に対応し、ナノ構造物性研究を高圧研究分野においても展開していくため、高エネルギーX線集光基盤技術の高性能化として、サブミクロン集光光学系の導入および45-62 keV対応の集光素子の開発が実施された。また実験ハッチ2では、高圧下におけるイメージングとX線回折複合計測に向けたラミノグラフィ測定システムの開発が行われた。次項で詳細を記す。

2. 高エネルギーX線集光用複合屈折レンズシステムの整備

30 keVでのサブミクロンビームを利用したX線回折実験の実現と、大強度ミクロンビーム利用実験の62 keVまでの高エネルギー領域への拡張（従来：14-45 keV）のため、30 keV用サブミクロン集光X線屈折レンズ、45-62 keV用X線集光屈折レンズを導入し、光学ハッチ内に設置した。上記集光光学素子と既設14-45 keV用グラッシーカーボン製X線屈折レンズを含む3種類の光学素子を並列配置可能なマルチレンズシステムを整備し（図1）、利用実験に応じて簡便・迅速に切替できる光学系となっている。

サブミクロンビーム形成のX線光学系は、X線エネルギー30 keVに最適化された二段式の集光光学系を採用し、微小仮想光源形成用SU8製X線集光屈折レンズおよびリソグラフィにより作成された金製の高アスペクト

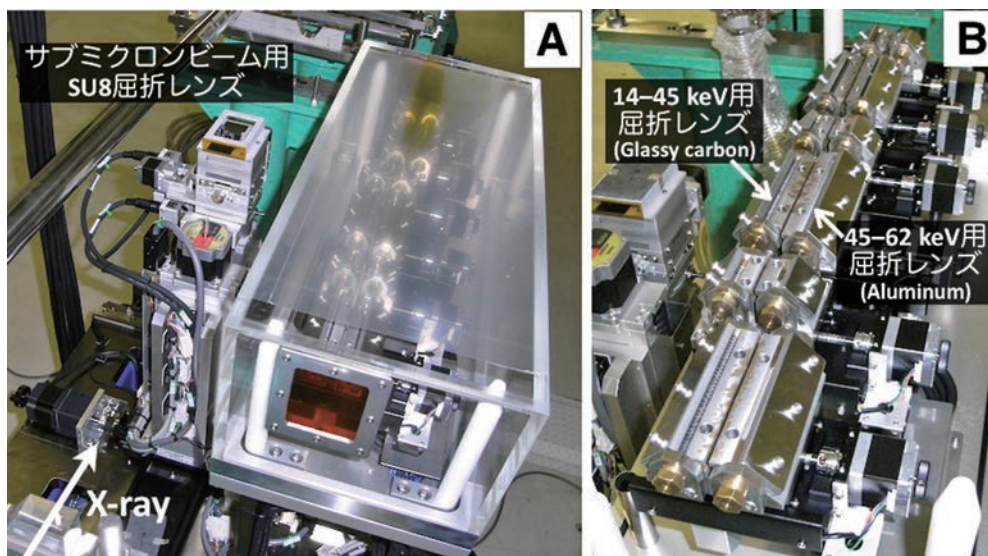


図1 (A) BL10XU光学ハッチ内に整備されたマルチレンズシステム。光源からの距離42 m（二結晶分光器の下流3 m）の位置に設置 (B) ヘリウムチャンバー内設置のグラッシーカーボン製およびアルミニウム製屈折レンズ搭載用レンズユニット

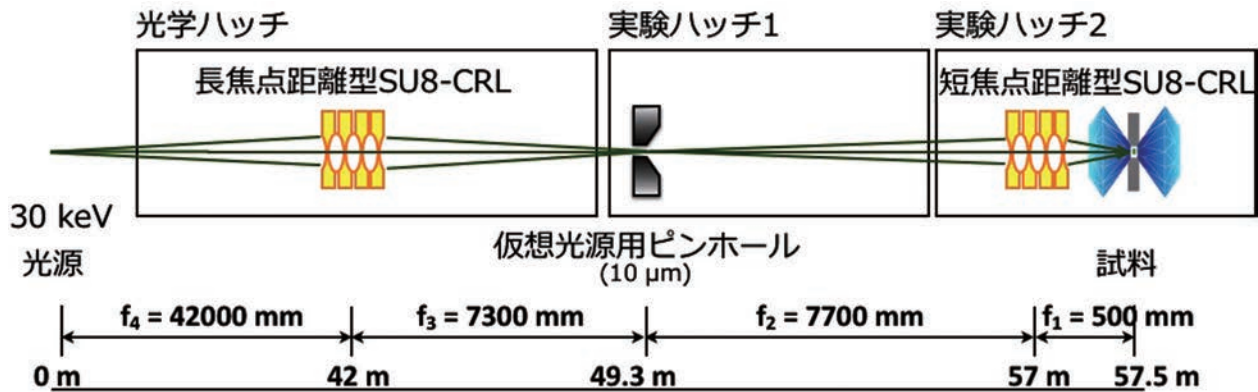


図2. サブミクロン集光ビーム形成用二段式屈折レンズ集光光学系システム

比ピンホール、試料前のSU8製X線屈折レンズから構成される（図2）。従来の集光光学系では数 μm サイズの集光が限界であったが、新規集光光学系により水平鉛直ともに1 μm 以下の集光が可能となった。X線プローブの高空間分解能化によって、数百万気圧の高温高压/低温高压極限状態におかれた数 μm の微小試料に対しても最適位置へのビーム照射ができるようになった。

一方、45–62 keVの高エネルギー単色X線に対するX線集光素子として、アルミニウム製の二次元放物面型屈折レンズを開発導入し、光学ハッチ内に整備したマルチレンズシステムに組み込まれた。屈折レンズの枚数を変更することにより、様々な入射X線エネルギーと焦点距離に対応可能となっている。40–62 keVのX線エネルギー範囲で、実験ハッチ2内集光位置において、鉛直方向で15 μm 以下の集光ビーム形成が可能となった。現在、非晶質物質に関する高压X線回折実験のため、X線エネルギー50 keVでのユーザー利用が開始されている。今後、高温高压液体のX線回折による構造解析など、地球液体外核や不規則系物質の構造物性研究への展開が期待される。

なお、本高性能化は、理研からの支援を受けて実施された。

3. 高压X線回折・ラミノグラフィー複合測定装置の開発

DAC内に充填された高压試料の微細構造や高温高压下で溶融させた試料の複雑な形状を可視化するための高压X線ラミノグラフィー法とX線回折の複合計測に向け装置開発を進めている。マイクロX線ビームを用いたX線回折測定により、不均一試料等の微細構造分布を詳細に観察することが可能になってきているが、試料室内全体の形状を俯瞰することは困難であり、三次元計測可能なイメージング手法の導入が期待されている。

DAC装置の特性上、測定試料の大部分は平板状となり、X線ラミノグラフィー法は微小な平板試料に対して、非常に有効な非破壊測定手法である。高压下での数

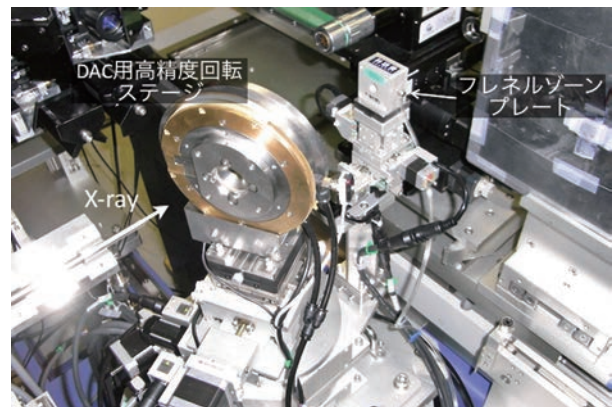


図3. BL10XU実験ハッチ2に整備された高压X線回折・ラミノグラフィー測定用システム

ミクロン程度の試料を十分に判別するため、160 nm空間分解能を有するフレネルゾーンプレート集光光学素子による結像型ラミノグラフィー光学系の開発を行っている。入射X線エネルギーは、14 keVである。2017年度は、光学系・検出器の整備とDAC用高精度ステージの開発を行い、設置・組み上げ作業が完了した（図3）。2018年度以降、同装置の実証試験を経て、利用研究に供する予定である。

なお、本高性能化は、重点パートナー課題ユーザーである東京大学廣瀬教授らのグループの科研費特別推進研究費を一部投入し、JASRIとの共同で実施された。

JASRI 利用研究促進部門

回折・散乱Iグループ 極限構造物性チーム

平尾 直久、河口 沙織、大石 泰生

BL13XU 表面・界面構造解析

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、非対称分光結晶を用いた大強度光学系も利用できる。利用ビーム位置を安定化させるシステムのほか、放射光の波長選択性を活用した異常分散X線回折等の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2017年度に行われた技術開発・高性能化の詳細について報告する。

2. 実用材料のプロセス処理中その場回折実験の実現

近年、記憶媒体に用いられる磁気ヘッド材料である磁性薄膜など実用材料の解析を望むユーザーが増加している。その要望のなかでも、特に、実用材料作製におけるプロセス処理中の構造変化を観察したいという声は大きい。そこで、材料加熱処理中の様子をリアルタイムで放射光観察するための計測基盤を整備した。

図1にその場観察回折実験のレイアウトを示す。第1実験ハッチに設置されている多軸回折装置に、真空度 10^{-5} Pa から 10^{-6} Pa 台の真空中で試料を 600℃ までその場加熱可能な真空加熱装置を組み込んでいる。真空容器上部に放射光観察のためのドーム型X線窓が取り付けられている。図1右下挿入図に示すとおり、ドーム型X線窓の中に10 mm角程度の大きさの試料が収められるようになっている。試料台内部に加熱ヒーターが組み込

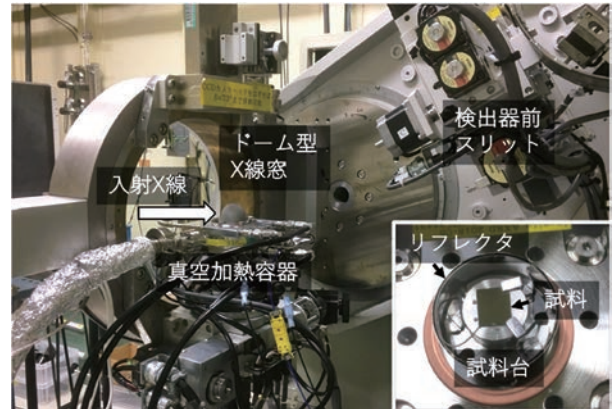


図1 その場観察回折実験のレイアウト。右下挿入図はドーム型X線窓内部の試料まわりの様子

まれており、試料台中央には試料温度をモニターするための熱電対が取り付けられている。そのため、フィードバック制御機能をもつ温度調整器を使用して自由に試料温度を設定できる。試料加熱中の熱輻射による真空容器やX線窓の昇温を極力低減させるために、試料台を囲むようにリフレクタ（反射板）が2枚装備されている。さらに、本装置には水冷ジャケットと水冷ステージが取り付けられており、本装置を直接取り付けるゴニオステージは全く昇温しないつくりとなっている。

加熱処理条件を変えた複数のオフライン作製試料をSPring-8に持ち込んで評価する従来の方法では、試料作製・処理条件のばらつきといった外的要因によって生じる試料毎の回折強度のばらつきの影響が避けられない。一方、本方法では同一試料の同一箇所の温度による構造変化を評価することが可能であり、ユーザーは上述の外的要因を解除したより高精度なデータを持ち帰ることができる。例えば、コバルト系磁性薄膜を評価したユーザー実験では、加熱時間によって結晶粒径が系統的に変化する様子をとらえることができた。このように本計測基盤の整備によって、より質の高いユーザー支援が可能となった。

3. 高分解能マイクロX線回折装置

本装置は、半導体・デバイス材料の格子歪と格子面の傾きを分離して高分解能に分析することができ、利用X線のエネルギーに応じて集光素子であるフレネルゾーンプレート（FZP）又は屈折レンズ（CRLs）を選択して使用している。しかし、集光素子の切替には時間がか

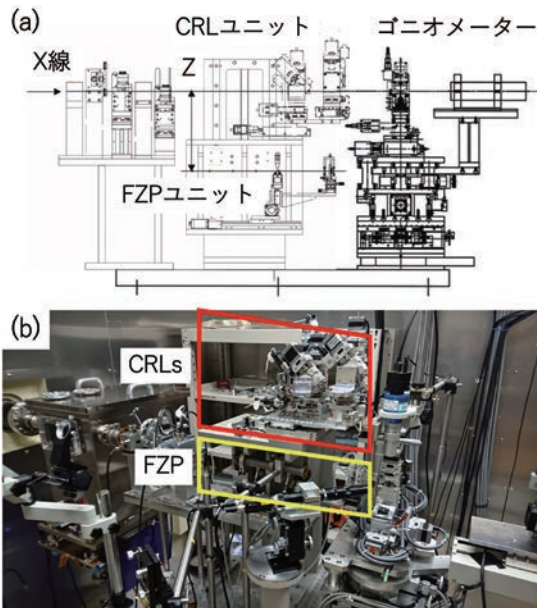


図2 集光光学系切替機構の概要 (a) 概要図、(b) 装置の外観

かるため、1件のユーザー課題で2つの集光素子を利用することは難しかった。そこで、2017年度にはこの2つの集光光学系を容易に切替可能とする調整機構の導入を行った。

図2に集光光学系切替機構の概要を示す。2つの集光素子で共通して使用するスリット、アッテネーター、強度モニターが上流側に設置されており、その下流に切替機構が設置されている。本機構は二階建ての構造になっており、下段にFZPユニット、上段にCRLsユニットが設置されている。FZPの上流側にはセンターストップが設置されている。一方、CRLsとしてX線エネルギー20、25、30 keV用の石英製キノフォームレンズが利用でき、2つの一次元集光用レンズを縦横に組み合わせて二次元集光が実現される。手動ステージでこれらを上下することにより、集光素子を切り替えることができる。ステージにはマイクロゲージが取り付けられ、切替時のステージ位置を1 μm 以下の精度で調整可能である。

通常、X線エネルギーが20 keV以下ではFZP、20 keV以上ではCRLsが利用される。典型的なビームサイズとしてFZPでは8 keVにおいて $0.24 \times 0.31 \mu\text{m}^2$ 、CRLsでは30 keVにおいて $2.3 \times 3.2 \mu\text{m}^2$ 程度の微小ビームが得られている。光量は各エネルギーでおよそ 10^9 光子数/秒程度である。本機構の整備により、集光X線のエネルギーを6~30 keVの広い範囲で迅速に切替可能になった。これにより、逆格子マッピング測定と蛍光X線マッピング測定を一件のユーザー課題中に実施するなど、ビームタイムの柔軟な利用が可能になり、よりユーザーが利用しやすい測定環境が整った。

JASRI 利用研究促進部門

回折・散乱IIグループ

田尻 寛男、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。2017年度は19素子半導体検出器（SSD）を用いた蛍光配置QXAFSにおける4象限スリットの開口サイズおよび19素子SSDと測定試料間の距離の自動調整機能開発を行った。また、BL19B2よりX線イメージング装置をBL14B2に移設し、2017B期からユーザー実験への供用を開始した。これらの詳細を以下に示す。

2. 19素子SSDを用いた蛍光配置XAFS測定における自動調整機能

自動試料搬送ロボット Sample Catcher による45°配置蛍光測定を完全自動化するために、19素子SSDのICR（Input Count Rate）の値が数え落し補正が可能な範囲に収まるように4象限スリットの開口サイズおよび19素子SSDと測定試料間の距離の自動調整機能開発を行った。

図1に来所実験において使用する19素子SSDと試料間の距離および4象限スリット開口幅の自動調整プログラムを示す。主な入力パラメータは、吸収端名“edge”（“Fe-K”、“Pt-L3”等を指定、デフォルト値は光学機器

調整を行った吸収端名）、4象限スリット開口幅の初期値“initial 4D-slit width”、19素子SSDの位置の初期値“initial Detector X”、4象限スリット開口幅の最大値“upper limit”である。吸収端名を指定すると、入射X線



図1 19素子SSDと試料間の距離および4象限スリット開口幅の自動調整プログラムGUI

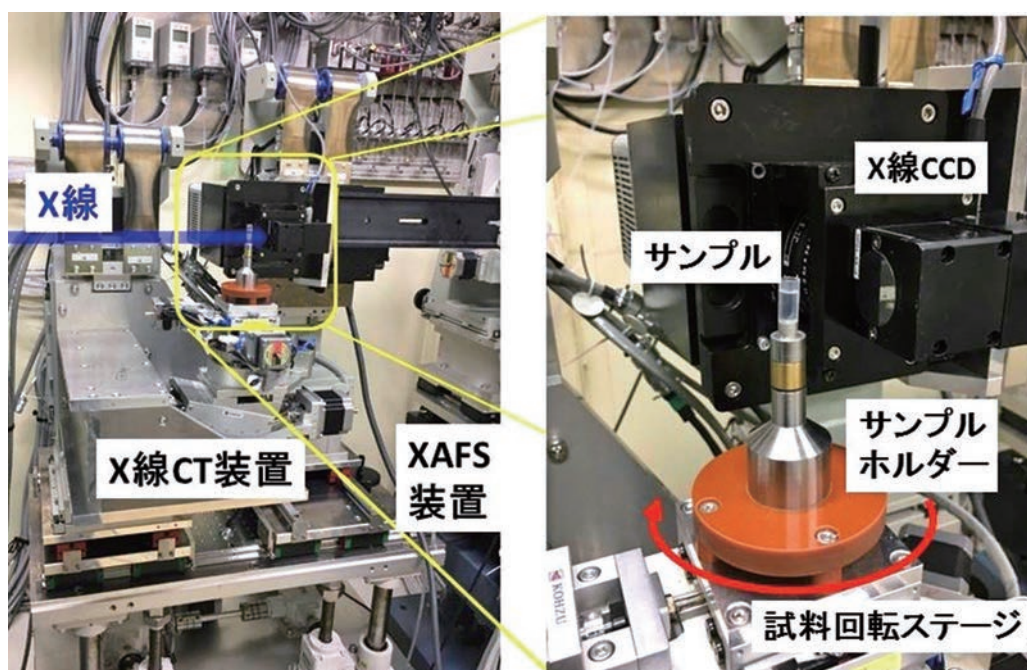


図2 X線CT装置の外観

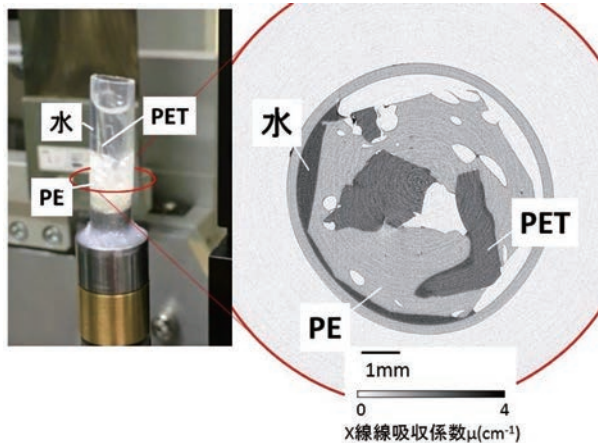


図3 テスト試料（PET/PE/水の混合物）の断層像

のエネルギーが吸収端エネルギーよりも約500 eV 高くなるように分光結晶の角度が自動調整される。また、19素子SSDと試料間の距離と4象限スリットの開口幅のどちらから調整を行うのか、または、それらのどちらか一方のみで調整を行うのかを“adjust mode”プルダウンメニューから選択できるようになっている。“judge mode”プルダウンメニューでこの調整の判断基準（ICRの最大値もしくは平均値）を選択する。判断基準となるICRの値は、BL14B2専用のパラメータデータベースに保存され、蓄積リングの運転モードに応じて自動的に変更される。遠隔実験においても利用できるように遠隔実験用のAuto XAFSで使えるようにプログラムの改造を行った。

3. X線CT装置のユーザー利用開始

2017年度夏期停止期間にBL19B2よりX線イメージング装置をBL14B2に移設し、それに伴って同装置の自動光学定盤を改造した。本装置は2017B期より供用を開始し6件の利用研究課題を実施した。同時にGPUを用いた並列演算によるCT測定データの高速再構成処理システムのユーザー利用も開始した。このシステムにより180°試料回転/360点分割、1フレーム16bit 4000×1600ピクセルのデータから全層の断層像の再構成が約4分以内で完了することが可能となった。これらのシステムの利用事例としてPET/PE/水混合物のテスト試料の断層像の例を図3に示す。測定条件はX線エネルギー12.4 keV、試料－カメラ間距離＝30 mm、試料回転180°/360分割、X線カメラシステムはイメージングユニット：浜松ホトニクスAA40/ CCD：浜松ホトニクスC4880-41S、ピクセルサイズ＝2.9 μmで1フレームの露光時間＝200 msecである。

JASRI 産業利用推進室

産業利用支援グループ

高垣 昌史、本間 徹生、大淵 博宣

梶原 堅太郎、佐藤 真直

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に、X線CT装置、多軸X線回折装置、粉末回折装置および小角X線散乱測定装置など、複数の実験技術を提供してきた。産業利用推進室では、これらの技術の運用を効率的に行うことで、ユーザーの利便性を向上させると同時に、産業界の様々な問題を解決する能力を高めることを目的として、実験技術の再配置を実施している。2017年度は、第1実験ハッチで実施されてきたX線CT実験をBL14B2に移設し、従来の粉末回折装置の後継装置となる「多目的ハイスループット回折計」を設置した。また、第2実験ハッチに設置された多軸X線回折計装置については、気液界面の構造評価を行うための、「X線打ち下ろし型すれすれ入射X線回折測定」の技術を開発した。以下に両装置の詳細について報告する。

多目的ハイスループット回折計

BL19B2の粉末回折実験は、第2実験ハッチに設置された大型デバイシェラーカメラを用いて実施されてきた。この装置はイメージングプレート（IP）を検出器としているが、オフラインのIP読み取り装置が老朽化するなどの問題を抱えており、新型装置への更新が急務であった。そこで、半導体検出器を採用した「多目的ハイスループット回折計」（図1、以下、新回折計）の開発

に着手し、2014年度よりBL14B2にて装置調整を行ってきた。同装置の本格的な運用に向けて2017年夏期運転停止期間中にBL19B2第1実験ハッチに移設し、2018年1月より試験的にユーザー供用を開始した（測定代行1課題を含む2課題を実施）。

新回折計は、粉末回折に限らず、その名の通り「多目的」な装置であり、様々な応用用途への展開を考慮して設計されている。特に、検出器が回転して方向を変える機構（図1（b））は、他の施設にも見られない独特な機構であるが、2017年度は、ハイスループット粉末回折装置としての整備を優先的に行った。試料の配置は従来の装置と同じくデバイシェラー配置であり、スイスPSIで開発されたフォトンカウンティング型1次元半導体検出器MYTHENを、カメラ半径573 mmの同心円弧に沿って12モジュール並べた構造になっている（注2）。各モジュール間には1 mm（回折角 2θ では 0.1° に相当）の隙間があるため（図1（c））、異なる 2θ 位置で2段階露光することで、連続した粉末回折プロファイルが得られる。試料搬送ロボット（図2）および自動センタリング機構も新規導入しており、オンライン検出器と組み合わせることで、最大100試料の測定が全自動で行われ、大幅な省力化が実現している。試料ホルダは従来の仕様を踏襲しているため、大型デバイシェラーカメラを利用してきたユーザーも新回折計にスムーズに移行できる。

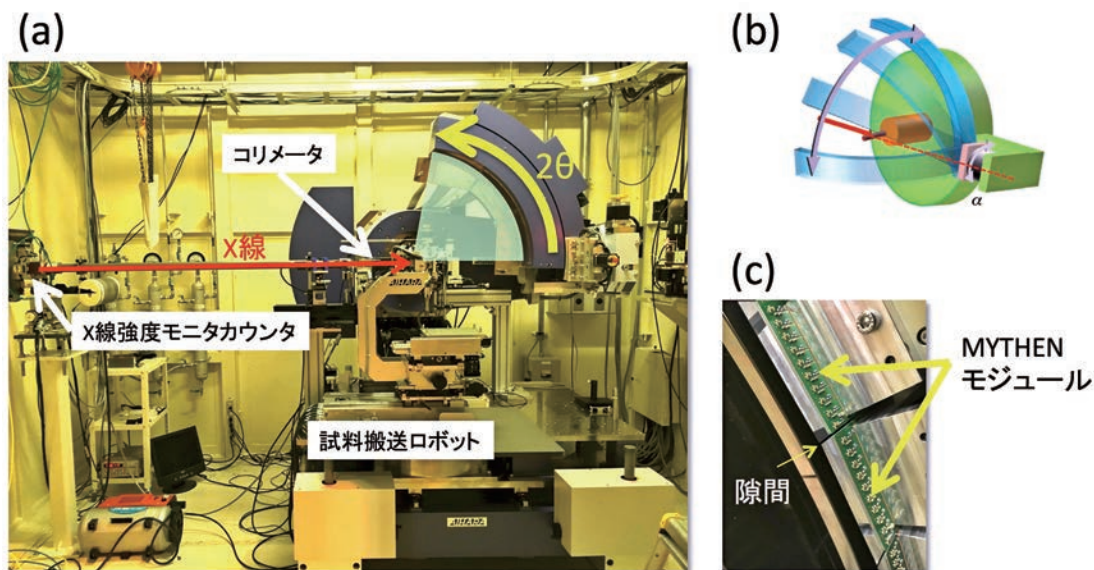
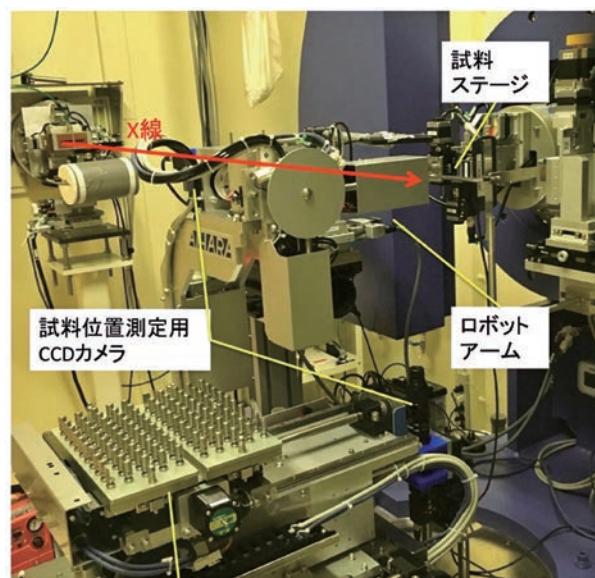


図1 第1実験ハッチに設置された多目的ハイスループット回折計
(a) 全体像、(b) MYTHEN検出器モジュールとその隙間、(c) 検出器回転機構の模式図



試料ホルダ(100個搭載可能)

図2 多目的ハイスループット回折計の粉末回折用試料搬送ロボット

図3は、X線エネルギー20 keVで測定したCeO₂標準試料の粉末回折プロファイルとそのリートベルト解析の結果である ($R_{wp}=4.6\%$, $R_1=1.5\%$)。露光時間は2分であるが、十分に高い統計のデータが得られている。なお、本装置のBL19B2の移設に伴って、X線イメージング装置はBL14B2に移設した。

多軸X線回折装置

第2実験ハッチに設置されている多軸X線回折装置では、これまでに多様な薄膜の結晶構造が評価されている。さらに最近では、気液界面に形成される有機薄膜の結晶構造をすれすれ入射X線回折 (GIXD) 測定で評価

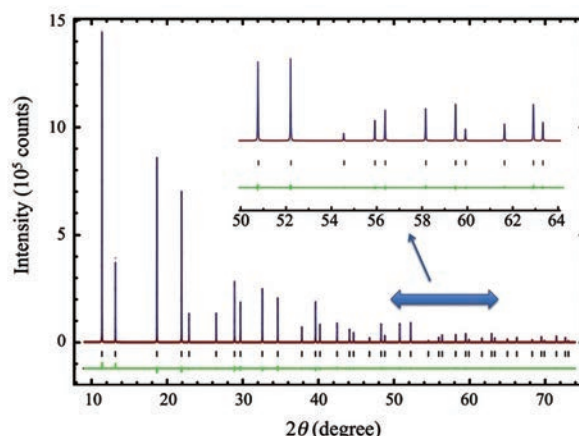


図3 CeO₂標準試料の粉末回折プロファイルおよびリートベルト解析結果

したいという要望が寄せられていた。しかし液体表面に形成された薄膜でGIXD測定を行う場合には、試料を傾けることで入射角を制御することができない。そのために、現状のBL19B2の測定システムではこの要望に応えることができなかった。そこで2017年度は、X線打ち下ろし型のGIXD測定システムの開発に取り組んだ。

図4に、X線打ち下ろし型GIXD測定システムの概略を示す。この測定システムでは、入射X線強度モニタ用のイオンチャンバーの下流にGe単結晶ミラーを新たに設置し、単色X線がGe単結晶ミラーに入射する角度 (θ_1) を制御することで、気液界面に入射する角度 (θ_2) を制御する仕様となっている。実験では、 θ_2 と液面での反射率の θ_1 依存性を事前に調べ、GIXD測定に用いる θ_2 を決定している。2017年度はGe単結晶ミラーの導入に加えて、自動スイベルステージと自動Zステージを導入することで θ_1 および θ_2 を精密にかつ遠隔で

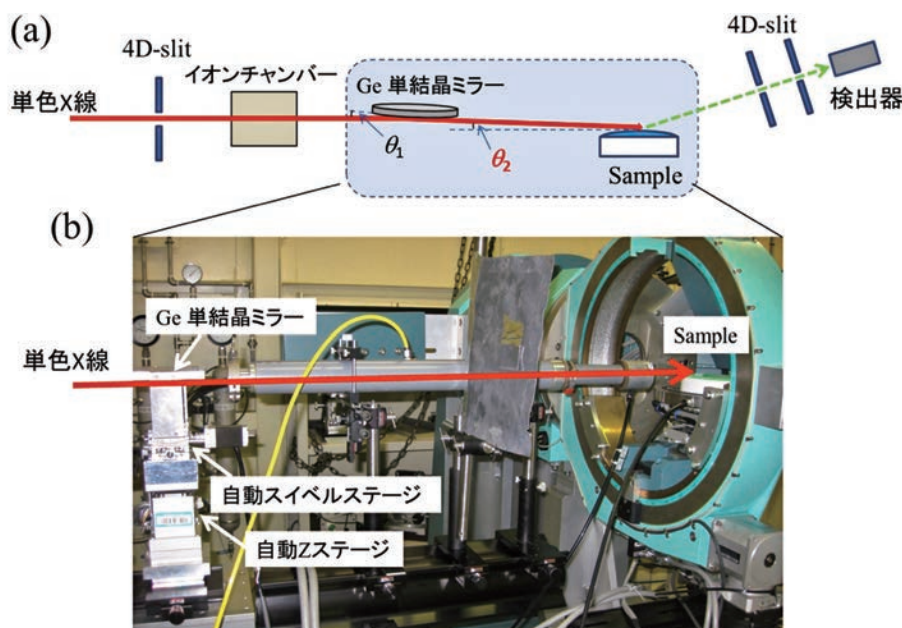


図4 X線打ち下ろし型GIXD測定システムの (a) 概略図と (b) 概観写真

制御可能とした。これらの整備によってBL19B2では、GIXD測定で気液界面に形成された有機薄膜の結晶構造を検討することが可能となった。2017年度は、1件のユーザーに利用いただいた。

JASRI 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 真直

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. 高エネルギー X線結像顕微鏡の開発

BL37XU, 47XUにて開発・共用利用されている、フレネルゾーンプレート（Fresnel Zone Plate, FZP）を光学素子として用いた結像型X線顕微CT装置はX線3次元イメージングとして現在100 nm近い空間分解能を達成しており、材料科学、生物、医療、隕石、鉱物、電池等産業利用と幅広い用途に利用されている。この装置はしかしながら、X線エネルギー領域が10 keV前後に限られ、それより高いエネルギー領域では実施されていない。これは、高倍率・高空間分解能・高効率が必要とされるX線結像光学系が、以下に挙げる2つの原因により高エネルギー領域では実現が難しかったためである。一

つ目は、高エネルギー領域では高い効率のFZPを製作することが難しいことである。効率が最大となるFZPのパタン厚みは、X線のエネルギーに近似的に比例しており、高エネルギー化に伴いFZPのパタンも厚くするのが望ましい。一方でFZPの製作は技術的にパタンのアスペクト比で制限されており、分解能を維持、つまりFZPの最外線幅を維持したままFZPの厚みを増やすことは難しい。二つ目は、高エネルギー化に伴い、高倍率化が難しくなることである。FZPの焦点距離はX線エネルギーに比例するため、倍率を保ったままエネルギーを上げると、鏡筒長も長くする必要がある。現状、BL37XUやBL47XUの鏡筒長はそれぞれ約27 m, 7 mであるが、これらは実験ハッチの位置や大きさで制限されており、これ以上長い鏡筒長は望めない。

他方、主に材料（特に金属材料やセラミック）、鉱物、デバイスを観察する目的で、より高エネルギー領域での利用を望む声は多い。これに答えるために、BL20XUで高エネルギー領域での高倍率X線顕微鏡が開発された。ここで、上記2つの技術的問題は、次のように解決された。まず前者の問題については、我々により開発されたアポダイゼーションFZPを導入した^[1,2]。この素子は図1に示すように、通常のパタン厚みが一定のFZPと異なり、パタン幅が比較的大きい素子中央部では、パタン幅が狭い周辺部に比べて厚みを徐々に増す構造になっている。このような構造であればアスペクト比の制限を破ることなく部分的に通常よりも厚いパタンの素子の製作が可能であり、結果、高エネルギー領域でも比較的高い回折効率を得ることができる。後者の問題については、BL20XUの実験ハッチ1と実験ハッチ2を使うことで鏡筒長165 mのX線顕微鏡光学系を構築した。これだけの距離があれば、実験ハッチ1に試料とFZP、実験ハッチ2に検出器を設置すれば数十 keVのエネルギー領域でも百倍以上という十分高倍率なシステムの設計が可能になる。

実際に開発された高エネルギー X線結像顕微鏡のセットアップ概略図を図2に示す。ここで対物素子として用いられているアポダイゼーションFZPのパラメータは以下の通りである。パタン材質Ta、素子中心部パタン深さ2ミクロンであるが、周辺部はより浅いパタン構造となっている。直径620ミクロン、最外線幅100 nmで、NTT-ATに製作を依頼した。このFZPの回折

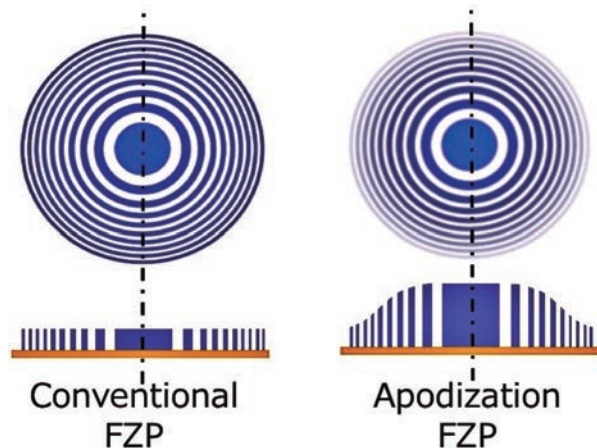


図1 従来のFZP（左側）とアポダイゼーションFZP（A-FZP, 同右側）の模式図

従来のFZPは一律なゾーン厚みを持つのにに対し、A-FZPは素子周辺部から中心部に行くに従い厚みが徐々に増す。A-FZPはこれにより高エネルギー領域でも比較的高い回折効率を得ることができる。

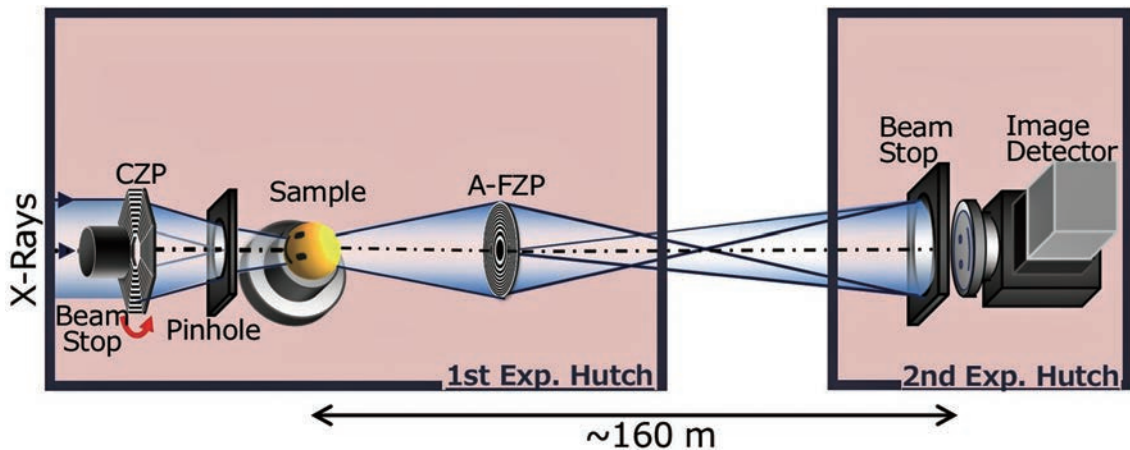


図2 BL20XUに構築した高エネルギー X線結像型X線顕微鏡光学系の概略図

第一実験ハッチにcondenser zone plate (CZP) による照明光学系、試料、対物素子としてapodization FZP (A-FZP) が設置され、約160 m下流の第二実験ハッチに像検出器が設置される。利用可能なX線エネルギーは15-30 keV。

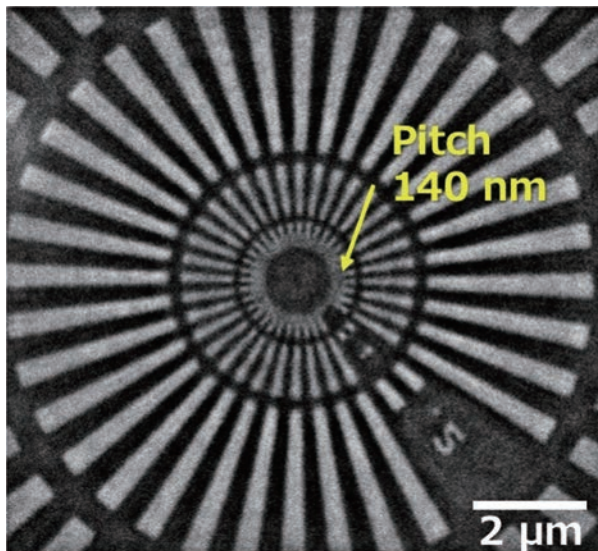


図3 パタン厚さ0.5ミクロンのTaジーマンスター型テストチャートのX線像

X線エネルギー15 keV、露光10秒×10、ピクセルサイズ7 nm。回折限界で決まる空間分解能理論値が137 nmであるのに対して、像からは約140 nmピッチまでのパタンが解像できており、理論値通りのイメージングができていることがわかる。

効率は20 keVで約9%である。このシステムを用いた予備実験として得られた像を図3に示す。試料は厚み0.5ミクロンのTaで描かれたジーマンスター型テストチャート (NTT-AT 製) である。このセットアップ条件での回折限界で決定される空間分解能は137 nmであるが、得られた像も丁度140 nmピッチあたりまで解像できており、理論値通りのイメージングができていることが確かめられた。

今後はこのシステムを用いて、高エネルギー X線高分解能CT装置、更には広視野な投影型CTと組み合わせたmultiscale CTの開発を行い、ユーザー利用へ供していく予定である。

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.

JASRI 利用研究促進部門
イメージンググループ

竹内 晃久、上根 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実験棟内の実験ハッチ2, 3において、X線マイクロCTをはじめとするX線画像計測実験等に利用されている。蓄積リング棟内にある実験ハッチ1では、高いX線フラックス密度を必要とする高分解能画像計測や高速・4D画像計測（例えば3次元画像計測＋時間分解測定）が行われている。一方で、光源から200 m以上離れた場所に位置する実験ハッチ2, 3では、X線ビームの自然発散によって得られる質の高い大面積ビームを用いた広視野画像計測や、光源からの長距離伝搬に伴う高い空間コヒーレンスを利用した位相情報を有した画像計測が行われている。

2. 広視野高エネルギー X線マイクロCTの開発

X線マイクロCTは、非破壊で試料内部の様子を高い空間分解能で可視化することが可能である。X線マイクロCT計測を行う上で必要なのは、試料の透過投影像であり、エネルギーチューニングが可能な放射光施設では、測定対象の試料に対して必要十分な透過率が得られるように、最適なX線エネルギーを選択して測定を行う。例えば、主に有機物で構成された試料の場合、試料の大きさにも依存するが、概ね15～30 keVのX線が用いられる。一方で、試料中に金属等が含まれる場合や、試料サイズが大きい場合、十分な透過率を得るためには、より高いX線エネルギーが必要となる。しかし、ビームライン二結晶分光器における結晶は、得られるビームフラックス密度を優先させるため、通常Si (111) 平板結晶が用いられている。Si (111) 面の場合、SPRING-8の標準型二結晶分光器で出力できるエネルギーは37.8 keVまでであり、これよりも高エネルギー X線ビームの利用のためには、分光器結晶のセッティングを変える必要がある。その一方で、SPRING-8標準型二結晶分光器では、Si (311) 面を基準として、面切り替えによりSi (111) およびSi (511) 反射が利用できるが、Si (311) 以外の反射面（傾斜配置）では、エネルギー分布に傾きが発生すること、ビームの横幅が不十分であることを理由に、BL20B2ではほとんど利用されていない。近年の傾向として、中尺ビームラインBL20B2の特徴である大面積ビームを利用した、化石のような大型試料の非破壊

高分解能観察といった需要が増えてきており、これらに対応するために、高エネルギー X線ビームを利用できる計測環境の整備、および試験計測を行った^[1]。

まず、高エネルギー X線ビームを得るために、Si (511) 面を反射面とした結晶を導入した。形状は平板結晶とし、結晶ホルダーごと通常使用しているSi (111) 結晶と交換できるようにした。なお、第一結晶にはSi (511) 面、第二結晶にはSi (111) 結晶によるSi (333) 面からの反射を用いた。これにより、標準型の二結晶分光器で最大113.3 keVまでの高エネルギービームを利用することが可能となる。通常、二結晶分光器の結晶には、無擾乱鏡面研磨した結晶が用いられるが、Si (511) 結晶による反射では、結晶反射面を粗面化したもの（以降、ラップ研磨結晶、仕上げ面 #1200 相当）を用いた。これは、Si (511) 面からの反射の場合、エネルギー分解能が高い（ロッキングカーブの幅が狭い）ことに伴い、特に100 keV以上の高エネルギー X線ビームでは、単色ビームの強度安定化に長時間を要すること、また単色化されたビーム強度の低下が顕著に現れることによるものである。なお、第二結晶のSi (111) 結晶もラップ研磨（仕上げ面 #1200 相当）を施したものを有した。

高エネルギービーム強度の評価として、Si (511) 結晶において無擾乱研磨結晶およびラップ研磨結晶によって得られるビームフラックスと、比較のために通常ビームラインで利用されているSi (111) 結晶によるビームフラックスをエネルギーに対してプロットしたものをFig.1に示す。Si (511) 結晶による反射では、25 keV以上において、ラップ研磨結晶の方が高いビーム強度が得られることがわかる。また、ビームラインエンドステーション（実験ハッチ3）におけるX線エネルギー113.3 keVでのビームおよび鉛直方向の強度プロファイルをFig.2に示す。ラップ研磨結晶の採用により、ビーム強度の向上、およびビーム鉛直方向の有効領域拡大に伴う有効視野の拡大を達成することができた。その一方で、ラップ研磨結晶を用いることによる弊害として、粗面化した結晶によりブラッグ反射されたX線ビームの空間コヒーレンスは大きく乱される。これにより、光源に近い蓄積リング棟内の実験ハッチではラップ研磨結晶を用いたX線画像計測を実施することはできず、光源から200 m以上離れた下流側実験ハッチのみで実施可能である。

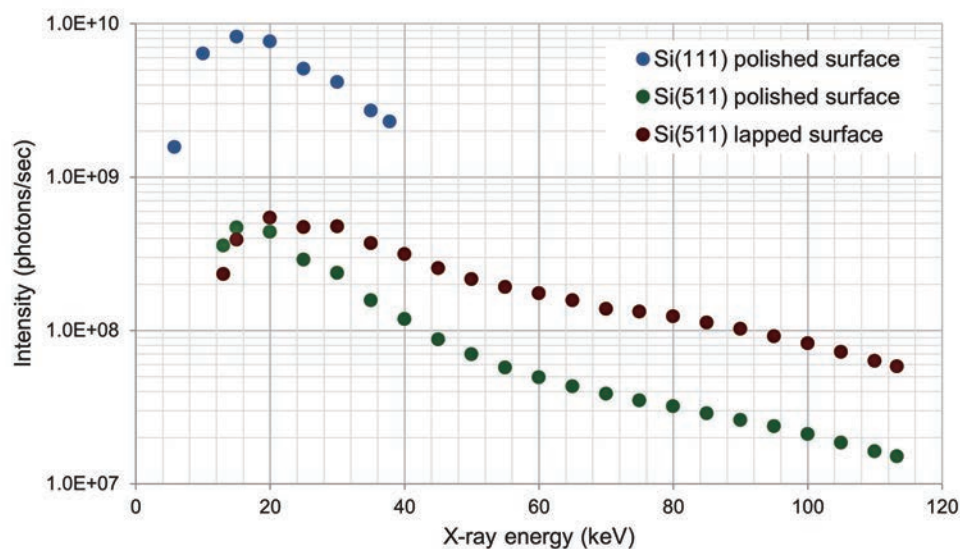


Fig.1 Si (511) 無擾乱研磨結晶, ラップ研磨結晶 (#1200 仕上げ), および Si (111) 無擾乱研磨結晶を用いたときの X 線ビーム強度の比較
すべて二結晶分光器上流のスリット開口サイズを 1 mm × 1 mm に設定して測定した

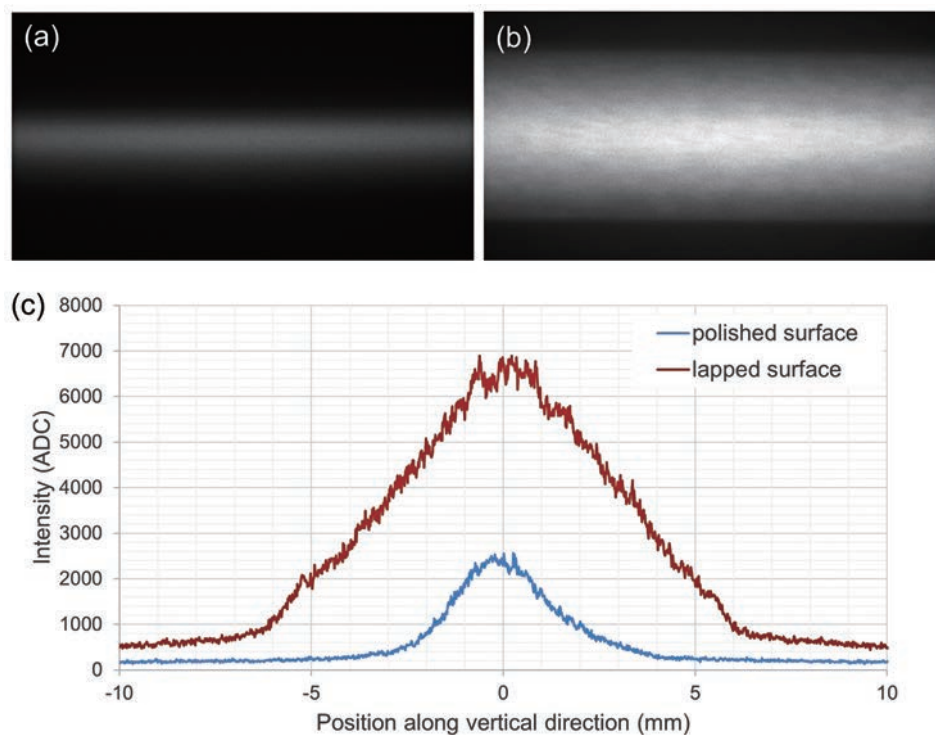


Fig.2 X 線エネルギー 113.3 keV におけるビームプロファイル
(a) Si (511) 無擾乱研磨結晶, (b) Si (511) ラップ研磨結晶, (c) 各ビームの鉛直方向の強度プロファイル
二結晶分光器上流のスリット縦方向の開口サイズを 2 mm に設定して測定した
露光時間は 1 sec

広視野高エネルギー X 線マイクロ CT のデモンストレーションとして、ポリビア産のノジュールの測定を行った。測定したノジュールの外観写真を Fig.3 (a) に示す。X 線マイクロ CT 計測の測定条件は、X 線エネルギー 113.3 keV、投影数 1800、露光時間 2 sec、画素サイズ 24.7 μm 、試料-検出器間距離 5 m である。なお、投影像の縦方向の視野サイズは、Fig.2 に示すようにビー

ムサイズによって制限されるため、それよりも大きな試料に対応するため、試料を鉛直方向に走査して複数回の CT 測定を行うことにより、試料全体の計測を行った。再構成演算によって得られたノジュールの断面像を Fig.3 (b) に示す。また、試料全体を再構成した 3 次元レンダリング像を Fig.3 (c) に示す。長径 50 mm 程度の化石試料に対して、その内部構造の様子を非破壊かつ

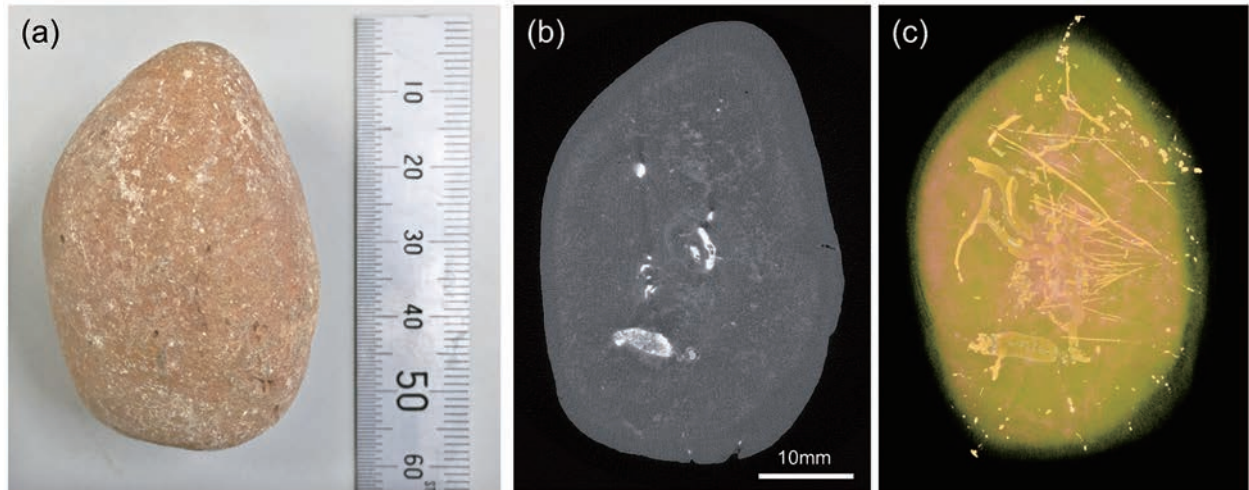


Fig.3 (a) 測定を行ったボリビア産ノジュールの外観写真
(b) X線マイクロCTによる断面像 (c) 3次元レンダリング像

3次元で観察できることを確認することができた。

3. まとめと今後の展望

ビームライン二結晶分光器の結晶として、Si (511) ラップ研磨結晶を導入することにより、100 keV 以上の高エネルギー X線ビームを効果的に画像計測に利用できる環境を構築した。また、高エネルギー X線マイクロCT計測のデモンストレーションでは、50 mm 径程度の化石試料に対して、その内部構造を詳細に可視化できることを確認した。今後の展望としては、単結晶タイプの蛍光体の導入による高エネルギー画像計測の高効率化や、高精細画像検出器の導入により、広い計測視野を維持した上での空間分解能の向上などを行っていく予定である。

Reference:

- [1] K. Uesugi and M. Hoshino, Proc. SPIE 10391 (2017) 103911D.

JASRI 利用研究促進部門
イメージンググループ

星野 真人、上杉 健太郎

BL25SU 軟X線固体分光

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、2017A期と2017B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り2017B期で終了となった。また、2015A期から継続中の長期利用課題が2件含まれている。一般課題が占める割合は2017年度平均で48%であり、2015年度（33%）、2016年度（37%）と比較して大幅に上昇した。

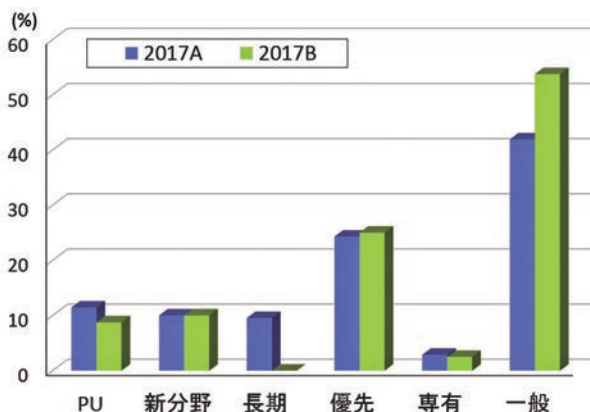


図1 2017A期、2017B期の課題種別実施シフト数の割合
縦軸は、ユーザー実験の全シフト数に対するシフト数の割合（%）を表す。“PU”、“新分野”、“長期”、“優先”、“専有”、“一般”は、それぞれ、パートナーユーザー課題、新分野創成利用課題、長期利用課題、成果公開優先利用課題、成果専有課題、一般課題である。大学院生提案型課題は採択されなかったため省略している。

図2に各ブランチと各実験装置の利用割合を示す。Aブランチでは光電子分光装置と二次元表示型光電子アナライザー装置の利用が増えた。Bブランチでは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。また、両ブランチ共に装置の入れ替えが可能なフリーステーション利用が数件あり、積極的に新規測定法の開発が行われていることを裏付けている。

3. 成果状況

2017年度に出版された査読付き論文数は、2018年3月31日時点で25の登録（1998年～2017年度の総数は448件）であり、直前の5年間の平均と比較して同程度であった。

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

2014B期のビームライン立ち上げから4年半に渡って定期的に光量の推移を評価してきた。これは前置鏡、回折格子などがビーム照射によって汚染し光量低下に繋がると懸念されたためである。しかしながら、最初期を除き目立った光量低下は観測されていない。一方で、季節や昼夜の気温の差によってビーム位置が変化し、実験に影響を及ぼす場面が見受けられた。ビーム位置の自動補正が必要と判断し、変位量を推定するための固定ゲイン高速アンプとデータレコーダーを準備した。2018年度にAブランチのビーム位置補正機能の運用を開始する予定である。

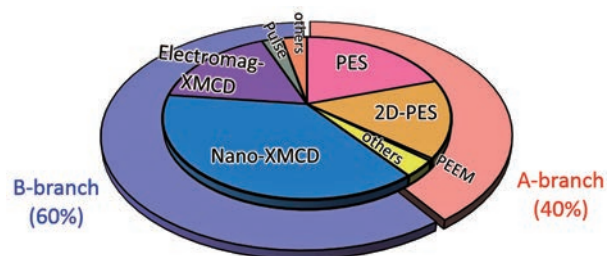


図2 2017年度におけるブランチと各実験装置の利用シフト数割合

PES（光電子分光装置）、2D-PES（二次元表示型光電子アナライザー装置）、PEEM（光電子顕微鏡装置）、Nano-XMCD（走査型軟X線MCD顕微鏡装置）、Electromag-XMCD（電磁石式軟X線MCD装置）、Pulse（パルス強磁場軟X線MCD装置）を示す。また、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し、ブランチ毎に集計した。

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。開発中の真空試料搬送スーツケースに対応するため2016年度に試料導入槽・搬送槽を一新したが、2017年度では、実際に真空試料搬送スーツケースを試料導入槽に接続した。2016年度に導入したグローブボックスは安定に稼働しており、2017年度においても大気暴露の影響を受けやすい試料の測定に有効に用いられた。利用研究の成果としては、 SiO_2/SiC パワーデバイス界面の窒素原子周辺の局所構造解析^[7]などの応用研究が進んだ。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きた。これまで老朽化による結像系の電気絶縁性低下の対策を行いながら運用を続けてきたが、空間分解能など主たる性能の劣化も進んでいるため、2018A期をもって供用を終了することを決定した。

4-4 光電子分光装置 (A-branch 第3ステーション)

2017年度に、マイクロビーム集光ミラーを備えた光電子分光装置を新たに導入した。本装置は2016年度までに開発した斜入射配置の光電子分光装置の基本的な配置を維持しており、BL25SUの旧光電子分光装置 (2013年度まで利用) と比較して約1桁高い信号強度での角度分解光電子分光 (ARPES) が可能である。また、試料表面に対して放射光が 5° 程度の角度で入射する条件においても、試料上で $\phi 5\sim 10\ \mu\text{m}$ 程度の光スポットでの測定が可能となった。本装置は2018年度から共同利用を開始する予定である。

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

2017年度はパルス強磁場軟X線MCD装置の採択課題数が少なかったが、この実験ステーションは装置を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となっている。

4-6 電磁石式軟X線MCD装置 (B-branch 第2ステーション)

本装置では低温測定、高温測定、電圧・電流印加測定

が選択可能である。これらと全電子収量法、部分蛍光収量法および透過法を組み合わせることで多様な実験環境を作り出せることが強みである。近年の微細な試料に対応するため、位置決め精度の高いマニピュレータへの更新が必要である。

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。2017年度にはチャンネル間絶縁型のデータ収録器と低ノイズ電流アンプを整備し、よりノイズレベルの低い環境で放射光実験を実施した。また、研磨試料の観察において表面のラフネスが影響し、微小な吸収コントラストを検出できない問題があった。そこで高精度研磨が可能となるように自動精密試料表面研磨装置を導入した結果、明瞭な吸収コントラスト、MCDコントラストを得ることに成功した。さらに、ビーム照射時のカーボンコンタミネーションの除去および抑制のために、オフラインでのオゾンアッシング表面改質処理が有効であることを見だし、大気暴露された薄膜試料でも長時間に渡ってX線吸収強度が低下しない安定した測定が可能となった。また、高性能化として温度可変試料ロッドの開発を進めた。2018年度には温度依存測定ができるように周辺整備をしていく予定である。

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] D. Mori *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* 112, (2018) 131603.

JASRI 利用研究促進部門

分光解析IIグループ

小谷 佳範、室 隆桂之、大河内 拓雄、中村 哲也

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

1. 概要

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、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、2017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。

2. 2017年度の利用状況

2017年度（2017Aおよび2017B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

利用課題や新分野創成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（22件:全体の34%）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、2017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、地球科学分野（12件：全体の約18%）の利用が多かった。この分野では、隕石や生物炭酸塩などの試料を対象に、硫黄の化学状態を指標とした環境解析などに利用されている。また、2017年度は、構造材料分野からの利用申請が増加したことが特徴的であり、この分野ではアルミニウム合金中のマグネシウムやケイ素、あるいは、鉄鋼材料中の微量元素の化学状態分析などの利用研究が実施された。これらの分野の利用課題に共通して、アルミニウムや硫黄といった1～3 keV領域の元素吸収端を利用した研究が目立った。この状況から、蓄積エネルギーが高いSPring-8の軟X線ビームラインでは、いわゆるテnder X線領域での高輝度光の利用環境が整備されていることが利用者の間でも認識され、利用が広がりつつあるものと考えられる。

図2には、研究手法ごとの申請課題数を示した。大部分の申請課題は、軽元素の吸収端を利用した吸収分光測



図1 2017Aならびに2017B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。

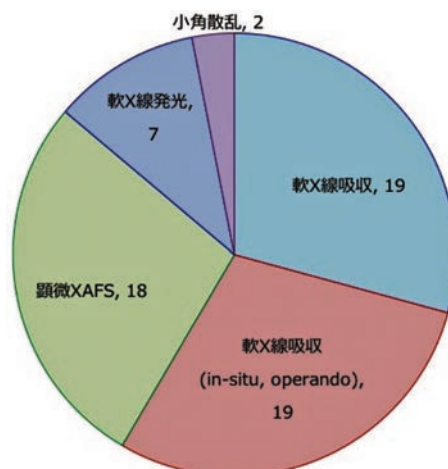


図2 2017Aならびに2017B期に申請された研究手法毎の課題申請数

図中の数値は、各手法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。

定であり、その他では約10%の課題が発光分光測定であった。吸収分光法を利用した課題においては、汎用的な吸収測定の利用は30%程度にとどまる一方で、マイクロビームを利用した顕微分光もしくは μ -XAFSが30%程度を占め、また溶液試料や雰囲気中での計測を行う *in-situ* もしくは *operando* 測定と呼ばれる吸収分光の利用も30%程度であった。BL27SUの特徴である試料環境の自由度の高さを活用し、溶液試料や制御雰囲気下を必要とする試料の分析や、集光ビームを利用する分析など、多彩な分野において先端的な軟X線吸収分光の利用が波及していることがうかがえる。

3. ビームラインの整備状況

BL27SUでは、ビームラインの一次分光器を制御するコンピュータを中心に、各種計測装置や検出器などを一元的に管理するシステムの構築を、建設当初から進めてきた。それにより、ビームラインが提供する計測手法の自動化や装置の複合計測を容易に行うことができるとともに、ビームラインを制御するための機器やソフトを簡便化することで、利用者の利便性の向上を図ってきた。2017年度は、低エネルギーブランチに設置された発光分光器とビームライン制御システムの一元化が完了したので、以下に概要を報告する。

3-1 軟X線発光分光器と一次分光器の同期制御による二次軟X線発光計測システム構築

X線励起には元素選択性があるため、発光スペクトルからは、化合物を構成する元素ごとの部分状態密度に関する情報が得られる。また、吸収スペクトルが非占有準

位を反映する一方で、軟X線発光スペクトルは占有単位を反映する。そのため、両者を組み合わせ解析することで、占有単位から非占有単位にかけて、材料の電子状態の全体像を分析することができる。特に、光電子分光法と比較して軟X線発光は脱出深度が深い（元素吸収端に依存して数100 nm程度）、蛍光収量法による吸収分光と組み合わせた利用によって、バルクに敏感な電子状態の情報を得ることができる。このような軟X線発光分光は、半導体や電池の電極材料の分析などに利用されている。BL27SUではこれまで、軟X線発光分光器を外部制御し、一次分光器やその他の計測機器と同期して計測するための制御システムの開発を進めてきた。本システ

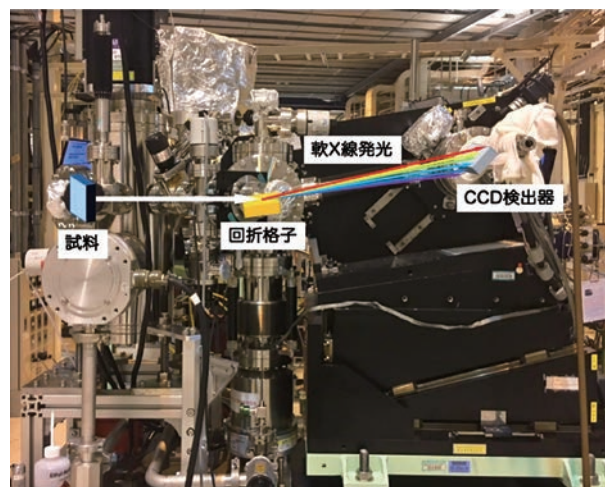


図3 BL27SUの低エネルギーブランチ最下流に設置された軟X線発光分光器の外観写真

なお、同装置を使用する最下流の実験ステーションは、通常はフリーポートとして持ち込み装置の利用に提供している。そのため、軟X線発光分光器は通常はオフラインに収納されており、利用時のみ光軸上に設置されている。

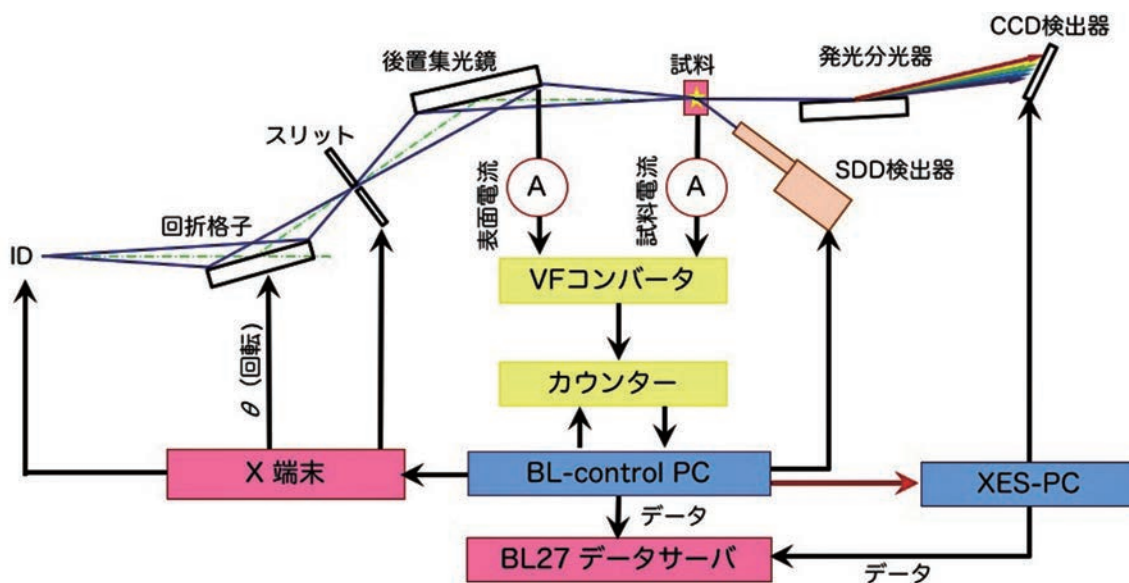


図4 発光分光器を利用する際のビームライン制御システムの概要

本整備では、“BL-control PC”から“XES-PC”を外部制御するためのコマンド・通信システムを開発し、既存のビームライン制御系に組み込む作業を行った。赤矢印は、今回の整備で新たに導入した部分を示した。

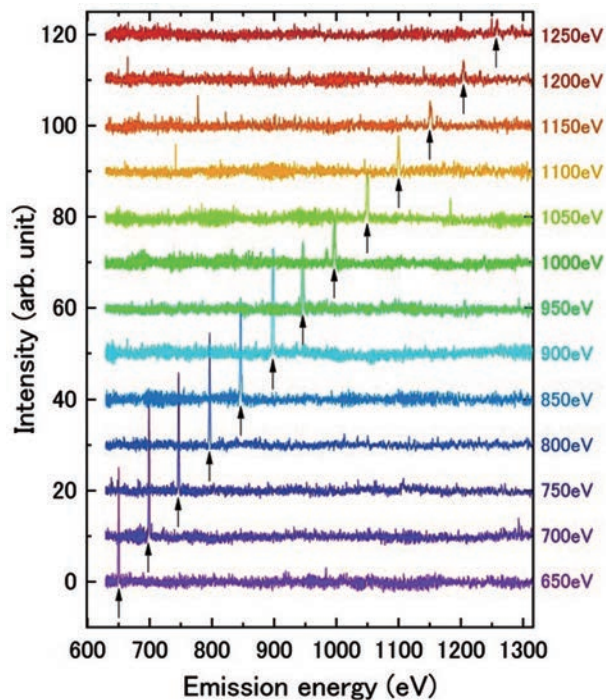


図5 励起エネルギーを変化させながら観測した、金板からの弾性散乱ピークの変化
矢印は、各エネルギーで観測された弾性散乱ピークを示す。

ムの導入により、計測の自動化が図られるだけでなく、励起エネルギーの関数として軟X線発光計測を行う、いわゆる二次元発光分光測定が可能となったので、その概略を報告する。

図3に、発光分光装置の外観を示した。BL27SUに導入された分光器は、分光素子として不等間隔溝刻線回折格子を用いた斜入射平面結像型であり、分散した軟X線を二次元検出器を用いて検出することで、回折格子を固定した状態で発光スペクトルを得ることができる。また、後置集光鏡により縦方向10 μm 程度に入射光を集光し、試料上の光の照射点を発光点とした入射スリットレス構造とすることで、高効率と高分解能の両立を可能にしている。本分光器は、300~1400 eVの軟X線発光を分光することができ、 $E/\Delta E=1,000$ 程度のエネルギー分解能を有している。

図4には、新たに導入した制御システムの概要を示した。今回の整備対象である軟X線発光分光器は、二次元検出器を用いた平面結像型であるため、計測中の発光分光器の制御は二次元検出器の撮像とデータの読み出しのみである。そこで、CCD検出器の制御ソフトがインストールされたPC[XES-PC]を、TCP/IP通信によってコマンドにより外部制御するシステム整備し、ビームラインに既設の吸収分光測定システム[BL control PC]に発光スペクトルの取得機能を追加することで、一次分光器と発光分光器の同期システムを構築した。図5には、本

システムを用いて測定した、金板からの弾性散乱ピークの入射エネルギー依存性を示した。弾性散乱ピークは励起光のエネルギーと一致するため、得られた散乱ピークのエネルギーは、励起エネルギーの変化にตอบสนองして線形に変化している。この結果から、発光分光器のデータ収集は、一次分光器の制御に連動して想定通りに行われていることが確認できた。また、得られたスペクトルから、回折格子を固定した状態で、約600 eVの範囲のスペクトルを一度に観測できることも確認された。

本システムの整備により、ビームライン計測機器の一部として一次分光器を含む他の分析機器と一元的に利用できる環境が整備された。本システムの導入によって簡便に二次元軟X線発光測定を利用できるようになり、2016年度と比較して発光分光の利用希望課題は2倍程度に増加している。今後は、この機能を活用して自動で分光器の調整を行うシステムなどの整備を進め、測定精度と利便性のさらなる向上を図る予定である。また、発光分光器には回折格子を追加できるスペースが残っていることから、刻線密度が異なる回折格子を増設することで測定可能な範囲を高エネルギー側に拡大し、一次分光器との整合性を高めることで発光分光の利用拡大を図る予定である。

参考文献

- [1] T. Tanaka, et al., *Rev. Sci. Instrum.* **70**, 4153 (1999) .
- [2] Y. Tamenori, *J. Synchrotron Rad.* **20**, 419 (2013) .

JASRI利用研究促進部門

分光解析I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、二結晶分光器やその他の光学素子を介する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ている。白色X線を用いた計測手法の開発や利用研究、また白色X線に対する光学素子設計の自由度を活かした装置の導入とそれを用いた研究が展開されている。2017年度における主な活動状況は下記の

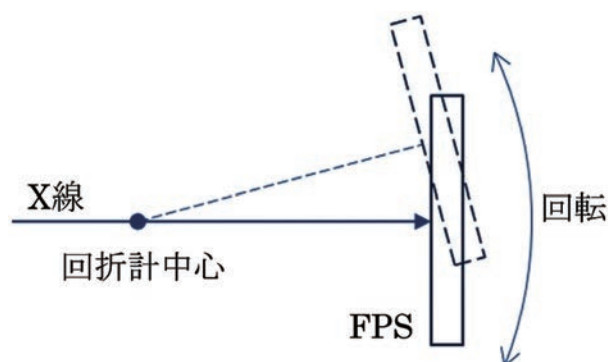


図1 フラットパネルセンサーと回折計中心の距離の測定方法

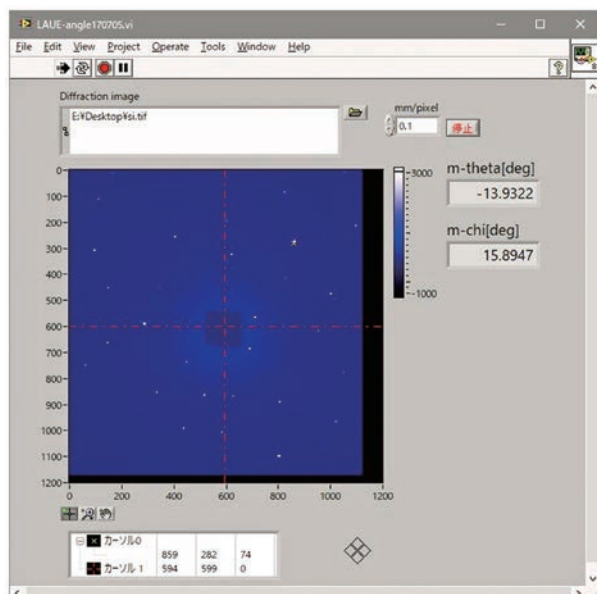


図2 回折スポットの角度表示ソフトウェア

通りである。

2. 高エネルギー白色X線回折実験

白色X線を使った回折実験では視野の広い画像検出器であるフラットパネルセンサー（FPS）と他の検出器を組み合わせて使用することが多い。例えばFPSで回折スポットの方位を確認した後に高分解能の画像検出器で一つの回折スポットを拡大してX線トポグラフィ観察を行ったり、半導体検出器で一つの回折スポットのX線エネルギーを測定してひずみの評価を行ったりなどする。これらの高分解能の画像検出器や半導体検出器は回折計の検出器アームに取り付けてあり、検出器を回折スポット位置に移動させるためには方位角と仰角を測定する必要がある。これまではFPSと試料との距離を測定し、FPS上の座標から回折スポットの方位角と仰角を計算する手順が煩雑であった。そこで手順を整理しこれらの操作を自動化する制御ソフトウェアを作製した。

図1に示すように、回折計の中心を通るX線の位置を、FPSの角度を変えながら測定することでFPSと試料（回折計の中心）の距離を算出することとし、制御ソフトウェアを作製した。図2は回折スポットの方位角と仰角を計算するソフトウェアである。FPS画像上のカーソルを移動させると随時自動的に角度が表示される。

3. ガス供給除害設備の高性能化

触媒や電池材料などの反応ガスを使用する*in-situ* DXAFS実験では、これまでは少流量の反応ガスを使用することが大半であったが、近年、より実用環境下に近い条件でのその場観察を行うために多流量のガス利用の要望が増加している。BL28B2では、反応器から排出される可燃性ガスを希釈処理装置によって爆発下限界の1/2以下に希釈処理した後、排気設備によって屋外に連続的に排気している。しかし、①排気設備の排気性能により処理可能なガス流量が制限される、②希釈処理に使用する窒素ガスをボンベから供給するため連続的に処理ができない、といった問題があった。2017年度はこれらを解決するため、これまでより2倍の排気性能をもつ排風機への変更および窒素発生装置の導入を行った。これにより、利用頻度の高い100% - 水素において、200 mL/minを連続的に処理することが可能となった。

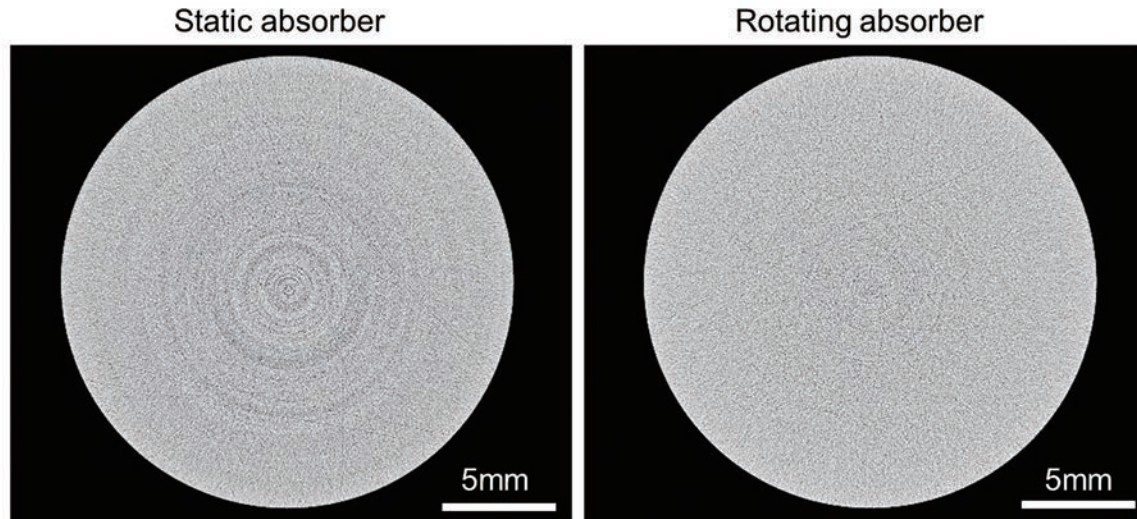


図3 直径20 mmのSUSロッドのX線マイクロCT像
(左) アブソーバーを静止させて測定, (右) アブソーバーを回転 (600 rpm) させて測定.

4. 200 keV-X線マイクロCTの画質向上に対する取り組み

偏向電磁石から得られる白色X線には、100 keV以上の高エネルギー成分も含まれているため、その高エネルギー成分を抽出することにより、高エネルギーX線画像計測へ応用することができる。BL28B2では、重金属アブソーバーを用いることにより、200 keVにピークを持った白色X線による高エネルギーX線マイクロCT計測が行われている^[1]。高エネルギーX線マイクロCT計測の中で、しばしば問題となっていたのが、アブソーバーに起因するリングアーチファクトである。200 keVビームを取り出すために、アブソーバーには厚さ0.5 mmのタンゲステンと厚さ2 mmの鉛を用いている(ともに空冷している)。鉛を上流側に設置してしまうと、鉛への熱負荷により、CT計測中の透過強度パターンに揺らぎが生じてしまい、これにより強いリングアーチファクトが発生する。その対策としてタンゲステンを上流側に設置しているが、図3左に示すように、リングアーチファクトが残ってしまうのが課題となっていた。図は、直径20 mmのSUSロッドの測定を行ったものであり、ロッド内部の強度分布は均一になるはずである。そこで、この問題を解決するために、アブソーバー自体を高速回転させることにより、リングアーチファクトの低減を試みた^[2]。回転アブソーバーを用いたときのSUSロッドのCT像を図3右に示す。このときの計測条件では、アブソーバーは600 rpm (10 rps) で回転させた。効果的にリングアーチファクトが低減されており、回転アブソーバーの有用性を確認することができた。今後は、画質を維持した上での、高効率計測やより高い空間分解能での測定への検討を実施していく予定である。

References:

- [1] 星野真人 他: SPring-8・SACLA年報、2016年度、63-69.
- [2] M. Hoshino, K. Uesugi, R. Shikaku and N. Yagi, *AIP Advances*, 7 (2017) 105122.

JASRI 利用研究促進部門
イメージンググループ

星野 真人、梅谷 啓二

分光解析Iグループ

加藤 和男

回折・散乱IIグループ、産業利用推進室

梶原 堅太郎

BL35XU 高分解能非弾性散乱

1. 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。本ビームラインでは、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の試料に対して、素励起観測を通じた原子ダイナミクスに関する研究を行っている。特にX線が集光できる性質を利用することにより、極限条件（高温高圧下や極低温下）における微小試料（数十ミクロンからミリ以下）の原子ダイナミクス（弾性率やフォノン分散測定などを含む）測定が可能となっている。対象となる研究分野として、液体・固体物性から地球科学分野にわたる広汎な領域で研究が行われている。BL35XUでは近年、特定のヒーターや冷凍機を用いた際、検出器に（実験に影響を与える程度の）ノイズが観測されていた。対策として、放射線源を用いて検出器感度を校正するなどして、ノイズ低減を図ったので報告する。さらに、ここ数年同一期以内での時間経過に伴う入射X線強度の減少が観測され、実験時期によって入射光強度が異なっていた。ユーザーに可能な限り均一なビーム条件を提供するため、その原因調査も行ったので報告する。さらに分光結晶がエネルギー分解能に与える影響についても検討したので報告する。

2. 検出器ノイズ低減のための感度校正

BL35XUではエネルギー $h\nu=16\sim 26$ keV 程度の入射光を用いて ± 200 meV 以下の（非）弾性散乱光を測定する。したがって検出する散乱光のエネルギーも入射光と同程度のエネルギー（ $h\nu=16\sim 26$ keV）となる。試料によって散乱された光は最終的にCdZnTe（ 2.5×2.5 mm²）素子を用いて高効率（>95%以上）で検出されている。CdZnTe素子によって散乱光は電気信号となり、前置増幅器・波形整形増幅器を介して、パルス信号として検出される。近年特定の装置（ヒーター、冷凍機など）を使用すると検出器にノイズが入って実験に支障をきたしていた。ノイズの原因として、増幅器が素子の特性に最適化されていない可能性があったため、検出系の感度校正を行った。感度校正にはCo-57放射線源（122.1 keV（85.6%）、14.4 keV（9.2%））を用いた。BL35XUには12個の検出器があり、それぞれの検出器について校正を独立に行っている。具体的には最初に増幅器の0レベルを最適化し、その後入射エネルギー（ $h\nu=16\sim 26$ keV）付

近の信号を高感度で得るために、（増幅器の）ゲインを調整した。図1に調整後の結果を示す。Co-57から放出された14.4 keVの γ 線が強く観測されていることがわかる。ノイズは通常低エネルギー（図中低チャンネル側）にバックグラウンドとして検出されることが多いが、この図から、そのようなバックグラウンドノイズも観測されておらず、信号とノイズが分離できていることが確認できた。

なお、（低エネルギー）バックグラウンドノイズが生じる原因として、周囲の電源環境が検出素子に影響を与えている可能性がある。そこで、検出素子の入った真空チャンバーを従来のものより大型にし、チャンバーから検出素子にノイズが入らないような工夫も同時に行った。このチャンバーの大型化により、従来はチャンバー外壁と検出素子の入った箱が2~3 mm程度しか離れていなかったが、現在9 mm両者を離すことができています。これら（感度校正および検出素子チャンバーの大型化）の効果（どの程度ノイズが低減できたか）については現在検証を行っている。

3. 入射エネルギー強度の安定化

まず、BL35XUでの光学系について概略図を図2に示す。高分解能非弾性X線散乱実験では原子ダイナミクスを測定するために $h\nu=16\sim 26$ keV程度のエネルギーに対して十分小さい、バンド幅数meVのX線を試料に照射している。このような単色化されたX線を得るために、アンジュレータから得られたX線を、図に示すように、3度分光している：最初に液体窒素冷却されたSi（111）結晶（図中分光結晶1）を用いて真空中で2~3 eV程度

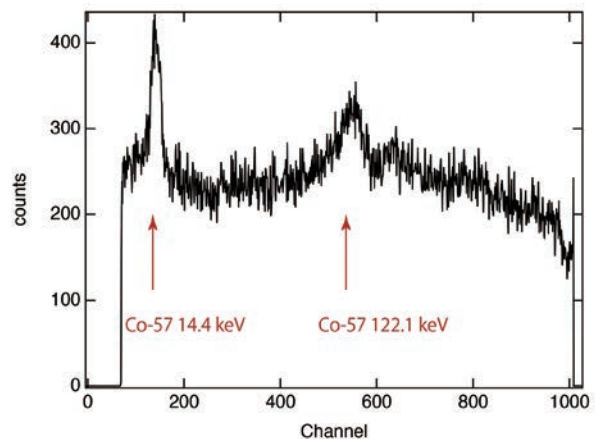


図1 Co-57放射線源を用いた検出器の感度校正

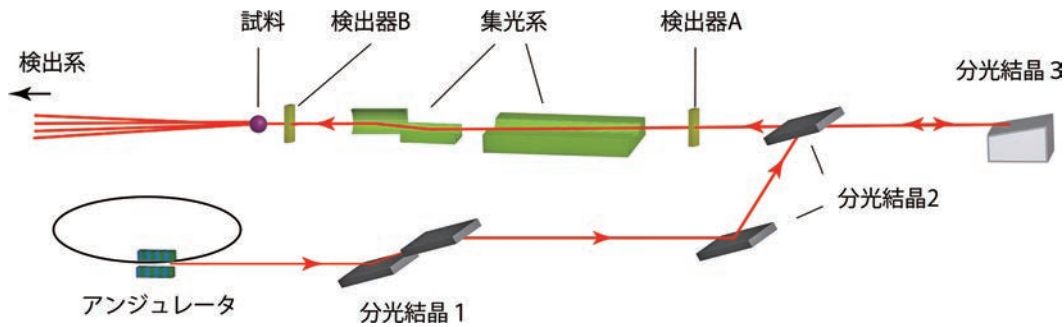


図2 BL35XU光学系の概略図

のバンド幅に分光する。次に窒素1気圧雰囲気中、室温で保持されたSi結晶（図中分光結晶2。反射面は分光結晶3の背面反射条件によって異なる）を用いて0.5~1 eV程度のバンド幅とする。最後に真空中室温付近に保持されたSi (nnn) 結晶（背面反射条件。n=8~13、図中分光結晶3）を用いて数meVのバンド幅に分光する。このように得られた光は（集光系を介して）試料に導入されている。

ユーザー運転中、常に図2中検出器A（集光前、イオンチャンバー）および検出器B（集光後、空気散乱を検出するアバランシェフォトダイオード）を用いて（数meVバンド幅に分光された）X線強度をモニターしているが、2015-2017年度のユーザー運転中、検出器A、Bから得られるX線強度は図3のような経時変化をした（赤線が検出器A、黒線が検出器B）。なお、図3の作図にあたっては、条件を（可能な限り）同じにするため、21.747 keV（分光結晶3でSi (11 11 11) 背面反射条件）の入射光で、集光系としてシリンドリカルミラーのみを使用したユーザーのデータのみを抽出している。図中には表示されていないその他の条件（例えばスリットのサイズ等）が各データ点でやや異なるものの、おおそユーザー運転中（図3中緑色）は強度が低下し、停止期間中（図中白色）を経て再び強度が上昇することが確認できる。最も強度が弱い場合（2017A期末）では最も強い（2015B期頭）場合に比べ、おおそ半分程度の入射強度しかなく、時期によって試料に照射されるX線量が大きく変化することがわかる。

入射強度の増減をより詳細に見ると、停止期間後に、強度の上昇する場合（図中青破線）とそうでない場合の2つの場合が確認できる。停止期間中には各分光結晶を再研磨、もしくは新品交換することがある。分光結晶の再研磨・交換とX線強度の相関を調べるために図3中下に分光結晶の研磨・交換を行った時期を示す（分光結晶1は青矢印、分光結晶2は緑矢印、分光結晶3は黒矢印）。図より明らかなように、入射X線強度の増加は分光結晶1の研磨・交換後に見られており、両者に相関があると考えられる。

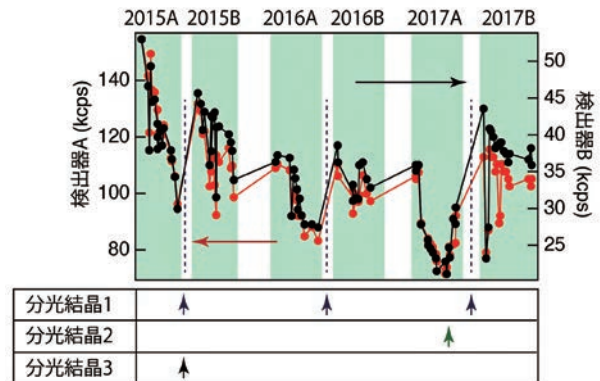


図3 2015A期から2017B期におけるバンド幅meVに分光されたX線の強度の経時変化

図3下に分光結晶の交換・再研磨の時期を矢印で示す。

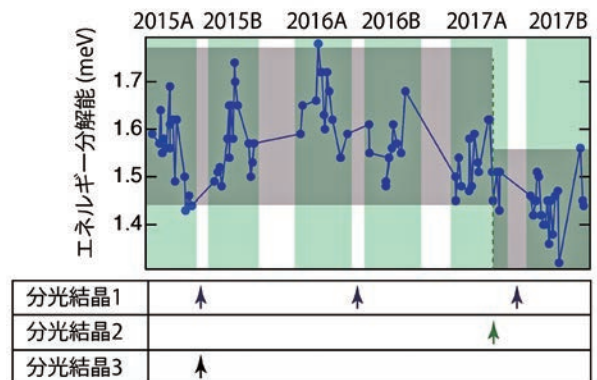


図4 2015A期から2017B期におけるX線エネルギー分解能の経時変化

図4下に分光結晶の交換・再研磨の時期を矢印で示す。

従来試料位置の入射強度減少の主たる要因は分光結晶1の振動による影響が大きく、分光結晶の長期的な劣化を十分に評価できなかった。ビームラインの設置当初以来懸案であった分光結晶1における結晶の振動は光源基盤部門による改善によって大きく抑制され、観測された現象は持続的な高熱負荷によって導入された結晶の歪みや結晶表面への付着物による分光結晶そのものの経時変化が示唆される。これらの結果をもとに光源基盤部門と協議を重ねて、2017年度末に分光結晶1を保持する真空チャンバーの改造を行った。

4. 分光結晶とエネルギー分解能の相関

図4にエネルギー分解能の経時変化を示す。時期は図3と同時期（2015A期から2017B期）である。エネルギー分解能は、標準物質（PMMA）を試料として用い、静的構造因子の最大値で得られる準弾性散乱ピークの半値幅として求められる。図4より概ね1.4~1.6 meVのエネルギー分解能が得られているが、図中黒色部で示したように2017A期より前には何度か分解能が1.7 meVを超える場合があった。一般に、1.7 meV程度のエネルギー分解能を持った入射光ではスペクトルの詳細な変化を観測することが困難となり、実験に支障をきたす。しかし、2017A期末より後は概ね1.5 meVを超えることがなくなり、エネルギー分解能の向上が見られている。図4下に結晶交換時期を再掲すると、この分解能の向上は分光結晶2の交換によるものと考えられる。この交換の際には、X線自身がつエネルギーによる結晶歪みを低減するため、従来の対称Si（400）結晶面から6°非対称（400）結晶面に反射面を変更している。なお、図3との比較から、エネルギー分解能と入射X線強度に相関はないと考えられる。

JASRI 利用研究促進部門

回折・散乱IIグループ

内山 裕士

回折・散乱IIグループ

量子状態解析チーム

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。2017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2017年度には高速2次元走査型顕微XRF/XAFS計測の高性能化として40 keV以下の高エネルギー領域におけるサブミクロンの空間分解能を有する高速2次元走査型顕微XRF/XAFS計測法の開発と、2次元投影型イメージングXAFS法の高性能化としてCT法を適用した3次元投影型CT-XAFS法の開発とユーザー利用が行われた。

2. 2次元高速走査型顕微XRF/XAFS計測の広エネルギー化

on the fly型の高速走査型2次元XRF法は、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すことにより、任意元素の2次元分布を取得することができる。2017年度はこの手法の適用範囲の向上を目指し、BL37XU第1ハッチに常設されていた長ワーキングディスタンス/高エネルギー用KBミラーを第3ハッチに移設した。図1に、移設したKBミラーの30 keVにおける集光プロファイルを示した。縦横方向ともに1 μm を切る空間分解能が

30 keVにおいても得られている。本ミラーの移設により、広エネルギー領域 (<40 keV)、長いワーキングディスタンス (30 cm)、高分解能での2次元高速走査型顕微XRF/XAFS計測が可能となった。

3. 3次元投影型CT-XAFS法を利用した全固体Liイオン電池の3次元反応分布評価^[1]

全固体Liイオン電池は、高容量、高エネルギー密度化が期待でき、さらに安全性・信頼性の高い電池であることから開発が活発に行われている。同電池に用いられる合剤電極では、活物質および固体電解質の粒子が3次的に不均一に分布し、複雑なイオン/電子の伝導経路を形成している。そのため、特に高出力条件下において、合剤電極内部で反応が不均一に進行し、容量が低下することが懸念される。電極内部の不均一反応のメカニズムを理解し、高レートでの充放電でも反応が均一に進行する電極を開発するために、合剤電極内の反応分布を*operando*条件下でリアルタイムに追跡できる手法が求められている。XAFS法は電池の反応に対応して化学状態が変化する任意の元素に着目して反応追跡が行えることから、これまで多くの*operando*観測が行われてきた。本研究では合剤電極内の3次的かつ複雑な反応分布を詳細に観察することを目的として、X線CT法とXAFS法を組み合わせたCT-XAFS法を適用することにより合剤電極内の活物質分布や反応進行分布などの電池の性能向上を支配する変数の導出を行った。

図2は全固体Liイオン電池の*operando* CT-XANES (Co *K*-edge) 計測の模式図である。Coの吸収端近傍のXANESを構成する各エネルギー点において試料を回

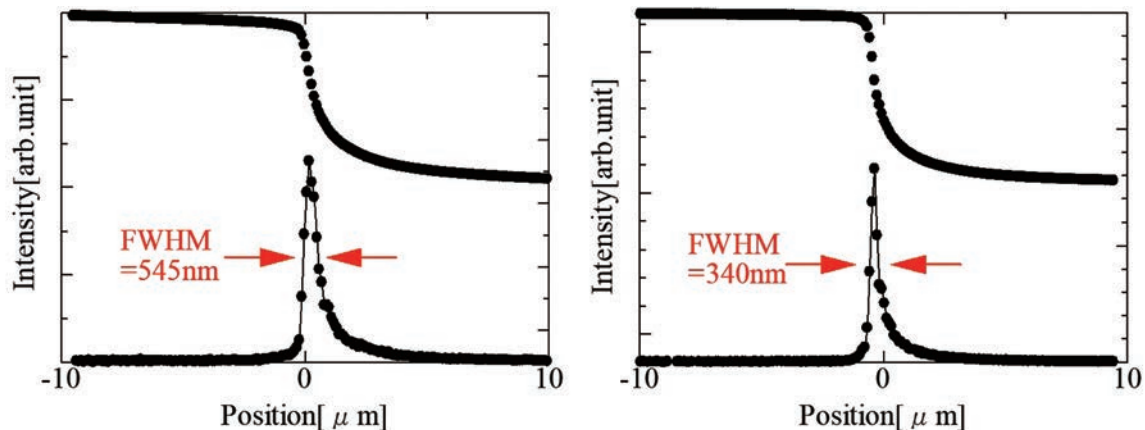


図1 第3ハッチに移設したKBミラーの30 keVにおける横方向（左図）および縦方向（右図）の集光プロファイル

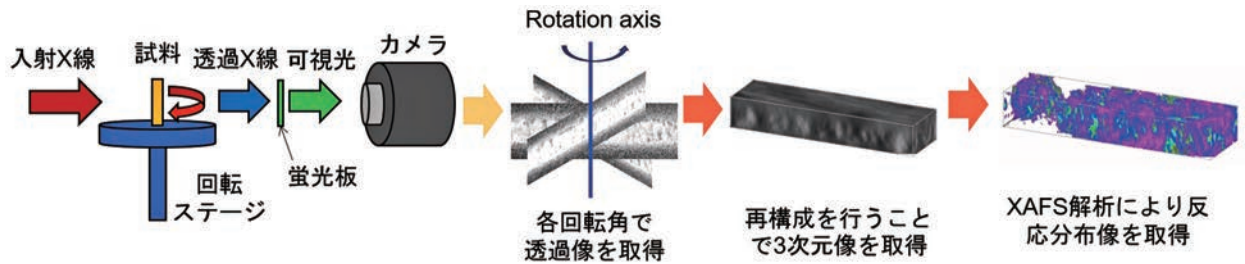


図2 全固体Liイオン電池の *operando* CT-XAFS 計測の模式図

転させながら透過X線像を取得し、角度情報を持った2次元透過像を3次元再構成することにより3次元のX線吸収強度分布 (3D-XANES) を得ることができる。本研究においては全固体Liイオン電池に対して本手法を *operando* 条件下で適用し、3次元的な活物質分布や電池反応の進行分布を得ることができた。このように本手法は全固体Li電池に限らず、機能性材料において3次元的に電子状態や原子分布等の情報を *in-situ, operando* 条件下で行える手法であり、材料開発の場において設計指針を与える重要な手法となる。

Reference:

- [1] 木村勇太他、第43回固体イオニクス討論会, 3A-11 (2017)

JASRI 利用研究促進部門
分光解析Iグループ

新田 清文、関澤 央輝

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、遠隔実験システムの共同利用を開始した。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。2015～2016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。2017年度も引き続き高性能化と開発を進めている。さらに、試料雰

囲気の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での試料マウント手法(HAG法)は、2011年より開発を開始しておりユーザー利用も開始しているが、測定可能な領域を拡大するために、開発を継続している。

1. 高精度/高効率な実験を可能とするための高性能化

BL38B1においては、HAG法を用いた室温でのデータ収集の利用が増加している、そこで2016年度は、放射線損傷の回避を目的とした試料のX線照射位置を精密に移動するための高性能化とCMOS検出器による6 Hzでの高速データ収集システムの構築を行った。2017年度は、P1やC2などの対称性の低い空間群の結晶から効率的に完全なデータを収集するための小型軽量の自動kappa, phi軸ゴニオアタッチメントの開発を行い、プロトタイプを開発した(図1)。今後評価と改良を行い、ユーザー利用に供出予定である。さらに、最小で ϕ 20 μ mサイズのX線を正確に試料に照射するために、自動調整機構で利用する小型ビームモニタの開発を開始した。また、老朽化により動作が不安定であった空調設備を更新した。

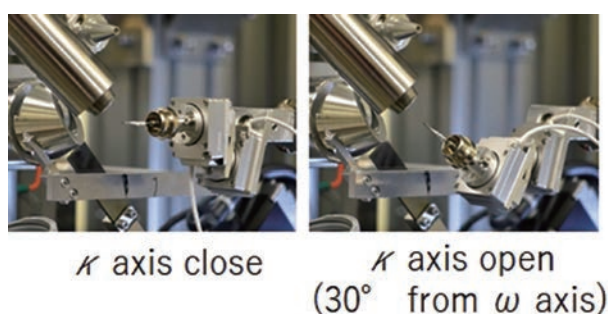


図1 小型軽量の自動kappa, phi軸ゴニオアタッチメント

2. 高輝度化のための高性能化

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。結晶サイズのさらなる微小化に対応するため、2015年度より継続して、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)による高輝度化を実施した。縦方向のビーム発散を抑える間接冷却方式の第1、2結晶ホルダーの採用により、波長1 Å

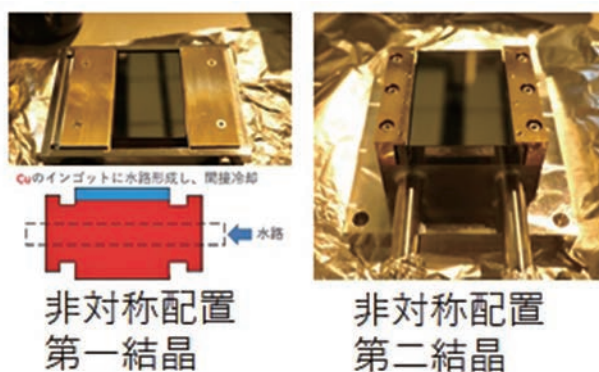
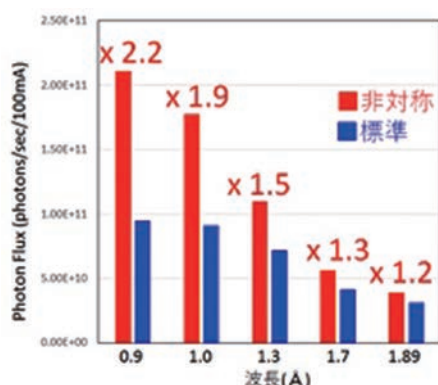


図2 二結晶分光器に設置する非対称配置結晶と高強度化

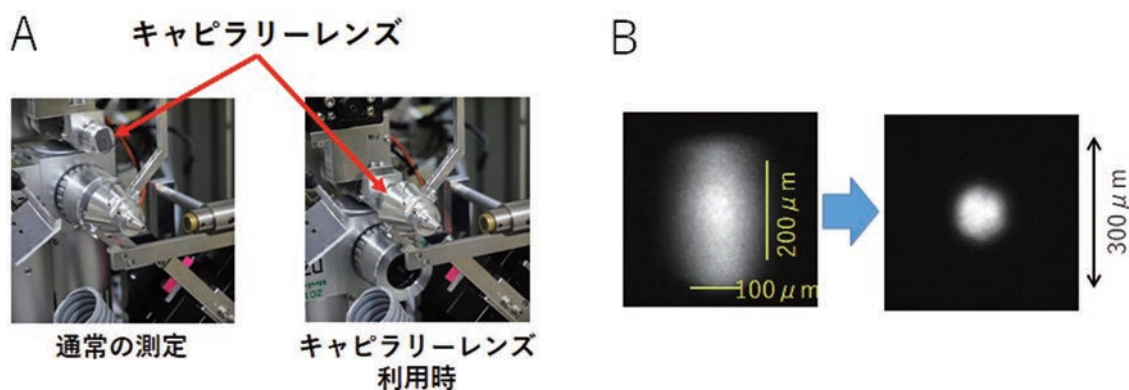


図3 キャピラリー集光によるX線の高集光化

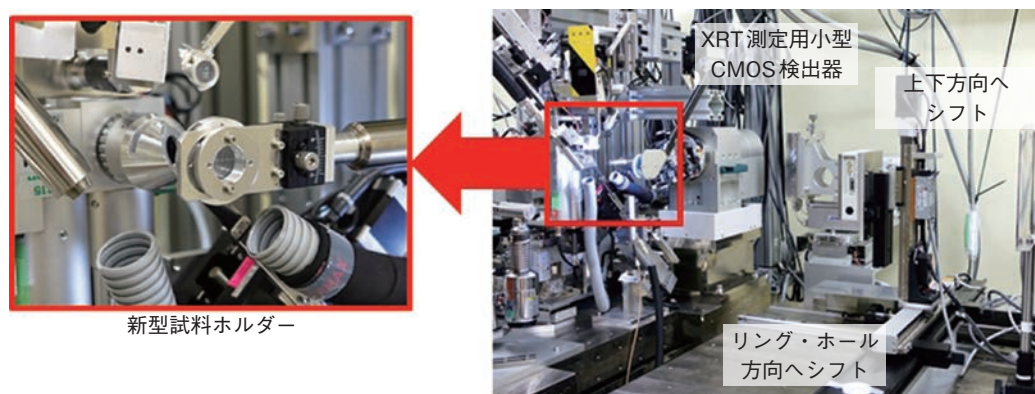


図4 X線トポグラフィー実験系

で2倍程度の高強度化に成功し、2017A期よりユーザー利用を開始した。引き続き、安定な運用に向けた高性能化を進めていく。さらに、試料位置直前にキャピラリーレンズによる集光系を導入した高集光化の評価を行った(図3)。その結果、ビームサイズが $100 \times 200 \mu\text{m}^2$ (横×縦) から $\phi 80 \mu\text{m}$ への高集光化に成功し、3倍のFlux densityを得ることに成功した。今後、ユーザー利用に向けて準備を進めていく。

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位、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い、これまでに、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)を導入した自動化システムを構築した。2017年度は、実験ハッチの光軸レイアウトを改良することでビームサイズを $4 \times 4 \text{ mm}^2$ まで利用可能とし、大きなビームサイズのダイレクトビームから低角の回折点をより分離するために、CMOS検出器の位置調整機構を小型化して検出器の距離を400 mm程度から600 mmまで拡張した(図4)。さらに、高精度な試料ホルダー



図5 温度制御ワークベンチ

を開発することで、安定な試料保持を可能とした。

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。さらに多様な実験を可能とするために、以下の装置の高性能化を進めた。

・温度制御ワークベンチの高性能化

光吸収による結晶中での反応を避けるために、作業中にワークベンチ内を照らす照明を白、緑、赤LEDを選択して利用可能とした。さらに、液体窒素をワークベンチ内に供給するシステムを構築することで内部での結晶

凍結作業と、窒素ガスの補助供給に利用した低酸素環境での作業環境を実現した（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。2016年度に引き続き、20-40℃範囲での湿度制御を目的とした調湿装置の開発を進めた。2018年度以降、この装置を利用したオンラインでの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.

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

馬場 清喜、奥村 英夫、仲村 勇樹
長谷川 和也、水野 伸宏、村上 博則
Nipawan Nuemket、尾崎 愛美
熊坂 崇

利用研究促進部門

技術支援グループ

福居 知樹、入江 崇起

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、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。2017年度は、複合環境X線分光ステーション（実験ハッチ1）におけるXES測定の高感度・高精度化を目指し、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立ち上げ・調整およびその評価を行った。また、X線ナノ分光計測ステーション（実験ハッチ2）では、集光ビーム走査型XMCDイメージングによるX線磁気トモグラフィー法、および高周波印加条件での時間分解XMCD測定の開発を行った。

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）計測装置の開発を進めている。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、一般に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、2016年度から高精度・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ている。2017年12月末にスペクトロメーター装置本体を実験ハッチ1に設置し、2018年1月に立ち上げ・調整を完了した。その後共同利用に供している。

マルチアナライザー型XESスペクトロメーターの立ち上げには、2016年度に評価を行った球面湾曲Ge 333アナライザー結晶を使用した。試料には $\text{Eu}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 粉末

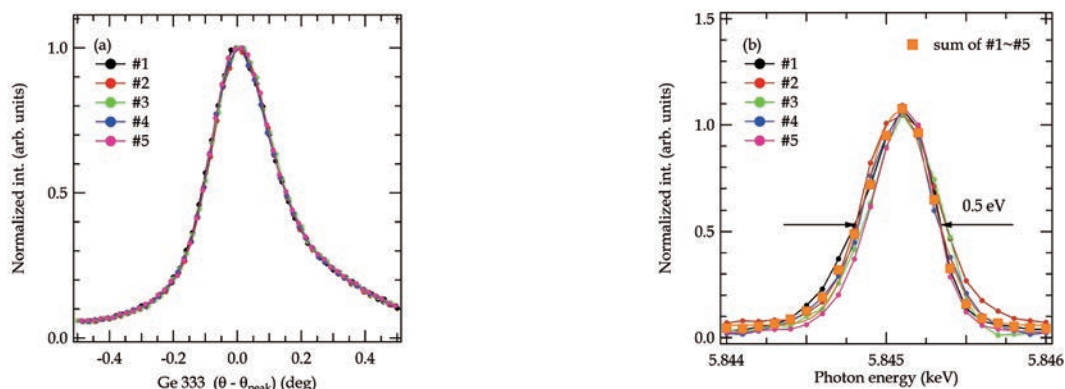


図1 (a) Ge 333アナライザー結晶の θ_B スキャンによるEu La₁線スペクトル
(b) 弾性散乱を用いたエネルギー分解能評価の結果

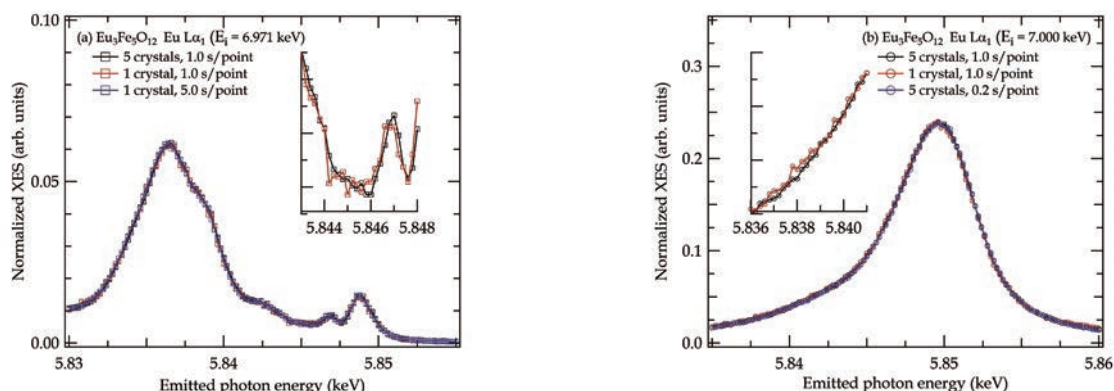


図2 $\text{Eu}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 粉末結晶にEu La₁線のXESスペクトル
(a) 入射エネルギー 6.971 keV、および (b) 7.000 keV での結果

を用い、Eu L_{a1} 線によって調整および性能評価を行った。スペクトロメーターの調整では、5枚のアナライザー結晶の水平方向の入射角 θ_B と垂直方向のあおり角 χ を精密に一致させる必要がある。調整結果を図1に示す。X線エネルギーに相当する θ_B 軸の角度を、5枚の結晶全てに対して0.1 eV以内(<15秒角)の精度で一致させることができた。また集光位置も200 μm 以内で一致している。調整後のスペクトロメーターのエネルギー分解能を弾性散乱X線によって評価し、5.845 keVにおけるエネルギー分解能として0.5 eVを得た。

本スペクトロメーターを用いて、Eu L_{a1} 線のXESスペクトル、および、部分蛍光収量法(PFY)によるEu L_{3-} 吸収端での高エネルギー分解能X線吸収(PFY-XAS)スペクトルを測定し、性能評価を行った。図2(a),(b)に、Eu₃Fe₅O₁₂粉末試料におけるEu L_{a1} 線のXESスペクトルを示す。5枚の結晶すべてを用いた場合のスペクトルと、5枚中の1枚だけを用いた場合の結果を比較している。XESスペクトルのピーク強度は、1枚結晶では4,500 cpsであったが、5枚の結晶では22,800 cpsと約5倍に増大しており、すなわち、実効的な検出感度が向上している。また、図2(b)において、5枚結晶による0.2秒積算で得られたスペクトルでは、1枚結晶による1秒積算で得られたスペクトルとほぼ同等の統計精度が得られており、測定効率の向上も確認した。開発したマルチアナライザー型スペクトロメーターを用いることで、計測時間が大幅に短縮され、微小なスペクトル変化の高精度測定や希薄試料に対する高感度測定が可能となる。そのため、XESおよびPFY-XAFSを利用した電子状態解析や化学状態解析について今後の利用拡大と成果の増加が期待される。現状では、5枚分のアナライザー結晶として提供できるのはSi nnn , Si $nn0$, Ge nnn , Ge $nn0$, Ge 331のみであり、利用できる元素吸収端やエネルギー領域には制限がある。今後、高感度化の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。

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。2017年度には、集光ビーム走査型XMCDイメージングによるX線磁気トモグラフィー法の開発^[1]と、GHz帯の高周波(RF)印加条件におけるポンプ・プローブ時間分解XMCD測定の開発^[2]を行った。

X線磁気トモグラフィー法の開発では、既設のナノビームXMCD装置に精密試料回転ステージを組み込むことで、走査型マイクロトモグラフィーのセットアップを構築した。試料としてSiNメンブレン基板上に作製

した円盤状のGdFeCo垂直磁化膜を用いた。マグネトロンスパッタリングで厚さ5 μm に成膜し、光学リソグラフィーによって直径6 μm の円盤に加工した。X線のエネルギーはGd L_{3-} 吸収端(7.247 keV)とした。試料角度 $\pm 70^\circ$ の範囲で測定した33枚の2次元の透過XMCD像を代数的逐次近似アルゴリズムで処理することで、試料内部の磁区構造を3次的に再構成することに成功した。再構成にあたっては、磁化方向が膜面に垂直であるという条件を考慮した。図3に示すように、試料内部の磁区構造の3次的な分布を可視化することに成功した。正負の磁区境界の幅から空間分解能は310 nmと見積もられた。本手法は、焼結永久磁石材料などの実用材料を含む様々な強磁性体試料へ適用することができる。今後、この磁気トモグラフィーのセットアップに小型の電磁石を導入することで、外部磁場印加条件下での3次的な磁区形成過程の観察へと発展させていく計画である。

ポンプ・プローブ時間分解測定法の開発については、2016年度までにナノビームXAFS/XMCD測定とシングルバンチ切り出しX線チョッパー^[3]を組み合わせることにより、100 nmの空間分解能、50 psの時間分解能での時間分解XAFS/XMCD測定システムを構築している。2017年度には、GHz帯RF印加およびタイミング同期のためのシステムを開発した。これによって、強磁性共鳴等のGHz領域の現象の、時間ドメインでのXMCD観察を可能とした。

GHz帯のRFはSPring-8の基準RF周波数である508.58 MHzよりも周波数が高いため、これまで使用していたMHz級のタイミング装置では対応することができない。また通倍器による方法では、SPring-8の基準RF周波数の整数倍のRF周波数のみが利用可能となる。すなわち、試料励起に用いることができるのは、およそ0.51 GHzごとの飛び飛びの周波数となる。そのため、強磁性共鳴などのRF共鳴現象の観察においては周波数の飛びが大きすぎて利用に大きな制限が生じる。

図4に本時間分解測定システムの構成を示す。上記の問題を解決するため、RF信号発生器に“Flexible reference clock input”機能を追加し、42.38 MHz(508.68/12 MHz=0.042 GHz)の分解能でのRF周波数の設定を可能とした。X線チョッパーによりSPring-8一周に一回シングルバンチX線(パルス幅50 ps)を切り出して試料へと入射させ、印加するGHz帯RFの位相をシングルバンチX線と高精度に同期させることにより、RF励起後の遅延時間を特定した観察が可能である。本RF印加システムのジッターは32 ps(半値幅)であり、放射光のパルス幅50 psを加えても100 ps以下の時間分解能での測定が可能である。本システムは開発後ただちに利用

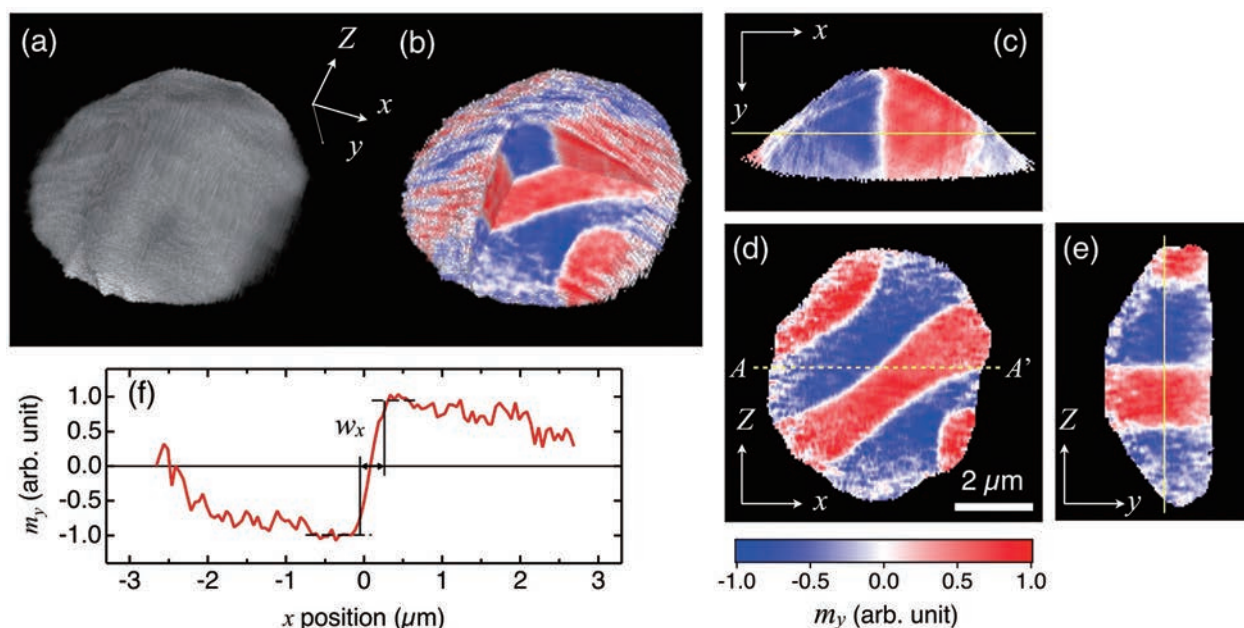


図3 GdFeCo円盤状試料のX線磁気トモグラフィー観察の結果 [1]

(a) 通常のX線吸収トモグラフィーによる密度分布、および、(b) 磁化分布の鳥瞰図磁化容易軸は円盤面に垂直(y)方向であり、磁化のy方向の射影成分 m_y を表示している。(c)–(e) 円盤面に垂直および平行な平面での磁化分布の断面図。(f) 図(d)中のA–A'に沿った磁気イメージの断面図。正負の磁区境界の幅から空間分解能は $w_x = 310\text{nm}$ と見積もられた。

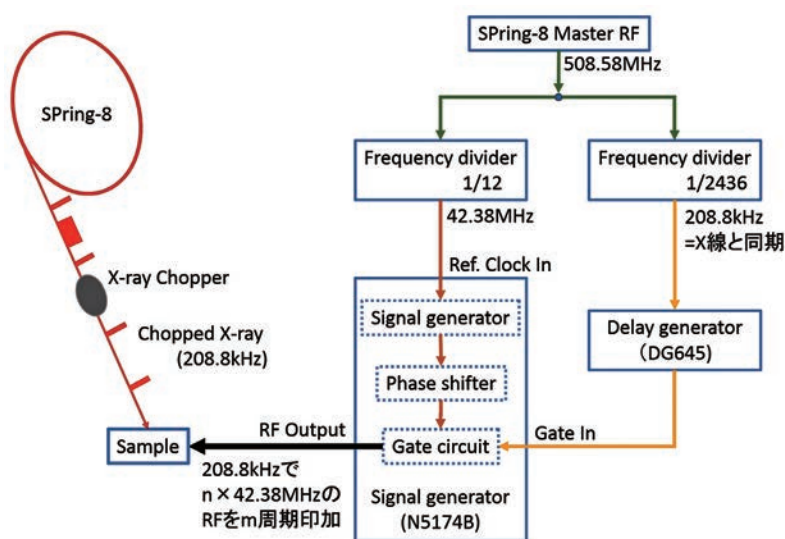


図4 GHz帯RF印加による時間分解XMCD測定システム

実験に提供されており、GHz帯RF印加による強磁性共鳴現象の時間応答および周波数応答をXMCDにて観察した結果が報告されている^[2]。今後、高周波磁気デバイスや磁気メモリ材料への利用が期待される。

参考文献

- [1] M. Suzuki, K.-J. Kim, S. Kim, H. Yoshikawa, T. Tono, K.T. Yamada, T. Taniguchi, H. Mizuno, K. Oda, M. Ishibashi, Y. Hirata, T. Li, A. Tsukamoto, D. Chiba, and T. Ono, *Appl. Phys. Express* 11, 036601 (2018).
 [2] N. Kikuchi, H. Osawa, M. Suzuki, and O. Kitakami,

IEEE Trans. Magn. 54, 1 (2018).

- [3] H. Osawa, T. Kudo, S. Kimura, *Jpn. J. Appl. Phys.* 56, 048001 (2017).

JASRI 利用研究促進部門

分光解析IIグループ ナノ分光チーム

河村 直己、水牧 仁一朗、大沢 仁志、鈴木 基寛

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、準単色の高輝度X線ビームを使用できるビームラインである。これら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、X線1分子計測、マイクロビーム回折・散乱実験等が行われている。

2016年度末に導入した薄型で小型（厚さ20 mm、幅70 mm、高さ115 mm）のピクセルアレイ検出器Modupixの新たな利用検討を行った。Modupixは、CERNで開発されたTimePixチップをベースとし、ピクセルサイズ55 μm 角で検出面積は14 mm角（256×256ピクセル）である。各ピクセルに入射した光子数を数える光子カウンティングモードの他に、各ピクセルに到達した光子到達時間を記録するToA（Time of Arrival）モードが利用可能である。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が可能であるが、新たにToAモードについて、回折点の動きを高速に捉えるX線1分子追跡法・実験への応用を検討した。ToAモードでは100 nsといった高時間分解で光子の位置情報が取得可能であるため、この機能を最大限に活用することで、高時間分解、かつ低ドーズで回折斑点の動きをモニターすることが見込まれる。

図1-Aは、金粉末（325 mesh, Nilaco AU-174019）をポリイミドフィルムで挟み込んだ試料をガルバノスキャナ（千葉シチズンGVM-2510）の軸上に配置させ、傾斜方向に三角波状に往復走査させた（50度/秒）時のToA像である（クロック1 MHz, 10 ms/frame, 閾値エネルギー14 keV, サンプル-検出器距離120 mm）。入射光は14.5-16.5 keV のピンクビームを用いた。ToAイメージでは到達時刻を色（カウント）として表現する。図1-Aでは左から右方向に移動した軌跡と解釈できる。このようなToAイメージを連続撮影し（リードアウト5.1 ms）、各々の回折光子の到達位置と時刻から回折

光子の時系列変化を再構成したのが図1-Bである。50度/秒の想定される軌跡（太実線）と光子到達情報プロットが一致し、走査角速度を精度よく捉えられていることがわかる。図1-Cは10度/秒走査時のToA連続画像から再構成したもので、図1-Bと同様に角速度に反映した軌跡を捉えている（ただし、位置精度は悪い）。ToAイメージングでは、各ピクセルに入射される第一光子のみに着目するため、ノイズとなる光子を極力落とす必要がある。入射X線のビーム径を10 μm 以下にすること、光子検出閾値を高く設定すること（入射X線と同程度）、入射X線を従来の1/100程度に抑えることなどが有効であった。これらの操作はサンプルのX線に対するダメージ回避に有効であり、限られたドーズ量で回折点移動を捉える、あるいは長時間観察を行う際に有効である。

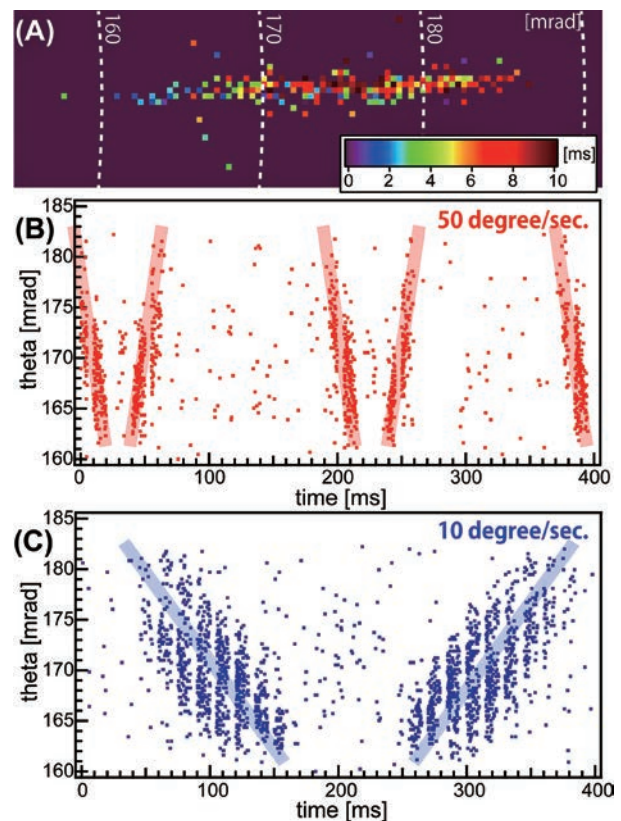


図1: TimePix-ToAイメージング機能・利用検討

(A) 金・粒子傾斜走査時におけるToAイメージ、(B) 回折光子再構成像50度/秒走査、(C) 10度/秒走査

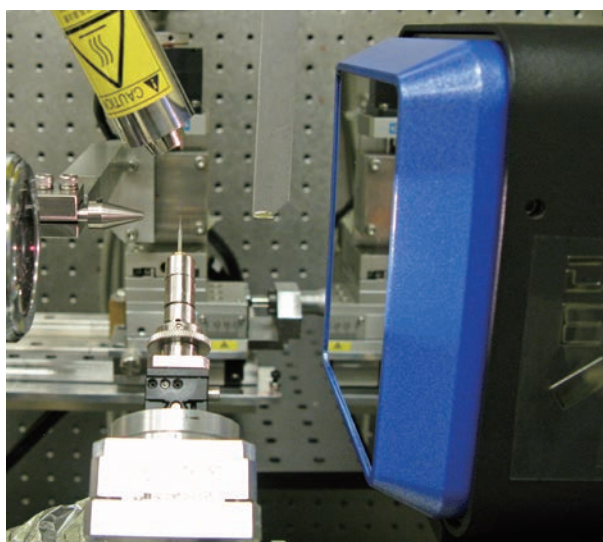


図2 光子計数型ハイブリッド検出器を利用した測定時の様子

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や半導体材料のポンププローブ分光実験が行われている。

微小単結晶X線構造解析実験においては合成化学系のユーザーが多いこともあり、一度のマシントimeに大量の試料を測定する。また、X線だけでなく空気や湿気によって劣化が進行する不安定な物質の測定も行われる。そのため、測定時間を短縮してスループットを向上させるとともに、ダイナミックレンジを広くして高精度な回折強度測定を実現するため、CCD検出器に代わり光子計数型ハイブリッド検出器であるDECTRIS社製EIGER X 1Mをピンポイント構造計測装置に導入し、立ち上げを行った(図2)。

本検出器は光子計数型の検出器であり導入にあたり特に以下の点を重視して選定した。

- 1) 読み出し時間：3マイクロ秒
- 2) 検出面積：77.2 × 79.9 mm²
- 3) ピクセルサイズ：75 × 75 μm²
- 4) 最大フレームレート：3,000 Hz
- 5) 高ダイナミックレンジ (32 bit)
- 6) 読み取りノイズ、暗電流がない

イメージ間の読み出し時間を短くしてデータの欠損をなくし、高フレームレート動作を行うことでアンジュレータの高強度X線を利用した短時間測定でも十分小さな ω 振動角 ($\Delta\omega$) で回折イメージを取得できる。また、広いダイナミックレンジとノイズフリーである特徴を活かし詳細な回折ピーク形状が測定できる。さらに、

表1 EIGERで測定したデータ比較

	Fast scan	Slow Scan
試料	シチジン (C ₉ H ₁₃ N ₃ O ₅)	
ω (°)	-90~90	
$\Delta\omega$ (°)	1	
露光時間 (s)	0.1	5
ϕ (°)	0, 90, 180, 270	
$2\theta_{\max}$ (°)	56.2	
λ (Å)	0.78203	
測定反射数	11550	11597
独立反射数	1910	1927
R_{int}	0.0842	0.0254
R_1 ($>2\sigma(I)$)	0.0252 (558反射)	0.0260 (1905反射)
R_{w2}	0.0409	0.0678
GOF	0.349	1.083
Flack	2.2 (10)	-0.1 (2)

検出面積はわずかであるがCCDよりも広くなる一方で筐体寸法は小さいため、CCD利用を希望する場合の装置入れ替えも容易に行えるようになっている。

制御ソフトは、Labview (National Instruments) によって作製したソフトウェアでEIGERやゴニオメータなどすべての機器を制御しており、基本的な測定であれば、ウインドウ1つだけで測定が行えるようになっている。また、測定データの解析も既存ソフトが利用できるようにイメージ変換プログラムを作製した。

導入直後に装置評価を行うために標準試料 (シチジン、C₉H₁₃N₃O₅) の測定を行った。読み出し時間が短いため、装置シャッターを開けたままで ω 軸を-90度から90度まで連続駆動させながらX線を照射して測定を行っている (シャッターレス測定)。表1には比較的早い ω 軸回転での測定 (Fast Scan、総露光時間72秒) と露光時間を長めに設定し統計精度を上げた測定 (Slow Scan、総露光時間1時間) の測定結果を示している。Slow Scan がCCDと同程度の測定時間であるが、 R 値はFast Scanにおいても同程度であり、これは単に立体構造を知りたい測定であれば1分程度の測定で十分なことが確認された。

2018A期からは本格的なユーザー提供を予定しており、測定イメージに対して強度補正を行うことで精度を向上させることが可能になるため、測定法の確立やユーザーの利便性と合わせて改良を進めている。

JASRI 利用研究促進部門

回折・散乱Iグループ

関口 博史、岩本 裕之、青山 光輝

安田 伸広、福山 祥光

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。2017A期に37課題、2017B期に40課題が採択され、概ねトラブルなく実施された。2017年度は、大面積フォトンカウンティング型X線検出器を新たに導入し、その整備を行ったので報告する^[1]。加えて、効率的な散乱計測のための集光ビームサイズの縮小化について検討が行われた。

1. 大面積フォトンカウンティング型X線検出器の導入

BL40B2では、イメージングプレートX線検出器、イメージングインテンシファイアと科学計測用のCMOSあるいはCCDカメラを組み合わせたX線検出器、ハイブリッド型フォトンカウンティングX線検出器Pilatus100 Kの3種を小角X線散乱計測用の2次元検出器としてユーザー実験に用いてきた。しかし、既存の高速な2次元X線検出器では検出面積が小さいため階層構造の動的観察は一部の領域に限られた。他方の検出面積が広いイメージングプレートではレーザー走査による強度の読み取りに数分の時間を必要とし動的な構造解析への対応が難しかった。そこで、X線の1フォトンを逐次数え上げる機能をそれぞれのピクセルごとに与え、広

い検出エリアでも短時間で読み出し可能となった大面積ピクセルアレイ検出器 (Pilatus3 S 2M, Dectris Ltd., Switzerland) を小角X線散乱計測用の2次元検出器として導入した。この導入により、高分子などの階層構造を有するソフトマテリアルの構造解析について検出エリア $253.7 \times 288.8 \text{ mm}^2$ で25 Hzまで時間発展的に計測することが可能となった。

2. X線強度モニタ用高速カウンタシステムの導入

BL40B2の入射および透過X線強度モニタシステムは0.5 Hzまで対応しているが、Pilatus3 S 2Mの導入により高速な強度モニタシステムが必要になった。そこで、ビームラインでは2台のカウンタシステム (NCT08-01B, ツジ電子) を導入し、この2台で交互読み取りを行うことにより、最大100 Hzのフレームレートで入射および透過X線強度モニタを可能とした。これまで電圧周波数変換器に最大1 MHz/10 V (SN2VF-01, ツジ電子) を用いているが、この高速モニタ時には計数値が小さくなることが予想されるので、これに加え最大100 MHz/10Vの変換器 (V2F100, Quantum Detectors) の選択を可能にした。

3. 大面積フォトンカウンティング型X線検出器用マー ジ計測法の整備

導入したPilatus3 S 2Mは横3列、縦8列の合計24のモジュールで大面積のピクセルアレイ検出器を構成している (図1A参照)、モジュール間ギャップ、すなわち格子状の不感領域が存在する (図1B参照)。ビーム

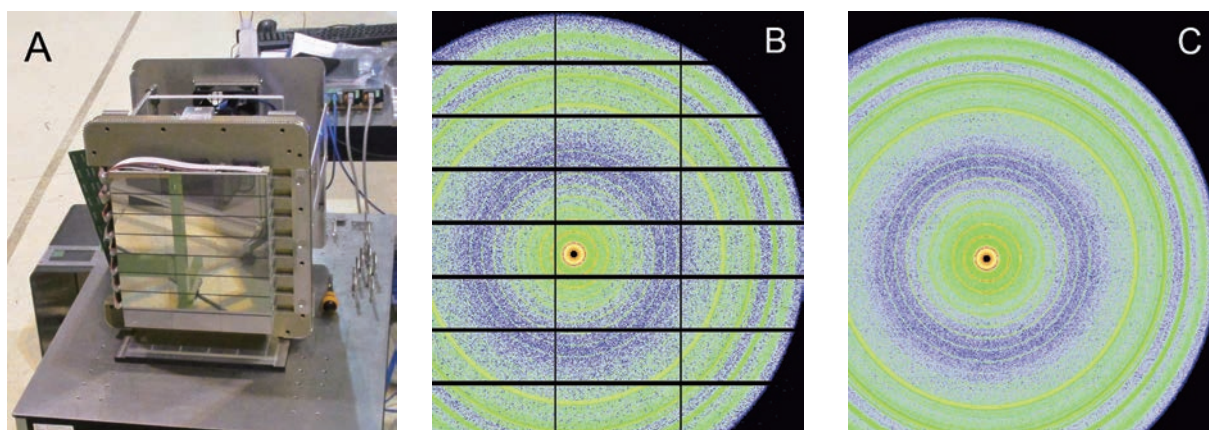


図1 (A) 24モジュールで構成されたPILATUS3 S 2M (PILATUS3 S 2Mのモジュール交換時に許可を得て撮影した)、(B) 格子状のギャップが確認できるベヘン酸銀のX線回折像、(C) 3回の計測をマージした回折像

ラインでのユーザー利用で配向性試料や、GISAXSおよびGIWAXSなどの微小角入射X線法では強度の角度分布を考察する場合にギャップの存在が問題になる。このギャップ間の強度分布を検出しマージ（図1C参照）できるようにするための整備を行った。具体的には、検出器を駆動して3回の等時間露光による撮像システムである。このシステム構築のために、Pilatus3 S 2Mだけを駆動させるZステージを新たに導入した。検出器の下にステージを収めるスペースがないために、2台のZステージを検出器の両脇に配置している。なお、この計測で必要となる時間は、露光時間に加えて検出器の移動時間4.2秒で完了した。

4. 表面力装置のための散乱計測の効率化の取り組み

BL40B2では、表面力装置によりナノメートルスケールの距離に配置した基板表面間に液体等のサンプルを閉じ込め、その閉じ込めたサンプルの構造解析が行われている^[2]。この計測時には、光路上に直径0.050 mmのピンホールを設置し、照射領域を制限することで実現してきた。このときピンホールは容易に設置できるが、強度ロスを生じるためにデータ取得にかかる露光時間が長くなる問題がある。露光時間を短縮し効率的な計測法として供するために、フラックス密度の上昇を狙い実験ハッチ内の上流（光源より51.3 m）に1 mのベンドシリンダーミラーを試験的に配置して集光ビームサイズの縮小化の検討を行った。

この検討では光学ハッチ内のミラーは用いないので光路上から退避している。したがって2結晶モノクロメーターで単色化されたX線は輸送チャンネルをそのまま通過し、実験ハッチ内に導かれる。実験ハッチ内に設置したベンドシリンダーミラーは6.4 mradの傾斜角にし、ミラーから7.4 m下流の検出器に集光した。

図2は、光源より58.7 mに設置したビームモニタで計測したX線エネルギー9 keVの集光イメージを示している。プロファイルの半値幅解析により、水平0.067 mm、垂直0.089 mmであった。ビームポジションを1時間にわたり計測したところ、水平方向の標準偏差で0.00026 mm、垂直で0.00120 mmと変動が十分小さいことが明らかになった。2017年度はこの集光光学系の試験的な取り組みにとどまったが、今後実際に表面力装置に適応していきたい。しかしながら、通常の小角散乱法が実施されている中に、実験ハッチ内にミラーチャンバーを導入し表面力装置を構築する手間と時間が必要になる。実験ハッチ内にミラーチャンバーを設置したまま小角散乱実験を実施できるようにし、表面力装置の利用時にはミラーを容易に切り替える仕組みが効率化において重要である。なお、傾斜角6.4 mradのRhコートミラーでは、

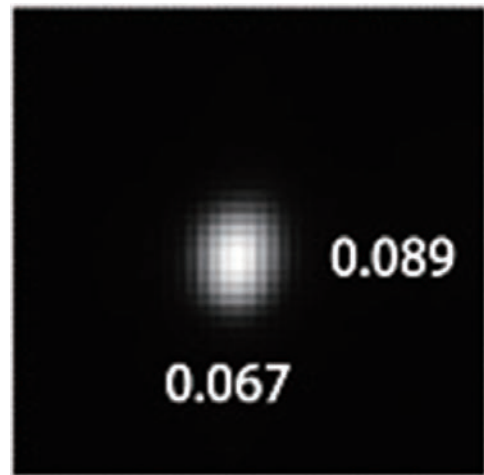


図2 集光ビームのイメージとサイズ（FWHM in mm）

利用できるX線エネルギーがおよそ10.5 keV以下に制限される。表面力装置以外に集光ビームの利用を広げるためには、エネルギー領域を広げるためのミラーの製作が必要になる。

References:

- [1]SPring-8/SACLA 利用者情報 Vol. 23 (2018) p110-120.
- [2]Nakano S. et al, *Jpn. J. Appl. Phys.* **52** (2013) 035002, Tomita K. et al., *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **20** (2018) 13721

JASRI 利用研究促進部門
回折・散乱 I 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とする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た回折データ測定を行うことができ、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。2017年度は、回折実験やビームライン調整の迅速化・効率化、微小試料からの室温データ測定方法の開発等を目的として下記項目の高性能化に取り組んだ。

1. 高エネルギーモード回折計の高性能化

BL41XUでは通常モード（6.5~17.7 keV）に加え、20~35 keVのX線を利用する高エネルギーモードも運用し、0.8 Åを超える超高分解能データ測定や、この領域に吸収端をもつ核種の位置の同定および構造決定への利用などに用いられている。このようなX線が利用できるタンパク質結晶解析ビームラインは世界的にも希有かつ国内唯一である。

2013年度から2014年度に掛けて高性能化した集光光学系・回折計は6.5~17.5 keVの通常モードに特化したものであった。そのため、高エネルギーモードは、2013B期まで用いていた回折計を実験ハッチ1に設置して実施していた。通常モードの利用時は光軸から回折計を退避しており、モード切り替えの際にビームパイプとその支柱をハッチ外に出し、空いたスペースに回折計を移動していた。このため、切り替えには労力と時間がかかり必ずしも利用しやすいものではなかった。また、ビーム調整の際にビーム位置や強度を確認するための位置モニタ・強度モニタを必要に応じて設置する必要がある、効率的なビーム調整ができなかった。

そこで2017年度は高エネルギーモードでの測定精度の向上と実験の効率化を目指し、高エネルギーモードに特化した回折計定盤の導入と試料周辺装置の一新を実施した（図1）。新しい回折計定盤・検出器架台は自動軸を用いて光軸上に出し入れを行う。このためマイクロメータオーダでの位置再現性が担保され、切り替え後の調整時間が短縮できると期待される。また、ビームパイ

プの支柱はリニアガイド上に設置するようにしたため、上下流のフランジの連結を取り外した後はスライドするだけで光軸から退避可能である。回折計定盤には新たに設計した試料周辺装置を設置している。この試料周辺装置では、通常モードとの互換性を極力担保しつつ、顕微分光装置の設置など特殊な実験に対応できるように試料の周辺に広いスペースを確保している。回折計のアライメントの迅速化のために、強度モニタ・蛍光体を常設し自動軸により出し入れを行えるようになっている。また、試料交換の迅速化・省力化を目的として、2015年度まで通常モードで使用していたサンプルチェンジャーSPACEを設置した。

新しい回折計は2018年の2月末にハッチ内に設置され、3月末までにオフライン調整を完了した。2018A期にX線を用いた調整を行いユーザー利用を開始する予定である。サンプルチェンジャー SPACEは、2018B期よりユーザー利用ができるように調整を進めている。

2. 微小結晶を用いた室温測定方法の開発

近年、室温でのタンパク質の構造解析が注目されているが、非凍結状態ではX線照射損傷が70倍以上速く進行するとされ^[1]、従来の測定方法では数十μm以下の微小結晶の室温データ測定は困難であった。そこで、SS-ROX法^[2]とHAG法^[3]を組み合わせた微小結晶からの室温データ測定方法の開発を進めた。

SS-ROX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ですくい上げて回折計に載せ、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。これまでは凍結した微小結晶を極低温気流下で測定していたが、HAG法を用いて室温で測定

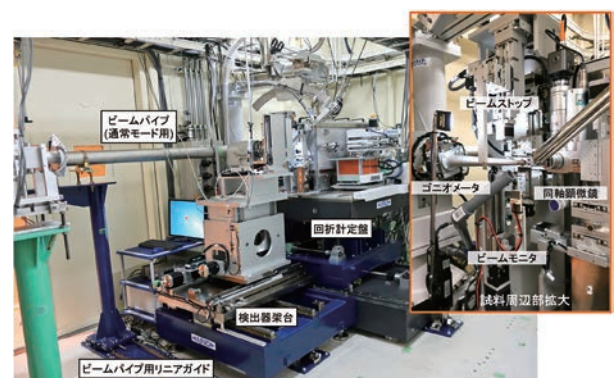


図1 実験ハッチ1に導入した回折計

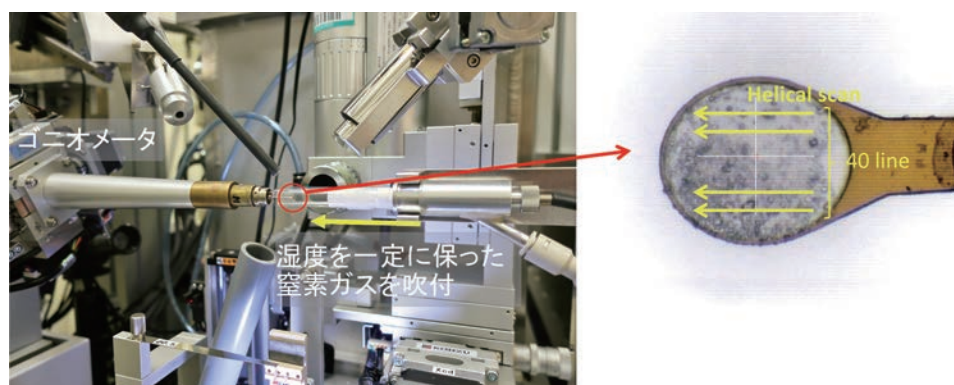


図2 SS-ROX法による室温回折データ測定

するために、ポリビニルアルコール (PVA) 水溶液を張ったループで多数の微小結晶をすくいあげ調湿気流下で測定を実施した (図2)。標準試料であるリゾチームの微小結晶を用いて測定したところ、1個のループから2 Å分解能を超えるデータを得ることができ構造解析にも成功した。

3. SPACEの高速化

2014年度にPILATUS3 6Mを導入した後、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37秒かかっており、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2016年度にSPACEに (1) マウントアームの2重化、(2) サーボモータの利用、(3) マウントアームの長ストローク化の3点の改良を行い、試料交換の時間を13秒にまで短縮した。

2017A期より運用を開始し、2017A期と2017B期合わせて22,279個のサンプルの交換がSPACEを用いて行われた。この内、サンプルピンの不良やサンプルカセットの設置ミスを除いた失敗の割合はわずか14回 (0.06%) であり、スピードだけではなく信頼性も極めて高いといえる。交換に失敗した事例の中にはサンプルピンがアームから離れない事例が見られた。その原因として、1時間以上の長時間にわたりアームを液体窒素中に浸していたために1度の乾燥で付着した水を完全に除去することができなかったことが考えられた。現在では50分以上液体窒素につけばなしにした場合は自動で乾燥するように制御プログラムを改良しており、さらなる失敗の軽減が期待される。

また、高速化したSPACEの運用開始にともない、アームの乾燥中であっても試料の位置合わせや測定ができるよう回折データ測定ソフトウェアBSSの改良も行った。これにより、アームの乾燥と乾燥後の予冷に要する時間の約2分のデッドタイムを解消することができた。

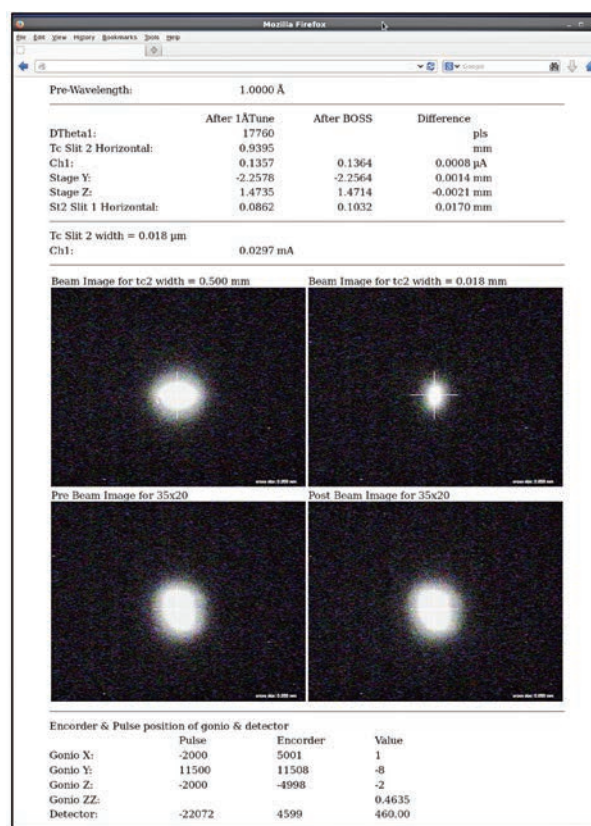


図3 BOSSによる自動アライメント後にブラウザに表示されたレポート

4. 自動ビームアライメント技術の確立

BL41XUにおけるマイクロビームの位置精度を保持するために毎朝行う調整は、これまで担当者が一つずつ調整軸の制御や記録作業を行っていたため非効率な部分があった。そこでビームライン調整の省力化と調整時間の短縮を目的として、Beamline Operation Scheduling Software (BOSS) を利用したビーム調整の自動化を行った。BOSSは各種調整作業をスケジューリングし実行可能なソフトウェアとして開発を進めてきた。また事前に入力したスケジュールを簡易に読み込むことが可能であり、毎朝行う調整作業を設定することで自動調整を実現した。これにより、20分以上必要だった毎朝の調整

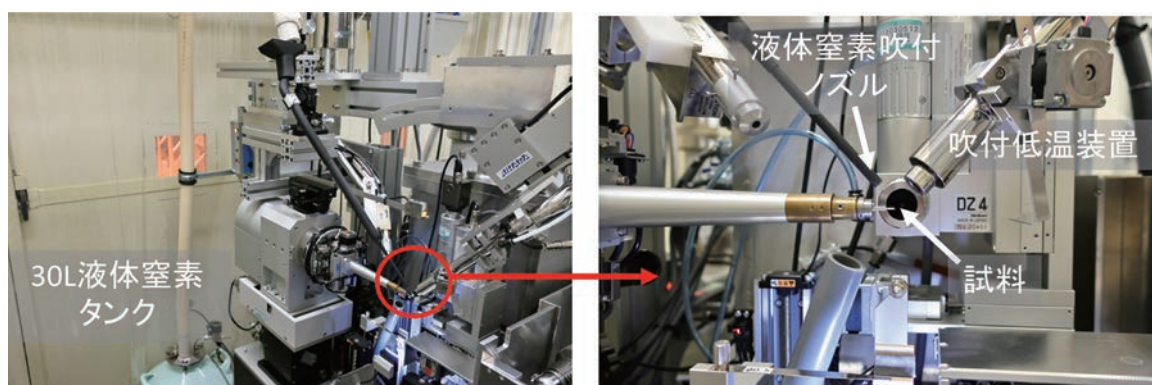


図4 実験ハッチ2に導入した凍結結晶の霜除去装置

時間が10分程度にまで短縮された。また、記録結果表示用のスクリプトも実装し、自動調整終了後に結果をWebブラウザで表示できるようになっている（図3）。

5. 凍結結晶の霜除去装置の導入

回折計に載せた凍結試料には霜が付着していることがある。このような霜は試料の位置合わせを妨げるだけでなく、アイスリングとよばれる粉末回折パターンを生じるため回折データの精度にも影響を及ぼす。液体窒素を振りかけることで霜を除去することができることが多いが、液体窒素を汲み実験ハッチ内に入る必要があることから実験の効率化の点から改善が望まれていた。そこで、遠隔操作で結晶に液体窒素をかけて付着した霜を除去する装置を導入した。この装置は、30 Lの液体窒素容器に入れた液体窒素を、試料の方向を向いたガイドパイプを通して流すことで結晶に液体窒素を振りかける（図4）。本装置の導入により、回折データ測定を行うPCの近辺に設置したコントローラのボタンを押すだけで、結晶に付着した霜を除去することが可能になった。

JASRI タンパク質結晶解析推進室

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

八木 直人、熊坂 崇

利用研究促進部門

技術支援グループ

福居 知樹

References:

- [1]Nave and Garman, *J. Synchrotron Rad.* (2005). 12, 257-260
- [2]Hasegawa *et al.*, *J. Synchrotron Rad.* (2017). 24, 29-41
- [3]Baba *et al.*, *Acta Cryst.* (2013). D69, 1839-1849

BL43IR 赤外物性

1. 概要

BL43IRは、偏向電磁石からの放射光を利用するビームラインであり、主として1.1~0.012 eV（波数は9,000~100 cm^{-1} ）の赤外線を利用した顕微分光を行っている。ビームラインでは、3つの実験ステーション（高空間分解顕微鏡、長作動距離顕微鏡、磁気光学顕微鏡）が稼働しており、2台の赤外分光光度計（Bruker IFS120HRとBruker Vertex70）を利用している。分光光度計のうち、IFS120HRは、長作動距離顕微鏡と磁気光学顕微鏡に接続されており、遠赤外領域分光、高圧ダイヤモンドアンビルセル実験、磁気顕微赤外分光実験に使用されている。Vertex70は高空間分解顕微鏡に接続されており、低温・高温・湿度・溶液・紫外線照射など様々な条件下での高空間分解顕微赤外分光や顕微ATR測定に利用されている。2017年度は、分光光度計IFS120HRの基準レーザー故障による交換、実験装置を乾燥空気雰囲気にするパージシステムの運用変更、湿度調整セルの作製、磁気光学顕微ステーションの改造を行ったので報告する。

2. 利用状況

2017Aおよび2017B期では、合わせて45課題の応募があり、38課題が実施された。応募課題のうち9課題は新規利用課題であった。ビームタイムでみた採択率は、2017A期が86%、2017B期は68%であった。図1に2017Aおよび2017Bに実施された課題の利用分野ごとの割合を示す。利用分野が多岐に渡っているのがBL43IRの特徴

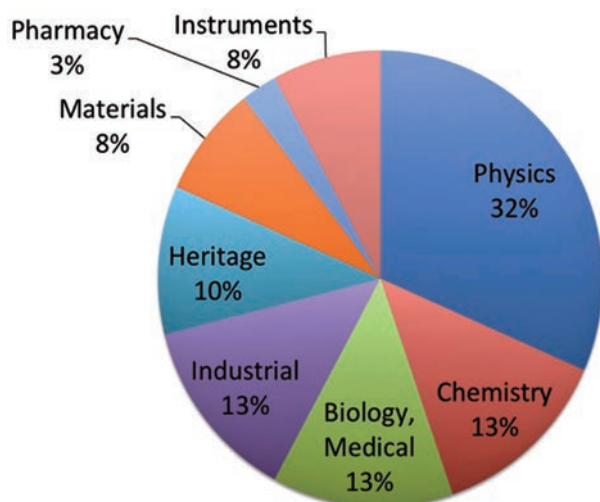


図1 2017Aおよび2017B期実施課題における利用分野別割合

であるが、物性物理が最も多いことがわかる。BL43IRでは、パートナーユーザーとして、東北大学の佐々木孝彦教授が選任されており、2016および2017年度の2年間活動を行った。2017年にはパートナーユーザーの延長申請を行い、さらに2年間の延長が認められた。研究テーマは、「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」で、研究成果をScience誌を含む科学雑誌に論文発表したほか、顕微・磁気ステーションの整備に多大な貢献があった。また、これらのステーションを利用する物性研究課題について利用支援も行った。

3. 分光光度計基準レーザー交換、パージシステム運用変更など

1999年度に導入したBruker IFS120HR赤外分光光度計は、現在も主要な測定機器として活用しているが、経年劣化による故障がしばしば発生する。2017年度には、干渉計の基準レーザー（HeNe レーザー）が機器寿命により発振しなくなり、新しいものに交換した。従来の規格品がすでに生産中止となっているため、今回はBruker社の特別生産品の在庫分でまかなった。今後、交換用部品（基準レーザー、制御ボードなど）の入手ができなくなることが懸念されるため、現在新しい赤外分光光度計への入れ替え計画を進行中である。

赤外スペクトル測定においては、大気中の二酸化炭素と水分がスペクトルに構造を与えるため、光路は真空もしくはこれらの成分を減らした乾燥空気のパージが必要がある。2016年度に整備した乾燥空気パージシステムにおいて、使用しているうちに徐々に二酸化炭素と水が除去できなくなる現象が生じたため、パージガスジェネレーター内部の吸着塔から、機器のパージカバーの密閉性までの保守を実施した。性能劣化の原因として、流量の限界値に近い、もしくは多少越える流量のパージガスを流し続けたことによる吸着塔処理能力の低下が疑われた。そこで、パージガス流量を性能値の7割程度に抑え、また年に数回、吸着塔の再生作業を行うことで状況が改善した。

図2は、高空間分解顕微鏡ステーションにおいて測定した入射光強度分布スペクトルであり、上段が流量や再生作業の対策を行う前、下段が対策後のスペクトルである。2,340 cm^{-1} 付近に観測されているピークがCO₂、

1,400~1,770 cm^{-1} および 3,550~3,900 cm^{-1} に観測されているのが H_2O の吸収による構造である。光路中にこれらのガスが多いほどディップが深くなってなる。 CO_2 によるディップは上段では強度の77%の深さになっているが、下段では21%まで改善している。実際のスペクトル測定の際には、測定試料がない状態で測定したスペクトルを I_0 、試料がある状態で測定したスペクトルを I_t として、 I_t/I_0 の透過スペクトル、あるいはそこから吸収スペクトルへの変換などを行う。大気中の CO_2 や H_2O によるディップ構造は小さく安定していれば、スペクトルの演算により十分除去可能であり、パージ流量および

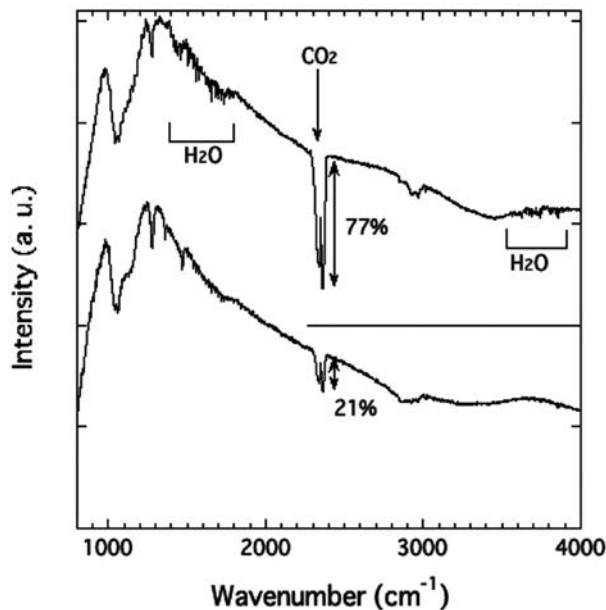


図2 高空間分解顕微鏡ステーションにおいて、顕微鏡の試料位置に何も置かない状態で測定したスペクトル。上段はパージシステム対策前、下段は対策後のスペクトルである。

再生処理の対策を施した後のスペクトルでは、透過・吸収スペクトルへの影響は十分小さいことが確認された。今後、パージシステムの運用においては、流量制限・吸着塔再生処理を行うこととした。

4. 顕微鏡

4-1 湿度制御セル

BL43IRでは、様々な試料環境下で顕微分光を行うための装置開発を行ってきた。2017年度は、湿度を制御した状態で測定を行うためのセルを作製し運用を開始したので報告する。セル開発にあたっては、JASRIタンパク質結晶解析推進室の馬場研究員の協力のもと、タンパク質の構造解析に利用されているセルを参考にした。図3は湿度制御セルの外観である。測定試料は赤外を透過する BaF_2 基板（直径10 mm）にのせて、セル内部にセットする。セルの上部は、直径40 mmの BaF_2 で蓋をされている。 BaF_2 基板、 BaF_2 窓と、リング状のアルミで囲われた狭い空間に、湿度をコントロールしたガスを流入させる。ガスは窒素ガス発生装置から取り出した窒素ガスだが、湿度制御装置によって、水分を混入させてある。セル内の湿度は、試料近くに配置したセンサーで読み取っている。セルは、高空間分解顕微鏡にセットするが、倍率が高い（36倍）対物鏡の作動距離は10 mmと短いため、セルの厚みは5 mm程度となるよう設計した。湿度は、およそ10~90%の範囲で制御可能である。通常赤外分光を行う際は、光路中に水分があると、スペクトルに構造を与えるため乾燥空気のパージして排除する。湿度調整セルは試料近くの限られた空間で短い光路にだけ水分が存在する設計とし、また、流入させるガスの湿度

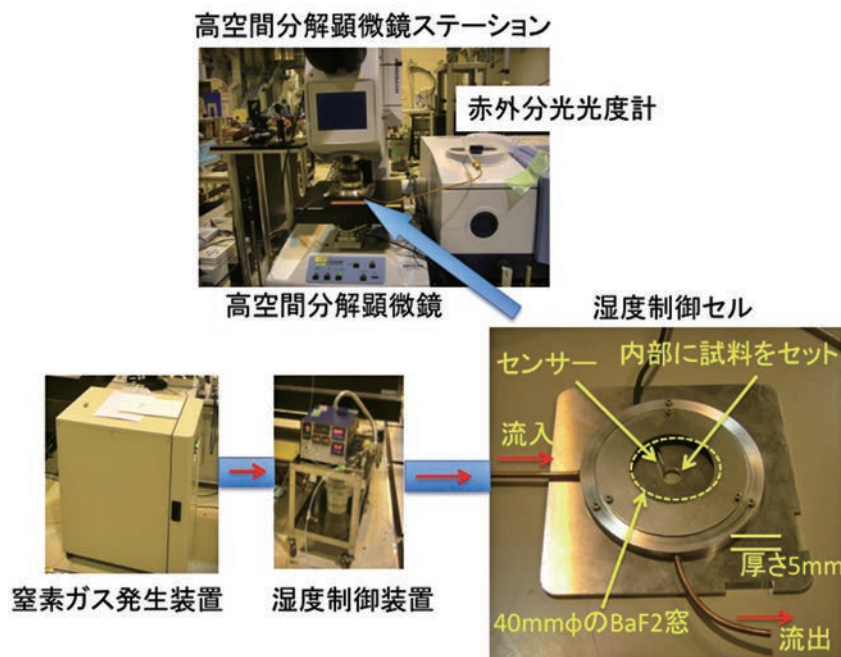


図3 湿度制御セルの外観

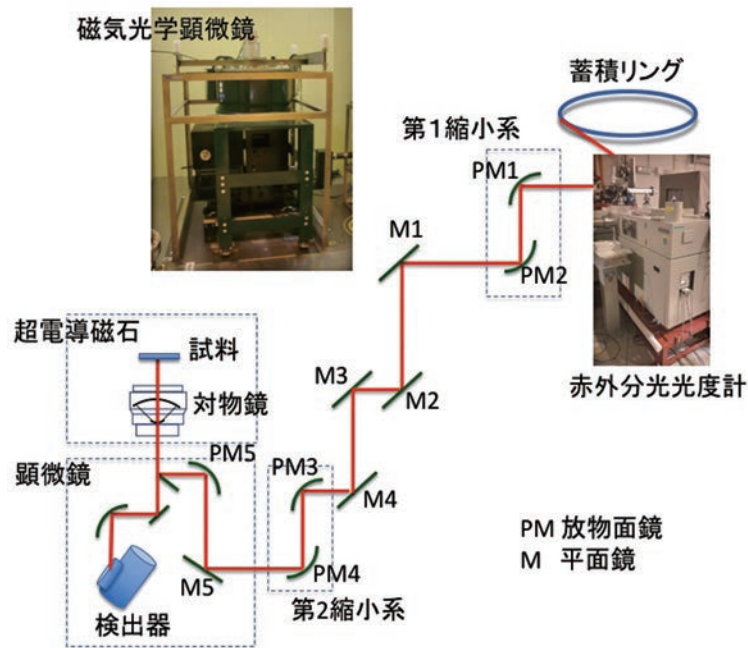


図4 磁気光学顕微鏡ステーションの装置改造前の光学配置図

は、湿度制御装置で十分安定な状態にして利用した。これにより、湿度によって状態が変化する試料の測定を行えるようになった。2017A期以降、複数の課題に利用されており、新規課題獲得にも繋がっている。

4-2 磁気光学顕微鏡ステーション

磁気光学顕微鏡ステーションは、最大磁場 14 T の超伝導磁石と、赤外顕微鏡を組み合わせた装置でできており、磁場下での顕微分光を目的としている。このような装置は、世界の赤外ビームラインで、BL43IR においてのみ稼働しており、重要な装置である。しかし、ビームライン開設当初は利用があったが、以降 10 年近く利用がない状態であった。クライオスタットの液体ヘリウム消費量が膨大であることや、光路途中における赤外光の損失が大きく、強度が十分得られないことなどが問題であった。そこで、パートナーユーザーである東北大学の佐々木孝彦教授、井口敏准教授と共同で、磁気顕微分光ステーションの再整備を進めている。2016 年度はクライオスタットを新たに設計し、液体ヘリウムの消費量を 1/5 以下に抑え、なおかつ、広い波数帯域に対応できるものを導入した。2017 年度は、赤外光のロスを抑える光学系の再設計を行った。図 4 には磁気光学顕微鏡ステーションの装置改造前（2016 年）の光路模式図を示した。図中の PM は放物面鏡、M は平面鏡である。顕微鏡は反射配置のみが可能である。光路の詳細は、[1] を参照していただきたい。従来の光路設計では、赤外分光光度計を出た赤外光を、第 1、第 2 縮小系で縮小し、顕微鏡に入射することとなっていた。縮小系は、焦点距離の異なる 2 枚の放物面鏡からなっており、第 1 縮小系で

は計算上 1/6、第 2 縮小系では 1/4 に縮小する設計であった。これらの設計は、赤外分光光度計から出た光が平行光であることを想定している。しかし、実際には拡大方向に広がりつつ伝搬しており、さらに、広がりによって異なる。このため、縮小系は設計通り働かず、顕微鏡に到達した際にはビームプロファイルの極端な悪化と強度の損失をもたらしていた。そこで様々な検討を行った結果、以下の対策を加えることとした。

- ・第 1 縮小系の廃止
- ・作り込みであった第 2 縮小系を可変タイプに変更

また、操作性を悪くしていたチャンバー類を廃止し、M3、M4、M5 ミラーを通常のミラーホルダーで調整可能な機構に変更した。このほか、M1、M2、M3、M4、M5 は従来使用していたミラーよりも 1.5 倍程度の大きさのミラーに変更し、光の損失を抑える設計とした。これらの対策により、光強度は波数に依存して約 2 倍程度となり、実用的な利用が可能となった。磁気光学顕微鏡ステーションは、2017A 期よりパートナーユーザー以外の利用も開始し、新規課題の創出に貢献している。今後さらに光学系の改良を進め、測定の効率化を図る予定である。

Reference:

- [1] S. Kimura *et al.* *Physica B* 349-333 (2003) 1625.

JASRI 利用研究促進部門
分光解析 I グループ

森脇 太郎、池本 夕佳

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。2017年度BL46XUでは第1実験ハッチにおいて多軸X線回折装置実験のためのCompound Refractive X-ray Lenses（CRL）を用いた集光光学系の整備を行い、第2実験ハッチではHAXPES装置用の加熱サンプルステージを導入した。それぞれの詳細について以下に報告する。

2. Compound Refractive X-ray Lenses（CRL）を用いた集光光学系の整備

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、シリコン基板もしくは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。薄膜X線回折・散乱において有機薄膜エレクトロニクス、磁性薄膜、パワー半導体、強誘電薄膜など機能性薄膜の結晶構造・配向性評価が中心である。これまで高角度分解能測定を念頭に置いたX線検出系に加えて、2次元検出器PILATUS 300Kを用いた広い逆格子空間の高速測定システムを導入し、大量試料の高スループット測定や*in-situ*測定環境を整備し、当該分野のSPRING-8積極利用・成果創出を推し進めてきた。

さらに本多軸X線回折装置ではユーザー実験の多様性に対応するため、入射X線のビームサイズの選択幅を広げる技術開発を行っている。薄膜試料表面に対して入射X線の入射角が全反射臨界角近傍のすれすれ入射配置の微小角入射X線回折実験において、入射X線のビームサイズを数 μm に絞ることで以下のメリットがある。

①薄膜試料表面に照射される光子数の増加

機能性薄膜試料の微小角入射X線回折実験において、試料サイズはおおよそ5-10 mm角である。この場合入射角を 0.12° と仮定すると、試料表面が受けることができる入射X線幅は約10-20 μm である。BL46XUでは実験ハッチ最上流でのビームサイズは500 μm 程度であることを考えると、わずか数%のX線しか試料表面に照射されておらず、残りは捨てていることになる。開口や

回折効率に依存するが集光光学系を用いることで試料表面に照射される光子数を約10倍に向上させることができ、測定的大幅な効率化が期待できる。

②微小領域観察

マイクロビームにすることで微小領域の観察が可能になる。例えばトランジスタ用の薄膜であれば、これまでX線回折評価用のベタ膜を測定しているが、マイクロビームになれば金属電極間のチャンネル部分を評価するなど、より実デバイスに近い状態での評価が可能になる。

③角度分解能の向上

微小角入射X線回折・散乱法では試料表面に対し全反射臨界角近傍のすれすれ入射角でX線を照射するため試料表面でX線照射領域は長く伸び、多くの試料の場合、試料表面全面が照射される（図1）。そのため2次元検出器を用いた測定では、試料からの回折線も長く伸びる。これは角度分解能が低下していることに相当し2次元検出器を用いた測定の弱点といえる。角度分解能低下によりピーク位置の精密な決定、近いピークの分離、ピーク幅の算出が困難になり、格子定数などの構造決定の精度を著しく低下させる。2 μm 程度のマイクロビームが利用できると入射角 0.12° でもX線の照射幅は1 mm以下に抑えられることで2次元検出器特有の弱点を克服し、より精密な構造の議論が期待できる。

④バックグラウンドの低下

有機薄膜は原子散乱因子が小さい・結晶性が低い・散乱体積が小さい、などの理由で試料からの回折・散乱X線強度は極めて低い。そのため高輝度放射光の利用が必須となるが、バックグラウンドの低減も重要な技術要素となる。通常のビームサイズでは、試料基板のエッジからの散乱と試料に照射されなかったX線の空気散乱がバックグラウンドの主要因となる（図1）。マイクロビームが利用できるこれらのバックグラウンドを大幅に下げることが期待でき、膜厚の薄い薄膜や結晶性の低い試料の評価が実現できると期待している。

BL46XU HUBER社製多軸X線回折装置では将来的には20-30 μm 以上のビームサイズには従来通りのスリット成形、5-20 μm のビームサイズにはCRL集光光学系、5 μm 以下のビームサイズにはFZP（フレネルゾーンプレート）集光光学系を採用することでビームサイズ選択幅を確保し、これらのビームサイズを容易に切替えることができる光学システムを構築することを計画してい

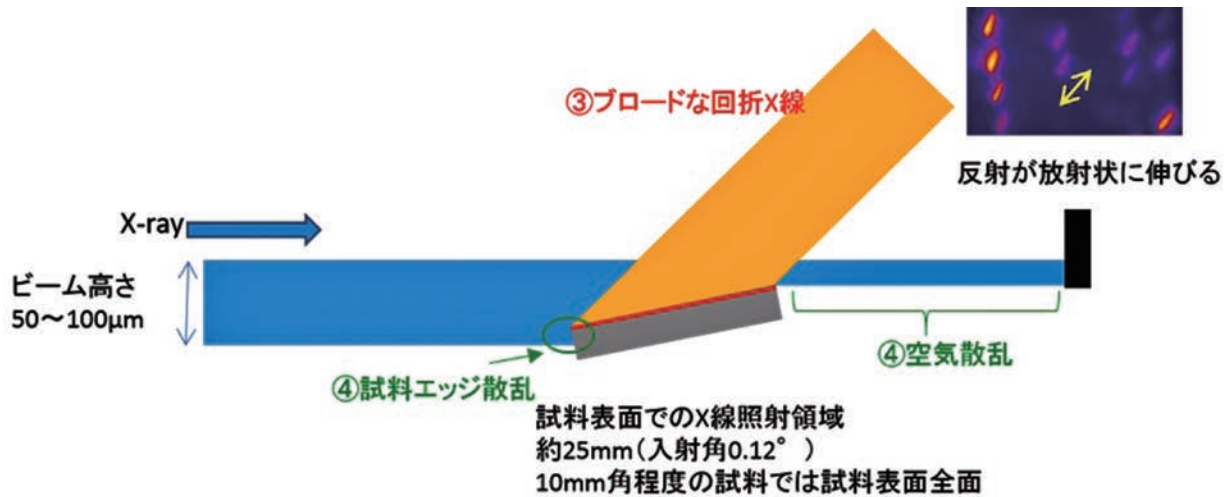


図1 微小角入射配置における角度分解能低下とバックグラウンドの上昇

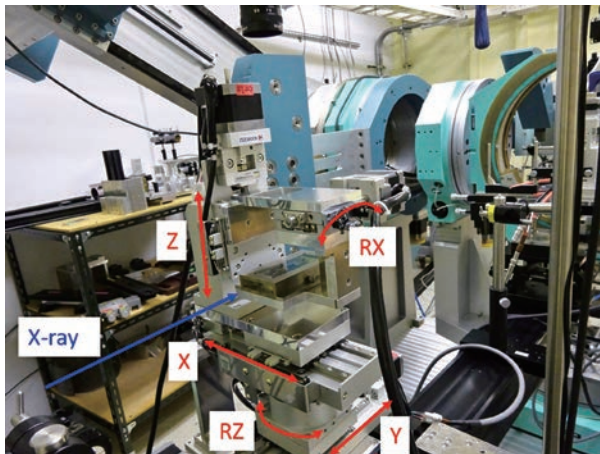


図2 CRL位置調整機構

る。集光光学系としては最初にFZPを用いたマイクロビーム光学系の立上げを2014年から実施し、既にユーザー実験に共用を始めている。2017年度からはCRLを用いた集光光学系の立上げを行った。

導入したCRLはKarlsruhe Institute of Technology (KIT), Institute of Microstructure Technology (IMT) 製で、以下の4種のレンズである。

- 1, 12.4 keV 縦方向line集光、焦点距離約1200 mm、レンズ数5
- 2, 12.4 keV point集光、焦点距離約1200 mm、レンズ数5×2
- 3, 15.0 keV 縦方向line集光、焦点距離約500 mm、レンズ数10
- 4, 15.0 keV point集光、焦点距離約500 mm、レンズ数10×2

これら4種のレンズが一つのシリコン基板上に設置されている。CRL位置調整機構を図2に示す。X線光軸方向をY軸、Y軸と直交し水平方向をX軸、鉛直方向をZ軸とすると、位置調整機構はXYZ自動ステージとX軸方向とZ軸方向を回転軸とする自動回転ステージの合計

5軸から構成されている。自動ステージ下部にはラフに位置合わせを行う手動XZ軸も取り付けられている。このCRL位置調整機構はY軸方向に設置されている光学ベンチ上に設置する。4種のレンズの切替えには自動X軸ステージと自動Z軸ステージを用い、焦点距離の調整には自動Y軸ステージを用いる。各レンズの評価には直径300 μmの金ワイヤーを用いたナイフエッジスキャンを行い、焦点距離・焦点深度・ビームサイズ・ビームサイズ安定性等を評価した。15.0 keV 縦方向line集光用レンズの評価結果を図3に示す。図3 (a) は光軸方向に金ワイヤーの位置を移動させてナイフエッジスキャンによりビームサイズを評価した結果であり、最もビームサイズが小さくなるワイヤーの位置で、CRLからの距離は設計値どおりの約500 mmであった。ビームサイズが最も小さくなった位置でのナイフエッジスキャンと微分プロファイルを図3 (b) に示す。微分プロファイルの半値幅よりビームサイズは約3.0 μmであった。これらの4種のレンズの評価結果のまとめを以下に示す。

- 1, 12.4 keV 縦方向line集光：ビームサイズ 5~10 μm (縦)
- 2, 12.4 keV point集光：ビームサイズ 4μm (縦) × 18 μm (横)
焦点距離：約1200 mm
- 3, 15.0 keV 縦方向line集光：ビームサイズ 2~3 μm (縦)
- 4, 15.0 keV point集光：ビームサイズ 2~3 μm (縦) × 35 μm (横)
焦点距離：約500 mm

3. HAXPES R4000装置における加熱サンプルステージの導入

BL46XU HAXPESではSiC、GaNなどのパワー系半

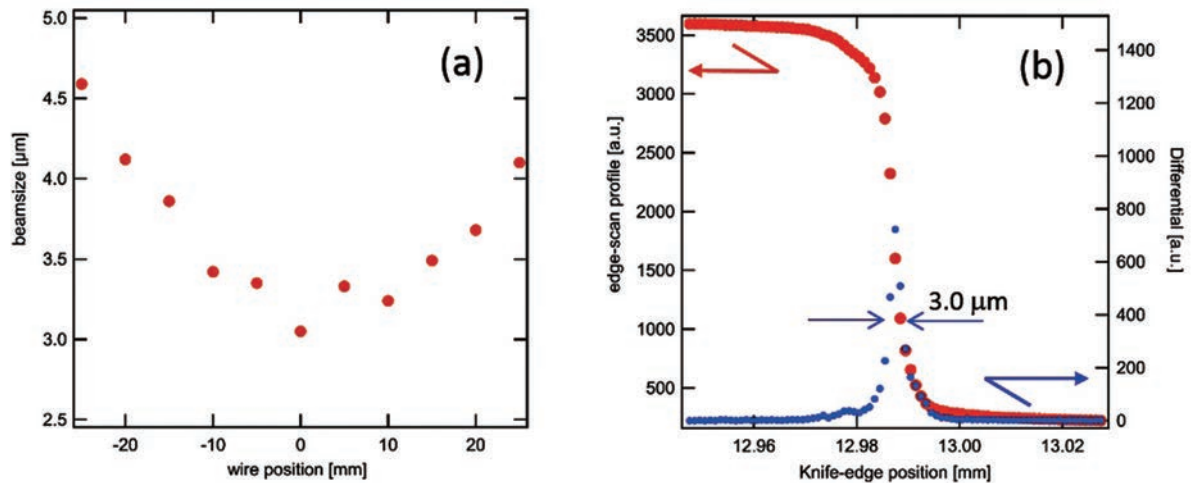


図3 15 keV縦line集光用レンズの評価結果
(a) 焦点位置評価 (b) ナイフエッジスキャンによるビームサイズ評価

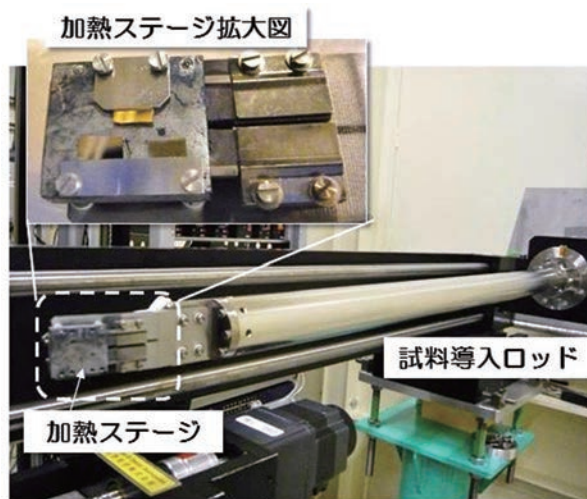


図4 HAXPES R4000装置用加熱サンプルステージの外観写真

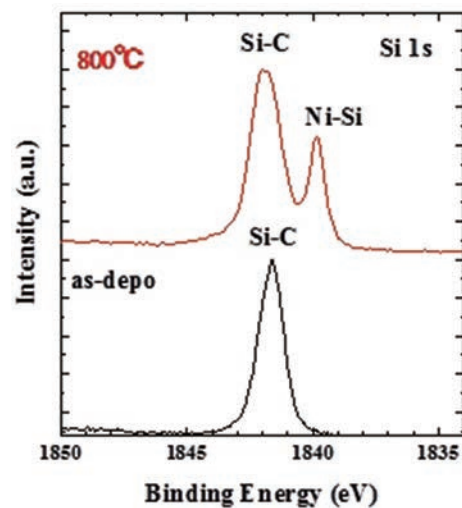


図5 励起X線エネルギー：8 keV、光電子の脱出角度：80°で測定した800°C 1分加熱前後のNi/SiC基板のSi 1sスペクトル

導体デバイスに関連した新規利用開拓を行っている。中でもオーミック特性を得るための熱処理による界面シリサイド層の形成やデバイスの熱的安定性などの高温プロセスに着目した課題が多く、熱処理後の大気非暴露での測定や、高温状態での *in situ* 測定実現が要望されていた。これらに対応するため、2017年度に加熱可能なサンプルステージをBL46XUのHAXPES R4000装置（VG Scienta 社製アナライザー）へ導入した。

図4に導入したHAXPES装置用加熱サンプルステージの外観写真を示す。本加熱サンプルステージは試料導入ロッド部、フランジ部、加熱ステージ部により構成され、SiCヒーターにより1000°C程度までの加熱が可能である。サンプルステージや試料固定用治具の材質には高温耐熱性のあるモリブデンを用いている。

図5は本加熱サンプルステージを用いたオーミック電極形成のためのNi/SiC基板界面のシリサイド層形成についてHAXPES測定を行った結果である。この図が示

すように加熱で形成されたシリサイドに対応する信号が検出され、加熱サンプルステージが良好に動作することを確認できた。

JASRI 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. 走査結像型X線CT装置の安定化および高速化

走査結像型X線CT装置（Scanning-Imaging X-ray tomographic Microscope, 以下SIXM）は空間分解能約200 nmを達成し、試料によるX線の位相シフト量と吸収量を同時に定量計測できる3次元X線顕微鏡である^[1,2]。8 keV前後の硬X線を利用したSIXMがSPring-8 BL47XUで現在稼働中である。

本手法は走査と結像という2通りの撮像法を組み合わせた手法であり、純粋な結像光学系と比べて、走査型特有の長所である複数モード同時測定（ここでは位相と吸収）、高空間分解能、および高濃度（コントラスト）分解能という特長を持つ反面、計測時間が長いという短所も有する。典型的な測定例（視野50 μm 、スキャンピッチ100 nm、750投影）では1測定に約3時間必要であった。結像型CTでは同程度の計測が約10分で完了することと比較すると約10倍の開きがある。このため、条件によっては長時間測定によるドリフトの影響が無視できない場合もある。BL47XUの結像光学系では、約10時間で400 nm程度と空間分解能を超えるドリフトが発生することが分かっている。

これらの影響を軽減するため、2017年度は測定系の高剛性化と高速化、即ち実験定盤の更新と試料走査軸の更新を行った。定盤はBL47XUに既設のものよりもキャリア用搬送レールを増やすことで高剛性化を図った。これにより、計測系の上下動の抑制が期待でき、実際にドリフト量は10時間あたり上下左右とも200 nm程度にまで減少した。また、走査軸にはこれまではステッピン

グモーター駆動のものを用いていたのに対して、約200 μm のストロークを持つピエゾ駆動型ステージを新たに導入した（神津精機製B16-080。図1参照）。測定時間に関して、後者は前者と比べて、バックラッシュ補正駆動が必要ない、応答が早いといった利点を持つ。積算時間での制約はあるものの、同じような計測条件では2時間程度まで計測時間の短縮が可能になった。さらに、これにより1日あたりに計測できる試料数が増えるといった副次的効果も得られた。図2に計測例を示す。視野60 μm 、スキャンピッチ111 nm、750投影で計測時間は約1.5時間である。

SIXMでは測定生データを処理することで初めてX線



図1 走査結像型X線CT装置の試料部

従来のモーター使用の並進ステージと回転ステージの間にピエゾステージ（神津精機製B16-080）を設置した。

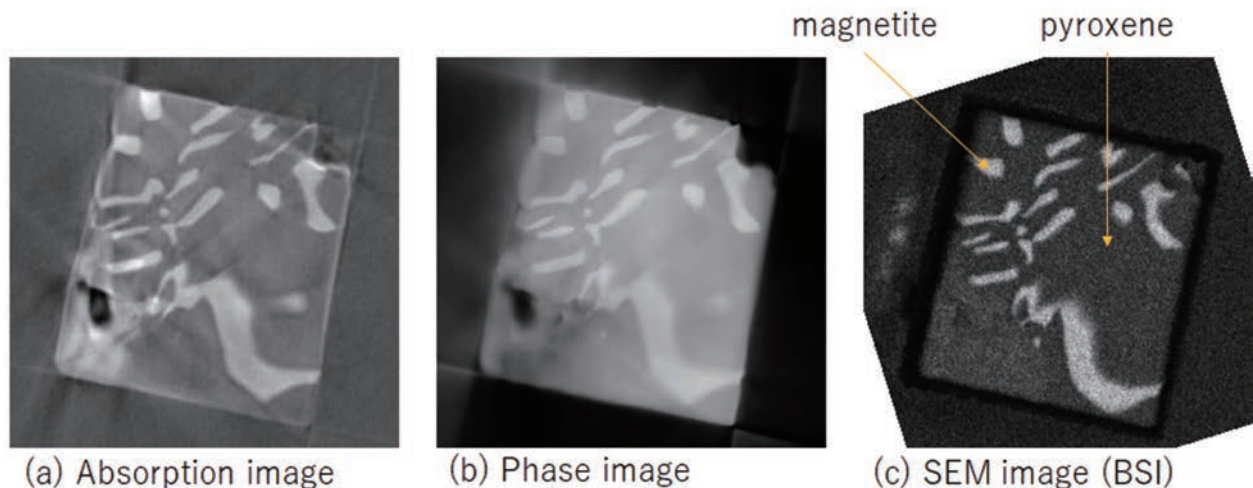


図2 走査結像型X線CTの計測例。輝石中に磁鉄鉱が分布している岩石を切り出した物。試料の一边は約20ミクロン。比較のため電子顕微鏡像も(c)として示した。

イメージデータが得られる。生データの量は1回の測定あたり 50 GB-200 GB 程度となり、一枚の画像を得るにも計算処理に多大な時間を要していた。これを高速に処理し画像再構成までの時間を短縮するためのソフトウェア開発を行った。すべての積層方向のデータを一度に処理することで従来は数時間要した画像処理時間が約 20 分程度にまで短縮された。これにより実験時間中の確認や計測へのフィードバックが可能となり、システムとしてよりユーザーフレンドリー化が進んだ。

参考文献

- [1] A. Takeuchi, et. al., *J. Phys. Conf. Series* 83 (2012) 083701.
- [2] A. Takeuchi et. al., *J. Synchrotron Rad.* 20 (2013) 793.

(上杉 健太郎、竹内 晃久)

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、バルク感度を活かし、広角対物レンズを用いた角度分解深さ分析や、Kirkpatrick-Baez (K-B) ミラーによる $\phi 1 \mu\text{m}$ 集光ビームを用いた、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型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、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、2017年度のHAXPES実験ステーションの整備・高度化として、ビーム同軸から測定試料を拡大観察できる試料位置決め用長焦点光学顕微鏡シス

テムの整備について紹介する。

試料位置決め用長焦点光学顕微鏡システム

光電子分光では、アナライザー焦点に試料位置を合わせることで、光電子検出強度が最大となるため、3次元的に最適位置を決定する必要があるが、BL47XUのHAXPES計測では、その試料位置決めの難しさが問題となっていた。これまで、ビーム入射方向斜め 45° 方向と、光電子アナライザー背面のビューポートの2か所からの試料観察用カメラを用いて、試料位置決めを行っていた。しかしながら、特に、K-Bミラーを用いた $1 \mu\text{m}$ 集光時には、K-Bミラー集光光学系との物理的干渉のため、ビーム入射方向のカメラに拡大レンズを取り付けることができず、その視野は 300 mm 程度と不十分であった。一方、光電子アナライザー側は広角対物レンズの電場補正用メッシュを通して観察するため、非常に視認性が低かった。K-Bミラーを用いた実験が年々増加しており、試料の視認性の向上が強く求められていた。

そのため、ビーム入射同軸から試料を観察することができると光学顕微鏡システムの導入・整備を行った。そのシステムを図3に示す。ビーム入射軸に対して 45° 傾斜させた穴あきミラーを配置し、そのミラーを通してビーム入射と垂直方向のカメラより試料を観察するものである。試料観察チャンバーを経由するため、試料から 300 mm 以上離れた場所から観察する必要があり、長焦点光学顕微鏡システムを採用した。顕微鏡の観察倍率は可変であり、実視野 $\phi 21.6 \sim \phi 1.8 \text{ mm}$ の範囲で連続的にズーミングすることが可能である。上記の溶液・ガス環境セルの実験においては数十 μm 程度の微小な「窓」を通して光電子を取り出すため、試料位置決めに数時間程度を要していたが、本システムの導入により、30分程度に大幅に短縮できた。測定位置の信頼性が増すだけでなく、これまで、試料位置決めにかかっていた時間を測定に利用できることから、データの質の向上に繋がるな

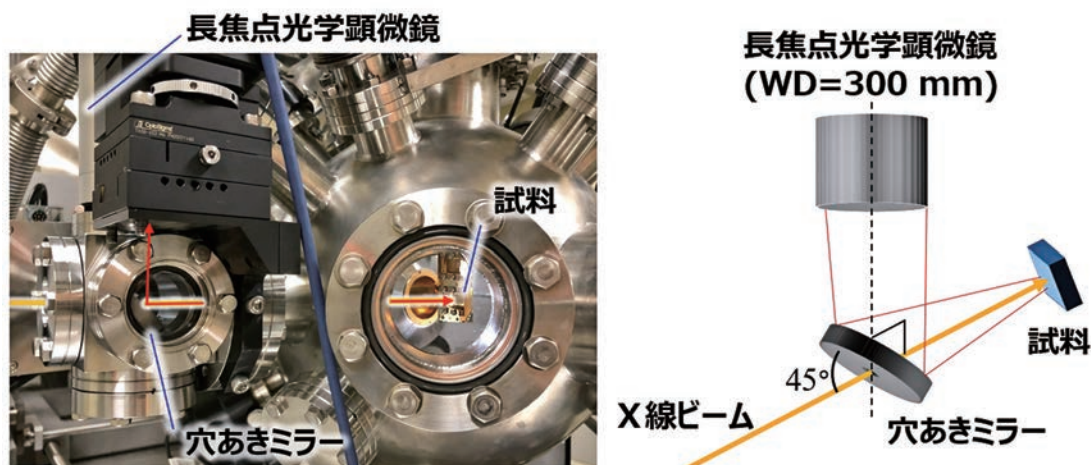


図3 試料位置決め用長焦点光学顕微鏡システムの写真と概念図

ど、ユーザビリティが飛躍的に向上した。

参考文献

[3] E. Ikenaga *et al.*: *J. Electron Spectrosc. and Relat. Phenom.* **190**, 180-187 (2013).

(保井 晃、高木 康多)

JASRI 利用研究促進部門
イメージンググループ

上杉 健太郎、竹内 晃久

分光解析IIグループ

保井 晃、高木 康多

1-3-2. 理研ビームライン

理化学研究所放射光科学研究センターでは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12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線による蛍光を活用した新規走査型回折顕微鏡など新しい測定手法を開発している物理科学ビームライン I（BL29XU）、また2016年度からユーザー利用を開始した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）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6本の理研ビームラインにおいて順調に技術開発と利用実験を進めている。以下では、運用中のビームライン（BL26B1&B2、BL32XU、BL45XU、BL19LXU、BL44B2、BL17SU、BL29XU、BL43LXU、BL05XU）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ことにより、オペレータの介助による従来の専用ネジ式ピンを利用した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、創薬研究における複合体構造解析等、大規模なスクリーニング実験の実施を見据えたデータ収集効率化を目指し、高速二次元検出器の導入等ビームライン機器や測定システムの高度化を継続して行っている。2017年度はBL26B1にて開発を進めてきた結晶化プレートスキャン装置の試験利用を開始した他、さらなる自動化を進めるため、実験ハッチ内に保管した複数の結晶化プレートを産業用6軸ロボットハンドで自動交換する、プレート自動交換装置を導入した（図1）。利用できる結晶化プレートは標準的なSBS96穴規格に対応しており、9枚のプレートを挿入可能なプレートホテル6個を内蔵可能な恒温槽を備え、合計54枚のプレートが収納可能である。現在基本動作試験を進めると共に、ビームライン制御系と連携して自動測定を進めるためのインターフェース開発を進めており、2018年度中にユーザー利用に供する予定である。

またビームラインでの回折データ収集に加え、タンパク質の結晶化から構造解析までを含めた、オンサイト支援の拡大を目指した装置の整備や高度化を進めている。上記ビームラインに導入したプレートスキャン・自動交換装置は、2017年度サイト内に導入したオフライン結晶化観察装置 RockImager54（Formulatrix 社）のプレートホテルをそのまま設置可能な互換性を持つ設計であり、将来的に試料情報の共有等の連携を見据えている。



図1 BL26B1実験ハッチ内のプレートスキャン・自動交換装置
プレート交換用6軸ロボットおよび54プレート保管可能な
恒温槽

これらに加え、利用者が膨大な試料情報と解析データを含む一連の実験のフローにサイト外からネットワークを通じてアクセスする環境を整えるため、D-Chaの機能を拡張した新規Webデータベースシステムの開発や、遠隔実験において膨大な回折データの転送を不要とする、自動データ処理パイプラインの開発も進めている。

参考文献

- [1]Murakami, H., *et al.* (2012). *J. Appl. Cryst.* **45**, 234-238.
- [2]Ueno, G., *et al.* (2006). *J. Struct. Funct. Genomics*, **7**, 15-22.
- [3]Okazaki, N., *et al.* (2008). *J. Synchrotron Rad.* **15**, 288-291.
- [4]Ueno, G., *et al.* (2016) AIP Conference Proceedings **1741**, 050021.
- [5]Baba, S., *et al.*, (2013), *Acta Cryst.* **D69**, 1839-1849.

(上野 剛)

2. ターゲットタンパクビームライン (BL32XU)

BL32XUは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2010年度から運用を開始した。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ミクロンとなっており、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。

2017年度も2016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った。特に2015年から開発を進めてきた自動データ収集システムZOOの運用と高度化について注力した。上半期はユーザーが凍結試料をSPring-8 BL32XUに送付し、結晶サイズ、目的（データ収集か結晶化スクリー

ニングか）などを担当者に伝え、担当者が自動測定を行いデータと測定終了後の容器を返送するというモデル実験を数多く行い、自動運転のテストスタディを行った。これにより、測定効率が手動測定に比較して3～5倍程度良いことがわかるとともに自動測定へのニーズ、さらに自動測定に求められる機能について実験結果に基づいて検討した。放射光施設を訪れずとも構造解析に必須なデータ収集を完了できるケースが増えてきた。またテストスタディを通して自動データ処理および解析に関する自動化について検討項目を洗い出すことができた。実際にはレポート機能の拡充とデータマージ結果の返送の方法などが課題であると考えこれらを今後の課題として設定し高度化を進めている。

上述したテストスタディの結果、自動測定に求められる機能として結晶サイズによってデータ収集スキームを選択するということが挙げられた。自動データ収集システムZOOでは利用できるビームサイズと結晶サイズに応じて種々の測定スキームを選択することが可能であるが、例えば600ミクロン程度のループの中に数十ミクロンの結晶が数十個凍結されたものを測定対象とした場合には“small wedge”法（一つの結晶から5～10°程度のデータを大量の結晶から収集）と呼ばれる方法を適用する。またビームサイズよりも大きな結晶がループ上に1-3個程度凍結された測定試料からはより広い、例えば90-360°の範囲の回折データについて一つの結晶内で照射点を並進させながら収集するヘリカルデータ収集法を適用する。自動測定プログラムの問題は、人間であれば結晶のサイズを認識してそれぞれに適した測定スキームを選択するところを、いずれかの方法しか適用できない点にあった。そこで、ミックスモードと称する2つの方法を合わせた自動測定をZOOに実装した。ループ上に凍結されている結晶のサイズや空間的な配置を考慮して、それぞれの結晶に適した測定スキームを選択して適

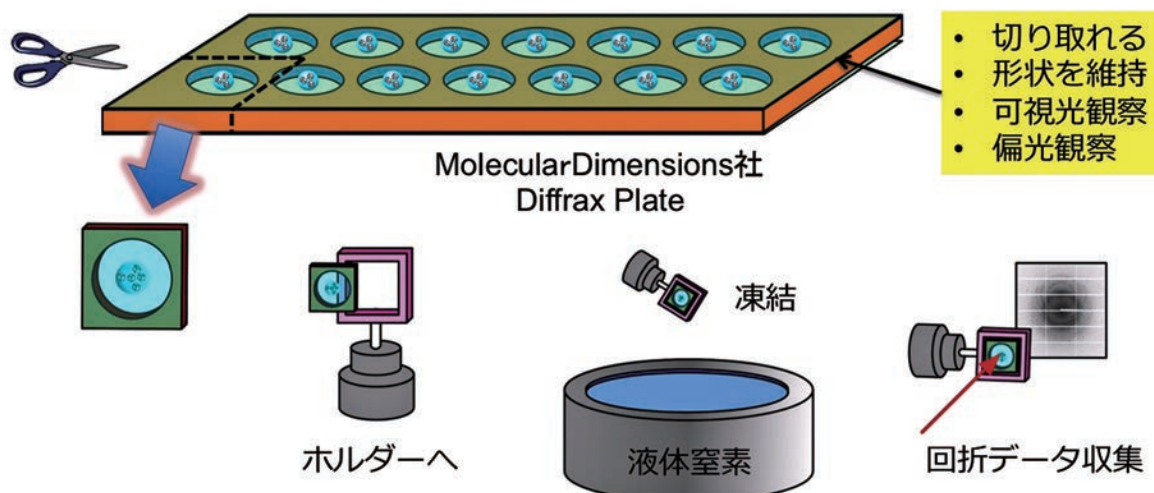


図2 Diffractionプレートと開発したホルダーを利用した膜タンパク質結晶からのデータ収集の概略図

用する。開発したミックスモードのスキームはZOOにこれまで無かったある種のインテリジェンスの実装であり、ZOOの最終目標である「完全無人測定」に向かって大きな前進であったといえる。

高度化を進めている自動測定を含め、BL32XUを利用した種々のハイインパクトな高分解能結晶構造解析の成果を論文発表することができた^[6-8]。

さて脂質メソフェーズ法で結晶化を行った場合にはいくつかの技術的な問題がある。脂質メソフェーズ法では多くの場合にはガラスサンドイッチ法と呼ばれる方法で結晶化を行う。文字通り2枚のガラスで穴の開いたスペーサ兼両面テープ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に結晶が出て来るため、顕微鏡でそれらを確認したのちその部分のガラスに傷をつけ、割って結晶をすくい取る。この工程は非常に難易度が高い手技が要求され、特に不慣れな実験者の場合、ビームラインで利用する凍結結晶が「結晶が出た時のままの回折能を示している」のか「すくいとるときに損壊した状態」なのかを判断することが難しいケースが散見される。例えば、結晶をループですくい取る際の時間が制限されていることもこの要因である。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秒程度ですくいとらなければ種々の結晶環境条件が変化し、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ず、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2017年度、京都大学との共同研究を通して、脂質メソフェーズ法で結晶化された結晶をプレートから取り出さずに回折データを収集するための方法について検討を進めた(図2)。Molecular Dimensions社製のDiffraxプレートと呼ばれるプレートはガラスの代替品として水バリア性が高く、X線散乱が小さい組成の膜を2枚利用して結晶化を行う。結晶化が終了したら、このフィルムをハサミで切ってそのまま凍結し、回折実験に用いるというコンセプトの商品である。このプレートに付属しているホルダーはフィルムをクリップするタイ

プのもので、測定中にフィルムそのものが揺れ回折データ収集に支障をきたすことがわかった。この問題を解決するために我々は切り出したフィルムの位置を測定中に安定化することを目指して新規フィルムホルダーを開発した。開発したフィルムホルダーを利用し、結晶を取り出すことなく、簡便に生成した結晶をすべて凍結して測定に用いることができるようになった。実際に膜タンパク質の結晶について量としては少なくとも従来の5倍程度は一度に測定に用いることができるようになった。現在はこのホルダーを利用した自動測定を目指して検討と高度化を進めている。

参考文献

- [6] Abe, S., et al. (2017). *ACS Nano*, 11 (3), 2410-2419.
- [7] Shihoya, W., et al. (2017). *Nature Structural & Molecular Biology*, 24 (9), 758-764.
- [8] Taniguchi, R., et al. (2017). *Nature*, 548 (7667), 356-360.

(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変化、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ステーションおよび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%を創薬等先端技術支援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。

2017年度はSAXSステーション用の分光器の可動軸の

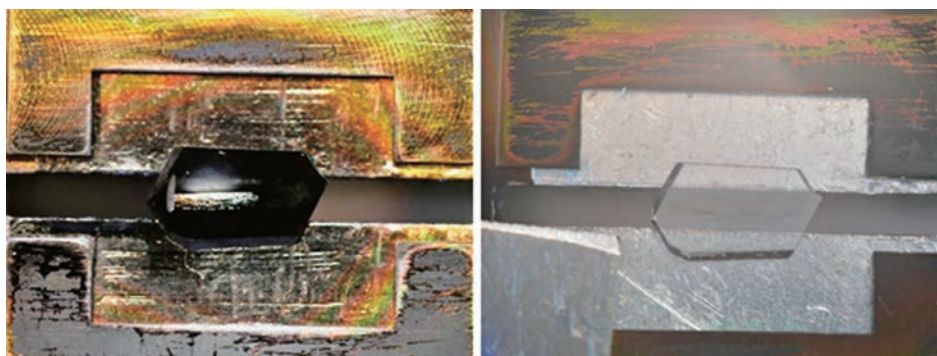


図3 洗浄前後のダイヤモンド結晶

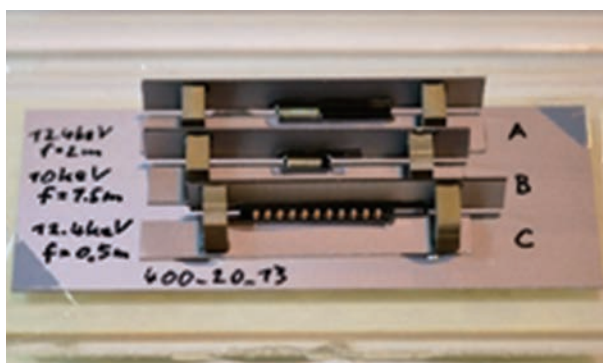


図4 SAXS/WAXS用X線屈折レンズユニット

定期オーバーホールと分光素子のダイヤモンド結晶の洗浄を行った（図3）。ダイヤモンド結晶の洗浄およびホルダーへの再設置により、試料位置でのビーム強度は約20%向上し、ビームサイズは約10%程度の集光特性の回復が得られた。また、生体繊維試料の局所構造解析や微量の溶液からの散乱測定のためX線屈折レンズユニット（図4）を導入し、実験系の構築を進めている。屈折レンズを用いることにより従来のビームサイズ300 μm (H) $\times$ 200 μm (V) (FWHM) から、10 μm 程度のミニビームでSAXSおよびWAXS測定の実現を目指している。

測定制御・解析系ではコンピューターを更新しソフトウェアの改善を進め、制御プログラムの安定化とデータ処理システムの迅速化を推し進めた。これらにより、数十ミリ秒の時分割測定から、数十分に及ぶSEC-SAXS測定など様々な測定において、2次元散乱画像の表示、1次元へのデータ処理、測定データの評価などがほぼ散乱データ収集と同時に自動的に行えるようになった。

上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] Oide, M. et al. (2018) *J. Bio. Chem.* 293(3), 963-972.
- [10] Yokota, T. et al. (2018) *Nature Nanotechnology* 13, 139-144.
- [11] Wright, G. et al. (2018) *Sci. Signal* 11(525), eaq0825.

(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。その後も液体窒素配管の更新（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 $\rightarrow$ 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）、実験ハッチ1と3の精密空調の更新（2016年度）、ハッチ自動扉の電動化（2017年度）が行われてきた。また、BL19LXUの強力なX線を有効に活用できる時分割実験を高度化するために、フェムト秒レーザーシステムを1 kHzから10 kHzに高繰返し化（2016年度）し、それに合わせてHモード用のX線チョッパーも9.49 kHzに対応できるようにした（2016年度）。これによって、時分割測定の信号強度が従来測定系より10倍強くなっている。

2017年度は、これまでビームイメージに縞模様が入るなどの問題となってきた分光結晶表面の汚れ対策として、光学ハッチ内の真空排気システムの全面更新を行った。これまではターボ分子ポンプとスクロールポンプで排気してきた、これらをイオンポンプで置き換えた（図5）。これによって真空度が向上しただけでなく、粗排気ポンプの維持管理費の大幅な削減が可能となった。また、大気開放時に分光結晶およびTCミラーの表面を保護するために、光学ハッチ内を清掃し、クリーンルーム仕様とした。

BL19LXUのアンジュレータは27 mの一体型のため、最小ギャップが12 mmに制限されてきた。一方で、磁石列の周期長は標準型と同じため、最低光子エネルギーは7.270 keVであった。BL19LXUでは磁気散乱などを使った磁性材料の研究を行っており、7.112 keVにある鉄の吸収端で測定できないことは、大きな弱点であった。これを解決するために変更申請を行い、最小ギャップを11.8 mmとした。その後、加速器グループとフロントエンドチームにより、このギャップでの運用に問題ないことが確認され、ユーザー実験に開放された。現在は、11.8 mmギャップで鉄の吸収端より低エネルギーの7.092 keVまで測定できるようになっている。

上記に加えて、フェムト秒レーザーを使った光学調整



図5 排気システムがイオンポンプ化されたBL19LXUの光学ハッチ内の様子

時にハッチ外にレーザーが漏れないよう遮蔽カーテンを設置、実験ハッチ4の上流部分の整備とハッチ内外電源配線の整理などを行い、ユーザーが安全に実験できるように処置した。

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施設（SACLA）利用のための新手法の開発が進められている。以下に2017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、量子イメージング実験、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）

当初、構造生物学IIビームラインであったBL44B2は、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JASRI共同利用課題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、ビームラインの主たる実験手法を、ブラッグ反射のみを考慮した粉末回折から散漫散乱を含む全ての干渉性散乱をまとめて取扱う全散乱へと転換するべく、計測システムの開発を行ってきた。特に、シャープなブラッグ反射とブロードな散漫散乱を同時に高い精度



図6 全散乱用試料ステージ

で測定し、広い実空間スケールの構造情報を原子分解能で得るために、ハードウェアとソフトウェア両面からの研究開発を進めている。

2017年度は、計測システムの開発の一環として、全散乱用試料ステージ（図6）を導入した。これまでは、測定する試料の形態（粉末や薄膜など）や環境（温度やガスなど）に合わせてステージを交換していたが、新しいステージでは各種アタッチメントを交換するだけで様々な形態や環境に対応可能な仕様となっている。その結果、ステージの交換が一切不要となり、効率化だけでなく位置精度の向上にも寄与している。このステージの特徴は、キャピラリーと既存のオンラインガス圧制御装置と組み合わせることで、ガスを導入しながらキャピラリーを高速で一軸回転させられる点である。従来は、ガス配管によって回転速度と範囲は限られていたが、新しいステージでは磁気シールとスリップリングを組み合わせることで、高真空を維持しながら無限に回転させることができる。全散乱であっても平均像を得ることに変わりはないため、測定中に試料を回転させることで平均精度を高めることが重要である。特に、ガス吸蔵プロセスなどでは、構造の不均一性や不均質性が本質的であるかどうかを見極めるには、高速回転による平均化が不可欠である。また、従来はガス導入管をアタッチメントに直接付けていたが、ステージ内にガス導入管を通すことでアタッチメントとは分離し、脱着によるガス漏れを防ぐとともにワンタッチで試料交換が行えるようになっていた。この全散乱ステージには6軸の自動ステージが備わっているため、薄膜の全散乱実験や画像認識を使った自動試料位置調整も今後の制御ソフトウェアの開発によって実現する見込みである。

参考文献

- [12] K. Kato and H. Tanaka (2016) *Advances in Physics: X* 1, 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BL17SUは、軟X線領域の各種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等を主な目的として運営されている。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。研究を多角的か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調された超高分解能回折格子分光器が整備され、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高分解能光電子分光実験ステーションにおいて、先端物質科学の実験的研究が2016年度に引き続いて行われた。もう一つの主要装置である高効率軟X線発光分光実験ステーションにおいては、固液界面で起こる現象を観察するための電気化学セルが新たに開発され^[13]、白金表面の水の電極酸化反応の観察等が軟X線吸収・発光分光計測法によって進められた。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_4 、 CH_3I や CH_2I_2 など)を光電子分光実験装置のガスセルに気相標的分子として導入し、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2016年度に引き続いて進められた。

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2016年度に引き続いて行われ、2017年度からは共鳴軟X線回折による磁気カイラリティイメージングとその制御に関する研究などが進められた。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。2017年度は、単一分子からの解離断片における原子間クーロン緩和過程の観察を目指し、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た。この他、持ち込み装置用フリーステーションに2016年度末に導入された静電レンズ型の光電子顕微鏡(図7)の調整が行われ、aブランチのSPELEEM程の空間分解能($\sim 22\text{ nm}$)には原理的に及ばないものの、 80 nm 程度の空間分解能が確認されている。フェムト秒レーザーや電気的外場との同期実験によ

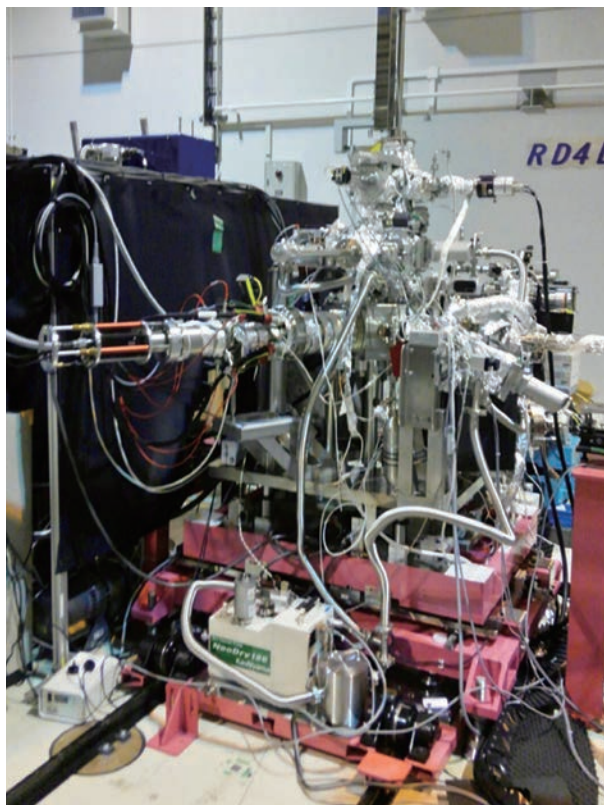


図7 静電レンズ型光電子顕微鏡

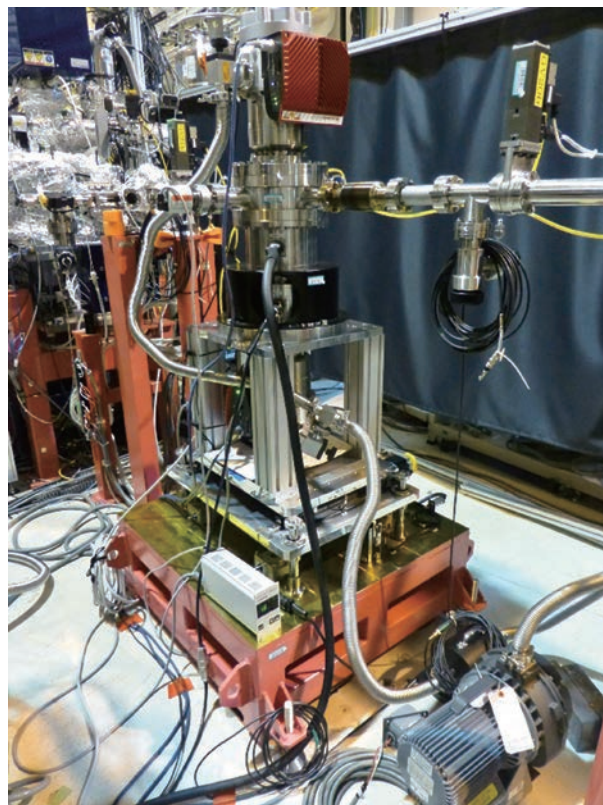


図8 軟X線チョッパー

る時分割観察が行えるよう、本装置の上流部にて軟X線チョッパー（図8）の調整も併せて行われた。レーザーとの同期実験において、レーザーと放射光の同時照射時刻の確認方法など、技術的な課題が2017年度より予備的に進められており、2018年度からのユーザー利用実験への公開に向け、基本的な測定システムの構築や、テスト実験がほぼ完了している。

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ている。2017年度より、FZPによる集光調整を含めた立上げ調整運転が行われ、システムとしての動作確認や大気圧下での測定のためのインフラの整備などが進められた。FZPにより軟X線ビームを200～300 nmまで絞り、薄膜窓を通して（He置換された環境下にある）大気圧中の試料にサブミクロン軟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・実空間といった多元的な電子構造可視化を目指した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年度に引き続いて進められた。

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。

参考文献

[13] T. Ishihara *et al.* (2017) *Rev. Sci. Instrum.* **88**, 104101.

（大浦 正樹）

7. 物理学科学ビームライン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ことが確認された。その後も、最新の低振動化技術を、逐次、導入している。二結晶分光器チェンバー内のアウトガスがクライオ冷却結晶に付着し、ブラッグ反射されるX線ビームを汚すと考えられる。アウトガスの成分分析を行って、潤滑剤が無視できない蒸気圧を有

することが判明した。液体窒素配管によるステージ冷却とモーター動作不良を防ぐためのヒーターが用いられているが、潤滑剤の蒸気圧を低減するため、ヒーター温度を従来の25℃から10℃に下げ運用を開始した。

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、主に物性材料や、マウスの全脳を観察するための高速CT計測装置をリング棟実験ハッチ2に構築した（図9）。On-the-fly形式で、高速回転する主軸周りに回転し続け、1000投影分の試料透過像を0.18°刻みという細かいステップで、各ステップ30ミリ秒程度の露光時間で計測できる。この際、十分細かい刻み角間の画像の変化分は無視でき、10分以下で一周する高速計測が可能になった。

本ビームラインでは、2017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、JASRI湯本博勝研究員らがSPring-8で高精度楕円面鏡による世界最小の2次元X線100 nm集光ビームを達成した。今まで2次元X線集光ビームを生成するには、2枚の鏡が必要だったが、これを1枚の鏡で実現した^[14]。楕円面鏡に

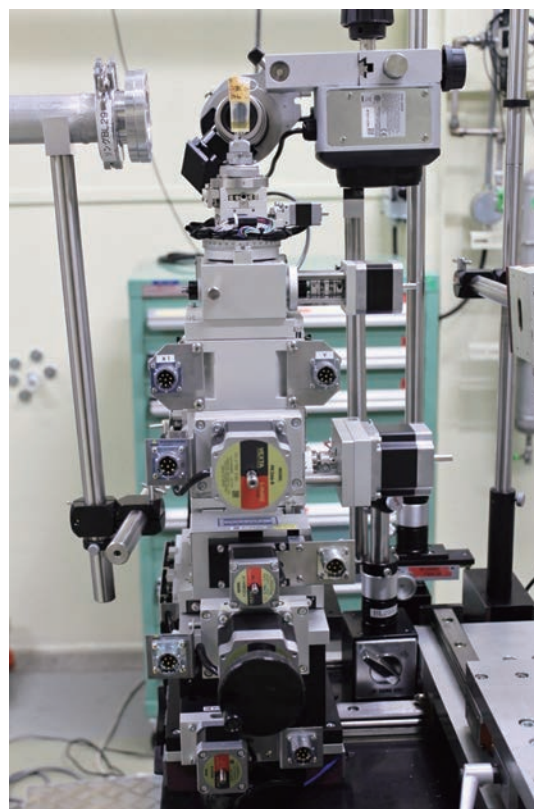


図9 2016年度に製作された高速CT計測装置の試料駆動ステージ組み立て写真

右方からX線が入射し、回転ステージ上の試料に照射され、透過像を左方の高速X線画像検出器で撮影する。回転ステージ上の試料を、奥の光学顕微鏡で観察することのできるシステムを構築した。

よる集光は、SPRing-8やSACLAで利用される様々な先端X線顕微鏡を支える高効率ナノビームや光学系の安定性の向上に役立つものと期待される。韓国のGIST大学、POSTEC大学などの共同研究チームは、切片化や、染色などが施されていない、マウスの胎児から採取されたミトコンドリア細胞を用い、回折顕微鏡による分析を行った。試料の回転角を26通り変えて取得した回折像の解析から、ほぼ60 nmの解像度で細胞内部の三次元の電子密度を計算で求めることに成功した^[15]。この実験に加え、ミトコンドリア細胞に100 nm強の大きさを有する金の参照物体を近接して設置した実験も行ったところ、回折強度を上げることができ、解像度を14 nm程度に向上させることができた^[15]。理研放射光科学研究センター構造可視化研究チーム（高橋幸生チーム）と元素可視化研究チーム（唯美津木チーム）の共同研究で、X線タイコグラフィー法を用いて試料のX線吸収微細構造（EXAFS）を取得する「タイコグラフィー - EXAFS法」が開発され、酸素吸蔵・放出材料の酸素拡散分布を可視化することに成功した^[16]。今後、タイコグラフィー - EXAFS法は、様々な先端機能材料のナノ構造・化学状態分析へ応用されると期待されている。最後に、XFEL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。

[14] H. Yumoto, *et al.* (2017) *S. Rep.* 7, 16408.

[15] Y. Kim, *et al.* (2017) *S. Rep.* 7, 1850.

[16] M. Hirose, *et al.* (2018) *Angewandte Chemie International Edition*, 57, 1474.

(香村 芳樹)

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

Commissioning of BL43LXU^[17] continued through 2017, but the bulk of the time was for user experiments, including some installation of new equipment (see below). 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, Hattori), 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.

The upstream BL components (electron orbit, IDs, mirrors) were stable during 2017. The orbit-correction protocol worked out the previous year operated smoothly, and there were no issues with the IDs, and no repeat of the previous years beam-steering accident where an ID cover was damaged. The high-heat-load mirror (M1) operated without changes - and was reasonably stable when used.

Beam Position Monitoring: Two diamond quadrant transmission beam position monitors (DQBPMs) were 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 at 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 (figure11), before mostly stabilizing. As a practical matter, this BPM will mostly be used to

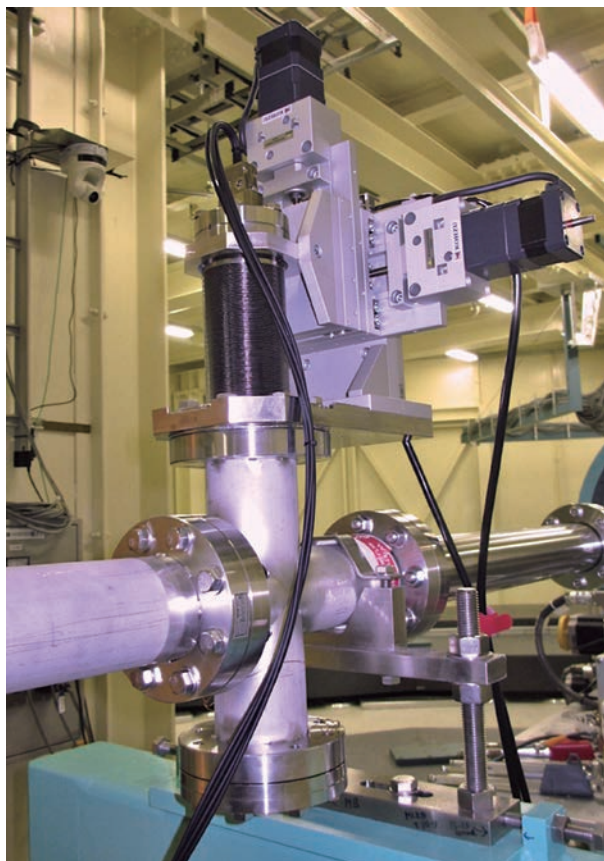


Figure10 XZ stage for the diamond quadrant BPM on CF114 beam pipe just upstream of the high-resolution spectrometer sample position

measure small (~ 10 micron) 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 $\sim 1 \mu\text{m}$ for a $5 \mu\text{m}$ 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

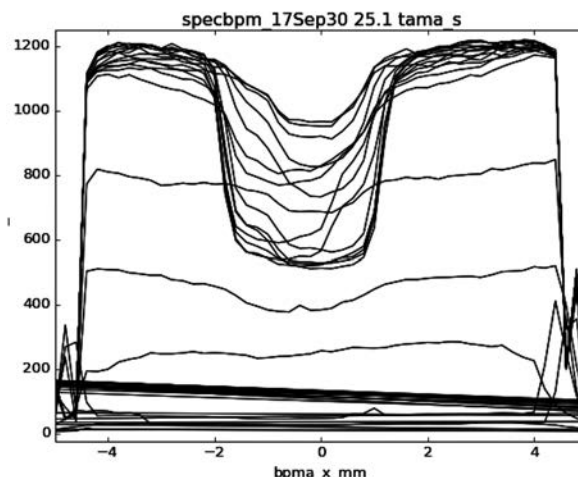


Figure11 Scans of the RIGI through a small ($\sim 0.05 \times 0.05 \text{ mm}^2$) beam after a burn-in period. The plot shows total current in pA vs x-position (mm) for several different z's (see text). The radiation damage is evident. See text.

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)

$\sim 5 \mu\text{m}$ Micro-focus^[19]: A graded-multilayer KB setup was installed which successfully achieved a $4.4 \times 4.1 \mu\text{m}^2$ beam size at 17.79 keV at the sample position of the HR spectrometer with a throughput of $\sim 60\%$ ($>75\%$ 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).

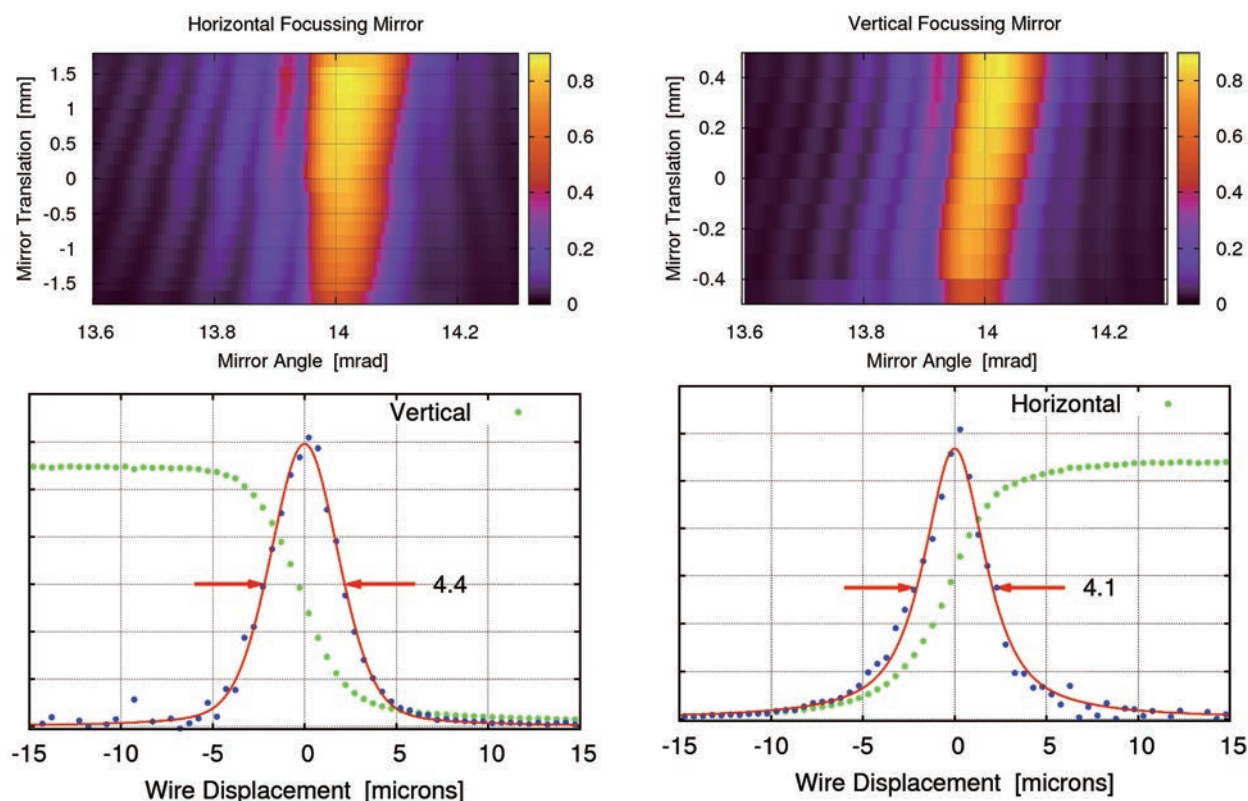


Figure 12 KB Mirror Performance. The top panels give the measured reflectivity of each mirror as a function of position and grazing angle when the mirror is scanned through a small beam. The main Bragg peak at 14 mrad and the usual subsidiary maxima are easily visible. The lower panels show the beam profiles measured using a wire scan with the calculated derivative and a pseudo-Voigt fit. The numbers give the FWHM from the fit.

Collimation & Masks^[19]: 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^[19]. (Baron, Ishikawa, Fukui & Nakajima, submitted). 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^[20]. One notes that the best published data on electronic excitations before^[20] 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.

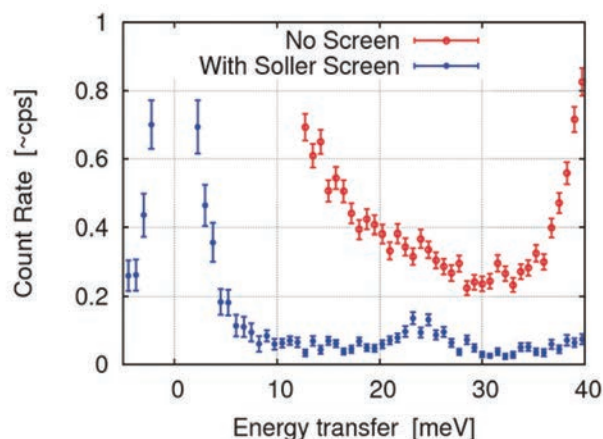
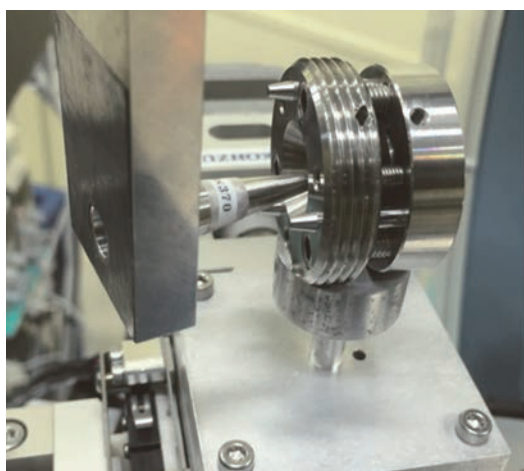


Figure13 Left: Soller screen mounted near the DAC. Right: Spectra measured from a sample of Re metal at ~ 180 GPa pressure with and without the Soller screen. The reduction of the background from diamond and the improved contrast for the Re LA signal at 24 meV is clear. Data from Ikuta, et al, in preparation.

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**, 14 (2010) .
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**, 3 (2015).
- [19] A.Q.R. Baron, D. Ishikawa, H. Fukui, Y. Nakajima, submitted (see arXiv 1807.03620)
- [20] D. Ishikawa, M. W. Haverkort, and A. Q. R. Baron, *J. Phys. Soc. Japan, Lett.* **86**, 93706 (2017).

(Alfred Q.R. Baron & Daisuke Ishikawa)

9. 施設診断ビームライン I (BL05XU)

BL05XUは、革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) 「超薄膜化・強靱化 しなやかなタフポリマーの実現」における「タフポリマー実現のための放射光構造科学基盤構築」の一環として、ポリマー材料のタフネスを評価する小角・広角散乱測定プラットフォームとして整備を進めてきた。2016年度に、光学ハッチへの湾曲機構付ミラーおよびTCスリットの設置、光学ハッチー実験ハッチ間ビームパス輸送パスの大口径化、実験ハッチへの種々の小角散乱測定用コンポーネントの設置を実施し、2016年10月末よりImPACTメンバーによる利用を開始した。さらに、2017年1-3月の停止期間に、挿入光源を真空外アンジュレータから真空封止アンジュレータ (周期長32 mm、周期数93) への入れ替えを実施した。

本ビームラインでは、試料位置固定の検出器移動によるカメラ長変更システムを採用している。試料周辺に柔軟なスペースを確保しつつ大型切替ステージを設置することで、様々な変形装置や環境制御装置を持ち込んだ測定を可能とし、様々な変形・破壊条件下での測定を実施している。試料-検出器間距離は ~ 0.1 -4.5 m、入射X線

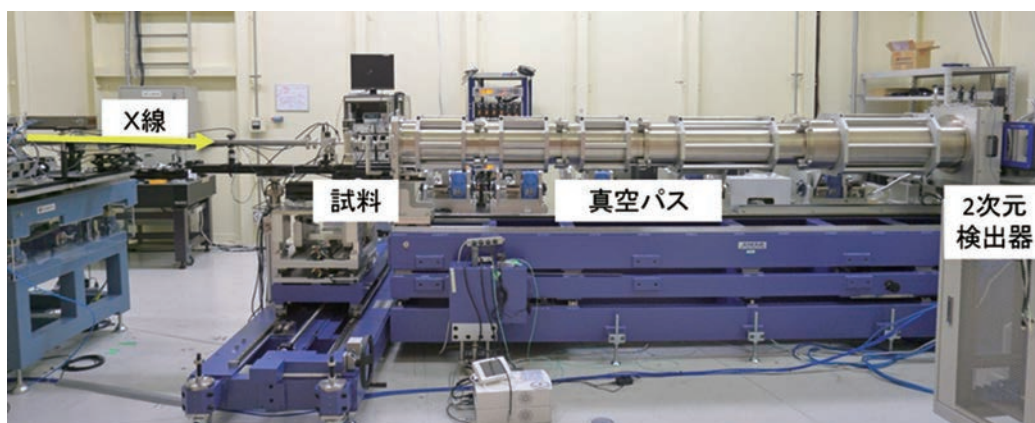


図14 実験ハッチに設置された小角散乱測定装置

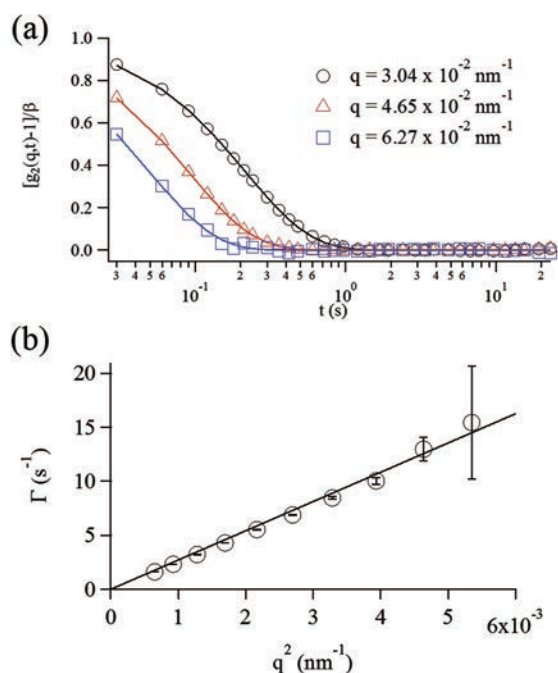


図15 XPCS測定により得られた (a) 時間自己相関関数と (b) 緩和速度の q^2 依存性

エネルギーは7-15 keVの範囲で調整可能で、空間スケール $\sim \text{\AA}$ -300 nm範囲の構造が測定可能である。また、通常の透過型測定だけでなく、高分子薄膜の観察に対応するために、ヘキサボッドステージを用いた斜入射型 ($\sim 0.1^\circ$) 小角・広角散乱測定も実施されている。

真空封止アンジュレータ導入後、2017年度より、X線光子相関分光測定 (XPCS) 系の整備を行った。XPCSでは、コヒーレンスの高いX線を試料に照射し、得られるスペックルパターンの時間揺らぎから、散乱体のダイナミクスを議論する。本ビームラインでは入射X線を $20 \mu\text{m} \times 20 \mu\text{m}$ またはそれ以下にスリットで切り出すことで部分コヒーレントなX線を得て、散乱スペックルを約4 m下流に設置した2次元検出器EIGER 1M (Dectris) で検出した。本検出器は、ピクセルサイズが $75 \mu\text{m} \times 75 \mu\text{m}$ とスペックルサイズに対して十分な空間分解能を有しており、3000 Hzでの時分割測定が可能である。デモ測定として、グリセロール中に分散させたシリカ粒子 (直径 $\sim 100 \text{ nm}$) に対してXPCS測定を実施し、図15に示す結果を得た。散乱強度の時間自己相関関数 $g_2(q,t)$ (q : 散乱ベクトル、 t : 時間) が指数関数で表されており、得られる緩和速度 Γ が q^2 に比例している。これは、単純なブラウン運動の観測に成功していることを示している。その後、本セットアップを用いて、種々のポリマー材料に対するXPCS測定が実施されている。

(星野 大樹)

理研 放射光科学研究センター
利用システム開発研究部門

山本 雅貴

生物系ビームライン基盤グループ
生命系放射光利用システム開発チーム

上野 剛、平田 邦生、河野 能顕
山下 恵太郎、引間 孝明

物理・化学系ビームライン基盤グループ
物質系放射光利用システム開発チーム
玉作 賢治、大浦 正樹 (兼務)

軟X線分光利用システム開発チーム
大浦 正樹

放射光イメージング利用システム開発チーム
香村 芳樹、加藤 健一、星野 大樹

利用技術開拓研究部門
物質ダイナミクス研究グループ
Alfred Baron、石川 大介

1-3-3. 専用ビームライン BL22XU JAEA 重元素科学 I

1. 概要

超ウラン元素を含む密封放射性物質の利用研究を目的として、BL22XUは原子力機構（JAEA）4本目ビームライン（硬X線アンジュレータビームライン）として蓄積リング棟およびRI実験棟に建設され、2002年5月に運用を開始した。RI実験棟に導かれた軟X線アンジュレータビームラインBL23SUとBL22XUを相補的に利用することによって、JAEAが掲げる原子力に関する基礎と応用研究、福島環境回復をめざした研究等を推進するためのビームラインである。

2017年度に実施された課題は、前期は18課題、後期は21課題であった。その内、外部課題（JAEA施設共用課題／ナノテクプラットホーム課題）は、前期13課題、後期13課題であった。また、企業ユーザーも徐々に増えつつある。放射光実験に利用した日数は次の通りである。表1の数値はビームライン調整・機器調整を除いた日数で示されている。

表1 配分された実験利用日数

	2017年前期			2017年後期		
	内部課題	外部課題	小計	内部課題	外部課題	小計
JAEA	35	11	46	43	10	53
	42%	13%	55%	43%	10%	54%
QST	17	21	38	20	26	46
	20%	25%	45%	20%	26%	46%
全体	52	32	84	63	36	99
	62%	38%	100%	64%	36%	100%

2016年4月にJAEAよりQSTが分離移管されたため、BL22XUでも所有法人の異なる実験装置が入れ子状態となっている。2017年度は2年目であるが、JAEA/QST実験配分は2016年度と比べて改善されている。BL11XUのXAFS実験システムのBL22XUへの移設や、2軸回折計の撤去が行われており、入れ子解消は着実に実施されている。

2017年度はRI実験棟の放射性同位元素の使用許可に関する変更申請が行われており、Es（アインスタイニウム）を使用する世界初の実験が2017年12月に実施された。

2017年度に実施した研究について、上流側より実験分野ごとに報告する。

（塩飽 秀啓）

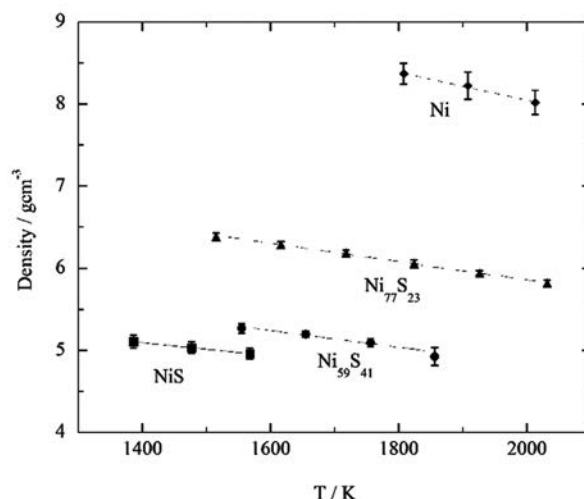


図1 Ni-S系融体の3.5 GPaにおける密度の温度変化

2. 実験ハッチ1：高压プレス

キュービック型マルチアンビル高温高压発生装置SMAP180を利用することにより、現在、室温で圧力10 GPa、高温高压下では圧力6 GPa・温度2000℃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。2017年度は岡山大・浦川らにより比較的小さい天体（水星や月など）の金属核を構成していると考えられているFe-Ni-S系融体を対象とした研究の一環としてNi-S系融体のX線吸収法による高温高压その場密度測定が実施された（図1）。Ni-S系融体は2016年度に実施したFe-S系融体に比べて密度が大きく、熱膨張率も大きな値を示すことが明らかになった。また、火星などのより大きなサイズの惑星内部構造を明らかにするため、これまでよりも高压下でのX線吸収による密度測定を可能とするための技術開発が阪大・寺崎らによって実施された。これまで高压プレスを用いて実施してきた密度測定技術をダイヤモンドアンビルセルでの測定に適用した。この結果、12.5 GPaまでの圧力条件において、金属試料（Fe、In）と標準物質（KBr）のX線吸収測定から得られた金属試料の密度は、X線回折による密度とよく一致した。本測定手法によって試料密度が精度良く求められることが示された。また、高温高压下において液体Csに一次の液体-液体相転移が存在しないことを、高压プレス装置を利用したX線吸収測定によって明らかにした研究の論文が掲載された^[1]。

水素ガス雰囲気下の構造研究の一環として、金沢大・

石川らにより高圧プレス装置に小型電気炉を設置し水素透過合金の高温水素ガス雰囲気下におけるその場X線回折測定が施設供用課題として実施された。Nb-TiNi合金はbcc-Nb相とB2-TiNi相からなる2相合金であり、水素透過性と耐水素脆性の性質を併せ持つ材料である。繰り返し使用可能な水素分離膜として応用するために、組成や金属組織の異なる合金に対して水素化、脱水素化過程の構造変化を調べた結果、水素化と脱水素化ではbcc-Nb相が異なる構造変化をすることを明らかにした。

(町田 晃彦、綿貫 徹)

3. 実験ハッチ1：DAC

ダイヤモンドアンビルセル (DAC) 用回折計では、東大・水上らによりFeSeおよびFeSe_{1-x}S_x (x~0.08) 単結晶試料の高圧下X線回折測定が実施された。同グループが2015、2016年度に実施した鉄系超伝導体FeSe_{1-x}S_xに関する課題の成果である物理的圧力と化学的圧力の組み合わせによる新しい鉄系高温超伝導の発見については、論文が掲載され^[2]、プレス発表が実施された。2017年度は物理的圧力効果と化学的圧力効果の違いを理解するためにFeSeおよびFeSe_{1-x}S_x (x~0.08) 単結晶での高圧下X線回折測定が実施された。この実験では2016年度に名大・澤らによって開発された、DAC中に封入した2つの単結晶からの回折をそれぞれ抽出する新たな解析法を適用した。FeSeとFeSe_{1-x}S_xではカルコゲンの原子座標の圧力に対する変化に違いが見られ、これが物性への物理的圧力と化学的圧力の寄与の違いである可能性が示唆された。また、澤らが2016年度に実施した励起子絶縁体である層状遷移金属カルコゲナイドTa₂NiSe₅の低温高圧下での構造解析では、同グループが開発した上記の手法を用いて高精度な結晶構造解析に成功し、論文が掲載されるとともに^[3]、プレス発表も実施された。この他に東工大・東らによって負の熱膨張関連物質の新規物質であるPbCoO₃、PbMnO₃の高圧下粉末X線回折測定が施設供用課題として実施された。

DAC回折計と高エネルギーX線を利用して原子二体分布関数 (Pair Distribution Function; PDF) 解析のためのX線全散乱測定も引き続き実施した。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短時間で高統計精度のX線全散乱測定が可能であり、BL22XU実験ハッチ1の特長を活かした測定である。2017年度にはPDF測定に関して5件の施設供用課題が実施された。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水素貯蔵材料の研究でPDF測定環境の整備を主に進めてきた。本プログラムにおいて産総研・Kimらと進めてきた薄膜試料のPDF測定に関

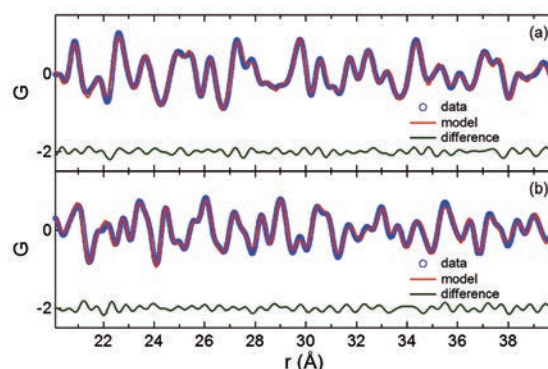


図2 石英ガラス上に製膜したMg薄膜試料を粉碎した試料で得られたPDFの解析結果。(a) 水素化前のMgとPd (キャップ層) の2相モデル、(b) 水素化後のMg、MgH₂、PdH_xの3相モデルでの解析結果。

しては石英ガラス上に製膜したMg薄膜を粉末化することで薄膜試料の特性にほぼ影響を与えず選択配向の影響を低減させることに成功した。その結果、薄膜試料で十分に解析可能なPDFが取得でき、水素吸蔵前はMgとキャップ層であるPdの2相モデル、In-situでの水素吸蔵後はMg、MgH₂、PdH_xの3相モデルで良く再現することができた (図2)。大型二次元検出器を利用したPDF測定はユーザーが増加し、その対象が貴金属クラスター (物材機構・富中)、ゼオライト (東大・脇原)、セメント材 (Hanyang Univ.・Bae) と多岐にわたるようになった。また、準結晶の単結晶構造解析に関する論文^[4]、および数気圧のガス雰囲気下におけるX線回折測定環境を利用した水素貯蔵合金^[5]やMOF^[6]の構造研究に関しての論文が掲載された。

(町田 晃彦、綿貫 徹)

4. 実験ハッチ3：XAFS

4-1 XAFS測定システムの構築

QST発足に伴い、ビームラインと実験装置の入れ子解消のため、BL11XUにて培われたアンジュレータXAFS実験システムをBL22XUへ移設している。2017年前期では、アンジュレータXAFS測定による蛍光XAFS測定システムの高度化を実施した。19素子SSD検出器を使用し、湾曲ラウエ結晶アナライザーを利用してバンクグラウンドノイズを低減化した極微量試料測定システム構築を行った。その結果、μmol/Lオーダー試料の蛍光XAFS測定に成功した。2017年後期では、Es元素測定を目指して専用試料容器を開発すると共に、測定試料環境の整備と測定条件の詳細設定を行った。極微量の密封放射性物質測定の基礎が構築できた。

(塩飽 秀啓)

4-2 Esの水和構造

人類が利用できる最も重い元素である原子番号99番元素「Es（アインスタイニウム）」の水和構造解明研究を実施した。Esは、原子特性や物理特性などほとんどが解明されていない元素の一つである。イオン半径を決定する閉殻の6s、6p軌道の広がりや相対論あるいは内殻の5f軌道の遮蔽によって決まる。Esではこれらの関係が混じりはじめる元素であり、水和イオン半径の測定によって未解明のf軌道の挙動を明らかにする手がかりとなることが期待される。測定は高輝度アンジュレータ放射光、19素子SSD検出器、湾曲ラウエ結晶アナライザーを組み合わせることによって、Esから放出される蛍光X線を効率よく捉えることができた。測定データを詳細に解析しており理論計算と合わせて検討中である。またEs水和構造解析実験に先立ち、Esの蛍光X線エネルギーと吸収端エネルギーを初めて正確に測定することができた。これらの結果は、RI実験棟ビームラインの特長を生かした実験成果である。

(塩飽 秀啓)

4-3 ガラス固化体

使用済み燃料の再処理から発生する高レベル放射性廃液のガラス固化処理では、廃棄物発生量を減らすために、廃液成分の高充填化を目指した研究開発が進められている。我々は、XAFSの有する元素選択性を活かして、ガラスに含まれる元素の化学状態を調べてきている。特に、ガラス溶融炉の炉底に蓄積し、安定な運転操作を阻害する要因である白金族元素の分析に力を入れている。これまでの放射光分析から、ガラス固化体中でロジウム元素の化学形が、酸化物（ RhO_2 ）とRh金属からなっていること^[7]、それらの割合や分布がルテニウムとの強い相関に支配されていること^[8]を明らかにしてきた。本研究では、ロジウム元素の化学形が、ガラス原料の違いやガスバブリング操作によってどう影響を受けるかを調べた。

図3にガラスの原料としてビーズ状とファイバー状、ファイバー状のガラス原料に空気とアルゴンのバブリング操作を加えた、計4種類のガラス固化試料中のロジウム元素K吸収端EXAFSの結果を示す。酸化物に対応するRh-O対の第1ピーク、金属に対応するRh-Rh対の第2ピークが認められる。原料の違いに着目すると、ビーズ状の原料から製作したガラス固化試料の方が、酸化物に相当する第1ピークが弱く、金属に相当する第2ピークが強いことから、ファイバー状原料の試料よりも還元的であることがわかる。次に、バブリング操作による影響では、ガスの種類に関係なく、第1ピークが弱まり、第2ピークが大きくなったことから、還元性へ傾いたことを示している。空気よりもアルゴンガスのバブリングの

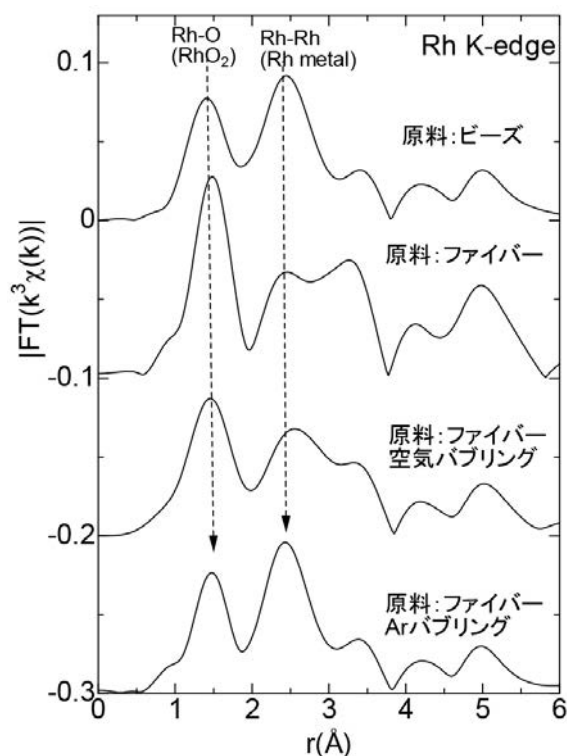


図3 ガラス固化体のXAFS構造関数

方が、より還元的であった。空気をバブリングした場合、含まれる酸素により酸化側へ傾くと予想されたが、そうはならなかった。その理由として、 RuO_2 にトラップされて固溶体（ Ru,RhO_2 ）として安定化するプロセスが、バブリングによって阻害されたためと考えられる。この結果は、バブリング操作が、白金族元素の沈殿堆積による問題を克服する可能性を示している。このように、様々な条件で製作したガラス固化試料中の元素を調べ上げることで、ガラス溶融炉内で何が起きているのか、どのようにすれば課題が解決できるかの糸口を与えてくれる。

(岡本 芳浩)

5. 実験ハッチ3：応力／イメージング

材料加工、疲労に関する研究においては、温度や荷重による変形、欠陥生成・成長、溶融凝固などの現象をリアルタイムで計測し、そのメカニズムを解明することが構造物の健全性、予寿命評価につながる。BL22XUでは、X線可視光変換ユニットとハイスピードカメラを組合せることで時間分解能0.5 msec、視野 $5 \times 2 \text{ mm}^2$ 、空間分解能6 μm を満たしたシステムを構築し、高エネルギー放射光X線による材料内部の外的変化に伴う実空間現象の解明を行っている。

本システムを適用し、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。図4は真空容器中のオーステナイト系ステンレス鋼

SUS304基板上の $\phi 0.2$ mmチタン球にレーザーを照射したときのチタン球の時間変化を示している。(a)、(b)はそれぞれ基板の温度を25℃、500℃に設定している。レーザーはIRレーザーを使用、入熱量 4×10^4 W/mm²で数秒チタン球にのみ照射した。その結果、基板の温度が低い場合には金属球が溶けているものの基板に広がらず、基板の温度が高い場合には基板に広がりだしていることがわかる。つまり、金属球が基盤に広がるためには金属球が溶けていることは当然であるが、溶け広がる基板の温度が高いことが重要であることがわかる。この結果は、レーザーコーティングの現象を解明する非常に重要な成果であり、レーザーコーティング膜表面に金属球の状態が残存するのは、膜の温度が低くなっているレーザー照射直下から外れた場所に落下した金属球であり、その理由を解明したこととなる。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、2018年度も引き続き、研究を重ねていく予定である。

2017年度は応力評価に関する施設供用課題を7機関9件（うち、成果専有課題3件）実施した。主なテーマは、粗大粒を有する材料内部応力評価技術開発、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応力評価、人工骨や航空機材料に

利用されているチタン合金の強度と変形、組織に関する研究など、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。

（菖蒲 敬久、安田 良、城 鮎美）

6. 実験ハッチ3：回折計

6-1 強誘電体

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。我々はこれまでにリラクサー強誘電体である $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-}x\text{PbTiO}_3$ を対象に、結晶中に組成傾斜（ $27\% < x < 38\%$ ）のある試料を用いて顕微回折的手法を用いて詳細にブラッグ回折の線幅からドメインサイズを計測し、ドメインサイズと物性に負の相関があることを見出してきた。すなわち、ドメインサイズが小さくなれば物性値が向上する^[10]。一方、物性はダイナミクスと強い相関を持つことからダイナミクスに関連した散漫散乱を計測し、単斜晶Mc相内において001方向に延びる散漫散乱と110方向に延びる散漫散乱の強度分布が交差する領域が広く（ $29\% < x < 32\%$ ）存在することを見出した。BL35XUにおいて非弾性X線散乱を計測し、散漫散乱が音響横波モードのソフト化並びに過減衰に対応していることを見出した。以上のことから、結晶格子はこの濃度領域において容易に変形しやすい状況にあり、それらは散漫散乱の強度の交差、ひいてはソフト化並びに過減衰したTAモードに対応するものであることが示唆される。この変形のしやすさが物性値を向上させると考えられる^[11]。

（大和田 謙二）

6-2 磁性体および強相関電子系

酸素分子は $S=1$ の磁性分子であり、交換相互作用が分子軌道の重なり依存することから、固相、液相において、強いスピン格子結合の発現が期待されている。実際、100 T以上の強磁場下で分子の空間配置が変化して構造相転移が誘起されることが発見されており、また、液相では磁場による液-液相転移を誘起できる可能性も議論されている。以上のような背景から、液体および固体酸素における分子立体配置の磁場効果を明らかにすることを目的に、30 T級パルス磁場下でのX線回折を2017A期と2017B期に実施した。

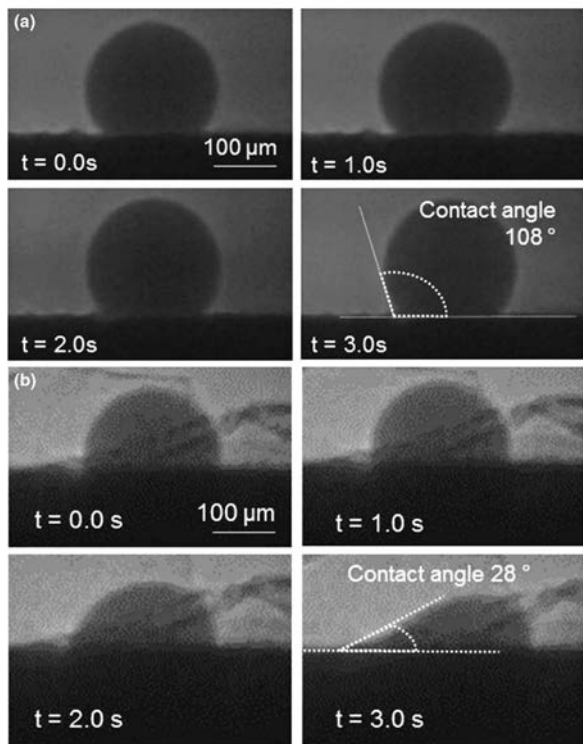


図4 SUS304基板上のチタン球のレーザー照射下での変化
基板の温度は、(a) 25℃、(b) 500℃。

測定はBL22XUの大型X線回折計を用いて行った。10 K冷凍機に小型パルスマグネットを組み込み、これを回折計に搭載し、低温高磁場下X線回折実験を実施した。試料は、酸素ガスから低温凝集させた液体または固体酸素である。検出器は2次元検出器(PILATUS 100 K)を用いた。入射X線エネルギーは15 keV。100 μ sのゲート幅でパルス磁場(1 ms)の頂上でX線回折を記録した。測定における環境の揺らぎの影響を抑制するため、磁場発生直前のゼロ磁場X線回折プロファイルを測定し、これを参照データとして磁場依存性を見積もった。いくつかの温度で磁場の大きさの異なるショットを必要回数行い、各相でのX線回折パターンの磁場依存性を測定した。

実験結果としては、例えば、10 Kにおける固体酸素 α 相では、24 Tで、格子定数が 1×10^{-4} 以下程度増大することが明らかになった。これは、液体酸素で報告されている磁場による体積膨張と同程度であり、酸素分子間の交換磁歪機構によると理解できる。過去の報告よりも格子定数の磁場による変化は1桁程度小さいことも明らかとなり、10 T程度の磁場では、その符号も逆であることを示唆する結果を得た。液体に関しては磁場中での回折パターンの変化は観測されなかった。

YbNi₃Al₃は空間群R32のキラリ結晶であり、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リ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型の相互作用により、 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わかっている。これまで研究された3d系のキラリソリトン格子CrNb₃S₆に対して、磁気相互作用の違い(短距離交換相互作用とRKKY相互作用)や異方性、多極子自由度の影響を見るため、Ybの低温磁場中共鳴磁気X線回折実験を実施した。

2015B期では、Yb L₃吸収端での共鳴磁気X線回折実験を水平偏光入射で純粋試料およびいくつかのCu置換試料で実施し、変調ベクトルの磁場温度依存性を得た。2016AB期では入射円偏光を利用し、磁気構造がらせん構造であること、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を明らかにした。2017A期では、ここまでで取り残した置換右結晶試料の測定を行い、研究を完成させた。

実験は8 Tクライオマグネットを大型X線回折計に搭載し、温度1.0 K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。今回の実験の結果、(i) E2遷移で得られた信号が磁気八極子によるものであることを明らかにし

た。(ii) 高調波(2 q)成分の磁場依存を各置換試料で系統的に測定し、キラリソリトン格子がsine-Gordonモデルとよく合うことを示した^[12]。

この他、SmSの高圧相の反強磁性秩序の探索実験を2017B期に行ったが、反強磁性ピークの検出には至らなかった。

(稲見 俊哉)

参考文献等

- [1] T. Hattori, *Phys. Rev. B* **97** (2018) 100101.
- [2] K. Matsuura, Y. Mizukami, Y. Arai, Y. Sugimura, N. Maejima, A. Machida, T. Watanuki, T. Fukuda, T. Yajima, Z. Hiroi, K. Y. Yip, Y. C. Chan, Q. Niu, S. Hosoi, K. Ishida, K. Mukasa, S. Kasahara, J.-G. Cheng, S. K. Goh, Y. Matsuda, Y. Uwatoko, and T. Shibauchi, *Nat. Commun.* **8** (2017) 1143.
- [3] A. Nakano, K. Sugawara, S. Tamura, N. Katayama, K. Matsubayashi, T. Okada, Y. Uwatoko, K. Munakata, A. Nakao, H. Sagayama, R. Kumai, K. Sugimoto, N. Maejima, A. Machida, T. Watanuki, and H. Sawa, *IUCrJ* **5** (2018) 158-165.
- [4] T. Yamada, H. Takakura, M. de Boissieu, and A.-P. Tsai, *Acta Cryst. B* **73** (2017) 1125-1141.
- [5] T. Noritake, M. Aoki, S. Towata, A. Machida, and T. Watanuki, *Int. J. Hydrogen Energy* **42** (2017) 16667-16674.
- [6] T. Ohmura, N. Setoyama, Y. Mukae, A. Usuki, S. Senda, T. Matsumoto, and K. Tatsumi, *Cryst. Eng. Comm.* **19** (2017) 5173.
- [7] Y. Okamoto, H. Shiwaoku, M. Nakada, S. Komamine, E. Ochi, M. Akabori, *J. Nucl. Mater.*, **471**, (2016) 110-115.
- [8] 岡本芳浩、永井崇之、塩飽秀啓、猪瀬毅彦、佐藤誠一、日本原子力学会和文論文誌、**16** (4), 180-190 (2017).
- [9] Y. Sato, M. Tsukamoto, T. Shobu, Y. Yamashita, S. Yamagata, T. Nishi, R. Higashino, T. Ohkubo, H. Nakano and N. Abe, *Applied Physics A*, Vol.124, (2018) pp.288-293.
- [10] D. Shimizu, S. Tsukada, M. Matsuura, J. Sakamoto, S. Kojima, K. Namikawa, J. Mizuki and K. Ohwada, *Phys. Rev. B* **92**, (2015) 174121.
- [11] K. Ohwada, S. Tsukada, M. Matsuura, S. Tsutsui, A. Q. R. Baron, J. Mizuki and K. Namikawa, *Ferroelectrics* (in press).
- [12] 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.

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

放射光分析技術開発グループ

塩飽 秀啓、岡本 芳浩、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

コヒーレント X 線利用研究グループ

大和田 謙二

磁性科学研究グループ

稲見 俊哉

BL23SU JAEA重元素科学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線放射光の特性を活かした表面および界面の化学反応観察、化学状態および電子状態分析を実施した。本装置は、文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業の実施機関であるJAEAの登録装置の一つである。機能性材料の表面物性や酸化物形成過程などのさまざまな研究に利用されている。

触媒や水素吸蔵材料として注目されるPd単結晶/多結晶、Pd系合金あるいはPdナノ粒子の表面構造と電子状態の関係および表面酸化物の化学状態分析、表面酸化物の形成過程や水素存在下での還元反応などが、その場合光電子分光によって調べられた。また、CuおよびCu合金に対する酸素分子 (O_2) による酸化やエチレンとの反応が、その場合光電子分光と超音速分子線によって調べられた。また、超音速分子線を使ったCu合金表面におけるアルコール合成反応の挑戦的探索研究も実施された。近年、安価な触媒材料として注目されるNiに関して、単結晶表面の自然酸化膜の分析、その水素 (H_2) 雰囲気環境における酸化物の分解反応のリアルタイム光電子分光観察が行われた。また、水素吸蔵合金であるVTiCr合金微粒子の表面酸化物の化学状態分析および加熱あるいは水素雰囲気におけるその分解反応のその場合光電子分光分析が行われた^[1-3]。

半導体デバイス材料の研究として、パワーエレクトロニクスへの応用を目指した窒化ガリウム (GaN) の表面および界面分析が実施された。ヘテロ接合GaN基板あるいはAlGaNやGaN基板上にプラズマCVD成膜した酸化物界面の化学状態に関してas-grownあるいは高温アニール後のその場合光電子分光分析が系統的に行われた^[4-6]。また、良好なゲート絶縁膜はGaNのパワーデバイスへの応用にとって極めて重要であり、一酸化窒素 (NO) などの酸素分子 (O_2) 以外のさまざまな酸化剤が検討されている。そこで、He希釈したNOガスを用

いてGaN表面の分子線による酸化反応のその場合光電子分光実験が行われた。吸着酸素量や化学状態の時分割観察が行われ、酸素分子を使った表面絶縁膜形成との比較が進められた。今後、本実験法はNO触媒反応研究などへの応用も期待されている。

二酸化チタン (TiO_2) は、光触媒や色素増感太陽電池の電極材料などとして幅広い応用が期待されている。ルチル型に対してアナターゼ型 TiO_2 は、表面構造とともにその反応性の理解は十分でない。パルスレーザー堆積法 (PLD) 法により作製したアナターゼ薄膜の表面欠陥とその反応性、水蒸気暴露後や超音速酸素分子線照射後の酸素欠陥修復など新しい表面制御方法の探索が、価電子帯、TiおよびO1s光電子分光によるその場合分析によって進められた。一方、炭素を主成分とする機能性材料の研究も注目されている。ダイヤモンドドライカーボン (DLC) 中の窒素原子とその電子状態分析やシリコンあるいは銅基板上に製膜したフラーレン膜とメタンガスとの反応のリアルタイム光電子分光分析が実施された。グラフェンの電子デバイスへの応用に対しては、酸化グラフェン形成およびその反応制御が極めて重要であるが、室温での酸素曝露ではその生成は困難である。そこで、酸化プロセス技術の開拓に向けて、Cu基板上のグラフェンに対する酸素分子線を使った酸化反応の探索がその場合光電子分光を使って調べられた。また、ダイヤモンド薄膜の酸化状態およびその加熱処理による表面電子状態や化学状態の変化も調べられた。以上のように、さまざまな材料表面に対する反応や機能に関する研究が実施された。

(吉越 章隆)

3. 生物物理分光ステーション

放射線は発ガンや突然変異など、遺伝的な影響を与えるリスク要因であると同時に、がんの治療などにも有効なツールである。特に、ブラッグピークを利用することで患部への限定的なエネルギー付与が可能となる炭素イオンビームなどの加速器施設において顕著な治療効果を挙げているが、国内外における施設の数はまだ十分とはいえない。これに対し、一般のX線源を用いた治療施設はその数は多いが、患部にビームが到達する途上にある正常組織へのエネルギー付与も不可避に起こる。そこで、なるべく低い線量に抑え、がん細胞にのみ特異的に

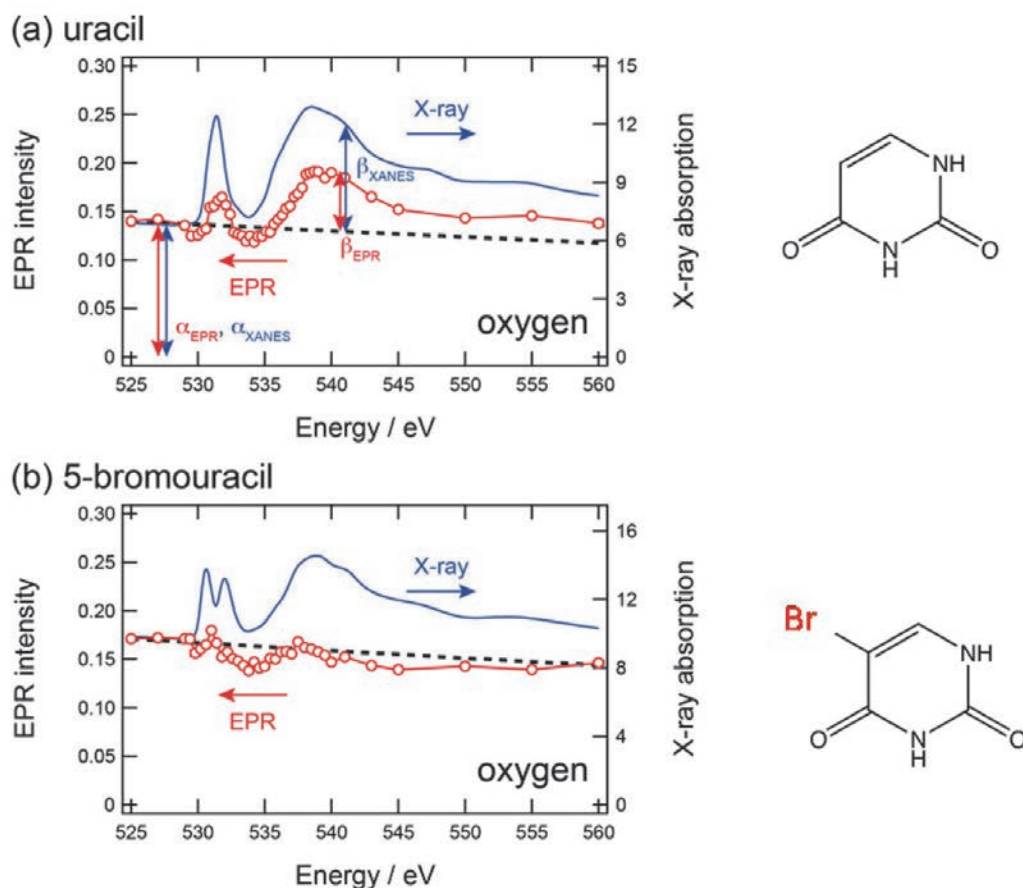


図1 酸素K殻吸収端領域において観測されたウラシル (uracil) およびブロモウラシル (5-bromouracil) のEPR信号強度 (赤丸)、および軟X線吸収スペクトル (青線)

細胞死を誘発させるような放射線増感薬剤の開発が望まれている。ハロゲン原子を含むピリミジン塩基は、その有力な候補である。これらのDNAを取り込ませた細胞は、放射線照射による致死効率が数倍から10倍程度に上昇することが過去の研究で報告されている。しかしハロゲンの存在によるDNA損傷の誘発プロセスについては、ほとんど明らかにされていない。生物物理分光ステーションではこれまで、DNAを構成する原子の内殻イオン化領域においてさまざまな分光手法によるDNA損傷の物理化学的なプロセスの研究を実施している。2017年度は主にハロゲン塩基に対する軟X線吸収スペクトル測定、および軟X線吸収によりハロゲン塩基試料中に生じた不対電子種を電子常磁性共鳴 (EPR) 測定により定量した。一方、DNAの主鎖が切断されるタイプの損傷は、ハロゲンの有無によらず細胞死の主要な要因と考えられている。その主鎖切断に至る詳細なメカニズムを明らかにするため、DNAの骨格分子であるデオキシリボースの薄膜に対する軟X線照射による脱離イオン測定を行うと同時に、時間発展密度汎関数法 (TDDFT) による結合切断のシミュレーションも行った。

DNAやRNAなどの遺伝暗号を担う塩基のうち、ピリミジン塩基にBrやIを結合させたハロゲン化塩基は、有力な放射線増感剤として期待されている。そこでこれらのハロゲン化ピリミジン塩基およびチミンやウラシルなどのハロゲン化されていない通常のピリミジン塩基を無酸素銅上に蒸着することで薄膜を作製した。これら薄膜を、BL23SUビームラインに接続したEPR装置の真空チャンバ内のマイクロ波キャビティに挿入し、窒素および酸素のK殻イオン化閾値近傍で照射するエネルギーを掃引しながらEPRスペクトルを測定した。得られたEPRスペクトルを2階積分することで、EPR強度を得た。この強度を、観測された不対電子種の収量として評価した。一般的に、分子上の不対電子は極めて反応性に富むフリーラジカルと呼ばれ、その後のDNA損傷プロセスなど化学変化の起点になると予想される。典型的な測定結果として、Brを持つ5-ブロモウラシルの不対電子収量の軟X線エネルギー依存性、および比較のための吸収スペクトルを図1に示した。吸収スペクトルは、EPR測定に用いた試料に対して全電子収量法により測定した。Brが無い通常のウラシルの場合、吸収スペクトル上の微細構造に対応した構造がEPR信号強度

のエネルギー依存スペクトル上にもはっきりと確認された。このことから、ウラシルの場合にはDNA損傷に至る確率は内殻のエネルギー吸収にほぼ比例すると推測された。一方Brを持つ5-ブロモウラシルの場合、予想とは全く異なり酸素のK殻励起・イオン化に相当する構造が消失した。この傾向は、窒素のK殻吸収端領域でも同様に確認された。さらに、Brの代わりにFを含む5-フルオウラシル、Clを含む5-クロロウラシル、Iを含む5-ヨードウラシル、およびハロゲンを含まないチミンとシトシンについても同様に測定を行ったところ、K殻吸収端におけるEPR信号強度は置換した官能基の電気陰性度に強く依存することが明らかになった^[7]。窒素や酸素のK殻励起・イオン化に伴い本来生じるはずの不对電子を、電子吸引力のあるハロゲンが引き寄せ自らが脱ハロゲン化することで塩基本体の不对電子化を打ち消していると推測された^[8]。これが最終的に細胞の放射線増感効果とどのように結びつくかについては、現時点ではまだ明らかではない。現在、ハロゲン化ピリジン塩基の電子比熱測定や光電子分光測定を同時に進め、電子状態の観点からその特徴を明らかにするための努力が続いている^[9]。

一方、DNA主鎖切断の生成初期の物理化学過程を解明するため、DNA主鎖骨格を形成する分子の一部であるデオキシリボースの薄膜に対して、これまで軟X線を照射中に薄膜表面から脱離するイオンを四重極質量分析器により検出し質量スペクトルを解析している。2017年度は特に、水和水分子がデオキシリボースの分解に果たす役割を明らかにするために、固体薄膜上に水分子の層を堆積させた上で脱離イオン測定を行った。その結果、僅か一分子層の堆積によりデオキシリボースの分解が大幅に抑制されたことに加え、水分子にプロトンが付加した H_3O^+ イオンの脱離も観測された。このイオンは、TDDFTを用いた分子動力学シミュレーションの結果から、デオキシリボースあるいは他の水分子から水和水分子に対するプロトン移動によって生じる可能性があることが示唆された^[4]。 H_3O^+ イオンは近傍の他の分子と反応してさらに酸化的な分子変化を引き起こす可能性が高く、近接した部位に鎖切断と酸化的塩基損傷が近接して生じる、いわゆる難修復性のクラスターDNA損傷となる可能性がある^[10]。化学結合切断箇所の詳細を明らかにするため、現在さらに重水素置換したデオキシリボースを試料に用いた脱離イオン測定を進めている。

(藤井 健太郎、横谷 明德)

4. アクチノイド実験ステーション

RI実験棟には光電子分光装置と軟X線磁気円二色性(XMCD)測定ステーションが設置されており、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。光電子分光ステーションでは、2016年度に開発した3次元ARPES(3D-ARPES)をさらに多くのウラン化合物に適用することにより、その立体的な電子状態を明らかにした。2017年度は、反強磁性と超伝導の共存を示す UPd_2Al_3 に対する実験を行った。 UPd_2Al_3 は超伝導転移温度 $T_{\text{SC}}=1\text{ K}$ の重い電子系超伝導体であるが、反強磁性転移温度 $T_{\text{N}}=14\text{ K}$ で比較的大きな磁気モーメント(0.85 μB)を持つ反強磁性転移を示す。常磁性相の UPd_2Al_3 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の情報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次元的な電子状態を捉えることができた。特にこの化合物は立体的で複雑な電子状態を持っており、どのフェルミ面が超伝導に関与しているかについて議論が分かれている状況にある。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。また、バンド計算で予想されている幾つかのフェルミ面が実験的には存在しないことも明らかとなった。今後、各種理論との比較を進めることにより、超伝導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、隠れた秩序転移を示す URu_2Si_2 のTh置換系である ThRu_2Si_2 に対するARPES研究^[11]、系統的な磁気的性質を示す UX_3 ($X=\text{Al, Ga, In}$)に対するARPES研究^[12]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^[13-16]。ウラン化合物においては、強磁性超伝導を示す UCoGe 、低温でメタ磁性転移を示す UCoAl 、ウラン化合物としては比較的高い強磁性転移温度をもつ UCu_2Ge_2 など、複数の磁性元素をもつ物質で多様な磁性を示す。その起源を理解するためにはウランおよびリガンド元素とりわけ磁性元素である遷移金属のそれぞれの磁性を把握することが重要であると我々は考えている。そこで元素選択的磁気プローブであるXMCDにより、U 5*f*電子と遷移金属3*d*電子の磁性をそれぞれ調べた。その結果、遷移金属の3*d*電子における軌道磁気モーメントが増大していることが見いだされ、その度合いは物質により異なることが分かった。このことは物質の磁性を担っているU 5*f*電子と遷移金属3*d*電子がどのよう

に相互作用しているのかを理解するうえで重要な情報であると考えており、遷移金属を含むほかのウラン化合物についても実験を行い、比較検討を行う予定である。一方、4f電子系で3d遷移金属を含むCeFe₂のXMCDの温度・磁場依存性による研究からも興味深い報告があった。Fe L_{2,3}吸収端の吸収(XAS)スペクトル、XMCDスペクトル、およびCe M_{4,5}吸収端のXASスペクトル形状には温度・磁場による変化は見られなかった。しかしながら、Ce M_{4,5}吸収端のXMCDスペクトル形状においては顕著な温度・磁場依存性が見つかった。これはCe 4f電子状態が外場に対して非常に敏感であることを実験的に明瞭に示しており、4f電子強相関電子系が示す複雑な磁性の理解にとって重要な知見である^[13]。また、外部研究機関との研究では、東京大学のグループは高効率のスピン注入材料として期待されているCoFe₂O₄薄膜における膜厚依存性を詳細に調べることで、性能劣化の要因である界面における磁気デットレイヤーの発生原因を明らかにした^[14]。このほか、大阪大学のグループは、ハールメタルホイスラー合金Mn₂VAlについて、XMCD実験とX線非弾性散乱実験および理論計算を組み合わせ、Mn 3d電子は遍歴的であるがV 3d電子は比較的局在性が強いことを明らかにした^[15]。また、東北大学のグループは、Ni_xFe_{4-x}N薄膜において、NiおよびFe L_{2,3}吸収端におけるXASスペクトル形状やそれぞれの元素における磁気モーメントの大きさのx依存性を調べることで、逆ペロブスカイト結晶構造においてNi原子がどのサイトを好んで占めるのかを明らかにした^[16]。これらの成果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の好例である。

(藤森 伸一、竹田 幸治)

参考文献

- [1] 岡田美智雄, 津田泰孝, 吉越章隆, デイニョ ウィルソン, 日本銅学会誌「銅と銅合金」第56巻 (2017) 232.
- [2] 小川智史, 塚田千恵, 村井崇章, 吉田光, 吉越章隆, 池永英司, 八木伸也, 第31回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム (JSR2018).
- [3] 多賀稜, 小川修一, 尾崎司, 吉田光, 吉越章隆, 高桑雄二, 2018年 第65回応用物理学会春季学術講演会.
- [4] T. Yamada, J. to, R. Asahara, K. Watanabe, M. Nozaki, S. Nakazawa, Y. Anda, M. Ishida, T. Ueda, A. Yoshigoe, T. Hosoi, T. Shimura, and H. Watanabe, *J. Appl. Phys.* 121, 035303-1 (2017).
- [5] K. Watanabe, M. Nozaki, T. Yamada, S. Nakazawa, Y. Anda, M. Ishida, T. Ueda, A. Yoshigoe, T. Hosoi, T. Shimura, and Heiji Watanabe, *Appl. Phys. Lett.* 111, 042102 (2017).
- [6] T. Yamada, K. Watanabe, M. Nozaki, H. Yamada, T. Takahashi, M. Shimizu, A. Yoshigoe, T. Hosoi, T. Shimura, and H. Watanabe, *APEX* 11, (2018) 015701.
- [7] T. Oka, A. Yokoyay, K. Fujii, Y. Kinoshita, and T. Sekine: to be published.
- [8] A. Yokoya: 1st QST International Symposium, Quantum Life Science, 25-26 July, 2017, Chiba, Japan
- [9] 鬼澤美智、芳賀芳範、田中成典、鯉淵誠也、横谷明徳: 合同シンポジウム「量子生命科学の世界へようこそ」, 日本放射線影響学会第60回大会, 10月25 - 28日, 2017, 千葉.
- [10] K. Fujii, Y. Izumi, A. Narita, Ghose KK, P. López-Tarifa, A. Touati, R. Spezia, R. Vuilleumier, M.P. Gaigeot, M.-F. Politis, M.-A. Hervé du Penhoat, and A. Yokoya, *Radiat. Res.* 189, (2018) 264.
- [11] S. Fujimori, M. Kobata, Y. Takeda, T. Okane, Y. Saitoh, A. Fujimori, H. Yamagami, Y. Matsumoto, E. Yamamoto, N. Tateiwa, and Y. Haga, *Phys. Rev. B*, 96, (2017) 125117.
- [12] S. Fujimori, M. Kobata, Y. Takeda, T. Okane, Y. Saitoh, A. Fujimori, H. Yamagami, Y. Haga, E. Yamamoto, and Y. Ōnuki, *Phys. Rev. B*, 96, (2017) 115126.
- [13] Y. Saitoh, A. Yasui, H. Fuchimoto, Y. Nakatani, H. Fujiwara, S. Imada, Y. Narumi, K. Kindo, M. Takahashi, T. Ebihara, and A. Sekiyama, *Phys. Rev. B* 96, (2017) 035151.
- [14] Y. K. Wakabayashi, Y. Nonaka, Y. Takeda, S. Sakamoto, K. Ikeda, Z. Chi, G. Shibata, A. Tanaka, Y. Saitoh, H. Yamagami, M. Tanaka, A. Fujimori, and R. Nakane, *Phys. Rev. B* 96, (2017) 104410.
- [15] K. Nagai, H. Fujiwara, H. Aratani, S. Fujioka, H. Yomosa, Y. Nakatani, T. Kiss, A. Sekiyama, F. Kuroda, H. Fujii, T. Oguchi, A. Tanaka, J. Miyawaki, Y. Harada, Y. Takeda, Y. Saitoh, S. Suga, and R. Y. Umetsu, *Phys. Rev. B* 97, (2018) 035143.
- [16] F. Takata, K. Ito, Y. Takeda, Y. Saitoh, K. Takanashi, A. Kimura, and T. Suemasu, *Phys. Rev. Materials* 2, (2018) 024407.

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、横谷 明徳

BL11XU 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。さらに、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. バンド幅可変・核モノクロメーターの開発と超高分解能X線非弾性散乱への応用

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。2017年度は、放射光メスbauer分光を利用したナノ材料研究や超高压水素下での希土類水素化物の電子物性を調べる応用研究が行われた。これに加えて、放射光核共鳴散乱の超単色性を活かした新しい利用研究の可能性を探るための放射光超単色化技術の高度化を進めた。その特筆すべき開発成果の一つとして、 ^{57}Fe 核モノクロメーターで生成した放射光メスbauer γ 線のバンド幅制御技術の実用化に成功したので紹介する^[1]。

これまでの放射光超単色化では、連続波長の放射光をNéel点近傍で内部磁場が殆ど零に近い状態の $^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶に照射して、この結晶の電子散乱禁制で核共鳴散乱が許容となる純核ブラッグ反射を利用することでメスbauer分光に利用できるバンド幅 10^{-8} 程度の ^{57}Fe メスbauer γ 線を発生させている^[2]。ところで、Néel点よりも低い温度では内部磁場が存在するため、核の超微細構造は、核ゼーマン分裂により不連続なエネルギー分布を持つ。このため、 $\Delta m = \pm 1$ の4本のマルチラインのメスbauer γ 線が分光され、そのバンド幅は室温で約0.8 μeV に広がり、 γ 線強度はNéel点近傍 ($\sim 76^\circ\text{C}$) で得られる γ 線に比べて1桁大きくなる。ところが、マルチライン γ 線は、分光実験を行うプローブとして使いにくく、これまでのところ、精密 γ 線光学研究以外の応

用には供されたことがなかった。そこで、我々は分光結晶の温度制御で ^{57}Fe 核の内部磁場の大きさ（全体の分裂幅）の調節を行うと同時に、結晶に高周波磁場を印可して磁気弾性的に中の ^{57}Fe 原子核を振動させ、超微細構造分裂の不連続なエネルギー分布をコラップス効果で連続的なものに変換することにより、 $10^{-6}\sim 10^{-8}$ eV領域でバンド幅を制御したシングルラインメスbauer γ 線を高出力で生成することを試みた。

核モノクロメーターのバンド幅制御とそのエネルギー分布を評価できる光学系を図1 (a) に示す。本光学系

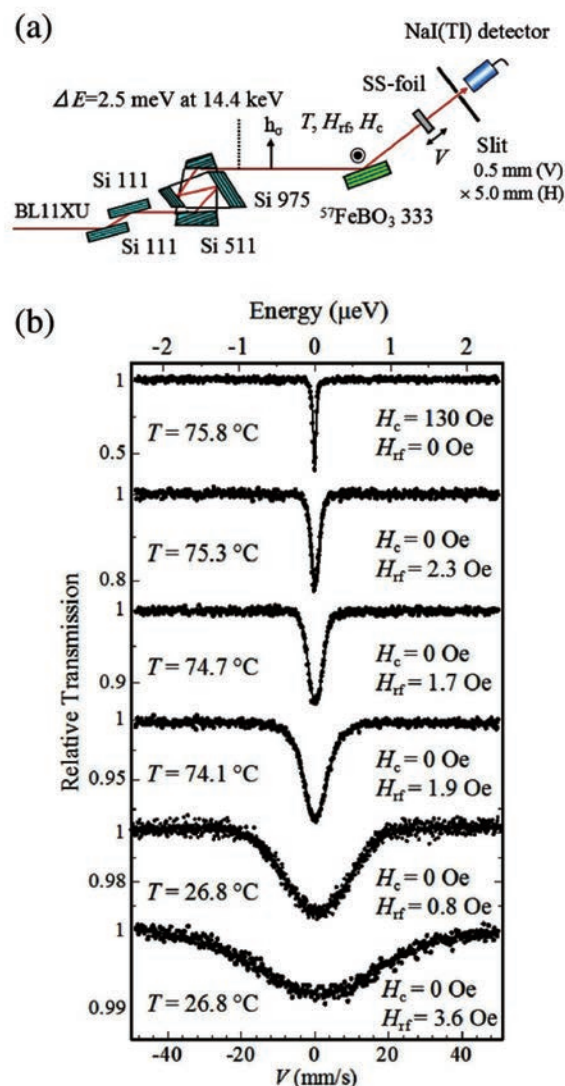


図1 バンド幅可変核モノクロメーター
(a) 光学系 (b) 結晶の温度と印加する高周波磁場強度に対するバンド幅変化

では、放射光から高分解能分光器 [Si511 x Si975] で分光した σ 偏光の X 線 (14.4 keV) を $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶に照射し、それを結晶の電子散乱が禁制で核共鳴散乱が許容となる回折面で反射させる (純核ブラッグ反射)。この時、結晶温度は 0.01°C 以下の精度で制御し、容易磁化面 (111) 内で散乱面に対して垂直に 8 MHz の高周波磁場を印加する。この時、結晶には磁気弾性波が共鳴励起され、不均一な振幅の膜面振動が生じる^[3]。その結果、 ^{57}Fe 核から出射される γ 線にランダム位相変調 (ドップラー効果) が起こり、不連続な超微細構造分裂が連続的なエネルギー分布へ変化する (高周波コラップス効果)^[4]。そのエネルギー分布の変化は、核モノクロメーターの下流に配置したシングルラインの吸収特性 (バンド幅 = 23 neV) を有するステンレス箔を振動させ、メスバウアー吸収スペクトルを測定することで評価される。結晶温度と印加する高周波磁場強度を変えた時のスペクトルを図 1 (b) に示す。一見して分かるように、温度と磁場強度を調節することで、 10^{-6} ~ 10^{-8} eV のバンド幅で連続的なエネルギー分布を有するシングルラインの放射光メスバウアー γ 線を発生できることが分かる。この時、バンド幅増加に伴い、 γ 線の強度が約 1 桁向上することも確認された。この様に、 10^{-6} ~ 10^{-8} eV 領域でバンド幅可変のシングルラインメスバウアー γ 線を発生する技術はこれまで存在しなかったもので新しい計測技術への応

用が期待できる。

バンド幅が広く、高出力の放射光メスバウアー γ 線を用いた新しい計測法の一例として、液体状態のグリセロールの準弾性散乱の測定を試みた。ここで、液体状態のグリセロールの分子の拡散運動は激しく、高分解能中性子準弾性散乱実験から、線幅が 1 μeV 程度まで広がることが指摘されている。さらに、液体試料では、無反跳分率が極端に低く、従来の 10^{-8} eV バンド幅のメスバウアー γ 線源では強度不足で測定ができない。

実験配置を図 2 (a) に示す。本実験では分光結晶の温度を室温に固定し、振幅 0.75 Oe、周波数 8 MHz の高周波磁場を結晶に印加することで、バンド幅 1 μeV の放射光メスバウアー γ 線を発生させる。それを、クライオスタット内のグリセロールに照射して、ガラス転移温度より低温側の -123°C と融点より高温側の 25°C の温度で準弾性散乱スペクトルを測定した。検出器は角散乱が約 12° の位置に配置して測定を行った。エネルギーアナライザーとして、バンド幅 50 neV のシングルライン核共鳴吸収体 (BA) を検出器の直前に配置し、それをドップラー振動させ、吸収スペクトルを測ることで準弾性散乱のプロファイルを得た。また、実験の前に、試料が無い状態で検出器を前方に配置して吸収スペクトルを測定する事で装置関数を測定した。これらの結果を図 2 (b) に示す。一見で、低温側で測定した準弾性散乱プロファイルが装置関数と同じであることが分かる。この結果は、ガラス転移以下のグリセリンでは入射 γ 線のバンド幅 (分解能 ~1 μeV) に対して観測にかからないほど分子振動が小さいことを意味している。一方、室温で観測したスペクトルは、装置関数に比べて 2 倍程度まで広がっていることが分かる。これは、液体状態のグリセリンでは、分子の振動状態が大きく増加していることを示唆している。観測されたグリセリンの準弾性散乱の線幅の広がりとは約 1 μeV で、中性子散乱などで観測された値とはほぼ一致した。本結果は、バンド幅可変核モノクロメーターが、これまで測定困難とされていた液体状態のダイナミクスを μeV 分解能で解析できることを初めて実証したもので、核モノクロメーターの線幅と強度を調節すれば物質のダイナミクスを 10^{-8} ~ 10^{-6} eV 領域の超高分解 X 線非弾性散乱で調べられることを示唆している。高輝度放射光でスローダイナミクス研究を行うことの利点としては、微小試料や不均一性や異方性のある試料のダイナミクス研究での優位性があげられる。高指向性ビームの利用が重要となる回折を用いた実験などには特に有効な手法になるであろう。例えば、誘電体結晶の相転移に伴うソフトフォノンの研究は興味深い^[5]。放射光を極限的に超単色化した放射光メスバウアー γ 線は、試料ダメージの無い超マイルドなプローブ光であること

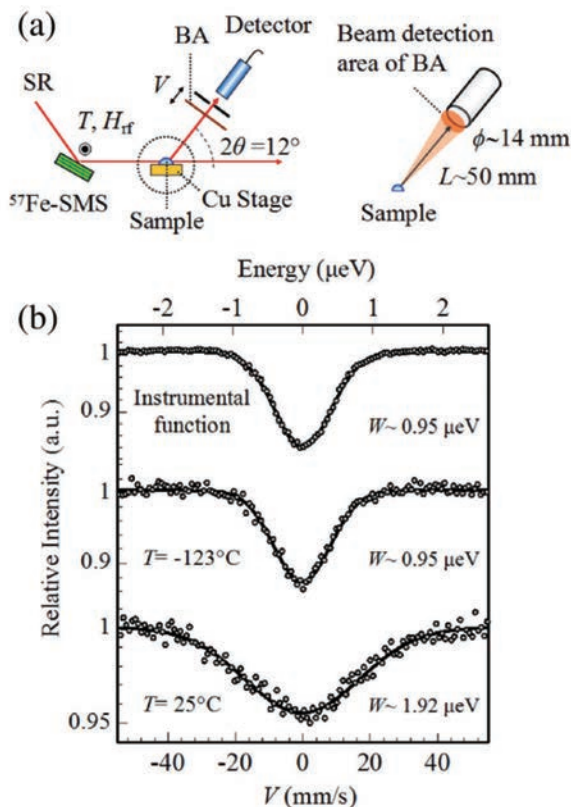


図2 液体グリセロールの準弾性散乱

から、機能性高分子薄膜や放射ダメージを受けやすい生体高分子ダイナミクスの研究にも応用され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、溶液や様々なダイナミクスな環境におけるイオンの挙動および存在状態を、SPring-8のアンジュレータ高輝度放射光を用いたXAFS法により明らかにし、アクチノイド(An)など重元素の化学結合および錯体構造特性を明らかにしてきた。未だ十分に体系化されていない重元素錯体化学の理論体系を解明すると共に、放射性廃棄物の処理法および除染法の開発、地層処分システムの安全評価の信頼性向上に資する研究を進めている。

3-1 テトラセレナイド(Se_4^{2-})の吸収スペクトルの取得

地層処分されたガラス固化体から漏れ出した放射性核種に由来する地表での線量を地層処分に先立って評価し、地表線量が安全基準を下回ることをあらかじめ確認しておかなければならない。この地表線量は、半減期が長く、地下水中を移行しやすいセレン(Se)-79により支配されると考えられている。そのため、地層処分システムの安全性を評価するにあたり、Seの地下水中での移行挙動を把握することが重要になる。地下300メートル以深に構築される処分場では、地下水は本来弱アルカリ性かつ強還元性である。このような地下水中では、Seは主に HSe^- として溶存すると考えられる。しかしながら、バリア材に含まれるセメントの影響でpHが上昇したり、酸化性地下水の流入や地下水の放射線分解に起因する過酸化水素により処分場環境の酸化還元電位が上昇すると、Seは主に Se_4^{2-} として溶存すると考えられる。そのため、この Se_4^{2-} の電子構造や収着挙動等を明らかにし、 Se_4^{2-} の地下水を介する移行挙動を評価する必要がある。そこで、2017年度は、 Se_4^{2-} の電子構造の解明に資する Se_4^{2-} の吸収スペクトルを取得することを目的としてXAFS分析を実施した。

Se_4^{2-} は大気中の酸素と反応するとSe単体固相となって沈殿するため、Seが Se_4^{2-} として高濃度で溶存する溶液の調製は、低酸素濃度雰囲気下で実施する必要がある。そこで、酸素濃度が0.1%未満に維持された雰囲気制御グローブボックス内で、Seが Se_4^{2-} として高濃度で溶存する溶液を調製した。この溶液をXAFS分析する際には、 Se_4^{2-} が大気中の酸素と反応し沈殿してしまうことを回避する必要がある。そこで、XAFS測定対象の Se_4^{2-} 溶液を酸素吸収剤とともに酸素低透過性フィル

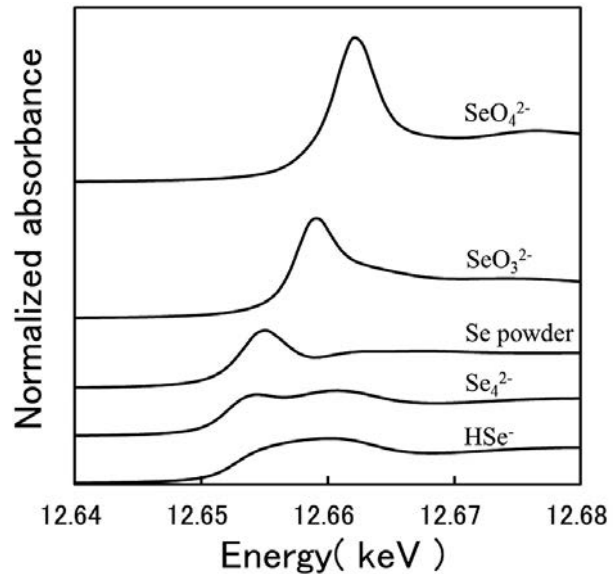


図3 種々のSe化学種の吸収スペクトル

ムからなる袋に雰囲気制御グローブボックス内で封入・密封した。この袋の中では酸素濃度が0.1%未満に維持された。この袋に封入したまま、BL11XUにおいて、XAFS分析(SeのK吸収端測定)を実施した。

図3にこれまでにBL11XUで取得した種々のSe化学種のXANESスペクトル(Se K吸収端近傍を規格化したもの)をまとめた。 Se_4^{2-} のXANESスペクトルは、二つのピークを有することが確認され、 Se_4^{2-} を構成するSeは2種類の酸化数を有することが示唆された。

3-2 ガラス固化体の溶解速度評価に資するFe(II)-Si固相のXAFS分析

鉄(Fe)とケイ素(Si)の相互作用は、Fe-ケイ酸塩およびSiを含有するFe(水)酸化物の生成を通じて、地層処分されたガラス固化体の溶解速度に影響すると考えられている。これらの相の前駆物質は、相互作用の初期段階で生成した結晶性の乏しいFe-Si析出物である。長時間が経過した後に形成される安定相を予測するためには、Fe-Siの前駆相の特性および構造の詳細な理解が必要である。本試験では、低酸素・還元環境において種々のSi/Fe(II)比でFe(II)-Si固相を合成した。Fe(II)-Si固相のXAFS分析を行うことで、Si存在下におけるFe(II)の局所的な定量的情報を得ることが可能である。特に、本試験では、Siの増加に伴うFe(II)の酸素配位数の変化およびFe(II)の重合度(Fe-Fe結合の数)に着目している。

Fe(II)-Siの粉末は、低酸素濃度雰囲気としたグローブボックス内において、Fe(II)-Siのペーストを低湿度で乾燥させることで調製した。乾燥試料は、粉末化後に透明な熱圧着ビニルバッグに封入した。粉末試料の酸化

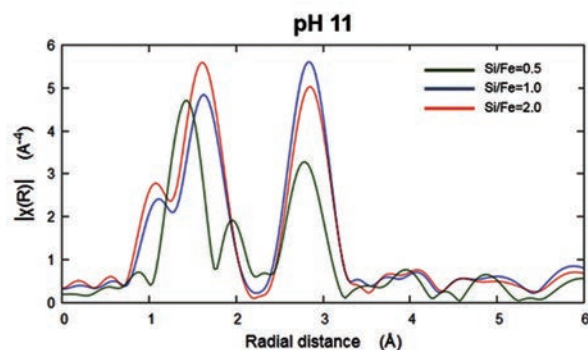


図4 pH 11において種々のSi/Fe(II)比で合成した試料のEXAFSスペクトルのフーリエ変換結果

を防ぐため、酸素吸収剤を試料とともに封入し、FeのK吸収端の測定を行った。

図4は、pH 11において種々のSi/Fe(II)比 (Si/Fe(II) = 0.5, 1.0, 2.0) で合成した試料のEXAFSスペクトルから得られた動径構造関数である。フーリエ変換マグニチュードから判断すると、2つの配位シェルが確認できる。ARTEMISを用いたFEFFによる予備計算では、第1シェル ($R = 1\text{--}2 \text{ \AA}$) は、5-6個のO原子に相当する。パラメータが不規則となっているのは、原子間距離が大きくばらついていることを示唆しており、Si/Fe(II) = 0.5で最も顕著である。第2シェル ($R = 2\text{--}3 \text{ \AA}$) は、6個のFe原子に相当する。

(塩飽 秀啓、小林 徹、土井 玲祐、Paul Clarence Francisco)

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では非弾性散乱分光器を設置し、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)、X線発光分光、高エネルギー分解能蛍光検出による高分解能X線吸収分光の測定を行っている。測定対象は、強相関電子系物質や触媒、電池の電極材料などの遷移金属化合物である。強相関電子系物質では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、触媒や電極材料では硬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X線発光分光や高分解能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。

2017年度に行ったRIXSによる研究として電子ドーピング銅酸化物超伝導体を取り上げる。いわゆるT'構造を持つ電子ドーピング銅酸化物超伝導体 $R_{2-x}Ce_xCuO_4$ (R: rare earth) においては、従来、+3価のRを+4価のCeに置換することによる電子ドーピングに加え、結晶の還元アニール処理による過剰酸素の除去が超伝導の発現には不

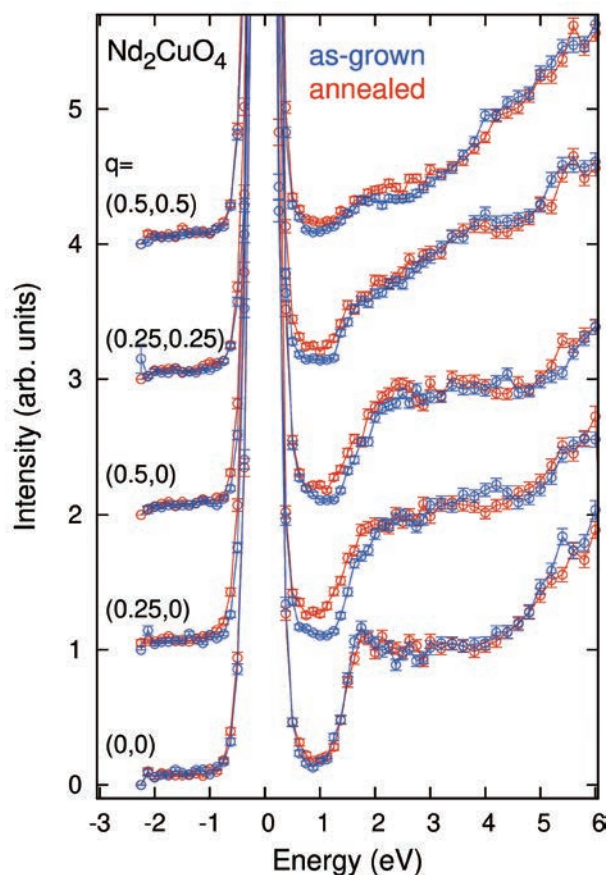


図5 Nd_2CuO_4 の銅K吸収端RIXSスペクトル。qは CuO_2 面内の運動量を表す。

可欠とされてきた。最近、新たな還元処理方法や試料合成方法の導入により、従来考えられていたよりも低いCe濃度 (x) まで、場合によってはCe置換を行っていない試料でも超伝導が報告された。特に、Ce置換を行っていない試料での超伝導発現は母物質がモット絶縁体でない可能性を示すものであり、還元アニール処理が電子状態にどのような影響を与えているかを再検討する必要がある。本研究では、銅K吸収端のRIXSを用い、電荷励起の観点から還元アニールの電子状態への影響を調べことで、電子ドーピング銅酸化物での還元アニール処理が本質的に何を起こしているかを明らかにすることを目指した。

実験はBL11XU実験ハッチ2の非弾性X線散乱分光器を用いて行い、チャンネルカットSi (400) モノクロメーター、Ge (733) アナライザーの組合せでエネルギー分解能は約270 meVであった。入射X線のエネルギーは、過去の実験で詳細な運動量依存性を測定した時と同じ8991 eVとした。

図5にCe置換をおこなっていない母物質 Nd_2CuO_4 の結果を示す。as-grown試料では、すべての運動量で1eV付近のスペクトル強度が消失し、バンドギャップが観測されているのに対し、annealed試料では $q = (0, 0)$ を除

いてギャップ内の強度が増大している。この変化はCe置換により電子ドーピングしたときのスペクトル変化と同じであり、還元アニール処理により電子がドーピングされていることを示す。従って、Ce置換をしていない試料においても、還元アニール処理によって電子がドーピングでき、金属、さらには超伝導体になる可能性があるといえる。

X線発光分光では、鉄系超伝導体の鉄K・β線の測定から鉄3d電子スピンの状態を調べた^[6]。鉄のKβ線分光では、低エネルギー側のKβ'線と高エネルギー側のKβ_{1,3}線との分裂の大きさが3dスピンの大きさに比例することが知られている。母物質BaFe₂As₂、およびそれに対してホールをドーピングしたBa_{1-x}K_xFe₂As₂、電子をドーピングしたBa_{1-x}K_xFe₂As₂について系統的にドーピング依存性の測定を行い、ホールドーピングについてはスピンの大きさがほとんど変わらないのに対し、電子ドーピングを行うとスピンが小さくなることが分かった。このドーピングに対して非対称な結果は、フント結合によって3d電子が5個の状態が長寿命で安定化するというスピン凍結状態を考慮することで理解することができる。

高エネルギー分解能蛍光検出による高分解能X線吸収分光では、固体高分子型燃料電池Pt、PtCo触媒表面の酸素吸着に及ぼす水の影響を調べ、Ptでは水酸素の共吸着が反応を抑制しているのに対し、PtCoではその抑制がなくなっていることを明らかにした^[7]。この研究は文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業として行われ、約3000件の利用課題の中から6件選ばれた「秀でた利用成果」の一つに選ばれた。また、同手法を用いて、EXAFSにおいてしばしば解析の妨げとなる隣接吸収端の影響が除去できる事を示す成果を得た^[8]。

(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^[9-11]。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。窒化物半導体用の真空チェンバーは、蒸気圧の高いヒ素が使用されていないことから、窒化物半導体の結晶成長に関する実験だけでなく、 10^{-8} Pa台の超高真空を必要とする実験に広く利用されている。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行われている。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、オフラインで使うことができ、放射光実験に備えた試料作

製の予備実験に用いることが可能である。2017年度は、4月から12月まで窒化物半導体MBE、1月から3月までヒ化物半導体MBEに関する実験が進められた。

窒化物半導体成長装置については、結晶成長速度を増加させるための改良を行った。GaNやAlN、InNなどの窒化物半導体は、通常、III族分子線が窒素ラジカルよりも多い条件で成長が行われる。このような場合、結晶の成長速度は窒素の供給量で律速されるため、成長速度の増加のためには窒素ラジカルを増やすことが必要になる。そこで、窒素ラジカルセルのノズル先端部に開けられている開口の数を従来126個から190個に増やす改造を行った。図6は改造後に成長したSiC (0001) 基板上のGaN膜断面のSEM像である。成長時間は62分14秒であった。これより、GaNの成長速度は100-120 nm/hと見積もられ、従来に比べ、およそ1.5倍の成長速度になっていることが確かめられた。窒素ラジカル量を増やしたことにより、窒素過剰条件で成長させるGaNナノワイヤの成長も容易になった (図7)。そのほか、マグネシウム用のクヌーセンセルを追加したことにより、p型ドーピングもできるようになった。

ヒ化物半導体については、GaAs (001) 基板上のInGaAs成長を対象に、格子不整合度の違いが格子不整合ひずみの緩和様式に及ぼす影響が調べられた。InGaAs/GaAs (001) の系では、Inの組成が30%程度以下のときにはInGaAs膜が二次元成長し、膜中に蓄積されたひずみは貫通転移を形成することで緩和される。一方、In組成がそれより大きい領域では、InGaAsが島状成長することによってひずみ緩和が進む。基板表面に水平および垂直な方向の格子定数を一度に決められる三次元X線逆格子マップのその場測定を行うことによって、成長中のInGaAsのひずみ緩和率および組成の変化を決定した^[12]。InGaAs膜の転位の挙動は、成長基板の格子面と物理表面との傾きにも影響される。成長中のX線逆格子マップの結果から、[110]方向に6度傾斜した基板では、転位の発生に顕著な非等方性が見られたのに対し、[1-10]方向に6度傾斜した基板では、そのような非等方性はみられなかった。このことから、基板の傾斜をうまく利用すれば、InGaAs膜の格子緩和の挙動を制御できる可能性が示された^[13]。また、InGaAsを膜としてではなく、ナノワイヤとして成長させることで、量子効果の利用など新しいデバイスの応用可能性が期待される。このような関心から、従来進めてきた金を触媒として用いるGaAsナノワイヤ成長の研究^[14]をさらに進め、InGaAsナノワイヤの成長のようすを調べた^[15]。

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

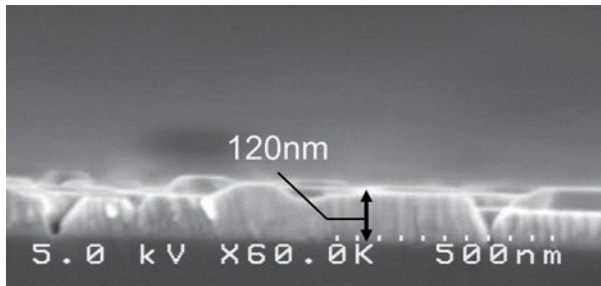


図6 BL11XUに設置されたその場X線回折用窒化物半導体成長装置を用いてSiC (0001) 基板上に成長させたGaN膜断面のSEM像（成長時間は62分14秒。GaNの成長速度は100-120 nm/hと見積もられる。

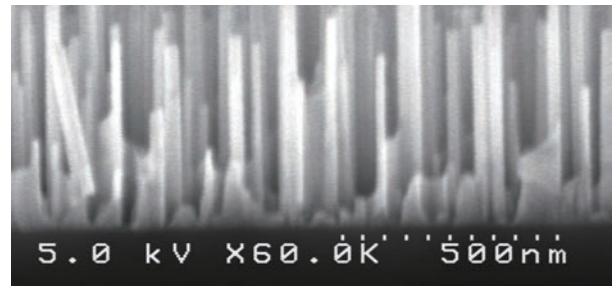


図7 BL11XUに設置されたその場X線回折用窒化物半導体成長装置を用いてSi (111) 基板上に成長させたGaNナノワイヤ。成長時間は4時間。

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共用に付されている。2017A・B期を通じて、窒化物光デバイスの長波長化に向けたその場X線回折測定を用いたGaInN分子線エピタキシー成長におけるひずみ緩和過程の制御技術構築や、サファイア基板・(AlGa)₂O₃基板の表面窒化、放射光X線を用いた格子不整合III-V族化合物半導体混晶のリアルタイム構造解析など、のべ6課題が実施された。

(高橋 正光)

6. 非共鳴磁気X線回折を用いた磁区観察法の開発

永久磁石や電磁鋼板など磁性体の内部の磁区構造を観察したいという要望は以前から存在したが、意外に適当な測定方法が存在しない。そこで、BL11XUでは、集光性に優れた微小領域測定に適した放射光を用い、加えて侵入長の長い高エネルギーX線を利用することにより、磁性体内部の磁区構造の観測が可能な新しい顕微磁気測定法の開発を試みている。最終的な目標は、1 μm程度の空間分解能と100 μm程度の侵入深さである。測定手法としては、強磁性観測手法として確立している非共鳴磁気X線回折法を用いた。強磁性体から散乱角90度で回折されたX線強度が入射楕円偏光の左右に依存する現象を利用している。鍵となる光学素子は直線偏光子であり、この導入により入射偏光純度を1-2桁向上させ、実用的な大きさの反転比と汎用ダイヤモンド移相子を用いた高エネルギーX線の偏光制御を実現させるのが重要な開発要素である。

ここまでの研究では、Si (nn0) 直線偏光子を利用した8.7 keVと17.3 keVでの反転比の測定、また、集光光学系の導入による17.3 keVでの磁気ドメインの走査顕微観察まで実施できた。2017A期は、直線偏光度の向上を目指し、Si (nnn) 直線偏光子を試したものの、目標とする26 keVでの反転比の観察には至らなかった。2017B期はさらなる直線偏光度の向上を目指し、Si (n00) 直線偏光子の利用を試みた。

挿入光源からの光はモノクロメーターで単色化した後、直線偏光度を上げるために直線偏光子を通し、続いて、楕円偏光にするために移相子を通す。直線偏光子はSi (n00) チャンネルカット結晶で、移相子は厚さ500 μm、(100) 研磨面のダイヤモンド単結晶である。試料は鉄の単結晶で、110面が出ている。必要に応じ永久磁石ではさみ、磁化を飽和させる。散乱角が90度になるように観察する指数とエネルギーを選び、Si (800) - Fe (330) - 13 keVでまず実験を開始し、続いて、Si (16 0 0) - Fe (660) - 26 keVの組み合わせで行った。試料位置でのビームサイズは、0.5 mm × 0.5 mm程度で行った。結果としては、まず、13 keVで約1%の反転比を観測し、続いて26 keVで約0.5%の反転比の観測に成功した。計算と比べると、13 keVの直線偏光度は0.99997程度、26 keVの直線偏光度は0.99992程度となり、直線偏光度があまり上がっていないことが分かった。今後は、26 keVでの偏光純度の向上を目指すことになる。

(稲見 俊哉)

参考文献

- [1] T. Mitsui, R. Masuda, M. Seto and N. Hirao, *J. Phys. Soc. Jpn.* (2018) [accepted].
- [2] T. Mitsui, N. Hirao, Y. Ohishi, R. Masuda, Y. Nakamura, H. Enoki, K. Sakaki, and M. Seto, *J. Synchrotron Radiat.* **16**, 723 (2009).
- [3] T. Mitsui, Y. Imai, and S. Kikuta, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **199**, 75 (2003).
- [4] Yu. V. Shvyd'ko, T. Hertrich, V. E. Sedov, G. V. Smirnov, U. van Bürck, R. L. Mössbauer, and A. I. Chumakov, *Europhys. Lett.* **19**, 723 (1992).
- [5] J. Z. Tischler, B. C. Larson, L. A. Boatner, E. E. Alp, and T. Mooney, *J. Appl. Phys.* **79**, 3686 (1996).
- [6] Jonathan Pelliciari, Yaobo Huang, Kenji Ishii, Chenglin Zhang, Pengcheng Dai, Gen Fu Chen, Lingyi Xing, Xiancheng Wang, Changqing Jin, Hong Ding, Philipp Werner, and Thorsten Schmitt, *Sci.*

- Rep.* **7**, 8003 (2017).
- [7] Yi-Tao Cui, Yoshihisa Harada, Hideharu Niwa, Tatsuya Hatanaka, Naoki Nakamura, Masaki Ando, Toyohiko Yoshida, Kenji Ishii, Daiju Matsumura, Hiroshi Oji, Hironori Ofuchi, Masaharu Oshima, *Sci. Rep.* **7**, 1482 (2017).
- [8] Hiroyuki Asakura, Naomi Kawamura, Masaichiro Mizumaki, Kiyofumi Nitta, Kenji Ishii, Saburo Hosokawa, Kentaro Teramura, and Tsunehiro Tanaka, *J. Anal. At. Spectrom.* **33**, 84-89 (2018).
- [9] M. Takahashi, Y. Yoneda, H. Inoue, N. Yamamoto and J. Mizuki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **41**, 6247 (2002).
- [10] M. Takahashi, *J. Phys. Soc. Jpn.* **82**, 021011 (2013).
- [11] T. Sasaki, F. Ishikawa, T. Yamaguchi and M. Takahashi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **55**, 05FB05 (2016).
- [12] R. Deki, T. Sasaki and M. Takahashi, *J. Cryst. Growth* **468**, 241 (2017).
- [13] H. Suzuki, T. Sasaki, M. Takahashi, Y. Ohshita, N. Kojima, I. Kamiya, A. Fukuyama, T. Ikari and M. Yamaguchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **56**, 08MA06 (2017).
- [14] M. Takahashi, M. Kozu, T. Sasaki and W. Hu, *Cryst. Growth Des.*, **15**, 4979 (2015).
- [15] T. Sasaki and M. Takahashi, *J. Cryst. Growth* **468**, 135 (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
稲見 俊哉、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、土井 玲祐
Paul Clarence Francisco

BL14B1 極限量子ダイナミクスⅡ

1. 概要

BL14B1は偏向電磁石を光源とし、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、X線反射率測定、および、XAFS測定であり、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、イオン液体と電極界面の構造解析、および、化学状態の評価を行っている。白色X線と単色X線を使った実験を相補的・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、ひろ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。また、高温高压下での液体の構造についての研究も進められている^[1]。

これまでは水素化が困難と考えられてきたアルミ合金を対象として新規水素化物の合成を試み、Al-Co合金の新規水素化物の合成に成功した。アルミニウムとコバルトの粉末をモル比2:1で混合したものを出発物質として用いた。混合粉末を室温で9 GPaまで加圧した後に、750℃まで100℃/minで加熱し水素流体中に保持し、反応過程を放射光その場観察したところ、合金とは異なる構造への変化が観察され、新規水素化物が得られていることが分かった(図1)。合成された水素化物は減圧過程で水素を放出すること無く、常圧下に回収可能であっ

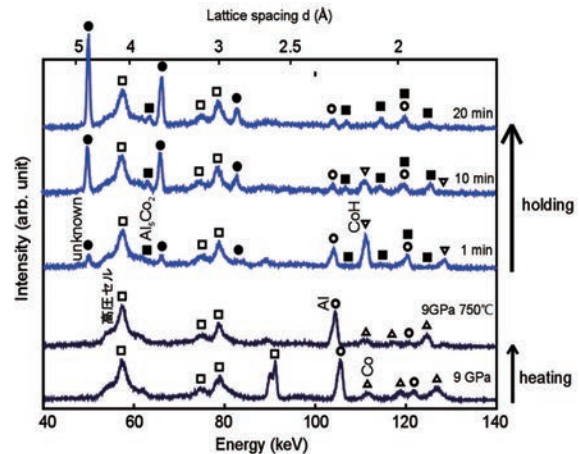


図1 アルミニウムとコバルトの粉末をモル比2:1で混合した粉末を圧力9 GPa、温度750℃の条件で水素化した際の放射光その場粉末X線回折測定結果。□は高压セル、○はAl、△はCo、▽はCoH、■は Al_5Co_2 、●は水素化物からのブラッグ反射をそれぞれを表す。

た。回収した合金水素化物を常圧で加熱したところ約170℃で水素放出が観察された。現在は単相の合成条件を決定できていないため、単相試料の合成条件の探索を進めている。単相が得られた場合、放射光と中性子回折実験を行い、構造決定を試みる予定である。Al-Co系以外のアルミ合金の水素化についても研究を進めている。

(齋藤 寛之)

3. 応力

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最も簡便である。2017年度はJASRI情報処理推進室が開発してきたエネルギー認識型X線画像検出器を利用し、JASRI、QST、JAEAが協力して実材料への適用・評価を行った。JASRI検出器チーム担当の検出器の高度化に関しては、ピクセル毎の読み出し回路のオフセット電圧および前置増幅器の利得を個別に調整する手法を確立し、標準蛍光試料を用いて20～150 keVの範囲で良好なエネルギー線形性が得られることを確認した。これにより、回折スポットのエネルギーを $(\Delta E/E)10^{-3}$ 以下の精度で精密に決定できることを実証した。また、データ収集ソフトウェアも実利

用を見据えて一新し、サンプルおよび検出器設置ステージとの連動測定を迅速に行えるように改良した。一方、測定技術開発を担当するQST・JAEA側は、2016年度に開発した3次元イメージングの手法を利用し、複数の金属材料に適用した。(1) 4点曲げた銅多結晶試料：ラウエ回折を測定し、検出された回折強度をエネルギー分光解析した。その結果、回折スポット内ではエネルギーが60~120 keVの領域で分布していた。格子面間隔はスポット内ではほぼ一定で、それぞれ2.106 Å、1.807 Å、1.278 Åであり、これらは銅の主要3方向に対応するCu 111、Cu 200、Cu 220の標準値と一致していることが明らかになった。(2) 4点曲げた銅単結晶試料：弾性変形過程のラウエ回折を測定した結果、負荷ひずみの値が大きくなるにつれ、各ラウエスポットが広がっていく様子が捉えられた。また、スポット毎に広がり具合が異なり、回折面による変形の難度が異なっていた。さらに、弾性変形から塑性変形へ変化した際に、スポットの広がり他に結晶方位の回転も確認できた。(3) 3次元イメージング手法開発：試料を回転させずにカメラ長を変化させてラウエ回折像を測定する3次元イメージング手法開発を実施した。カメラ長を変化させると、ラウエスポットの形状は変化しないが、見えている視野がより広角になる。カメラ長を変えて撮影された同一ラウエスポットを幾何学的に解析することで、各ラウエスポットに対する試料中の奥行き方向の情報を得ることを可能にした。さらに、試料を放射光に対して垂直方向に動かすことで、像を得ることが可能になった。今後はさらに解析を進め、求めたひずみの精度についての評価を実施する。

(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振る舞いを、その場構造解析法の1つであるX線反射率測定により追跡した。今回は、側鎖の長さが異なるイオン液体を電解液に用い、イオン液体分子の構造の違いが界面での振る舞いにどのような影響を与えるかを調べた。カチオンのイミダゾリウム環にn-ブチル基を持つ1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムビス(トリフルオロメチルスルホニル)アミド([BMIM]TFSA)と、n-ヘキシル基を持つ1-ヘキシル-3-メチルイミダゾリウムビス(トリフルオロメチル

スルホニル)アミド([HMIM]TFSA)を電解液とし、Si(100)基板を電極とした。反射率強度の電極電位依存性を測定した結果から、[BMIM]TFSAの場合は、界面のイオン液体分子は不可逆的な振る舞いを示すのに対して、[HMIM]TFSAの場合は、可逆的な振る舞いを示すことが分かった。インピーダンス測定の結果では、電極表面に吸着しているイオン液体分子は、どちらのイオン液体の場合でも可逆に振る舞うことから、この結果は、電極の極近傍では、構造の違いに関係なくイオン液体分子は電極の表面電荷に束縛されるのに対して、沖合に行くと、イオン液体分子同士の相互作用が主として構造を決めていることを示していると考えられる。

(田村 和久)

5. PDF

BL14B1では高エネルギーX線回折によって得られた粉末X線回折パターンから、リートベルト解析とPDF解析の両方を行うことができる。リートベルト解析は最新版のRIETAN-FPでは煩わしい異分散項の入力が自動的に行われるようになったため、利便性が大いに向上した。なお、最新版のRIETAN-FPは原則として開発者の泉富士夫先生の講習会に参加しなければ入手することはできないのだが、泉先生のご厚意によってBL14B1の κ 型回折計を使用したユーザーへの再配布が許されている。リートベルト解析によって得られた平均構造は、PDF解析の際にも有力な局所構造モデルとなる。また、同じデータセットで平均構造と局所構造解析を行うことによって、平均構造と局所構造との差異をより厳密に抽出することができるようになり、 $\text{BaTi}_2\text{O}_5^{[2]}$ 、 $\text{PbZr}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_3^{[3]}$ 、 $\text{Na}_{0.5}\text{K}_{0.45}\text{Li}_{0.05}\text{NbO}_3^{[4]}$ などに適用されている。

(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光学系によるXAFS測定が実施されている^[5-8]。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ostat、インジェクター等の遠隔操作システムを常備させ、ガス変換反応、溶液中電極反応、配位子置換反応等を対象とした時分割測定を実施している。2017年度においては、アルカリ溶液中のPt電極触媒に対して、サイクリックボルタメトリーを実施しながらPt L_3 吸収

端のXAFSを連続的に観察するCV-XAFS測定を行い、Pt電極触媒の酸素還元反応における律速過程が電位条件によって異なることを明らかにした^[6]。

通常型光学系としては、蛍光検出器として36素子SSDを使用して、低濃度XAFS測定を実施している。その1つとして、放射性Csが付着した土壌の安定的保管や減容化へ向けて、各種粘土鉱物に対して微量のCsを収着させた際のCs *K*吸収端での局所構造測定を行っている。粘土の層構造とCsの収着状態との関連性を見出すことで、Csの移動度評価や選択的回収に繋げていくべく、研究を継続している。

(松村 大樹)

米田 安宏、田村 和久、松村 大樹

放射光分析技術開発グループ

菖蒲 敬久

References:

- [1] K. Fuchizaki, H. Nishimura, T. Hase, H. Saitoh: *J. Phys.: Condens. Matter*, **30** (2018) 045401.
- [2] S. Tsukada, Y. Fujii, Y. Yoneda, H. Moriwake, A. Konishi, Y. Akishige: *Phys. Rev. B*, **97** (2018) 024116.
- [3] Z. Wang, N. Zhang, H. Yokota, A. M. Glazer, Y. Yoneda, W. Ren, Z. Ye: *Appl. Phys. Lett.*, **113** (2018) 012901.
- [4] Y. Yoneda, E. Takata, H. Nagai, T. Kikuchi, M. Morishita, M. Kobune: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **56** (2017) 10PB07.
- [5] H. Itoi, H. Nishihara, S. Kobayashi, S. Ittisanronnachai, T. Ishii, R. Berenguer, M. Ito, D. Matsumura, T. Kyotani: *J. Phys. Chem. C*, **121** (2017) 7892.
- [6] S. Kusano, D. Matsumura, K. Asazawa, H. Kishi, T. Sakamoto, S. Yamaguchi, H. Tanaka, J. Mizuki: *J. Electron. Mater.*, **46** (2017) 3634.
- [7] Y. Sekine, R. Motokawa, N. Kozai, T. Ohnuki, D. Matsumura, T. Tsuji, R. Kawasaki, K. Akiyoshi: *Sci. Rep.*, **7** (2017) 2064.
- [8] H. Wang, J. Isobe, T. Shimizu, D. Matsumura, T. Ina, H. Yoshikawa: *J. Power Sources*, **360** (2017) 150.

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
安田 良、齋藤 寛之、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

BL08B2 兵庫県

1. はじめに

BL08B2は、BL24XUと共に放射光の産業利用支援を目的として兵庫県が設置したビームラインである。産業利用の支援ならびに運営の実務については兵庫県立大学放射光ナノテクセンターが行っている。偏向電磁石光源のビームラインであり、アンジュレタ光源を備えるBL24XUに対して相補的な分析機能を備えており、さまざまな産業分野において活用されてきた。産業界における材料の研究開発に対して、スタンダードな分析法を基本とした実験ステーションの利用機会を提供している。BL08B2の実験ステーションは、X線吸収微細構造(XAFS)、小角X線散乱(SAXS)、単色X線トポグラフィ、イメージング、粉末X線回折である。

2017年度は産業界におけるマテリアルズ・インフォマティクスの活用と材料開発の加速化を目的とした取り組みに着手した。またビームラインにおけるデータ収集効率を高めるため、測定、データ処理、解析の一連の作業を自動的に処理するシステムの構築や、多数の試料を自動的に測定可能とするための多検体サンプルチェンジャーの導入を進めている。以上のような取り組みに関して、2017年度における各実験ステーションの活動の詳細を以下に紹介する。

2. 各実験ステーションの現状

(1) XAFS

X線吸収微細構造(XAFS)の実験ステーションでは反応性ガス供給・排気装置を備えており、電池・触媒材料分野等で必要となる気相・固相反応下での構造評価を実プロセスに相当する試料条件で実行可能である。更に2017年度は高温加熱炉等のユーティリティを充実させ、ユーザーニーズの高いその場観察測定環境を充実させた。また多数の試料を限られたマシンタイム中に測定可能とする多検体サンプルチェンジャーを導入した。試料交換ならびに測定の自動化を実現するためのソフトウェアを整備した上で、本格的な運用を予定している。

産業界における材料開発の加速化・効率化を促進させるためのフレームワークとして、データサイエンスと放射光分析とを融合化する取り組みや、放射光分析で得られる材料構造と材料特性の情報をデータベースとする取り組みを進めている。特に産業界において有益な情報源となりうる、その場観察で得られるデータの活用を検

証した。この目的で*operando/in-situ*でのXAFSとXRDの同時計測およびデータ収集・処理システムを整備した。この複合的な分析法によって多面的な材料情報を一度に収集可能となった。また検出手段として高速の信号処理機能を備える二次元X線検出器を採用し*operando/in-situ*測定機能の強化を図った。応用として、例えば試料温度をパラメータとして、触媒材料等の結晶相転移における結晶構造の評価と注目元素周りの局所構造の同時計測が可能となった。このような実験では、測定の経過を見ながら実験条件を途中で調整する場合があります、その場での迅速な判断が必要となる。これに対しては今後、データ解析アルゴリズムを検討しハイスループット化を実現させたい。

整備したXAFSとXRDの同時計測システムについて、装置構成を図1に示す。XAFSについては、上流から入射ビーム線強度(I_0)モニター用イオンチェンバー、測定試料、透過ビーム強度(I_1)モニター用イオンチェンバーを基本構成としている。QXAFS測定時のエネルギードリフトを校正するために、試料後方では標準試料の透過XAFS計測を可能としている。この透過ビーム強度(I_2)モニター用イオンチェンバーが下流にある。蛍光測定用としてLytle検出器も利用可能である。XRD測定部については、検出手段として二次元半導体検出器PILATUS-100Kを採用した。高感度特性とデータの高速読み出しの性能を活かして、高い時間分解能を要する実験を実行可能となった。ソフトウェアも改造を施し、計測、XAFSにおけるデータ分割、二次元回折パターンの一次チャート化処理なども自動操作化した。

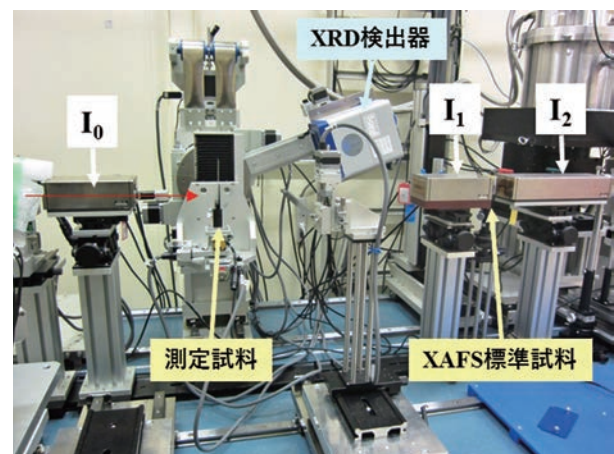


図1 XAFS/XRD測定実験配置

(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が有する長周期構造の評価を中心として材料構造の精密分析法を提供している。SAXSのカメラ長は標準配置の場合は0.5~6 mであり、長尺配置の場合は10 mと16 mを備え、幅広いSAXS分解能の選択性を有する。使用するX線の光子エネルギーは、実験の目的に応じて、7~25.5 keVの範囲で選択する。また、SAXSとWAXSの同時測定、GI-SWAXS、Rheo-SAXS、ASAXS、Quick-XAFSとSAXSとWAXSの複合的測定法といった各種の分析モードを提供しており、これによりユーザーが必要とする材料情報を様々なスケールレベルで一度に収集可能としている。

2017年度においても、SAXSの利用分野としては高分子材料を中心に幅広くあった。また利用形態については、サンプルチェンジャーを利用した多検体分析や、加熱炉等を使用したその場観察実験が全利用数の大半を占めた。その場観察実験の場合には、一度の撮像で幅広い角度域が計測可能な大面積検出器が必要とされている。これについては2016年度からPILATUS3-X-300Kを検出手段として利用提供してきた。広角度領域に及ぶ散乱信号の収集には、二次元検出器の位置走査を併用している。

ユーザーのスキルアップを図ることでSAXSが有効活用されるよう、2017年7月に「小角X線散乱その場観察測定研修会」を開催した^[1]。研修会では、冷却加熱炉を利用したその場観察測定をテーマとして、試料の温度変化に伴う構造変化の計測実習を行った。ボリュームのある研修内容であり、実習参加企業は3社に限定して実施した。この実習を通して、SAXS測定の基礎ならびに測定手順や基本的なデータ処理方法を参加者に習得いただいた。

新たな取り組みとして、X線の透過率が小さい高密度試料や金属材料の分析ニーズに対応するための整備を進めている。光子エネルギーが30~37 keVの範囲で行う、高エネルギー SAXS (HE-SAXS) のスタディを2017B期から開始した。従来の光子エネルギー条件では金属材料における透過能が低いため、十分な散乱強度を得るうえで試料厚を10 μm 以下の薄膜とする必要があった。高エネルギーの新モードでは、金属材料として数100 μm の試料厚での測定が可能となる。これによりユーザー側での試料調整が容易になると共に、本来のバルクとしての構造評価が可能となる。この新モードについては2018A期からユーザーに提供開始する。

また、データ処理機能の改良についても今後検討する。高い時間分解能での計測ニーズは更に厳しくなるものと予想しているが、その中でスペクトルプロファイル

の僅かな変化を正確に評価するためのアルゴリズムや、S/N比の低い散乱パターンから必要な情報を高い精度で抽出可能とするためのアルゴリズムを構築する。これらの技術的な障壁を解決する手段としてデータサイエンスに注目している。実験条件の最適化や、材料開発に供するビッグデータの収集、整理についても応用すべく、基盤技術を調査し、実用化を図りたい。

(3)X線トポグラフィ

XAFS実験ステーションにある試料全反射配置用の精密駆動ゴニオメータを使用し、単色X線トポグラフィの実験手法を利用提供している。撮像手段として工業用X線フィルムや原子核乾板を使用することで、高い位置分解能のトポグラフ撮像が可能である。オンラインでの調整用としてフラットパネルセンサーも利用可能としている。これにより試料からの回折信号の検出や、試料方位のアライメントを効率よく行うことが可能であり、測定の効率アップに大いに役立っている。

実験ステーションでは、炭化珪素 (SiC) の結晶欠陥評価に関する利用課題が実行された。SiC結晶は、シリコンに比べて高耐圧、低損失、高温動作などの特性が求められる電子デバイス用の材料として期待されている。実用化には、SiC基板やエピタキシャル膜中に存在する高密度の結晶欠陥を抑制、制御することが課題である。プロセス改善にフィードバックできる情報として、結晶欠陥を高い分解能で可視化可能とする放射光トポグラフィが活用されている。BL08B2の単色X線トポグラフィを利用し、SiC中の各種転位（貫通らせん転位、貫通刃状転位、基底面内転位）が広視野に渡って、鮮明かつ高分解能のコントラスト像として観察されている。ワイドギャップ半導体デバイスのプロセス改良のために、貴重な情報手段として活用されている。

(4)イメージング

イメージングおよびCTでは、広視野、高分解能での試料内部の非破壊観察が可能である。主には、材料内部の三次元構造の観察が可能なCT法が利用されている。平板状の試料に対しては、試料回転軸を傾斜して測定するラミノグラフィ法が用いられている。実験ステーションには、ユーザーが準備する試料環境装置の設置用スペースも有している。例えば、試料の引張試験機を配置し、高速度で撮影できる検出器を使用したその場観察により、材料内部構造の動的変化を捉えた実験がこれまでに実施されている。

2017年度は、光子エネルギーが10 keV以下の低エネルギー条件での高空間分解能イメージング用の整備を行い、その検出性能を検証した。従来は、比較的高い光子

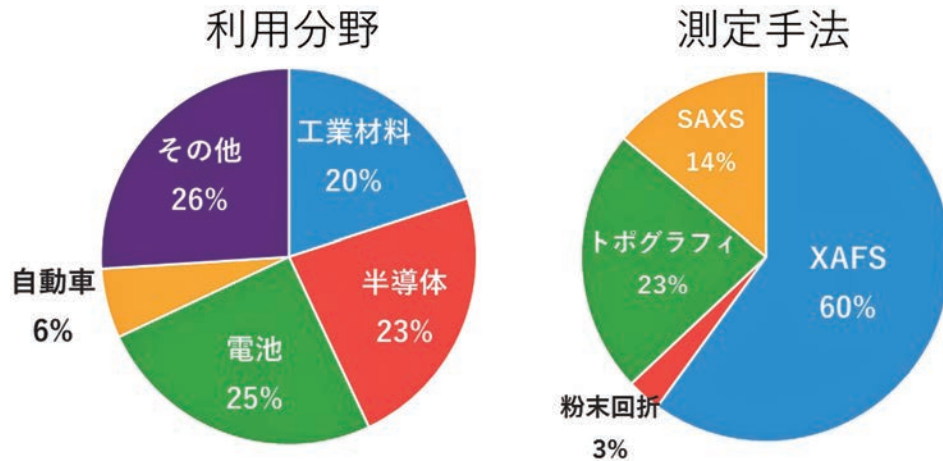


図2 2017年度一般利用の統計

エネルギー領域（12.4 keV 以上）に限定して利用提供してきたが、食品分野への利用展開を図る中、軽元素で構成された試料の高空間分解能イメージングの必要性が高まった。これまでの装置構成のうち撮像システム部においては、カメラ素子の手前でX線を可視光に変換するための受光素子として、GAGG:Ce（Ce添加 $\text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}$ ）単結晶シンチレータを使用していた。新たに利用提供する10 keV以下の条件で同じGAGG:Ce単結晶シンチレータを使用した場合、感度特性に依存して発光量が著しく低下する。このため、露光時間を稼がねばならない。そこで低エネルギー領域においても発光量が十分得られる、CsI:Tl単結晶シンチレータを導入して、撮像システムの性能検証を行った。CsI:Tlシンチレータの厚さは1 mmであり、高効率化のため片面アルミニウムコートを施している。CsI:Tlシンチレータは密度が低く、薄片化することが困難な材料である。一方で、高空間分解能のイメージング像を得るには、可視光変換領域の厚さがミクロンオーダーと薄いものが必要であるが、光子エネルギーを考慮すると、シンチレータ材における減衰長（X線強度が1/eとなる長さ）は5～13 μm 程度であり、厚さ全域が発光領域とはならない。このため、シンチレータによる分解能の劣化は問題にならないものと予想した。8 keVのX線を用いてX線チャートを撮像したところ、空間分解能としてGAGG:Ceシンチレータと同等の1 μm のラインスペースの解像を確認できた。またX線から可視光への変換効率は、GAGG:Ceシンチレータに対する比でおよそ250%と非常に高い性能を示した。CsI:Tlシンチレータの導入により、低エネルギー領域においても高空間分解能イメージング・CTが実用的な時間範囲で実施可能となった。今後、ユーザー利用分野や利用者が拡大するものと予想している。

3. 産業界ユーザーによるBL08B2利用

産業利用を主とする方針に沿い、2017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。2017年度の産業界ユーザーの一般利用（ユーザーが実験責任者）の利用課題について分野別に集計したものを図2に示す。ゴムや高分子材料を含む化学工業材料、半導体材料、電池材料が主な利用分野である。測定手法では、XAFSの利用が半分以上を占める。受託研究（企業から依頼されてスタッフが実験責任者となって測定代行を行う）は、XAFS、SAXS、イメージングで利用され、特にSAXSの利用割合が高い。いずれも成果占有2～4時間で完了する測定が主であり、企業ユーザーから測定試料の迅速なデータ取得・評価が求められる場合に用いられている。受託研究の依頼は年々増加する傾向がある。

兵庫県ビームラインでは、産業界ユーザーが希望するテーマに関して随時事前相談や課題募集および審査を行っており、製品開発や課題解決に対してタイムリーな放射光利用が可能である。また、ユーザーの実験準備の段階からビームラインのスタッフが最大限のサポート支援を行っている。利用課題に応じて異なる実験ユーティリティの整備についても可能な限り応じている。ビームタイムスケジュールについては、各ユーザーが希望するタイミングを極力反映させた日程調整を各サイクルの直前に行っている。このようなユーザーサイドに立った運営を特徴としており、放射光への取り組みやすさを実現することで、産業界での利用促進を行っている。

4. 今後の計画

2018年度は、国の地方創生拠点整備交付金を活用として金属材料向けの実験ステーションを整備する予定である。兵庫県地域における。鉄、アルミ、あるいは樹脂との複合材料（マルチマテリアル）の産業分野を対象として取り組み、次世代材料開発や新製品開発に貢献するための分析・評価拠点を構築していく。これまでSAXS、X線イメージング・CT、粉末X線回折などの

手法は、ソフトマター等の比較的軽元素から成る材料を主な対象としており、相対的に低い光子エネルギー用として最適化された光学系や実験装置を整備してきた。今後、金属材料向けに新たに多軸回折装置計を整備する予定である。高エネルギーに対応したX線回折・散乱実験ステーションを整備する。また、既存の実験装置であるSAXS、X線イメージング・CTも高エネルギー X線への対応化を図る。試料環境を制御するユーティリティ装置や測定直前に行う試料調整の設備の充実も検討している。BL08B2高度化の整備は、産業界ユーザーの協力を得て、企業側のニーズを反映させながら進めている。マテリアルズ・インフォマティクスの取り組みと、分析拠点の整備事業を通じて、特定産業分野にターゲットを絞り、産学が協力して共通課題を解決するためのコンソーシアム体制の構築と成果の創出を目指す。

参考文献

- [1] 漆原ら、兵庫県ビームライン年報・成果集 6, 41-47 (2018).

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}、籠島 靖^{1,2}

BL24XU 兵庫県

1. はじめに

兵庫県ビームライン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BLである。管理、運営は兵庫県立大学放射光ナノテクセンターが行っており、同大学院 物質理学研究科 エックス線光学分野と連携して、産業界を中心とした県内外ユーザーの受け入れ並びに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微小領域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）、バルク状態の試料の観察向けである兵庫県ビームラインBL08B2に対して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を採用しており、高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岐分光器により、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）、マイクロビーム小角・広角X線散乱（ μ -SWAXS）、ブランチBではイメージング・X線顕微鏡・コヒーレント回折、精密X線回折・トポグラフィ、 μ -SWAXS、ブランチBではイメージング・X線顕微鏡・コヒーレント回折、精密X線回折・トポグラフィ、 μ -SWAXSの各実験ステーションを運用すると共に、高度化や新規計測技術の開発を継続して進めている。

2017年度末には、内閣府地方創生拠点整備事業として、ブランチBに間接液体窒素冷却方式Si（111）二結晶分光器を導入した。これにより従前の直接水冷方式分光器で問題となっていた余剰熱負荷を解消し、実験ステーションにおいて単色化ビームの平行性向上と2～3倍の高強度化を実現した。本稿では、産業界ユーザー利用状況（2節）と各実験ステーションの現状（3節）、上記ブランチB輸送部の高度化（4節）について報告する。

2. 産業界ユーザーによる利用状況

兵庫県ビームラインの利用形態は、「一般利用」と測定代行にあたる「受託研究」がある。いずれにおいても、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成果の創出と利用の拡大に努めている。

2017年度の産業界ユーザーによる一般利用の統計を図2に示す。半導体、自動車、エネルギー、ソフトマテリアルやヘルスケアと、利用はハードからソフトマターまで多岐に亘った。測定手法は回折・散乱が全体の44%、イメージングが23%であった。また、マツダ株式会社と兵庫県立大学の共同研究事業として2016年度後半に整備したHAXPES^[1]が本格的に稼働し、その利用が33%となった。受託研究は μ -SWAXSとイメージングが対象であり、2017年度は3件の μ -SWAXS測定と2件のイメージングCT測定が実施された。

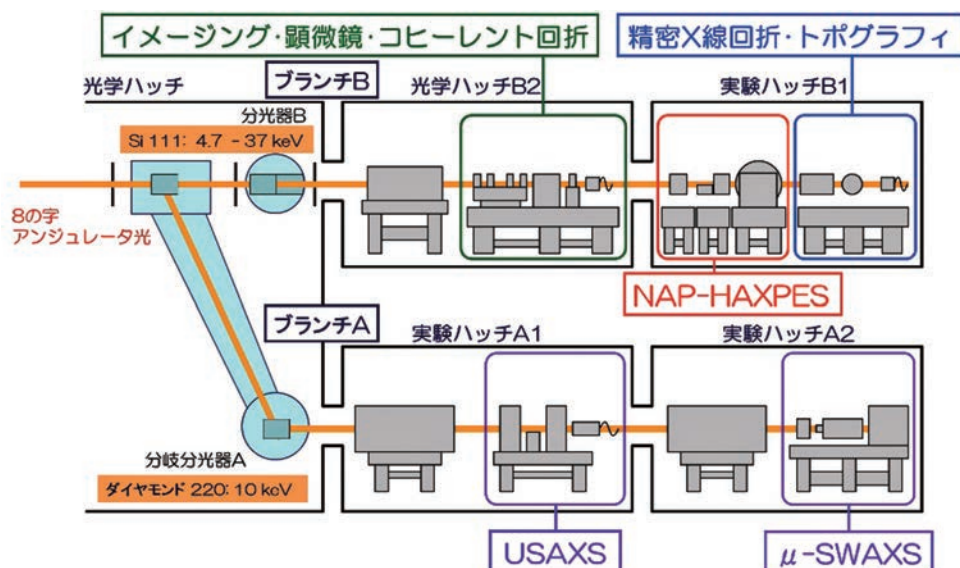


図1 BL24XUの概要

新たな試みとして、産業界ユーザーにおける新規計測技術の習得を目的とした技術研修会を実施した^[2]。兵庫県ビームラインの特徴として、複数の計測手法を組み合わせることで、広い空間スケールの複合評価が可能な点がある。しかし、既存ユーザーであっても、試料調整や計測条件検討、データの解釈等、複数の手法を利用する上でのハードルは多い。2017年度は結像型X線顕微鏡CT、 μ -SWAXSおよび明視野X線トポグラフィについて講習と実習を行った。延べ14社が参加し、新規ユーザーの利用や異なる計測手法への利用展開に繋がった。

3. 各実験ステーションの現状

3-1 ブランチA (USAXS/ μ -SWAXS)

ブランチAは、長オフセット二結晶分岐分光器を利用しており、ブランチBとの同時運転のために、利用エネルギーを10 keVに固定して運用している。実験ハッチA1ではBonse-Hart型USAXS、実験ハッチA2では μ -SWAXSが利用可能である。

Bonse-Hart型USAXSでは、Siチャンネルカット結晶を入射ビームの平行化および受光部における高角度分解能での角度走査に用いる。これにより、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。 $q = 0.001 \sim 0.4 \text{ nm}^{-1}$ に対応する角度範囲を約5分で測定可能であり、測定する角度範囲を更に限定することで、約90秒間隔の時分割測定も実施されている。他ビームラインで取得したSAXSデータの超小角領域を補完する目的での利用が多い。Bonse-Hart型USAXSで得られるデータをSAXS領域と繋ぎ合わせて広い角度域に亘って解析を行うことで、数ナノから数ミクロンにおよぶ階層構造試料の構造評価が可能となる。

μ -SWAXS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 $2.5 \sim 3 \text{ }\mu\text{m}$ 角あるいは $5 \sim 6 \text{ }\mu\text{m}$ 角、フォトン数 $4 \sim 5 \times 10^9 \text{ photons/s}$ の

マイクロビームを利用した微小領域評価が可能である。SAXSカメラ長は現在 $0.5 \sim 1.1 \text{ m}$ を利用できるが、小角分解能向上を目的として 1.8 m までの伸長を計画している。2017A期から、測定ソフトウェアにより2Dマッピング測定、多検体測定を自動化した。毛髪、カーボンファイバー等の細繊維、電線材料、電池材料、自動車材料の微小領域分析で利用されている。

3-2 ブランチB

ブランチBは、Si (111) 二結晶分光器を備えており、基本波として7 keV以上の単色光を利用可能である。ブランチAの運用時に限り、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。2017年12月までは従前の直接水冷・水平分散型分光器で運用し、2018年1～3月にかけて液体窒素間接冷却・垂直分散型分光器への更新を含む、輸送部の高度化整備を実施した(4節)。

(1) イメージング・X線顕微鏡・コヒーレント回折

集光ビームや結像光学系、コヒーレント回折を利用した、数十nm～サブミクロンの高い空間分解能を有する実空間構造解析法を展開している。

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 $0.65 \text{ }\mu\text{m/pixel}$)、ゾーンプレート結像光学系による顕微CT(視野 $200 \text{ }\mu\text{m}$ 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。

また、従来SAXSで評価されるミクロンから数nmスケールの構造の実空間評価に向けて、コヒーレントX線回折イメージング法の実用化を進めている。これまでに $2 \text{ }\mu\text{m}$ 以下の粒子試料を 30 nm より高い空間分解能で可視化している^[3]。2017年度は非粒子試料への応用に向けてタイコグラフィ法への高度化を進め、 50 nm 線幅

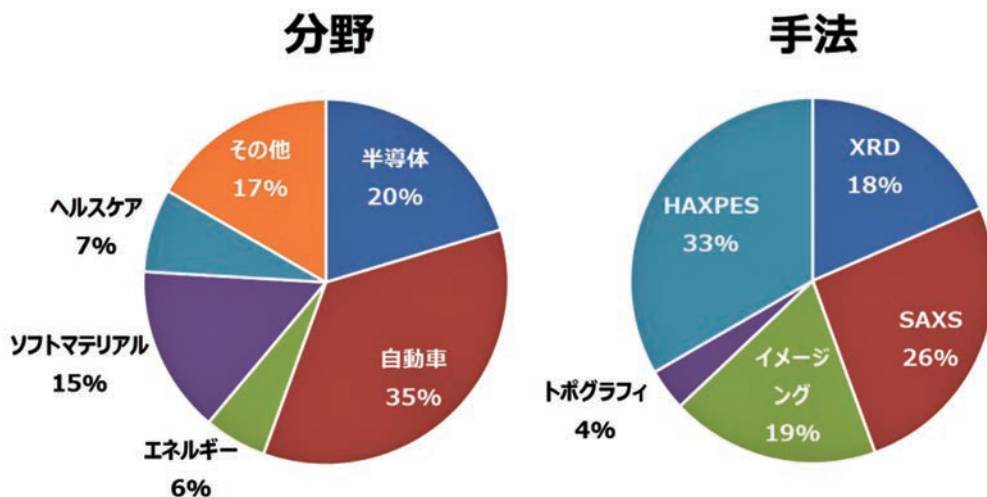


図2 2017年度一般利用の統計

を十分解像したデータが得られている。

集光ビーム応用では、ゾンプレートにより形成したマイクロビームでの広角回折・蛍光X線同時測定による、結晶相・元素分布の相関マッピング等が行える。ビームサイズやビームが有する発散角は測定目的に応じて選択可能である。10 keVや15 keVで0.2~2 μm 程度、 $\sim 10^9$ photons/sのビームが主に利用されている。特に2017年度は微小な多結晶試料を対象として、回折パターンの一次元化処理に回折ピーク重心検出・バックグラウンド補正アルゴリズム^[4]を導入した。これにより、角度分解能と微弱回折ピークのS/N向上を果たし、従来見出すことができなかった試料中の微量第2結晶相由来の回折ピークを同定することに成功した。

(2)精密回折・トポグラフィ

主に半導体結晶の微小領域における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。評価に用いるビームは、(+、-、-、+)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)の3種から選択して実験に使用する。集光光学系の焦点位置には $\theta-2\theta$ 回折計を設置しており、単結晶試料のロッギ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、多波回折条件を利用し、前方透過ビームを撮像対象としたX線トポグラフ法(明視野トポグラフ法)を整備している。検出器にCMOSカメラを用いるため、現像の必要がなく、高空間分解能のX線トポグラフ像が取得できる。多波回折条件が成り立つ試料方位を基準として、それぞれの回折条件を迅速に切り替えることが可能であるため、回折ベクトルを容易に変更できる。このため、速やかなバーガースペクトルの決定が可能であ

る。

(3)NAP-HAXPES

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2016年度に開始した。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、マルチマテリアル界面における電子状態の評価技術等を確立するとともに、反応過程のモデル構築とそれに基づいた高機能材料開発を目指した材料研究を進める。2016年度のNAP-HAXPES立ち上げ整備^[1]を受け、2017年度より本格的な装置利用研究を開始した。

2017年度の利用テーマの一例として、Au金属薄膜/Si基板表面上での低温 SiO_2 形成反応の研究を紹介する。Si基板上にAuを成膜すると、室温~300°C程度の低温環境であっても、Au薄膜中をSiが拡散し、Au薄膜表面に SiO_2 層を形成する現象が報告されている(図3(a))^[5]。しかしながら、Si基板とAu薄膜層の界面付近の構造変化の詳細やSi拡散メカニズムは依然として不明な点が多い。そこで、NAP-HAXPESによるAu薄膜中のSi拡散過程の可視化を試みた。

Si基板の(100)面上に17 nm厚のAuを真空蒸着した試料を用いた実験を行った。評価用のビームとしては、Si(111)二結晶分光器、Si(333)チャンネルカット分光器、K-Bミラーによって光子エネルギー8 keVに単色化したものを30 μm のサイズに集光した単色X線を用いた。単一試料に対して、加熱無しおよび酸素雰囲気中で150、200、250、300°Cとステップ昇温しながらの加熱処理を施した。各温度条件での処理の都度、光電子スペクトルを取得した(図3(b))。Si 1sピーク近傍において、加熱温度に依存したSi基板および SiO_2 由来の光電子ピークを観測できた。両ピークの強度比の変化

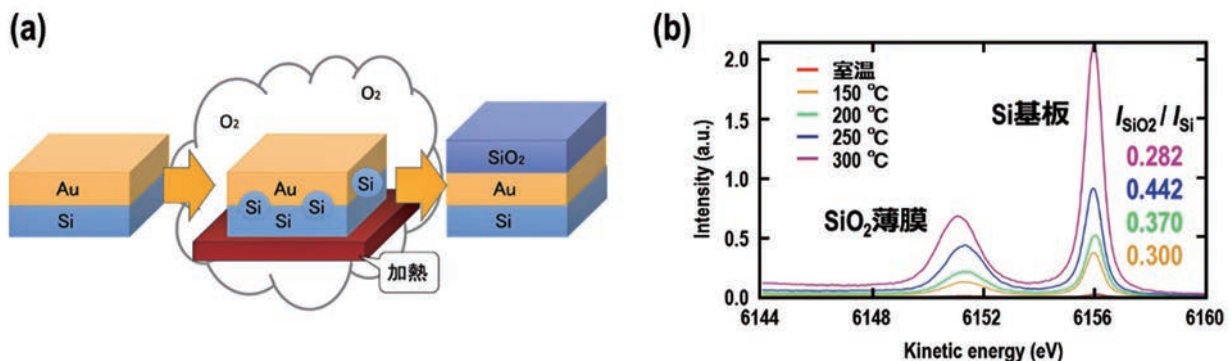


図3 NAP-HAXPESによるAu金属薄膜/Si基板表面上での低温 SiO_2 形成反応の評価

(a) 予想される反応過程の模式図。(b) Si 1s近傍の光電子スペクトル。図中のピーク比はバックグラウンド補正後の SiO_2 薄膜およびSi基板由来ピーク強度の比。

は、昇温に伴ってSiO₂膜厚が増加したことを示唆しており、低温域でのAu薄膜中のSi拡散並びに低温での酸化膜の形成を間接的に捉えたものと結論付けた。

今後、硬X線角度分解光電子分光（HARPES）測定による深さ分析技術の開発や、他の深さ分解の分析手法で得られる情報と組み合わせることで、詳細なSi低温拡散メカニズムに迫ると共に、本系で構築する技術の、次世代自動車向け触媒や軽量化複合材料、塗膜等のマルチマテリアル界面設計への活用が期待される。

4. ブランチB輸送部の高度化

メインブランチBでは、SPring-8蓄積リングの低エミッタンス化に伴い、従前の直接水冷方式ではSi（111）二結晶分光器への熱負荷に対応できず、余剰熱負荷に起因する水平方向への大きなビーム発散と強度低下、仮想光源生成やコヒーレンス低下といったビーム特性の劣化が問題となっていた。その対策として、内閣府地方創生拠点整備事業の一環で、ブランチB輸送部光学系の高度化整備を行った。2017年度1～3月に運転を停止し、その改造工事を実施した。

高度化前後の輸送部光学系配置を図4（a）に示す。分光器をSPring-8標準の間接液体窒素冷却方式・垂直分散型へ更新すると共に、輸送部スリットと併せて従前より約18 m上流に設置することで効果的なコヒーレンス

制御を可能とした。図4（b）は高度化前後での第1結晶走査によって得られたロッキングカーブの比較である。非対称的に裾野の尾を引いていたロッキングカーブ形状が改善し、ピーク強度も1.6倍に向上した。また、FEスリット開口を最大とした高熱負荷条件でもロッキングカーブ形状の劣化は生じず（図4（c））、光子フラックス 5×10^{13} photons/s、ビーム中央 0.5×0.5 mm内の強度重心位置の揺動は $0.8 \mu\text{m}$ （鉛直方向） $\times 0.3 \mu\text{m}$ （水平方向）（いずれもSD）程度と、高強度かつ高い位置安定性が得られた。以上の結果は、新規導入した二結晶分光器により、ビーム特性を概ね損なうことなく単色ビームを提供できていることを示唆する。各計測手法の性能は2018年度のコミッシュニングで確認予定であるが、いずれの手法においても2倍程度のビーム強度向上が見込まれる。

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。放射光計測をより強力なものづくりのスキームへ活用していくには、計測と製品開発の現場を繋ぐ技術支援が重要と考えられる。放射光計測やその他計測で得られるデータ群を基にして、製品開発に資する情報を抽出する新技術を構築していく。より高度な産業支

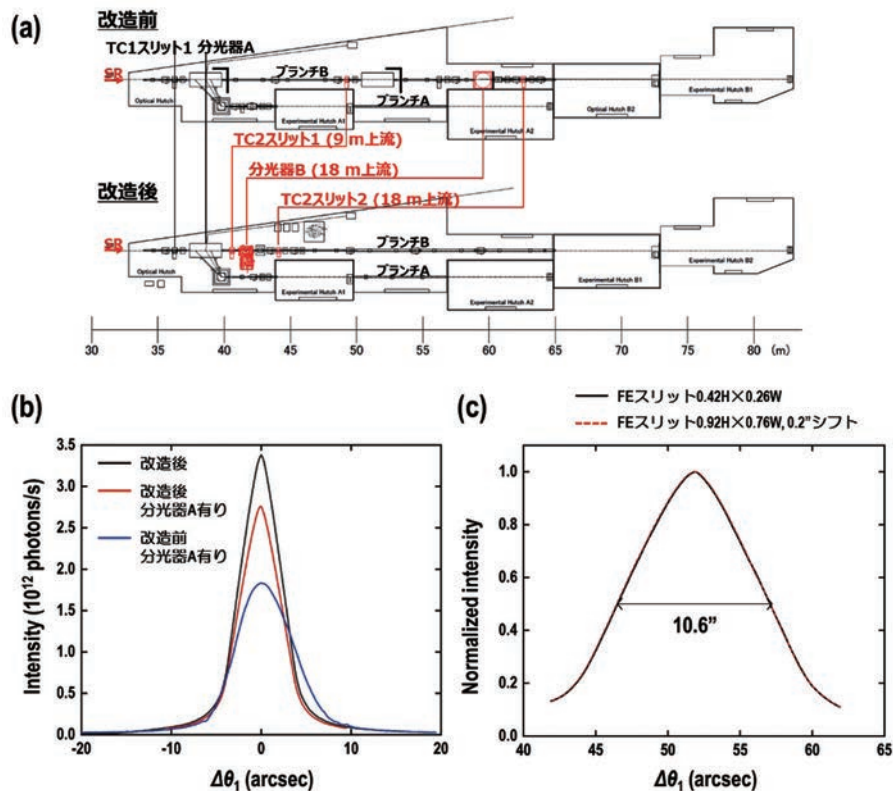


図4 ブランチB輸送部の高度化

(a) 高度化前後の分光器およびTCスリット配置。(b) 高度化前後のロッキングカーブ比較。1.5次光15 keV。TC2スリット1開口を2 mm（鉛直方向） $\times$ 0.2 mm（水平方向）に設定。(c) 高熱負荷条件（1次光8 keV）でのロッキングカーブ。

援に向けて、放射光計測、データサイエンス、材料工学、計算科学の融合によるマテリアルズ・インフォマティクスをものづくり支援の基盤とする。この方針に沿ってコンソーシアムの構築を開始した。重点産業分野として、マルチマテリアルや食品プロセス、先端デバイス等を想定し、分野毎に協業による共通基盤技術の構築とそれを活用した各社個別の製品開発を進める計画である。放射光計測とインフォマティクス、製品開発の三位一体での基盤構築を推進していく。

謝辞

本稿で紹介したNAP-HAXPES利用研究は、兵庫県立大学 豊田智史 客員研究員（京都大学大学院工学研究科）、大学院物質理学研究科 山本知樹氏らによる成果です。

また、ブランチB輸送部の高度化では、国立研究開発法人理化学研究所並びに公益財団法人高輝度光科学研究センター（JASRI）の関係者の皆様にお世話になりました。特にJASRI光源基盤部門 後藤俊治様、竹下邦和様、成山展照様、大橋治彦様、山崎裕史様、竹内智之様、制御・情報部門 古川行人様、石澤康秀様、安全管理室 都筑之彦様をはじめとする皆様には、審査・諸手続きから装置導入、建設、諸検査、ビームライン運転に至るまで多くのご指導、ご協力を頂きました。皆様に深く謝意を表します。

参考文献

- [1] 横山ら、SPring-8利用者情報 **22**, 30-35 (2017).
- [2] 漆原ら、兵庫県ビームライン年報・成果集 **6**, 41-47 (2018).
- [3] Takayama *et al.*, *J. Synchrotron Rad.* **25**, 1229-1237 (2018).
- [4] Zaefferer *J. Appl. Cryst.* **33**, 10-25 (2000); Rossmann, *J. Appl. Cryst.* **12**, 225-238 (1979).
- [5] 平木昭夫、岩見基弘、日本金属学会会報 **15**, 665 (1976).

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、李 雷²

野瀬 惣市²、首藤 大器²、水野 勇²

横山 和司²、松井 純爾²

BL16XU サンビームID

1. はじめに

BL16XU（サンビームID）は、BL16B2とともに、民間13社・グループ^{〔脚注〕}からなる産業用専用ビームライン建設利用共同体（サンビーム共同体）が管理、運営する専用ビームラインである。放射光分析技術の産業利用を目的としてSPring-8稼働前の1996年に発足したサンビーム共同体は、1998年に専用ビームライン設置契約を締結し、1999年9月より2本のビームラインの利用を開始した。各ビームラインは産業界の幅広いニーズに対応するため複数の実験手法に対応しており、利用開始以降も中間評価や契約更新などの節目に大型設備投資を行って、最新の技術と装置を産業利用に適した仕様で導入してきた。

2017年度には第Ⅱ期設置契約に対する利用状況評価と第Ⅲ期に向けた次期計画書の審査を受け、2018年からの第Ⅲ期設置契約が認められた。

2. ビームラインの概要

BL16XUの基本仕様を表1に、BL16B2を含めた機器配置を図1に示す。

光源は磁石周期長をSPring-8標準型の32 mmより長い40 mmとした真空封止型水平直線偏光X線アンジュレータで、標準型よりも低エネルギー側までX線を利用可能である。光学ハッチには液体窒素循環間接冷却方式

表1 BL16XUの基本仕様

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
エネルギー	4.5~40 keV
単色器	液体窒素循環間接冷却式二結晶 Si (111)
光子数 ビームサイズ (マイクロ時)	~ 10^{12} photons/s, 1.0 mm角以下 (~ 10^{10} photons/s, 0.5 μ m角以下)
実験装置	HAXPES装置、8軸X線回折計、マイクロ ビーム形成装置・マッピング機構（X線回折 ／蛍光X線／XAFS／XMCD）、蛍光X線 装置（波長分散型／エネルギー分散型）、そ の場合測定用ガス設備

のSi (111) 二結晶単色器が設置され、ベントシリンドリカルミラーとの組み合わせにより、サイズ1 mm角以下で高いフラックスと位置安定性を持ったビームが得られる。このほか光学ハッチ内には、XMCD実験用のダイヤモンド位相子とHAXPES実験用のチャンネルカット結晶分光器が設置されている。

実験ハッチ最上流には、マイクロビーム実験用のピンホール・スリットとHAXPES実験用のシリンドリカルミラー、アッテネータを収容するHe雰囲気チャンバーが設置されている。その下流には、HAXPES装置、8軸X線回折計、マイクロビーム形成装置および可搬式の蛍光X線分析装置が一行に設置されており、各装置を用いる実験を短時間で切り替えることができる。ま

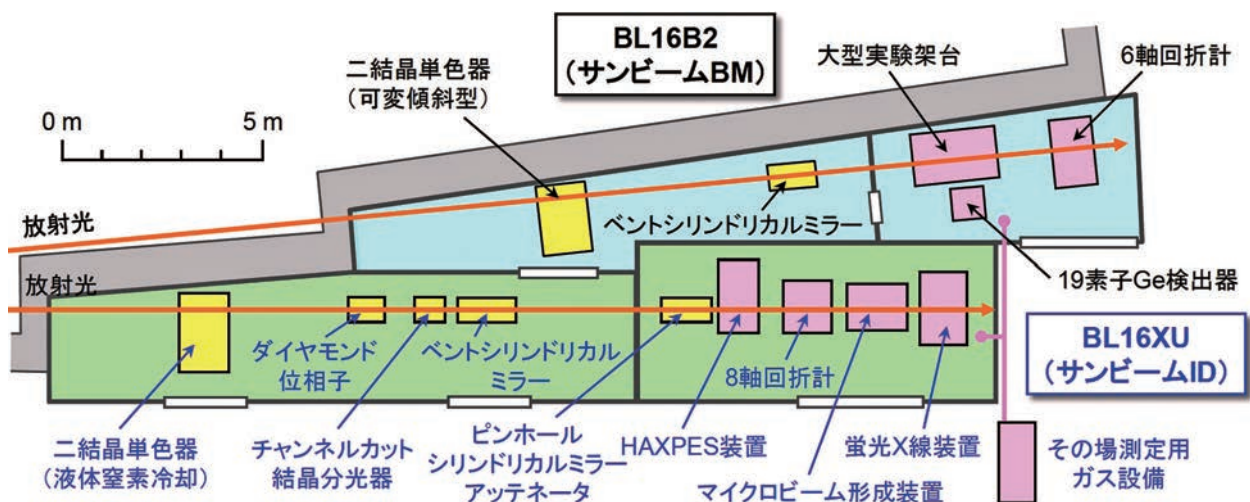


図1 BL16XUおよびBL16B2の機器配置（2018年3月時点）

〔注〕 川崎重工業(株)、(株)神戸製鋼所、住友電気工業(株)、ソニー(株)、電力グループ〔関西電力(株)、(一財)電力中央研究所〕、(株)東芝、(株)豊田中央研究所、日亜化学工業(株)、日産自動車(株)、パナソニック(株)、(株)日立製作所、(株)富士通研究所、三菱電機(株)
(2018年3月現在、50音順)

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・排気装置および試料加熱ステージや、CdTe検出器、ピクセル検出器（PILATUS 100K, MYTHEN 1K）など用途に合わせたX線検出器が利用可能である。

3. 利用状況

BL16XUで実施された各社の利用研究課題の適用分野および測定手法について、2008年度から2017年度までの推移を図2および図3に示す。縦軸は各社利用に配分されたビームタイムに占める割合である。

直近3年間の主な適用分野は半導体、電池、および素材で、利用割合も2016年度と2017年度はほぼ同じとなっている。半導体ではGaNやSiCなどの化合物系半導体、電池ではLiイオン二次電池、素材では金属部品や機能性ナノ粒子材料などへ適用されている。

測定手法も直近3年間はほぼ同じ割合で、2013年にピクセル検出器や試料加熱ステージを導入して高度化した

X線回折と2014年に利用開始したHAXPESがそれぞれ4割以上を占め、ピエゾステージの導入で高速化されたマイクロビームがこれに続いている。X線回折では試料加熱ステージを使った結晶化過程の観察、HAXPESでは試料搬送ベッセルを利用した電池電極表面の分析が行われている。

4. サンビーム共同体の成果公開

サンビームで得られた共同体各社の成果は、適時、それぞれが関連する分野の学会や論文で公開されているが、技術開発などサンビーム共同体としての成果を含め、各社が連携して成果をアピールする場として、2001年から開催している「サンビーム研究発表会」と、2011年度から公開技術報告書として発刊している「サンビーム年報・成果集」がある。

2017年度の第17回サンビーム研究発表会は第14回SPRING-8産業利用報告会（8/31-9/1、川崎市産業振興会館）として合同開催され、サンビームからは口頭5件（以

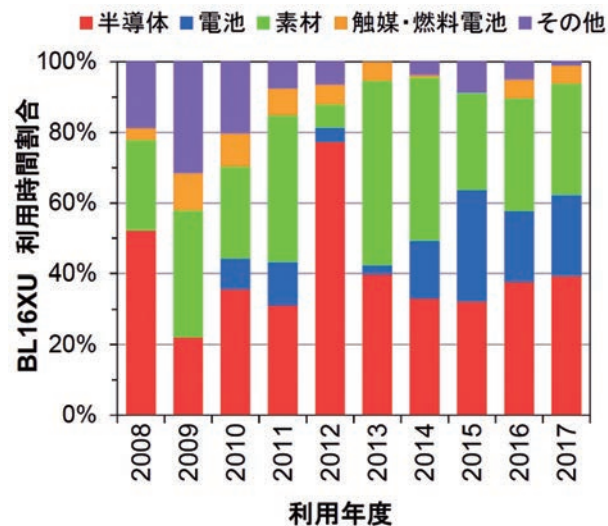


図2 利用研究課題の適用分野の推移

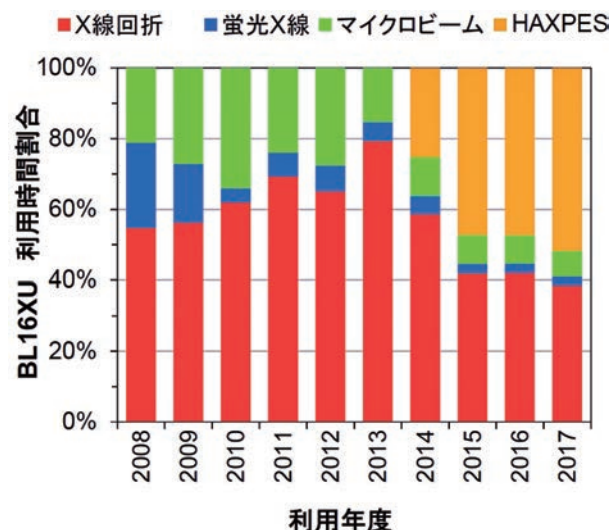


図3 利用研究課題の測定手法の推移

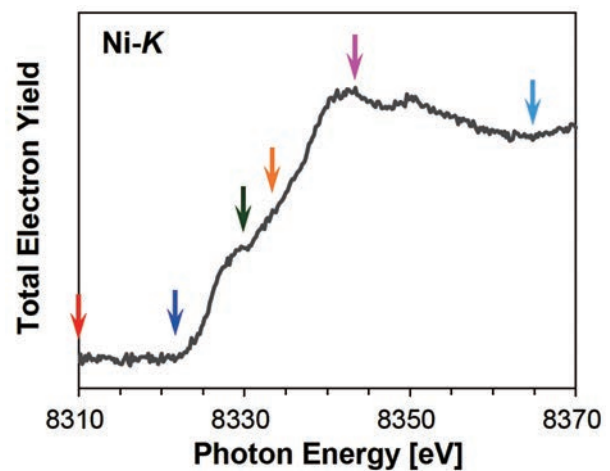


図4 Ni板のNi-K吸収端XANESスペクトル

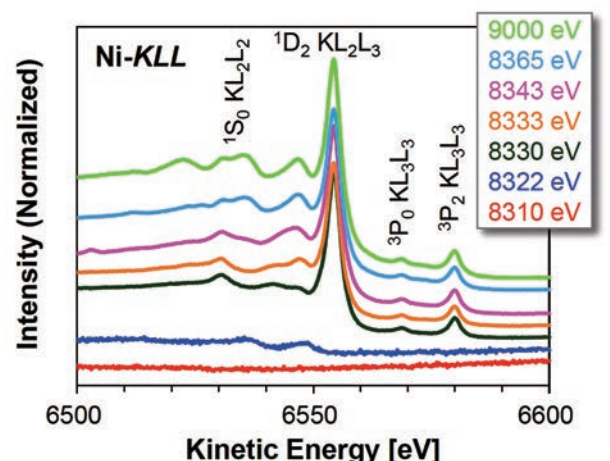


図5 Ni-KLLオーグեսペクトルの励起エネルギー依存

降、BL16XUとBL16B2の合計件数)、ポスター28件の発表を行った。このうち口頭3件とポスター1件が、同報告会の優秀発表賞を受賞している。

サンビーム年報・成果集は、2018年3月にVol.7が発刊された。共同体各社による24編の成果報告論文に加え、共同体の活動報告、サンビーム研究発表会の抄録、成果発表一覧が掲載されており、共同体関係者のほかSPring-8産業利用報告会や施設公開などの場で広く一般の方々にも配布している。サンビーム年報・成果集を含む共同体の成果は、サンビーム共同体のホームページでも公開している^[1]。

5. 研究・技術検討事例

2017年度は、HAXPES装置を利用した技術開発として、チャンネルカット結晶分光器（CCM）を退避させ二結晶単色器の定位置出射ビームを利用するエネルギー掃引HAXPESの検討を行った^[2]。HAXPESにおいて励起エネルギーを連続的に変えることができれば、共鳴励起あるいはオージェスペクトルの励起エネルギー依存を利用した電子状態の詳細な解析や、オージェ電子収量法による状態選別XAFS測定を、従来よりも大きな検出深さで行うことが可能となり、産業利用には極めて有効である。

通常のHAXPES測定用の光学系からCCMを退避するとビーム高さが変化するが、電子分光器の高さを調整することで対応した。また、励起エネルギー8 keVにおけるエネルギー分解能と測定感度をAu4f_{7/2}ピークで評価した結果、半値幅はCCM退避前の0.4 eVから1.2 eVに低下したものの、高さは約30倍に増大し、測定感度が大きく向上した。

図4はHAXPES装置内で試料電流法により測定したNi板のNi-K吸収端XANESスペクトルである。スペクトル形状は金属Niの文献データに近く、表面の自然酸化膜の影響を受けていないことが分かる。このスペクトル中の各矢印の励起エネルギーで測定したNi-KLLオージェスペクトルを図5に示す。主ピークの左右に現れるサテライトピークの強度が、文献^[3]と同様に励起エネルギーに依存して変化することを確認できた。

本検討により、CCM退避と簡単な装置調整のみでエネルギー掃引HAXPES測定が行えることを確認できた。励起X線のエネルギー幅の拡がりによりエネルギー分解能は低下するものの、オージェスペクトルは原理的にこの影響を受けないため、特にオージェ電子収量法による高感度かつバルク敏感な状態分別XAFSの実用化が期待される。今後は、二結晶単色器によるエネルギー掃引と電子分光器によるスペクトル測定を連動させる制御ソフトウェアの開発など、利用環境の整備、向上を進め

ていく。

参考文献

- [1] 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/>
- [2] 横溝 臣智:サンビーム年報・成果集, 7, p.p. 20-23, (2018).
- [3] L. Kövér et al.: *Phys. Rev. B*, 73, 195101 (2006).

サンビーム共同体 2018年度合同部会長

株式会社東芝 吉木 昌彦

BL16B2 サンビームBM

1. はじめに

BL16B2（サンビームBM）は、BL16XUとともに、民間13社・グループ^{〔脚注〕}からなる産業用専用ビームライン建設利用共同体（サンビーム共同体）が管理、運営する専用ビームラインである。放射光分析技術の産業利用を目的としてSPring-8稼働前の1996年に発足したサンビーム共同体は、1998年に専用ビームライン設置契約を締結し、1999年9月より2本のビームラインの利用を開始した。各ビームラインは産業界の幅広いニーズに応えるため複数の実験手法に対応しており、利用開始以降も中間評価や契約更新などの節目に大型設備投資を行って、最新の技術と装置を産業利用に適した仕様で導入してきた。

2017年度には第Ⅱ期設置契約に対する利用状況評価と第Ⅲ期に向けた次期計画書の審査を受け、2018年からの第Ⅲ期設置契約が認められた。

2. ビームラインの概要

BL16B2の基本仕様を表1に、BL16XUを含めた機器配置を図1に示す。

光源は偏向電磁石で、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までの広いエネルギー範囲で単色X線を利用できる。また単色器の下流には、集光および高次光除去のためのベントシリンドリ

表1 BL16B2の基本仕様

光源	偏向電磁石
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 ビームサイズ	～10 ¹⁰ photons/s ミラー不使用：60 mm(H)×5 mm(V) ミラー使用：0.1 mm(H)×0.1 mm v V)
実験装置	大型実験架台（XAFS / X線トポグラフィ / X線イメージング）、6軸X線回折計、その場測定用ガス設備

カルミラーが設置されており、最小でサイズ0.1 mm角程度のビームが得られる。

実験ハッチには、上流側に大型実験架台と可搬式の19素子Ge半導体検出器、下流側に6軸X線回折計が設置されている。大型実験架台はエアパッド浮上式ステージを採用しており、 $\theta-2\theta$ 型ゴニオメータや各種検出器を簡単かつ自由に配置できるため、XAFSやX線トポグラフィ、X線イメージングなどの実験を短時間で切り替えることができる。

XAFS測定では、イオンチャンバー、ライトル検出器、転換電子収量検出器および19素子Ge半導体検出器を利用可能で、単色器の高速駆動によるクイックスキャンXAFSにも対応している。イメージング測定では、PILATUS検出器、フラットパネル検出器、12インチX線イメージインテンシファイアおよびCMOSカメラを

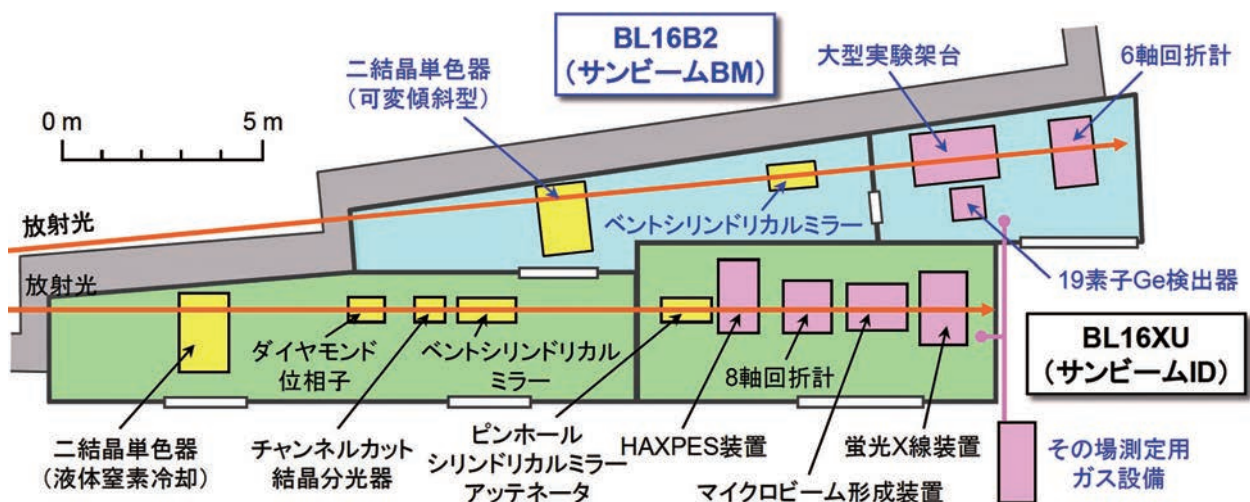


図1 BL16XUおよびBL16B2の機器配置（2018年3月時点）

〔注〕 川崎重工業(株)、(株)神戸製鋼所、住友電気工業(株)、ソニー(株)、電力グループ〔関西電力(株)、(一財)電力中央研究所〕、(株)東芝、(株)豊田中央研究所、日亜化学工業(株)、日産自動車(株)、パナソニック(株)、(株)日立製作所、(株)富士通研究所、三菱電機(株)
(2018年3月現在、50音順)

利用可能で、X線トポグラフィやX線CT、ラミノグラフィ、2次元XAFSなど幅広い手法に対応する。6軸X線回折計では、通常のX線回折のほか、高エネルギーX線回折およびDAFS測定が可能である。またBL16XUと共用で、その場測定用ガス設備や試料加熱ステージも利用可能である。

3. 利用状況

BL16B2で実施された各社の利用研究課題の適用分野および測定手法について、2008年度から2017年度までの推移を図2および図3に示す。縦軸は各社利用に配分されたビームタイムに占める割合である。

直近3年間の主な適用分野は半導体、電池、および素材だが、触媒・燃料電池やその他の分野でもある程度利用されている。これは測定対象の広いXAFSに加えて、X線回折、トポグラフィ、イメージングなど多様な手法を短時間で切り替えて利用できるというBL16B2の特長によるものと考えられ、GaNやSiCなどの化合物系半導

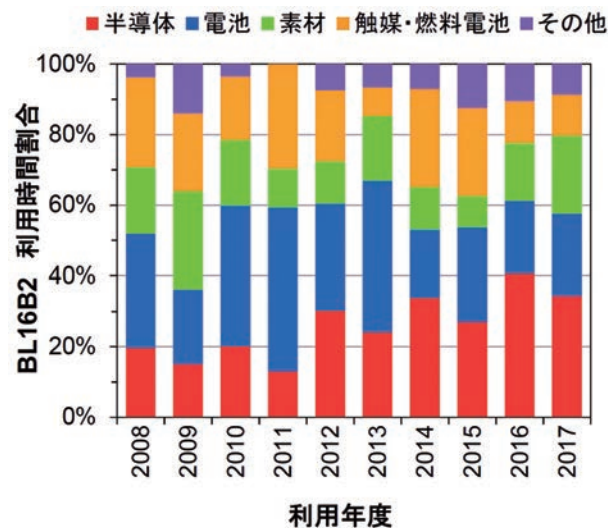


図2 利用研究課題の適用分野の推移

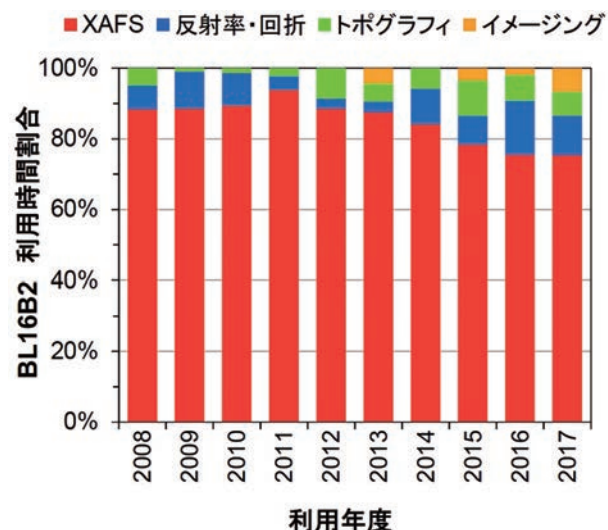


図3 利用研究課題の測定手法の推移

体、Liイオン二次電池、銅材や蛍光体、排ガス浄化触媒など幅広い分野へ適用されている。

一方、測定手法はXAFSが7割以上を占めるが、2016年度に比べると2017年度はイメージングの割合がやや増加した。これはイメージング測定のニーズの高まりと、これに対応したX線CTおよびラミノグラフィ用高精度試料ステージの導入や測定、解析環境の整備の相乗効果によるものと考えられる。またXAFSについては、透過法XAFSとエネルギー走査X線回折を組み合わせたLiイオン二次電池電極のオペランド解析や、イメージング用検出器を用いた2次元XAFS解析など、他の手法と組み合わせ合わせた利用も行われており、今後もこのような複合的かつ高度な測定方法の開発、利用が期待される。

4. サンビーム共同体の成果公開

サンビームで得られた共同体各社の成果は、適時、それぞれが関連する分野の学会や論文で公開されているが、技術開発などサンビーム共同体としての成果を含め、各社が連携して成果をアピールする場として、2001年から開催している「サンビーム研究発表会」と、2011年度から公開技術報告書として発刊している「サンビーム年報・成果集」がある。

2017年度の第17回サンビーム研究発表会は第14回SPring-8産業利用報告会（8/31-9/1、川崎市産業振興会館）として合同開催され、サンビームからは口頭5件（以降、BL16XUとBL16B2の合計件数）、ポスター28件の発表を行った。このうち口頭3件とポスター1件が、同報告会の優秀発表賞を受賞している。

サンビーム年報・成果集は、2018年3月にVol.7が発刊された。共同体各社による24編の成果報告論文に加え、共同体の活動報告、サンビーム研究発表会の抄録、成果発表一覧が掲載されており、共同体関係者のほかSPring-8産業利用報告会や施設公開などの場で広く一般

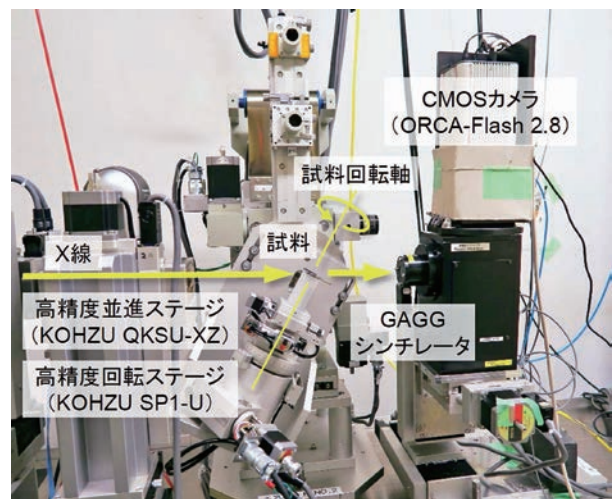


図4 ラミノグラフィ測定のセッティング

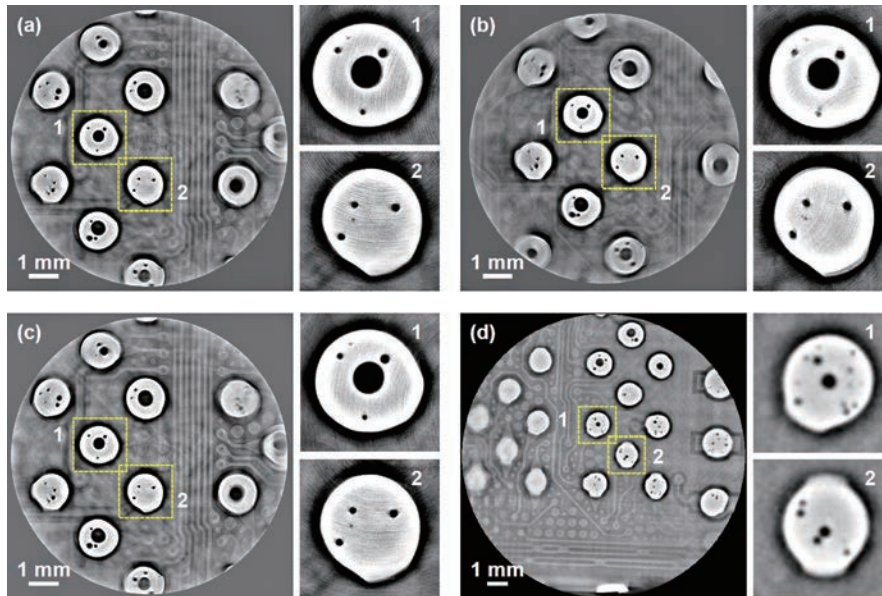


図5 電子基板のラミノグラフィ再構成像

(a) 新規導入ステージ（連続スキャン）

(c) 新規導入ステージ（ステップスキャン）

(b) 従来の汎用ステージ（連続スキャン）

(d) マイクロフォーカスX線CT装置（SMX-160LT）

の方々にも配布している。サンビーム年報・成果集を含む共同体の成果は、サンビーム共同体のホームページでも公開している^[1]。

5. 研究・技術検討事例

2017年度は、イメージング測定の機能向上を目的として、平板試料でX線CT観察を行うためのラミノグラフィシステムの導入、立ち上げを行った^[2]。これにより、これまでBL16B2のX線CTでは観察できなかった、電子基板などの平板試料の観察が可能になる。

ラミノグラフィシステムでは、平板試料が回転しても透過光量が大きく変化しないよう、X線の透過軸に対して試料回転軸を傾斜させる必要がある。このため、試料重量等によらず傾斜回転軸の偏心がなく、偏心精度1 μm 以下の高精度回転ステージと、試料位置調整用の高精度自動並進ステージを導入した。さらに装置の切り替えおよび調整の迅速化のため、これらを3次元観察専用ユニットとして構築した。また制御系についても、トリガーパルス出力が可能なステッピングモーターコントローラを導入することで、従来のステップスキャン測定よりも高速な連続スキャン測定に対応させた。なお、制御ソフトウェアについては兵庫県ビームラインから提供いただいたほか、再構成アルゴリズムはSPring-8内で開発されたものを使用しており、他のビームラインで再構成したデータとの整合性を確保している。

導入されたラミノグラフィシステムの性能評価のため、ICチップを搭載した電子基板を観察した（図4）。X線のエネルギー52 keV、試料回転軸の傾斜30°、積算時間1秒で0.1°ごとに3600枚の画像を取得し、測定時間は

連続スキャンで1時間30分、ステップスキャンで4時間30分であった。再構成で得られた断層像の一部を、実験室のX線CT装置（SMX-160LT）による結果を含めて図5に示す。（a）新規導入した高精度ステージと（b）従来のステージを比較すると、いずれもハンダ内で最小10 μm 程度のボイドまで観察できるが、前者の方がアーティファクトは少なく、微小なボイドの形状まで鮮明に観察できている。次に（c）ステップスキャン測定と比較すると、有意な画質の差は認められず、連続スキャンによって測定効率が大幅に向上することを確認できた。最後に（d）実験室装置と比較すると、特に小さなボイドではBL16B2の方が圧倒的に鮮明で、実効的な分解能が高いことを確認できた。

今回のラミノグラフィシステム導入により、X線CT・ラミノグラフィ測定の高精度化、高速化、高効率化を実現できた。2018年度にはイメージング測定の大視野化、高分解能化を目指した設備導入を予定しており、本システムとの組み合わせでさらなる成果創出が期待される。

参考文献

- [1] 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/>
- [2] 高尾 直樹:サンビーム年報・成果集, 7, p.p. 16-19, (2018).

サンビーム共同体 2018年度合同部会長

株式会社東芝 吉木 昌彦

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) $\times$ 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 $\times$ 0.05 mm²とした時のビーム強度は 8.34×10^{11} photons/secである。

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。

ビーム整形には12種類の大きさや形状の異なるピンホールを用意しており、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 (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。

2-2 2次元検出器

有効面300 $\times$ 300 mm²の高感度大面積アレ式CCD

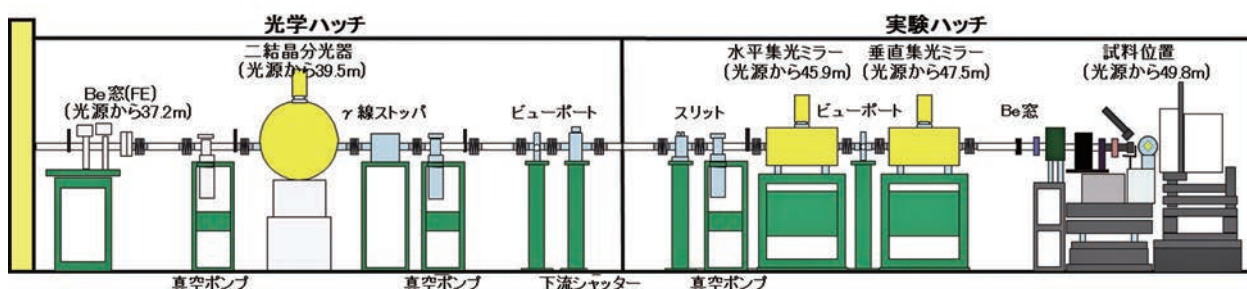


図1 ビームラインコンポーネント

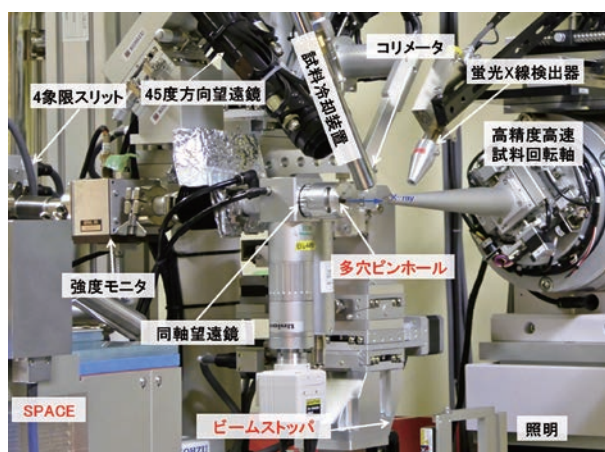


図2 回折強度データ測定部

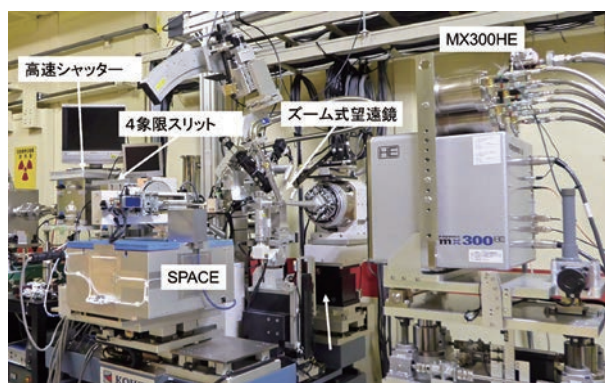


図3 ゴニオメータ部

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

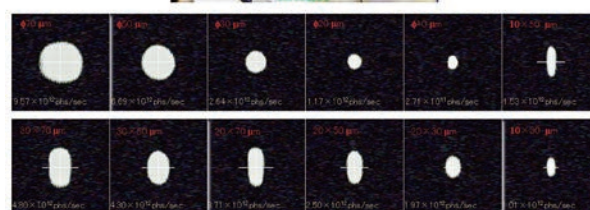
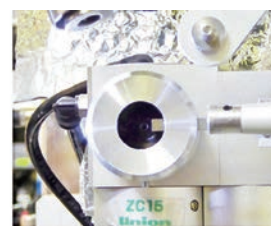


図4 (上) ビーム成形用ピンホールシステム、(下) 様々なピンホール後のビーム形状とビーム強度



図5 イネ萎縮ウイルス結晶 (I222, a=768.9, b=794.7, c=810.4 Å) からの超高分解能データ収集 ($\lambda=1.9$ Å)

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

試料交換を効率的かつ簡便に行うことができる、結晶マウントロボットSPACEが利用可能である。2015年の大容量化により、1度に8個のUni-puckを装着が可能となっている。

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、2017年度は、延べ約950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、

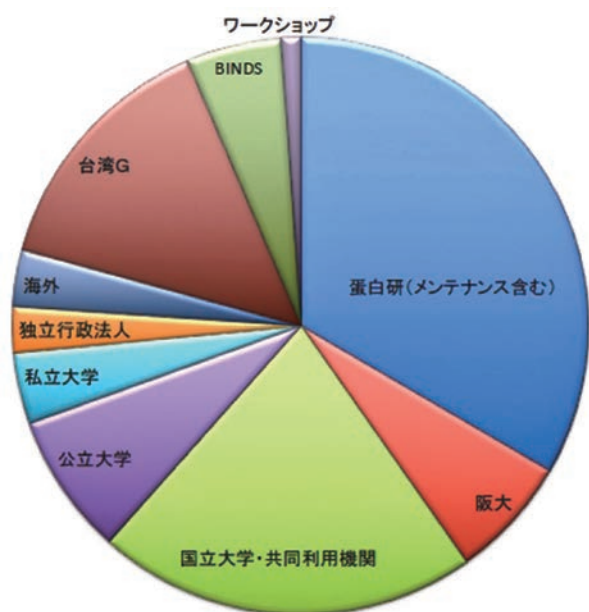


図6 2017年度ビームタイム配分実績

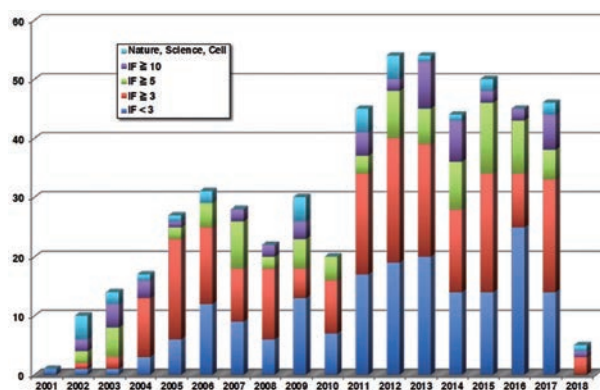


図7 ビームラインを利用した論文数 (IF: Impact Factor)

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. 創薬等先端技術支援基盤プラットフォーム (BINDS)

創薬等支援技術基盤プラットフォームの後を受けて2017年度より開始された、創薬等先端技術支援基盤プラットフォーム (BINDS) プロジェクトに参画し、ビームラインの高度化と、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提供している。

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

$= 707.2, b = 383.8, c = 598.5 \text{ \AA}, \beta = 124.7^\circ$ 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、 $3.5 \text{ \AA}$ 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)。

2017年度の主な成果として、細胞内部の栄養シグナルを集約して蛋白質や脂質の合成、あるいはオートファジーによる分解を誘導する蛋白質mTORC1の活性を制御するRagulator複合体と橋渡し蛋白質との複合体構造 (Yonehara *et al.*, *Nat. Commun.*, 2016)、チトクロム c とチトクロム酸化酵素複合体 (Shimada *et al.*, *EMBO J.*, 2017)、光合成電子伝達鎖を構成する巨大な膜蛋白質と末端の電子キャリア蛋白質の弱い相互作用で形成する複合体 (Kubota-Kawai *et al.*, *Nat. Plants*, 2017)、マクロライド排出ポンプ (Odaka *et al.*, *Nat. Commun.*, 2017) などが挙げられる。(図7)

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

理研 放射光科学研究センター

利用システム研究開発部門

山本 雅貴

JASRI タンパク質結晶解析推進室

熊坂 崇

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）を標的に照射し、主に前方に放出される粒子を測定してクォーク核物理研究を推進している。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抑制され、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。ビームエネルギーは、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ているため、特に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。

これまでのBL33LEPにおけるLEPS実験において用いられてきた標的は液体水素や液体重水素を主とした非偏極の標的であったが、陽子や重陽子はスピンを持っているため、偏光ビームに加えて偏極した標的を用いるこ

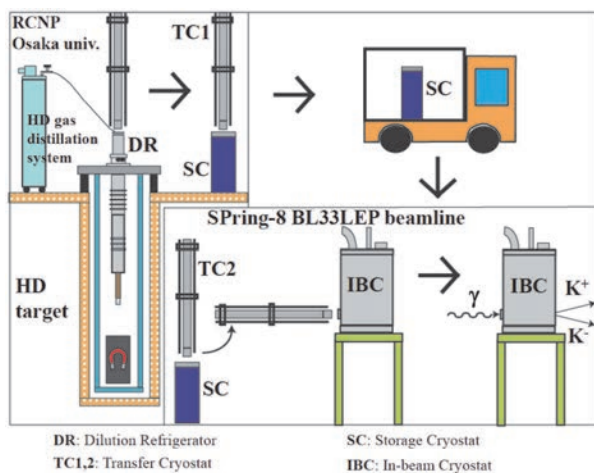


図1 偏極HD標的の製作から実験までのプロセス

とによって、二重偏極観測量の測定が可能となり、生成率の小さい状態についても散乱振幅の干渉項を通してその効果を調べることができる。例えば、 ϕ 中間子光生成の反応機構の中には、陽子中にも存在が示唆されているストレンジ・反ストレンジクォーク対のノックアウト過程も考えられ、ビームと標的のスピンが平行な場合と反平行な場合の偏極非対称度はこうした核内ストレンジネス成分に敏感な観測量であることが理論的に予想されている^[1]。また、他の光-核子反応においても、偏極ビームと偏極標的の組み合わせによる種々の観測量の測定で、スピン依存振幅を完全に決定することができる。我々はLEPS実験での使用を目指して、偏極HD標的の開発を大阪大学核物理研究センターにおいて長年進めてきた。これは、重水素化水素分子（HD）を極低温（ ~ 15 mK）、高磁場（17 T）で静的に偏極させ、長時間

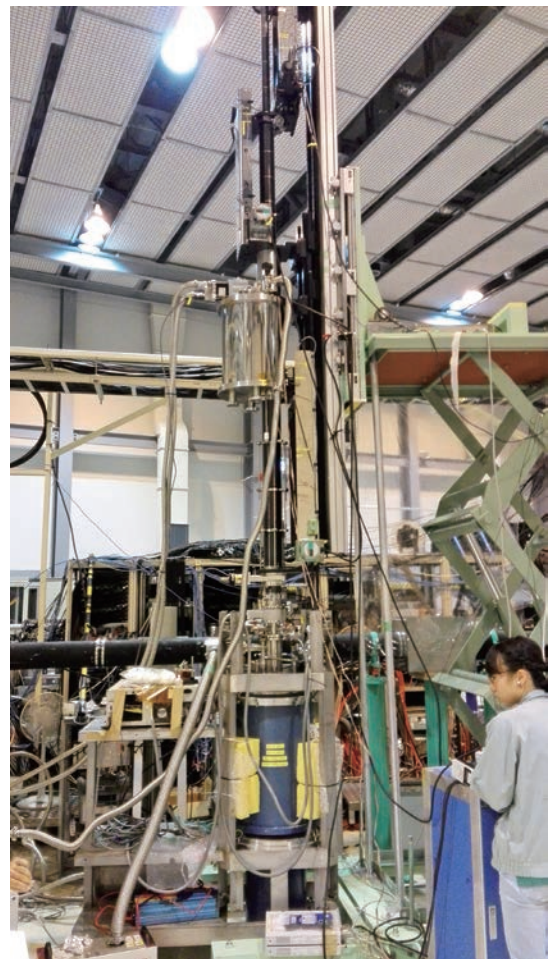


図2 貯蔵運搬用クライオスタット（SC）と引抜き用クライオスタット（TC2）の連結。

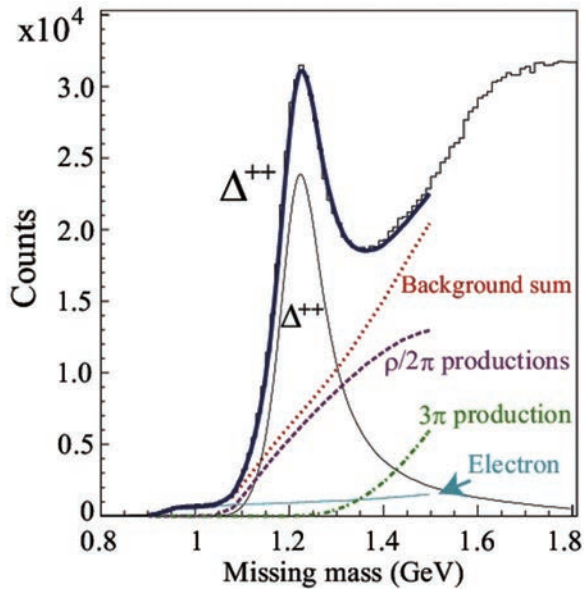


図3 $E\gamma = 1.5\text{--}2.95\text{ GeV}$ に対する $p(\gamma, \pi^-)X$ 反応における欠損質量分布

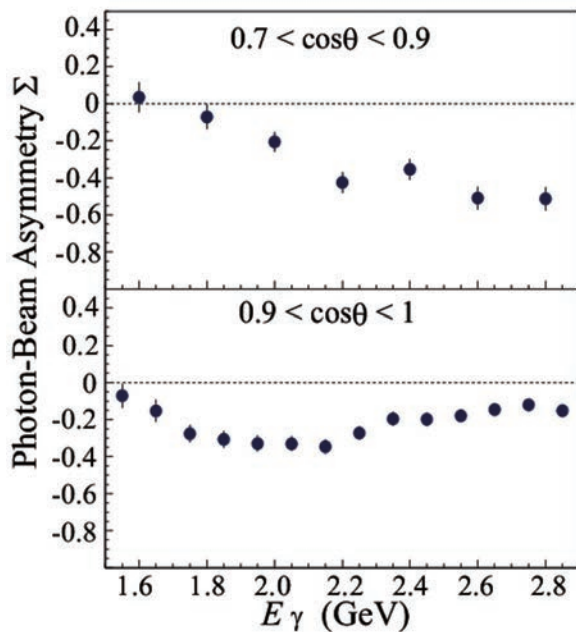


図4 $\gamma p \rightarrow \pi^- \Delta^{++} (1232)$ 反応における直線偏光ビームに対するビーム非対称度 (Σ)。
($E\gamma = 1.5\text{--}2.9\text{ GeV}$ 。 θ は重心系での π^- の散乱角。)

かけてスピンを凍結させ、SPring-8に運んでビーム照射実験に用いる計画であり、陽子の偏極度40%で緩和時間が約240日の標的の作製に成功している。2017年度は、BL33LEPビームラインにおいて、運搬されてきた偏極HD標的をLEPS実験ハッチ内のビーム照射用クライオスタットにセットするために必要な機器間の連結試験を中心に開発を行った。図1は偏極HD標的の製作から実験までの過程の概念図であり、2017年度の試験で成功した、貯蔵運搬用クライオスタット (SC) と標的引抜き用クライオスタット (TC2) の連結時の写真を図2に

示す。この開発作業のためには実験ハッチの上流大扉を開放して行う必要があったため、2017年度のビーム照射実験の時間は例年より大幅に減少しているが、変換電子・陽電子ビームを用いたLEPS2実験用の各種検出器の性能評価試験や、新たなビーム強度向上の試みとしてのビームバンチに同期したパルスレーザーによるレーザー電子光生成テストなどを行い、また、2016年度に引き続いてSPring-8夏の学校の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3 GeVのビームを用いた水素標的からの π^+ 中間子生成、 K^+ 中間子生成実験の解析結果がまとまり、3編の論文を公表した^[2,3,4]。ここでは、その中で、高統計データとしては世界で初めての測定となる、 $\gamma p \rightarrow \pi^- \Delta^{++} (1232)$ 反応の結果を示す^[4]。 Δ^{++} は u クォーク3個から成る粒子であるため、この反応はその過程において u クォーク・反 u クォーク対を生成するユニークな反応であり、生成機構に敏感な直線偏光に対するビーム非対称度の測定はこの反応を理解するうえで特に重要である。図3に $\gamma p \rightarrow \pi^- X$ 反応の欠損質量分布を示す。顕著な $\Delta^{++} (1232)$ のピークが見えており、 $\Delta^{++} (1232)$ の事象数は多重 π 生成等を仮定した背景事象とのフィッティングにより算出している。図4にこの反応に対するビーム非対称度のエネルギー依存性を、2つの散乱角度領域について示す。我々の測定したほとんどの運動学領域においてビーム非対称度は負であり、これは反応機構として、 t チャネルにおいて不自然パリティを持った粒子である π 中間子交換過程が主であることを示しているが、 d クォーク・反 d クォーク対生成を伴う $\gamma p \rightarrow \pi^+ n$ 反応^[2] や s クォーク・反 s クォーク対生成を伴う $\gamma p \rightarrow K^+ \Lambda (K^+ \Sigma^0)$ 反応^[3] では正の非対称度を示しており、この違いは非常に興味深い。今後、様々な光ハドロン生成を統一的に理解する理論モデルを構築するうえでの貴重なデータとなると期待される。

参考文献

- [1] A.I. Titov et al.: *Phys. Rev. Lett.* **79** (1997) 1634.
- [2] H. Kohri et al. (LEPS Collaboration) : *Phys. Rev. C* **97** (2018) 015205.
- [3] S.H. Shiu et al. (LEPS Collaboration) : *Phys. Rev. C* **97** (2018) 015208.
- [4] H. Kohri et al. (LEPS Collaboration) : *Phys. Rev. Lett.* **120** (2018) 202004. (arXiv:1801.07900)

大阪大学 核物理研究センター

奥曾井 優

BL31LEP レーザー電子光Ⅱ

1. 2017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の紫外レーザー光を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。このガンマ線ビームを蓄積リング棟外のLEPS2実験棟まで引き出し、液体水素などの標的に照射してハドロン粒子の光生成実験を推進している。LEPS2実験棟内には二種類の大立体角検出器系が設置されており、2017年度は交互にユーザータイムを消化しながら、効率的に実験が進められた。

LEPS2実験棟の上流側では、終状態で複数の光子へと崩壊するハドロン粒子を検出するために大立体角電磁カロリメータBGOeggが稼働しており、2017年度は検出器系の中心部に銅標的を用いた実験を行った。前期は0.1放射長の標的を用いて1週間、後期は標的厚を0.5放射長に増やして4週間、データ収集した。これらのデータは、超高密度環境（1 cm³当たり約1億トン）となっている原子核中でハドロン質量が減少する現象（媒質効果）を探索するために解析する。特に、分岐比2.2%で2個の光子へ崩壊する η' 中間子の質量スペクトルを調べ、超高密度下におけるカイラル対称性の回復による真空の

相転移を研究する。2017年度後期の実験では、バックグラウンド量を減らして信号の感度を上げる計画の一環として、前方電磁カロリメータ（PWO検出器）および前方プラスチック・シンチレーターを増設し、一部を稼働させた。今後、追加検出器の全チャンネルを読み出し、データ収集を断続的に継続する予定である。

LEPS2実験棟の下流側には、荷電粒子と光子を同時測定できる大立体角検出器（ソレノイド・スペクトロメータ）を設置しており、今後はLEPS2ビームラインにおける研究活動の重点をこちらへ移す。この実験では、5つのクォークでできたエキゾチック・ハドロン候補である Θ^+ や中間子・バリオン分子候補である Λ (1405) の研究、反K中間子を束縛した原子核の研究などを行う予定である。

この実験のために、内径約3 m、中心磁場1 Teslaのソレノイド電磁石を米国ブルックヘブン国立研究所（BNL）から移設した。現在は、ソレノイド内部に設置する検出器を開発している。図1に概要図を示す。ソレノイド電磁石中にハドロン生成用の標的を設置する。側方に散乱した荷電粒子の飛跡をタイムプロジェクション・チェンバー（TPC）で検出し、下流に散乱した粒子はドリフト・チェンバー（DC）で検出する。これらの飛跡検出器で得られた荷電粒子の飛跡情報から磁場中での運動方程式を解くことで荷電粒子の運動量を得る。標的の周囲に設置したプラスチック・シンチレーター（SC）で荷電粒子が生成した時刻を測定し、標的から4 m下流の高抵抗板検出器（FRPC）とソレノイドのパレル部に設置した高抵抗板検出器（BRPC）で荷電粒子の飛行時間を測定する。荷電粒子の飛跡情報と合わせて速度を得ることができる。運動量と速度から荷電粒子の質量を求め、生成された粒子の種類を識別する。運動量が1 GeV/cを超える荷電粒子については飛行時間による粒子識別が困難になるため、エアロゲルを輻射体とするチェレンコフ検出器（AC）を用いて粒子識別を行う。また、ハドロンの崩壊で生じる光子はBNLから移設した電磁カロリメータ（B γ ）を用いて検出する。このように、ソレノイド・スペクトロメータは多種類の検出器によって構成されるシステムであり、実験を開始するまでに十分な準備と調整が必要である。

2017年度前期は、荷電粒子検出器DCとTPC、SCを用いたテスト実験を行った。SCを用いて、荷電粒子の

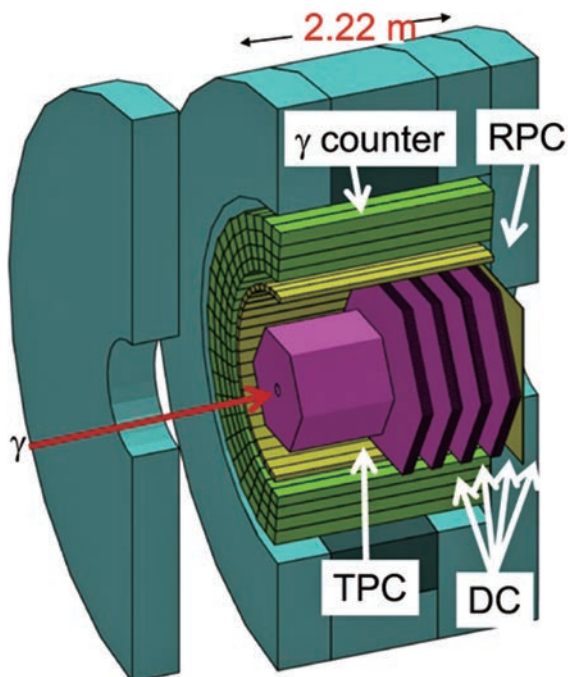


図1 ソレノイド・スペクトロメータの概要図

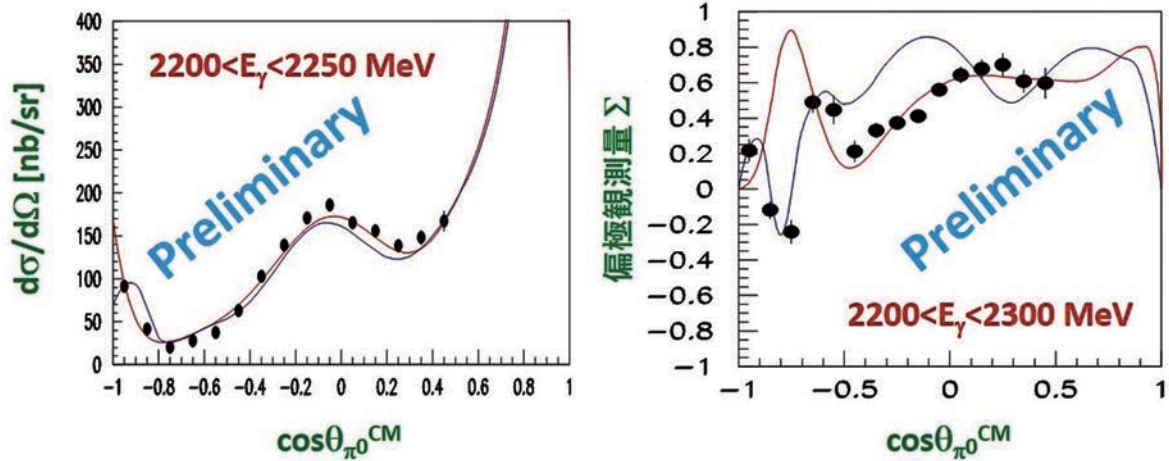


図2 高エネルギー領域における π^0 光生成の微分断面積（左図）と偏極観測量 Σ （右図）。黒点はBGOegg実験の測定結果、赤線と青線はBonn-GatchinaおよびSAIDによる既存の理論曲線（部分波解析結果）を示す。

生成時刻が加速器のRFタイミングと同期していることを確認し、SCの時間分解能が期待通りの性能であることを確認した。さらに、DC、TPCで荷電粒子の飛跡を再構成することに成功した。2017年度後期はDC、SCに加えて電磁カロリメータのデータを取得した。磁場中でカロリメータと光電子増倍管が正常動作することを確認し、ハドロン光生成のデータを取得した。解析を続けている。

2. 2017年度の実験成果

2017年度は、2016年度までにBGOegg実験で収集したデータの解析が進み、液体水素標的（陽子）を用いた π^0 、 η 、 ω 各中間子の光生成の微分断面積および偏極観測量の測定が最終段階を迎えた。これらの測定により、重心系で生成される核子や Δ 粒子の励起状態が観測でき、クォークから成るハドロン構造に迫ることができる。これらの励起状態は一般的に広い質量幅を有し、互いに重なり合っているため、微分断面積による崩壊角度分布や偏極観測量による干渉効果を測定して、異なる励起状態を分離することが重要となる。LEPS2ビームラインでは、レーザー光が持つ高い直線偏光度が逆コンプトン散乱後のガンマ線ビームにおいても保持され、特に偏極観測量（ガンマ線ビームの直線偏光方向に対する中間子生成方位角分布の非対称度など）に強みがある。ガンマ線ビームのエネルギーが2 GeV以上の領域では、世界的に見て光生成実験による偏極観測量の測定がほとんどされておらず、BGOegg実験による測定は重要な意義を持つ。

図2は、98.8%の分岐比で2個の光子へ崩壊する π^0 中間子の光生成に対する微分断面積と偏極観測量の測定結果の一例である。 $\gamma p \rightarrow \pi^0 p \rightarrow \gamma \gamma p$ 反応の終状態におい

て、2光子は大立体角電磁カロリメータでエネルギーと生成方向を測定し、陽子は同カロリメータまたは前方のドリフト・チェンバーで方向を測定する。ガンマ線ビームのエネルギーは、ビームライン設備であるタギング検出器で逆コンプトン散乱の反跳電子運動量を測定することにより決定している。始状態と終状態の四元運動量の保存と、2光子の不変質量が π^0 中間子の質量となる拘束条件を用いて、運動学的フィットを行い、信号事象を約65万個抽出した。低エネルギー領域においては、微分断面積、偏極観測量ともに他実験による測定結果があり、BGOegg実験の結果と概ね一致している。図2は高エネルギー領域の測定結果であり、既存の理論曲線との比較を表している。微分断面積については既存の測定結果があるため、それらを基にした理論曲線がBGOegg実験の結果と合致している。一方、偏極観測量については大立体角検出器による精細な測定結果がないため、既存の理論曲線ではBGOegg実験の測定結果を説明できない。今後、BGOegg実験による新データを使って部分波解析を進め、これまで考慮されてこなかった核子および Δ 粒子の励起状態の必要性を議論する。

東北大学 電子光理学研究センター

村松 憲仁

京都産業大学 理学部

新山 雅之

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ミッションのもと運営されている。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。2017年度も滞りなく上記支援を遂行でき、また整備、高度化を進めた。ビームタイムの利用状況をまず報告し、薄膜・ナノ構造用精密回折計の試料加熱装置、および時分割X線回折実験に向けた2次元検出器の整備についても紹介する。

2. ビームタイムの利用状況と論文数

採択課題数は69件（課題採択率98.5%）であった。実施課題数は、NIMS内部が42件、NIMS外部が共同研究を含めて27件となり、2016年度に比べるとNIMS内部からの課題が37件から42件と増加した。また、利用シフト数の集計では、NIMS内部課題が61.5%、文部科学省ナノテクノロジープラットフォームが34.4%、共同研究が4.1%であった。

主たる実験手法はX線回折法（XRD）とX線光電子分光法（XPS）であった。XPSの割合は45.5%、薄膜X線回折が31.0%、残りが高分解能粉末X線回折法（一部は全散乱法）23.5%であった。X線回折法の割合は、2016年度と比較すると増加した。

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。

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の切り替えや実験装置の調整に全ビームタイムの22.8%を費やした。

また、2017年度に発行された研究成果は、査読有り論文が54報であった。

3. 測定装置の整備

薄膜・ナノ構造用精密回折計（神津精機NZD-2）の試料加熱装置および時分割X線回折実験に向けた2次元検出器の整備を行った。どちらも、東工大元素戦略における測定のためであった。

3-1 試料高温ステージの整備

これまで、薄膜試料に対しては通常の試料ゴニオステージ上に断熱用のセラミック製サンプルステージを設置して、更にもう一つに小型セラミックヒーターを固定することで大気環境下での高温実験を行ってきた。断熱が不十分であったので約350℃までしか昇温できなかった。より高い試料温度での測定のため、新たにAnton Paar社製のドーム型試料高温ステージDHS 1100を導入した。この高温ステージはグラファイトドームによって試料が覆われているので、ドーム内は空気、真空および窒素や各種不活性ガスで置換した雰囲気下で25～1100℃の範囲で試料を加熱可能である。また、広い逆格子空間にアクセスすることが可能である。この新しい高温ステージを使用して元素戦略に関連した酸化ハフニウム強誘電体のキュリー温度の膜厚依存性の研究などが実施された。

3-2 時分割X線回折実験に向けた2次元検出器の整備

圧電体結晶の電圧印加によって生じるドメインの配向変化や格子歪といったサブマイクロ秒の高速の現象を解析するためには、ナノ秒オーダーの高速時分割回折実験が必要である。これまでポイントディテクターとスリット系との組み合わせで利用されてきたが、検出器の高度化として2017年度にDectris社製半導体2次元X線検出

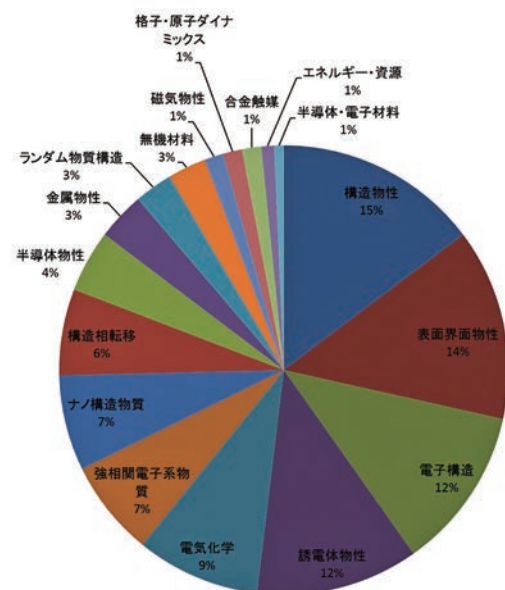


図1 実施内容によるシフト数の割合

器PILATUS3X 200 K-A（以下PILATUS）を導入した。そのピクセルサイズは $172 \times 172 \mu\text{m}^2$ で、ピクセルを 487×195 個並べたモジュールが2つ並んで、横83.8 mm × 縦69.9 mmの受光面となっている。2つのモジュールは、83.8 mmの長辺を平行にして2.9 mm（17ピクセル相当）のギャップで隔てられており、この17ピクセルのギャップ部分が2.9 mm × 83.8 mm分のX線を検出できない領域となっている。

これまで薄膜回折計の2 θ 軸アームには、ポイントディテクター用の受光用四象限スリットおよびアナライザ用ゴニオメータユニットが設置されていたが、それらを取り外し、PILATUSを回折計の2 θ 軸アームに取り付けられるように新たに取り付け治具を設計、製作した（図2）。この取り付け治具では、試料－検出器中心距離を293 mmから493 mmの範囲で調節できる。またPILATUSギャップが水平方向になる横置きでも、ギャップが鉛直方向になる縦長になる縦置きでも設置可能である。受光ピクセルの空間分解能は試料－検出器間距離が493 mmの場合 0.02° になる。この場合、横置きにすると低角側のモジュールの中心にX線が垂直に入射し、検出器面の見込角は水平方向に 8.08° 、垂直方向に 9.65° となる。

ナノ秒オーダーの高速時分割回折実験の場合、電圧印加からの特定のタイミングでの回折イメージ取得を繰り返して積算することで2次元回折像を得る。ディレイジェネレータの内部クロックを参照として、パルスジェネレータにより試料に一定の周波数で電圧パルスを印加するとともに、ディレイジェネレータからの遅延トリガによってPILATUSの読み出しシャッターを開くことを繰り返して回折イメージを積算する高速ストロボ撮影を実施した。屈折レンズによるマイクロビームとの組み合わせで、薄膜上に形成された圧電体にパルス電場を印加して回折像の時分割測定を行った。

今後はディレイジェネレータの内部クロックを参照と

する方法よりも更に高い時間分解能が実現できるシンクロトロン放射光の電子バンチと電圧印加のタイミングを同期させた高速時分割X線回折実験の利用に向けた整備を進める予定である。

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、Jaemyung Kim、坂田 修身

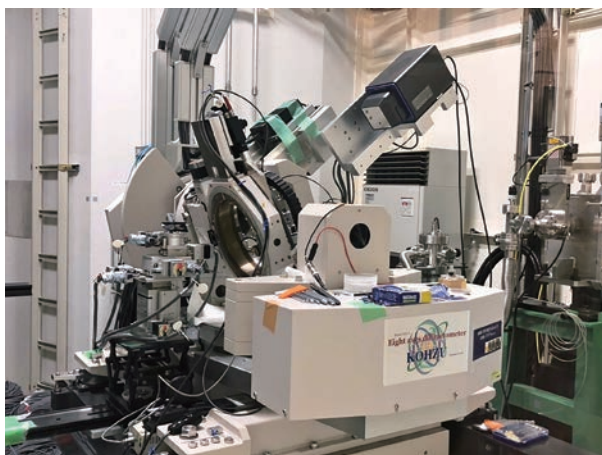


図2 PILATUSを搭載した薄膜回折計

BL12XU NSRRC

BL12XU is one of the two contact beamlines operated by National Synchrotron Radiation Research Center (NSRRC, Taiwan). BL12XU has an undulator light 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 mostly opened for users. Some adjustments and commissioning are still made by Max-Planck Institute, Dresden.

Instrumentation:

We made the following upgrading in 2017.

• KB Mirror up-grading for IXS spectrometer:

We have up-graded a KB mirror locating just before the sample position in the IXS spectrometer. The modifications are (i) a longer surface of the vertical mirror, ensuring a beam reflected in an area having a uniform curvature, (ii) a new geometry, in which a well-defined virtual source is available for the vertical focusing, (iii) a lower glancing angle, extending the x-ray energy range up to ~ 25 keV, and (iv) a replacement of dc motors with stepping motors, having a higher reproducibility of the positions and the angles. The commissioning was successfully done.

The smallest focus that we have achieved is $6\text{ }\mu\text{m}$ along the vertical axis while $28\text{ }\mu\text{m}$ in the horizontal axis. Nonetheless the vacuum pump is making a fairly large vibration, affecting the vertical focus. At present, the routinely available vertical focus is $15\text{ }\mu\text{m}$ but a further effort will be made to minimize such a vibration, so that a smaller focus will be available.

Experiments:

In 2017, we had 9 experiments of non-resonant IXS, 11 of resonant IXS (or resonant emission), 1 of high-resolution x-ray optics, 2 of micro-imaging, and 7 of HAXPES. Interesting examples are introduced below.

- Electronic structures and spin states of BaFe_2As_2 and SrFe_2As_2 probed by x-ray emission spectroscopy at Fe and As K-absorption edges:

Yamaoka et al. investigated the electronic structures of carrier-doped (electron or hole) BaFe_2As_2 and non-doped SrFe_2As_2 by resonant and nonresonant x-ray emission spectroscopy at Fe and As K-edges. They found that the electron or hole doping caused a slight enhancement of Fe K β' satellite features correlating to the local magnetic moment. Furthermore, the pre-edge peak intensity at Fe K-edge XAS spectra increased with pressure in both compounds, indicating an increase of the Fe 3d-As 4p hybridization. It was also found that pressure induced a discontinuous increase of the pre-peak intensity at As K-edge in the BaFe_2As_2 systems. These results may suggest that the Fe 3d-As 4p hybridization plays

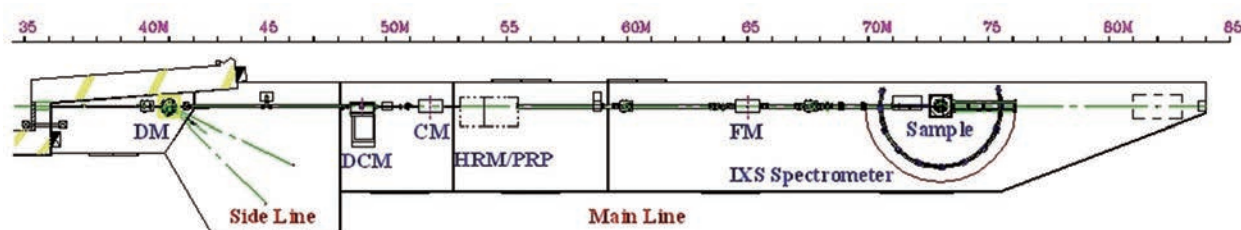


Fig.1. Schematic diagram (top view) of the BL12XU: DM is a diamond monochromator for the sideline, DCM a double crystal monochromator for the mainline, CM a collimating mirror, HRM a high resolution (channel cut) monochromator, PRP a phase retarding plate, FM a focusing mirror, and IXS an inelastic x-ray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

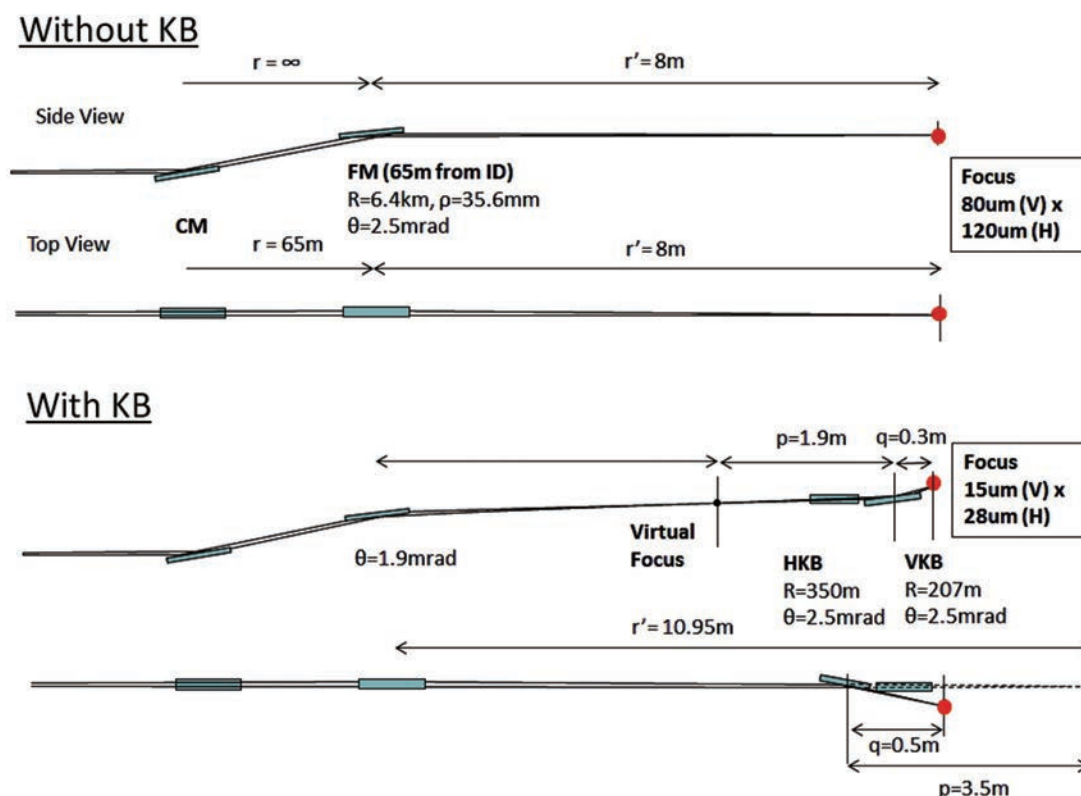


Fig.2. New geometry for the upgraded KB mirrors: Without the KB mirrors, the beam is focused into a spot of 80 μm (V) and 120 μm (H) by a cylindrical collimating mirror (CM) and a toroidal focusing mirror (FM). In the with-KB mirror mode, FM is detuned so that the beam is reflected at a smaller angle. The vertical and horizontal KB mirrors (VKB/HKB) collect the beam with a demagnification factor of about 6. Currently available beam size is 15 μm (v) x 28 μm (H).

a key role in suppressing the antiferromagnetic order by the doping or pressure and fluctuation of the local magnetic moment and the electron-electron correlation may also play a role on the physical properties of the iron superconductors. [Yamaoka et al, *Phys. Rev. B* 96 085129 (2017)]

- Electron momentum densities near Dirac cones: Anisotropic Umklapp scattering and momentum broadening:

Hiraoka & Nomura investigated the electron momentum distribution in graphite by ultra-high resolution Compton scattering (0.02-0.03 atomic units). The electron momentum distribution was significantly broadened near Brillouin zone boundaries but a sharp feature was still observable around Dirac cones. The broadening well corresponded to the magnitudes of band gaps along the zone boundaries. In fact, this effect represents a general variation of the electron densities in momentum space across the metal-insulator transitions. The experiments were performed by a newly developed x-ray Raman spectrometer using 25.5

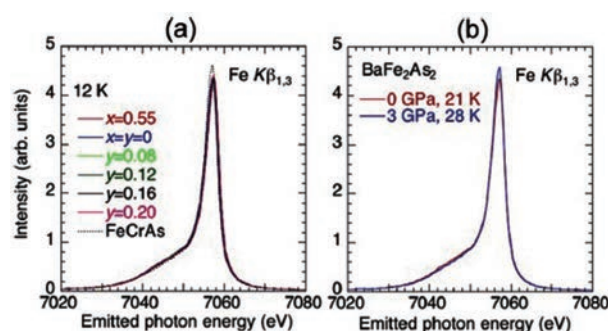


Fig.3. XES spectra of Fe compounds related to unconventional superconductors. K β' satellite intensity provides information of the local spins in Fe ions [Phys. Rev. B 96 085129 (2017)].

keV x-rays. [N. Hiraoka & T. Nomura, *Sci. Reports* 7: 565 (2017)]

- Electronic signature of the vacancy ordering in NbO (Nb_3O_3):

Efimenko et al. investigated the electronic structure of the vacancy-ordered 4d-transition-metal monoxide NbO (Nb_3O_3) using angle-integrated soft- and hard-x-ray photoelectron spectroscopies as well as ultraviolet angle-resolved photoelectron spectroscopy.

Graphite

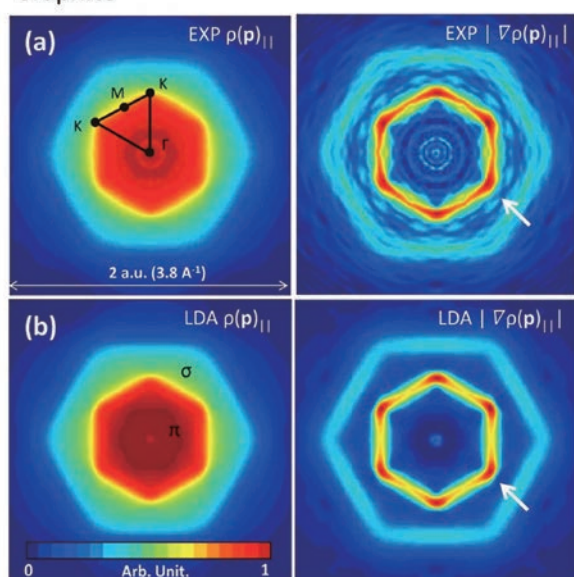


Fig.4. (Projected) electron momentum densities in graphite obtained by Compton scattering and LDA band theory. Momentum densities smoothly decay at M, where a large band gap exists, while they sharply drop at K, where the gap is closed (as in Dirac point in graphene) [*Sci. reports*, 7: 565 (2017)].

They found that the density-functional-based band-structure calculations can describe the spectral features accurately provided that self-interaction effects are taken into account. In the angle-resolved spectra they were able to identify the so-called ‘vacancy’ band that characterizes the ordering of the vacancies. This together with the band-structure results indicate the important role of the very large inter-Nb-4d hybridization for the formation of the ordered vacancies and the high thermal stability of the ordered structure of niobium monoxide. [A.K.Efimenko et al, *Phys. Rev. B* **96**, 195112 (2017)]

National Synchrotron Radiation Research Center
N. Hiraoka*, Y.F. Liao, H. Ishii, M. Yoshimura, K.D. Tsuei

BL12B2 NSRRC

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. Due to completion of 3GeV Taiwan Photon Source (TPS) at NSRRC, the beamtime distribution between these research fields have been changed. In 2017, the most of the beamtime has been assigned to material science users. About 75% of the users are from Taiwan. The rest of the beamtime is shared between international users from Japan and other places of the world.

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. Temperature dependent 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 20-400K. High pressure x-ray diffraction is carried out using CCD camera at protein crystallography table. Protein crystallography (PX) end station which is equipped with CCD and SPring-8 standard auto sample changer system has been installed since 2009. The user interface software for XRD experiment is SPring-8 standard BSS. The CCD detector has been upgraded 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. Electrode (AUTOLAB PGSTAT204 (Metrohm)) is prepared for in-situ electrochemical experiment.

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 new material research, energy science, nano science, geophysical science, etc. In 2017, BL12B2 users have published twelve papers in SCI journals. Figure 2 and 3 show the selected result from material

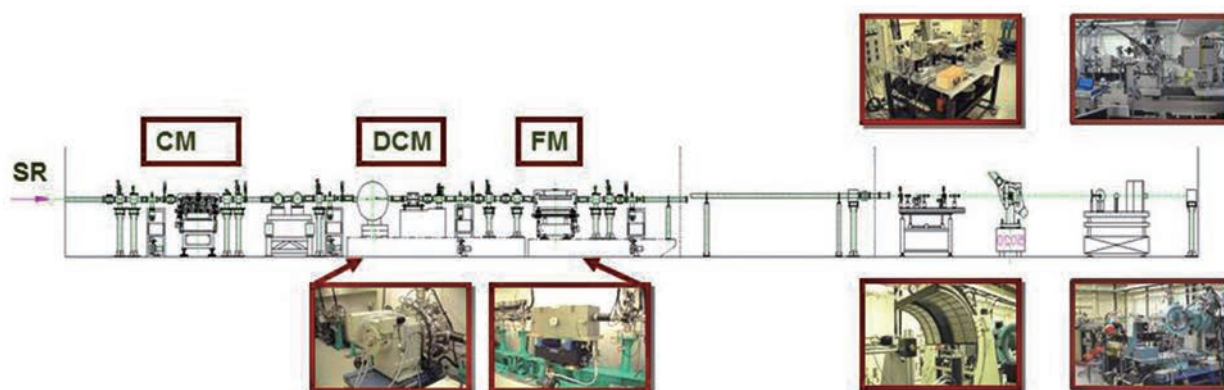


Fig.1 Schematic layout of BL12B2

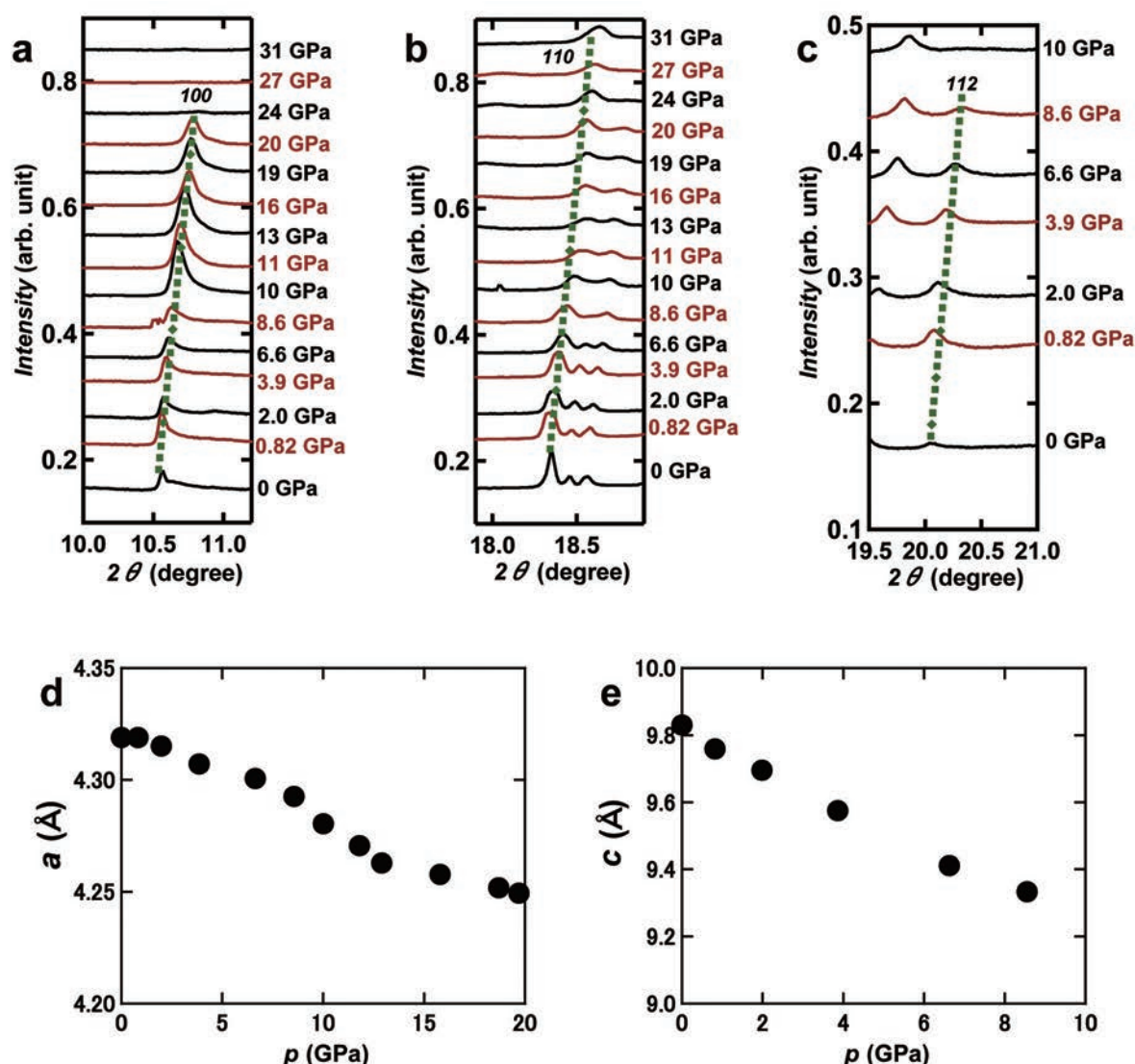


Fig.2 Pressure dependent XRD of $\text{Ca}_{0.5(2)}\text{Sr}_{0.5(2)}\text{C}_6$. Peaks ascribable to (a) 100, (b) 110 and (c) 112 respectively. (d) Pressure dependence of lattice constants, (d) a and (e) c axis. [P3]

science user. Figure 2 shows pressure dependent XRD spectrum of new graphite superconductor $\text{Ca}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{C}_6$ sample from Prof. Y.Kubozono (Okayama Univ.) . They have produced a super conducting binary-elements intercalated graphite, $\text{Ca}_x\text{Sr}_{1-x}\text{C}_y$. The compound is made by intercalated Sr and Ca into high-oriented pyrolytic graphite. [P3] These compounds become superconductor at around 3K. They have studied its superconducting property along with crystal structure change under pressure. Figure 3 shows the *in operando* XRD results of bismuth particulated anode under electrochemical sodiation-desodiation process from Prof. N-L. Wu (NTU) .[P12] The understanding of microstructural stability during charge-discharge cycle of active -material particles is crucial for maintaining the integrity of battery electrodes.

Users support had been provided by three local beamline scientists and one engineer.

Publications

Material Science

- [P1] C. Hu, Q. Ma, S.-F. Hung, Z.-N. Chen, D. Ou, B. Ren, H. M. Chen*, G. Fu*, and N. Zhen*
"In Situ Electrochemical Production of Ultrathin Nickel Nanosheets for Hydrogen Evolution Electrocatalysis" Chem 3 , 122 (2017)
- [P2] D. Mikhailova*, Z. Hu, C.-Y. Kuo, S. Oswald, K. M. Mogare, S. Agrestini, J.-F. Lee, C.-W. Pao, S.-A. Chen, J.-M. Lee, S.-C. Haw, J. M. Chen, Y.-F. Liao, H. Ishii, K.-D. Tsuei, A. Senyshyn, and H. Ehrenberg,
"Charge Transfer and Structural Anomaly in

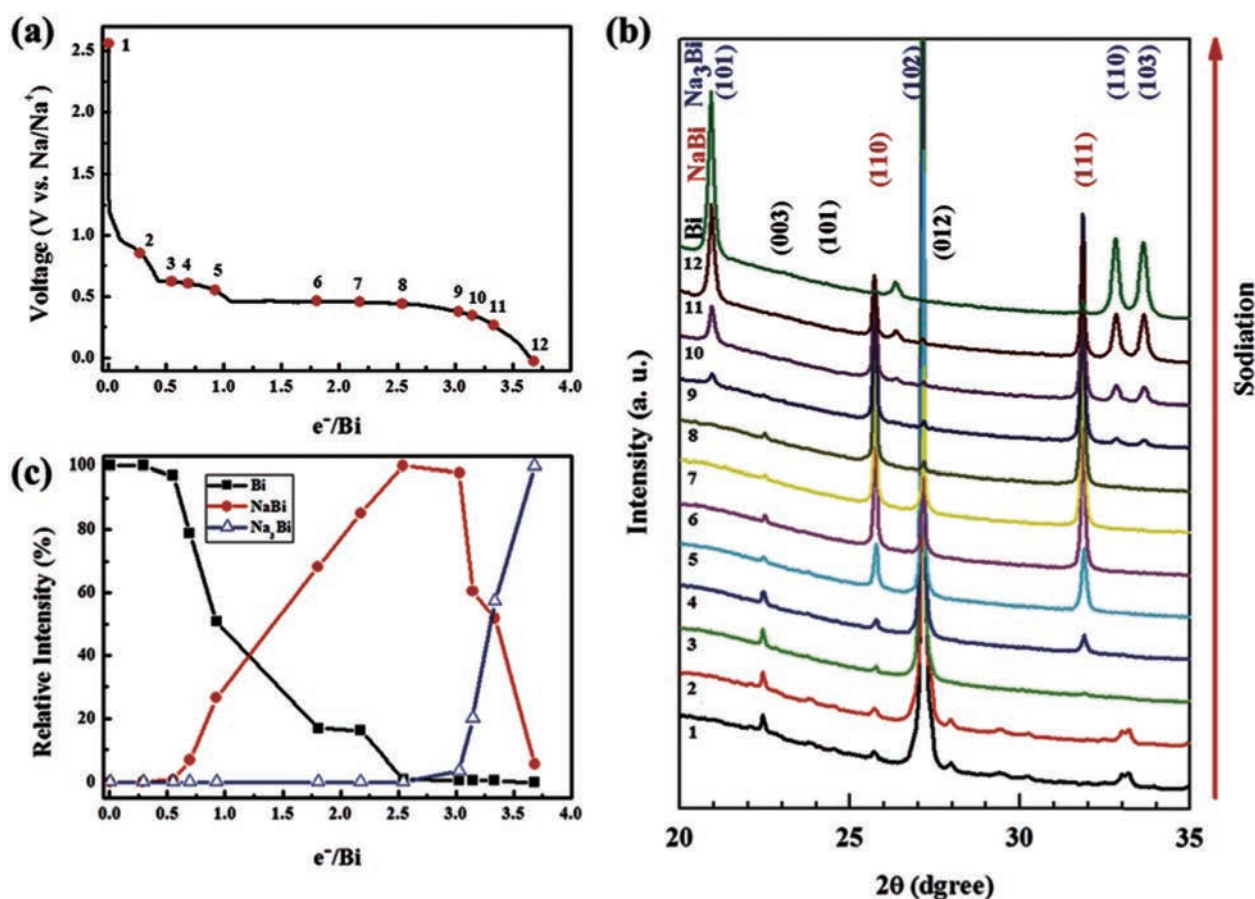


Fig.3 In operando XRD analysis of Bi anode desodiation. (a) voltage plot (b) XRD patterns (c) intensities of strongest reflections of different phases, including Bi, NaBi and Na₃Bi Number in (a) mark the moments when the XRD patterns (b) where acquired. [P12]

- Stoichiometric Layered Perovskite Sr₂Co_{0.5}Ir_{0.5}O₄*
Eur. J. Inorg. Chem. **2017**, 587 (2017)
- [P3] S. Nishiyama, H. Fujita, M. Hoshi, X. Miao, T. Terao, X. Yang, T. Miyazaki, H. Goto, T. Kagayama, K. Shimizu, H. Yamaoka, H. Ishii, Y.-F. Liao, and Y. Kubozono, "Preparation and Characterization of a New Graphite Superconductor: Ca_{0.5}Sr_{0.5}C₆" Sci. Rep.-UK **7**, 7436 (2017)
- [P4] A. C. Gandhi and J. G. Lin, "Exchange Bias in Finite Sized NiO Nanoparticles with Ni Clusters" J. Magn. Magn. Mater. **424**, 221 (2017)
- [P5] A. C. Gandhi, R. Das, F.-C. Chou, and J. G. Lin, "Magnetocrystalline Two-fold Symmetry in CaFe₂O₄ Single Crystal" J. Phys.-Condens. Mat. **29**, 175802 (2017)
- [P6] A. C. Gandhi and J. G. Lin, "Magnetic Resonance Study of Exchange-biased Ni/NiO Nanoparticles" J. Phys.-Condens. Mat. **29**, 215802 (2017)
- [P7] S.-C. Hou, Y.-F. Su, C.-C. Chang*, C.-W. Hu, T.-Y. Chen, S.-M. Yang, and J.-L. Huang, "The Synergistic Effects of Combining the High Energy Mechanical Milling and Wet Milling on Si Negative Electrode Materials for Lithium Ion Battery" J. Power Sources **349**, 111 (2017)
- [P8] Y.-Y. Li, H.-L. Chen, G.-J. Chen, C.-L. Kuo, P.-H. Hsieh, and W.-S. Hwang, "Investigation of the Defect Structure of Congruent and Fe-doped LiNbO₃ Powders Synthesized by the Combustion Method" Materials **10**, 380 (2017)
- [P9] Q. Ma, C. Hu, K. Liu, S.-F. Hung, D. Ou, H. M. Chen*, G. Fu*, and N. Zheng, "Identifying the Electrocatalytic Sites of Nickel Disulfide in Alkaline Hydrogen Evolution Reaction" Nano Energy **41**, 148 (2017)
- [P10] H.-Y. T. Chen, J.-P. Chou, C.-Y. Lin, C.-W. Hu, Y.-T. Yang, and T.-Y. Chen, "Heterogeneous Cu-Pd Binary Interface Boosts Stability and Mass Activity of Atomic Pt Clusters in the Oxygen Reduction Reaction" Nanoscale **9**, 7207 (2017)
- [P11] S. Hosokawa*, J. R. Stellhorn, T. Matsushita, N. Happo, K. Kimura, K. Hayashi, Y. Ebisu, T. Ozaki, H. Ikemoto, H. Setoyama, T. Okajima, Y. Yoda,

H. Ishii, Y.-F. Liao, M. Kitauro, and M. Sasaki,
*“Impurity Position and Lattice Distortion in a Mn-
doped Bi_2Te_3 Topological Insulator Investigated
by X-ray Fluorescence Holography and X-ray
Absorption Fine Structure”* Phys. Rev. B **96**,
214207 (2017)

[P12] C.-H. Lim, B. Selvaraj, Y.-F. Song, C.-C. Wang, J.-
T. Jin, S.-S. Huang, C.-H. Chuang, H.-S. Sheu, Y.-F.
Liao, and N.-L. Wu, *“Insight into Microstructural
and Phase Transformations in Electrochemical
Sodiation-desodiation of a Bismuth Particulate
Anode”* J. Mater. Chem. A **5**, 21536 (2017)

NSRRC, Taiwan

Y.-F. Liao, M. Yoshimura, T. Tatsumi and H. Ishii

BL03XU フロンティアソフトマター開発産学連合

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体 (FSBL)”が



図1 FSBLのロゴ

管理・運営している (図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、2017年度に実施した第二ハッチの高度化『数 μm 領域における数百nm ($q > 0.006 \text{ nm}^{-1}$) の構造評価を目的としたマイクロビーム極小角散乱光学系の構築』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。

第一ハッチには、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。

第二ハッチには、3 m $\times$ 3 m $\times$ 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. 数 μm 領域における数百nmの構造評価を目的としたマイクロビーム極小角散乱光学系の構築

ゴムや樹脂といったソフトマターは様々な階層構造を有しており、これらの構造情報は高性能材料や高機能材料を創製する上で、必要不可欠である。材料によっては、通常のSAXS測定 (カメラ長1~4 m程度) で測定できる波数領域 ($q > 0.06 \text{ nm}^{-1}$) よりも小角領域で観測される散乱を取得する必要がある。より小角領域の散乱測定を行うためには、試料と検出器との距離をより長い極小角散乱 (USAXS) 光学系を構築する必要がある。一方、X線散乱測定において、得られる散乱パターンは、X線が照射された箇所の平均構造に由来する。つまり、広いビームでは広い領域に存在している構造の平均的な情報しか得ることが出来ない。複雑系であるソフトマターは、局所的な構造が機能性を発現している場合もあり、局所情報を得るためにX線のビームサイズを小さくすることが重要となる。もしも、大きなスケールで特徴的な構造が存在しながら局所的に構造が異なる場合には、



図2 薄膜回折装置;Aと第二ハッチ内部;Bの写真

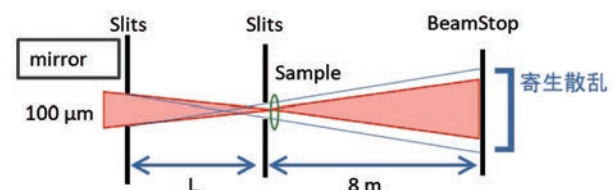


図3 USAXSレイアウトの時のスリットと寄生散乱の関係。上流のスリットから下流のスリットをつなぐ青線で囲まれた領域で寄生散乱が観測され、ビームストップはそれよりも大きいサイズとする必要がある。

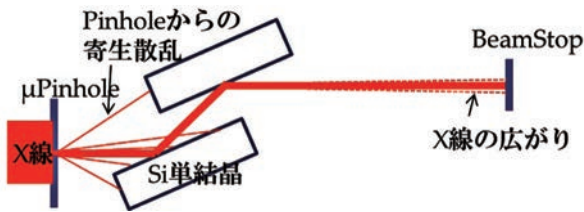


図4 結晶コリメート光学系。寄生散乱はダイレクトビームとは異なる角度で第一結晶に入射するため第二結晶より下流には照射されない。

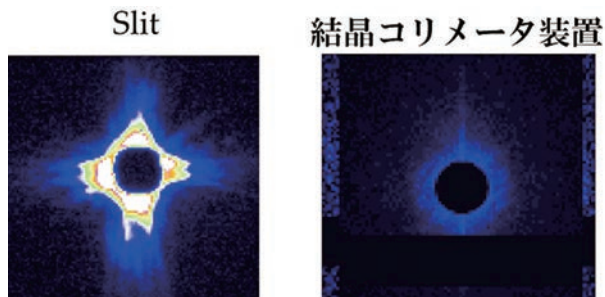


図5 スリット光学系（左図）と結晶コリメート光学系（右図）で撮影されたビームストップ周りの画像。サンプルは設置していない。

小さいビームでUSAXS測定を達成する必要がある。しかしながら、試料と検出器の距離が離れているUSAXS実験系においては、集光素子を用いて光を小さくすることは難しい。図3に示す模式図で、短い集光距離（L）で集光した場合には、散乱角よりも光の発散角が大きくなり、ビームストップにより小角領域の観測ができないため、USAXS測定が困難である。また、集光距離（L）が長い場合には、縮小比の関係で試料位置にて光を十分に小さくすることができない。そこで、微小ピンホールにより光を小さく切り出すことで、マイクロビームを生成する手法を用いる。この手法を利用することで発散角の小さいマイクロビームを用いることが可能となる。しかしながら、寄生散乱を除去するためにはガードピンホールやスリットなどを用いるが、サンプル位置が検出器位置と離れているUSAXS実験系では、図3のLが短い場合に相当するため、寄生散乱をこれらで除去することは出来ない。

そこで、本手法では、単結晶の全反射を用いた結晶コリメート装置を開発した（図4）。結晶コリメート装置は2枚1セットのSi単結晶2セット（合計4枚のSi単結晶）で構成されている。コリメートピンホールから生成されたμビームは1枚目の第一Si単結晶に入射されると、ブラッグの回折条件を満たす特定の入射角度において回折する。この回折されたX線は第一Si単結晶と平行に配置されている2枚目の第二Si単結晶に入射し、再度、回折することで、最初に入射したX線と平行に射出される（照射される角度は一定だが、位置はずれる）。このときピンホールで発生した寄生散乱は、ダイレクトビームに

対してわずかに異なる角度を有しているため、ブラッグの回折条件を満たしていないため、回折することが出来ず除去される。これにより光をコリメートするマイクロピンホールから発せられた寄生散乱を除去することが可能となる。図5は通常のピンホール/スリットコリメート実験系および本手法で測定されたビームストップ近くの空気散乱の測定結果である。ピンホールコリメート系では激しく生じていた寄生散乱が、本手法で測定された散乱図においては大幅に低下しており、規制散乱の除去に成功した。また、ワイヤスキャンによってμビームのプロファイルを測定した結果、USAXS実験系にもかかわらずビームサイズは5 μmまで絞られており、このことから、マイクロビーム超小角散乱光学系の構築に成功した。

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体

代 表 中瀬古 広三郎
運営委員長 田中 敬二

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卓越拠点が設立された。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) 偏光の切換を達成している。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。これまでに本光源特性を活かして、連続偏光変調を利用した軟X線磁気光学実験法を開発し、世界で唯一、軟X線領域での複素誘電率テンソルの直接決定に成功している^[2]。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線分光、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、2017年度も全て共同利用実験装置として開放した。

本稿では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一部をトピックスとして紹介する。

1. 時間分解磁気円偏光二色性測定によるスピンの超高速ダイナミクス観測^[3]

近年、光を利用して高速に動作する電子・スピン材料の開発が進められており、世界中の放射光施設においても光誘起によるスピンダイナミクスの実験が盛んに実施されている。ビームラインBL07LSUにはSPring-8の放射光パルスと同期した超短パルスレーザーステーションがあるので、2017年度は本システムを利用して時間分解X-ray Magneto Circular Dichroism (X線磁気円偏光二色性, XMCD) 及び共鳴軟X線散乱(弾性散乱・回折)の測定装置を建設し、磁性材料の光誘起ダイナミクスのリアルタイム測定を行った。

図1(a)は本装置の配置であり、チャンバーの上半分において時間分解共鳴軟X線散乱(弾性散乱・回折)測定を行い、下半分において時間分解XMCD測定が行う。直線導入器及び 2θ 回転器上にマイクロチャンネルプレート(Micro Channel Plate, MCP)検出器を設置しており、試料と検出器の位置関係を調整できるようにしてある。BL07LSUのレーザーステーションから実験チャンバー内の試料へ放射光と同期したレーザーパルス

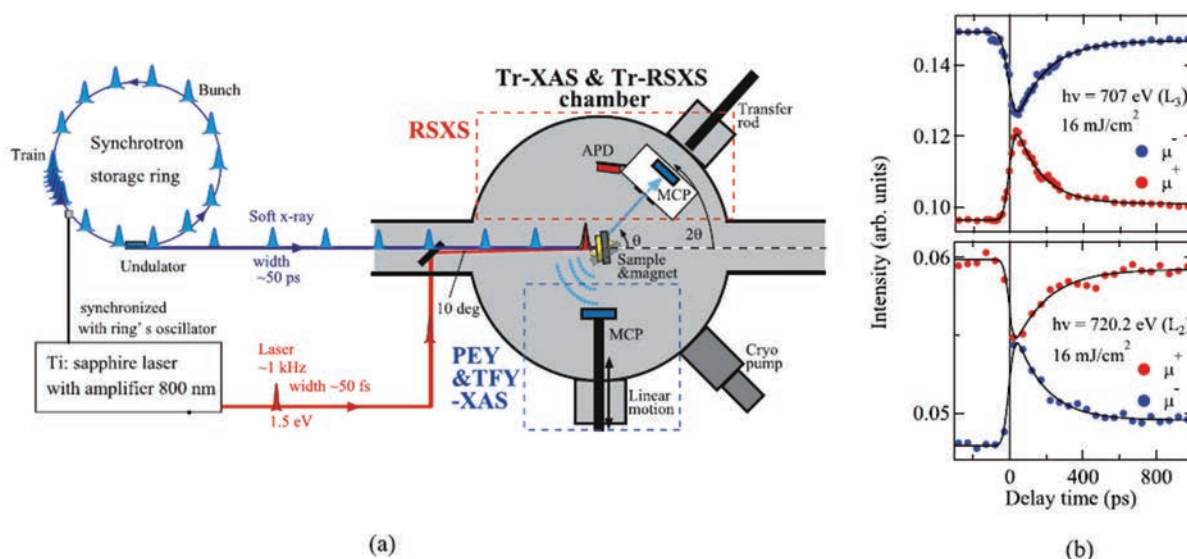


図1 (a) SPring-8 BL07LSUにおける時間分解XMCD(Tr-XMCD)及び共鳴軟X線散乱(Tr-RSXS)測定装置の概要。(b) FePt薄膜のTr-XMCD時間発展プロファイル(上図Fe L_3 端、下図 L_2 端)。XMCDは吸収分光(XAS)の一部であり、部分電子収量法(PEY)及び蛍光法(TFY)による信号検出が可能である。^[3]

を照射することによるポンプ（レーザー）-プローブ（放射光）法で時間分解測定を行う。今回、実験の測定対象としてMgO基板上に作製した50 nm厚のFePt合金膜に注目した。このFePt薄膜は室温で強磁性を示す垂直磁化膜であるため、応用面で期待されている。この物質にレーザーを照射すると図1 (b) のように磁化が消え（消磁）、ピコ秒時間スケールでの緩和過程が大きく進行することがリアルタイムで観測できる。このような実験セットアップは日本の放射光施設で唯一であり、今後、系統的な磁性体のスピンドYNAMICS研究に本ビームラインが活用されることが期待される。

2. 高分子ブラシ内における水分子ネットワークの研究^[4]

近年、新たな表面高機能化材料として高分子電解質ブラシに注目が集まっている。このブラシは、その超親水の性質から水中において固体に良好な潤滑性や防汚性を付与できることが特徴であり、その理由としてブラシ中に存在する水が通常の水（バルク水）とは異なる水素結合構造を形成することが指摘されていた。そこで、ビームラインBL07LSUにおいてバルク水と高分子電解質ブラシ中の水の水素結合にどのような違いがあるか調べるために、軟X線吸収・発光分光測定が行われた。

図2は各液体における水の酸素1s発光スペクトルである。高分子電解質ブラシ中の水のスペクトルを見ると、大きく歪んだ水素結合環境を示す $1b_1''$ と呼ばれるピークがほぼ観測されていない。一方で水によく似た秩序構造を示す $1b_1'$ と呼ばれるピークのみが観測されており、ブラシ内では水分子同士がすべて水素結合でつながれていると考えられる。さらに高分子電解質ブラシ中の水のスペクトル（赤）では $3a_1$ に帰属されたピークが顕著に観測される。この $3a_1$ 成分は結晶水（青）のように水分子が正四面体配位で秩序だって結合すると光学的に遷移できなくなり消えるが、バルク水（緑）では歪みの影響で

光学的に遷移できるようになり、さらに様々な配位環境を反映してエネルギー位置が分散するためになだらかなスペクトル構造となるものである。高分子電解質ブラシにおいて、 $3a_1$ ピークが非常に強く出ていることは、ブラシ内では水素結合で水分子全体がネットワークを作りながら、“ある一定の歪み”を持った環境で $3a_1$ ピークが活性になっていると解釈することができる。このような歪んだ氷様の水は、ブラシ表面に付着する水とは異なるネットワークを持ち、それが超親水性を低下させるものと考えられる。実際、今回測定した高分子電解質ポリマーは、潤滑性や防汚性などの機能性を持ちながら完全な超親水性ではないことが知られており、本実験結果が今後の高分子電解質ブラシのさらなる開発に役立つことが期待される。

参考文献

- [1] S. Yamamoto *et al.*, *J. Syn. Rad.* **21**, 352 (2014) .
- [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**, 214417 (2017).
- [3] K. Takubo, K. Yamamoto, Y. Hirata, Y. Yokoyama, Y. Kubota, S. Yamamoto, S. Yamamoto, I. Matsuda, S. Shin, T. Seki, K. Takanashi, and H. Wadati, *Appl. Phys. Lett.* **110**, 162401 (2017).
- [4] K. Yamazoe, Y. Higaki, Y. Inutsuka, J. Miyawaki, Y. Cui, A. Takahara, and Y. Harada, *Langmuir* **33**, 3954 (2017).

東京大学放射光分野融合国際卓越拠点
(東京大学物性研究所)

松田 巖、原田 慈久、和達 大樹

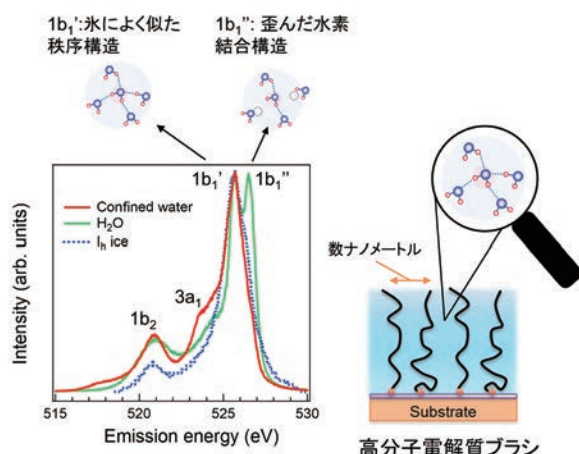


図2 高分子電解質ブラシ中の水、通常の水、固体（結晶水）中の水の酸素1s発光スペクトル.^[4]

BL33XU 豊田

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。

設立当初の目的は、当時の共用ビームラインでは実施できなかった、オペランド解析を目的とした高速X線吸収微細構造（XAFS）測定技術と金属内部の非破壊結晶構成解析を実現するための3次元X線回折（3DXRD）法を実現することであり、そのための技術開発を進めてきた。現在では、これらの測定手法に加えて、X線小角散乱（SAXS）測定、多軸ゴニオメータによるX線回折（XRD）測定およびX線CT/ラミノグラフィ観察法を導入し、現状では、「マルチプローブでのオペランド解析技術」と「マルチスケールの非破壊3次元構造解析技術」の技術群が構築できている（図1）。本報告では、豊田ビームラインの現状と2017年度の技術的進展を示す。

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2に光学系の概略構成を示す。本ビームラインは、2種類の分光器を設置しており、それぞれをほぼ独立した2つの光学系として利用している。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

測定手法は目的に応じて、マルチプローブでのオペランド解析を目的とした手法と非破壊構造解析を目的とした手法に分けられる。オペランド解析手法には、XAFSによる状態・局所構造解析、SAXSによるメソ構造解析、XRDによる結晶構造解析、ラジオグラフィによる形態・構造変化および蛍光X線分析による組成測定がある。非破壊構造解析手法としては、スケールの小さい方から、結像光学型CT、投影型CT/ラミノグラフィ、走査型3DXRDそしてスパイラルスリットを用いた局所XRD測定手法がある。

(1)高速XAFS測定システム

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約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]。

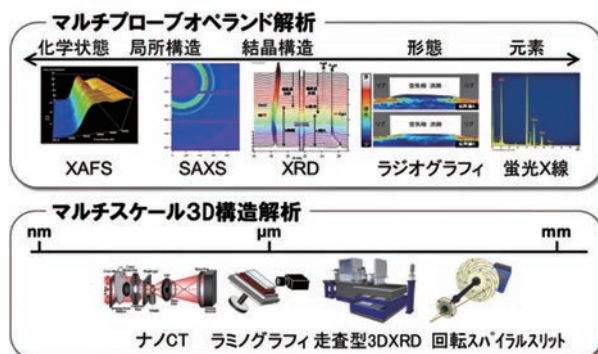


図1 豊田ビームラインの測定手法

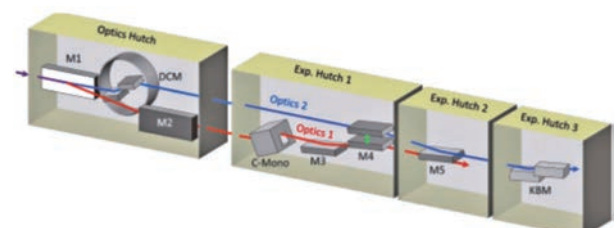


図2 豊田ビームラインの光学系の構成

(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 300 K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]。

(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3DXRD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各点での回折情報から3次元再構成することで、結晶粒の平均情報だけでなく粒子内の空間分布が得られることである。これにより、塑性変形時の結晶の回転に加えて、粒内のひずみの分布を得ることも可能である。

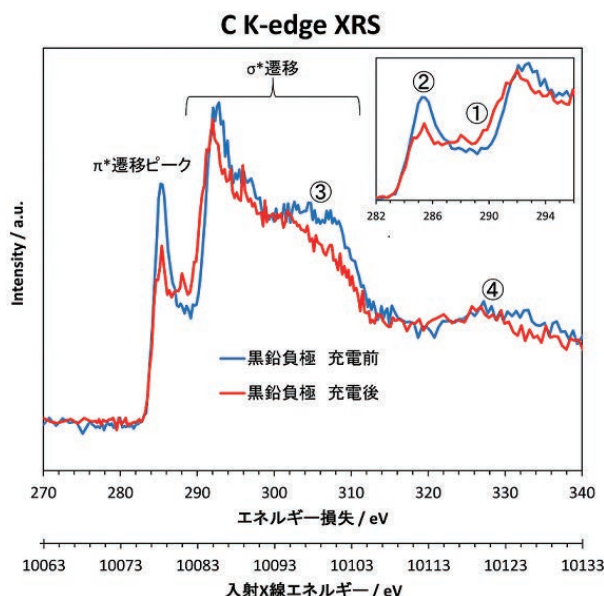


図3 充電前後の黒鉛負極のC K吸収端XRSスペクトル

(5)トモグラフィ (CT)・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1 μm 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1 μm の分解能での構造観察が可能となってきた。さらに、後述するように2017年度には結像型光学系を用いたCT(ナノCT)を導入し、約100 nmの空間分解能でのCT観察を実現している。

3. 2017年度の技術進展

(1)X線ラマン散乱分光(XRS)による軽元素のその場状態解析技術

豊田ビームラインは、その場/オペランドでの状態分析技術の特徴としているが、硬X線ビームラインであるために吸収分光法ではTiより重い元素の分析しかできなかった。軽元素の状態分析を可能とするため、2016年度よりX線ラマン散乱分光法を検討し、2017年度に導入をはかった。X線ラマン散乱法はX線非弾性散乱測定のひとつであり、軽元素の内殻吸収端による非弾性散乱X線を測定することで、硬X線を用いて軟X線XAFSと同等のスペクトルを得ることができる手法である。本手法を用いてリチウムイオン電池の黒鉛負極の放電に伴う状態変化の測定可能性を調べた。

図3に充放電前後の黒鉛負極のC K吸収端のXRSスペクトルを示す。縦方向の入射ビームサイズを0.024 mmに絞ることで(横方向は3.0 mm)、試料が大気に触れないようにしている透明バリヤフィルムの影響を排除している。充電に伴って以下の4つの特徴的なスペクトル変化が認められた。①291 eV付近の σ^* 遷移の立ち上がり位置が低エネルギー側へシフト、②285 eV付近の π^* 遷移ピークのピーク強度が低下、③300~310 eV付近のスペクトル強度が低下、④320~340 eV付近のブロードなスペクトル構造が低エネルギー側へシフト。今回の結果は、黒鉛負極のその場観察が可能であることを示している。

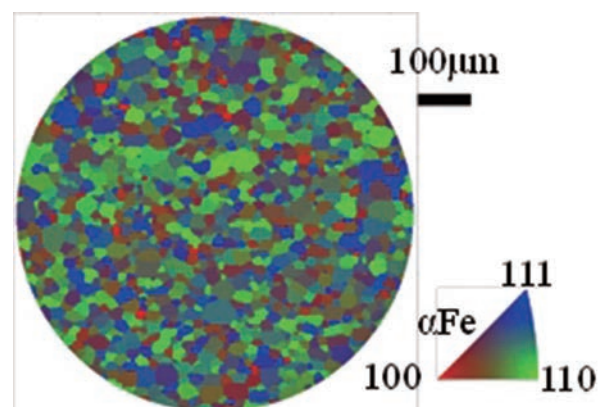


図4 冷間圧延鋼板内部の大視野非破壊結晶方位マップ

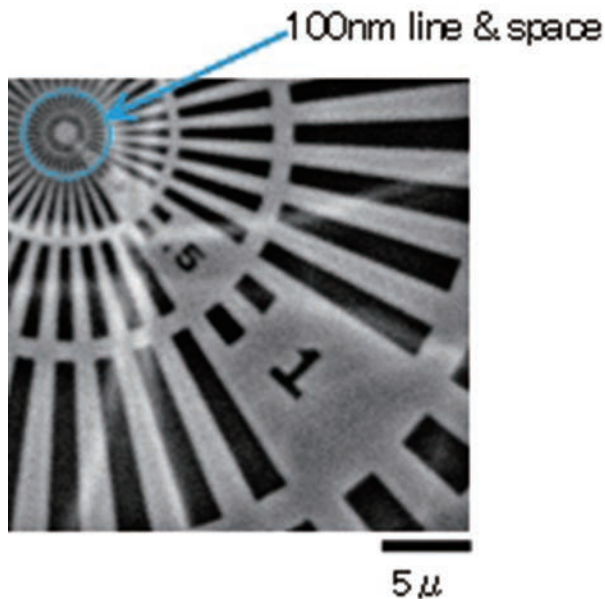


図5 結像光学系によるテストチャート観察像
一番内側が100 nmのライン&スペース

る。

(2) 走査型3DXRD法による大視野非破壊結晶方向マッピング^[8]

本手法の特徴は、前述のように測定できる結晶粒数が多いことにある。図4に大視野結晶方位マッピングの例を示す。試料は冷間圧延鋼板（板厚1 mm）を幅1 mmで角棒状に切り出したものを用いた。測定時間は9.3時間で、約40万枚の回折画像から結晶方位マップの再構成を実施している。φ 680 μmの視野中に約1000個の結晶粒が観察できる。これは従来の3DXRD法では実現困難な測定で、実用材料の測定に対しての走査型3DXRDの優位性を示している。

(3) ナノCTシステムの構築^[9]

これまでにサブミクロンレベルのCT観察技術は実現してきたが、さらなる高分解能観察を可能とするため、結像光学系を用いたCT（ナノCT）設備を導入した。基本的な光学系はSPring-8 BL47XUのシステムを踏襲しており、カメラ長を9.5 mとすることで、8 keVで約95倍の拡大率を得ている。図5にテストチャートの観察結果を示す。100 nmのライン&スペースが確認できている。現状で利用できるX線エネルギーは8~12 keVで、10~20分程度でCT測定ができる。

本ナノCT技術導入により、ナノメートルからミリメートルのマルチスケールでの非破壊内部構造観察技術群を構築できたと考えている。

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 他: SPring-8利用課題実験報告書 2017A7002, 2017B7002.
[7] 野中敬正 他: SPring-8 利用課題実験報告書 2017B7008.
[8] Y. Hayashi et al, *Mater. Sci. Forum* **905**, 157 (2017).
[9] 山口聡 他: SPring-8利用課題実験報告書 2017B7032.

(株)豊田中央研究所 分析部

堂前 和彦

BL28XU 革新型蓄電池実用化促進基盤技術開発

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線光電子分光分析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では幅広い時間空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. フォトンカウンティング型の高エネルギー対応2次元検出器Pilatus3X CdTe 300 KWの導入・整備
LIBを超える高いエネルギー密度を次世代蓄電池で実

現するために、亜鉛空気蓄電池では高エネルギー密度の必須要件である亜鉛極の厚膜化に取り組んでおり、300 Wh/kgを実現するためには1.5 mmもある極厚膜電極を使いこなす必要がある。また、車載用蓄電池においても数cmスケールの実電池の反応分布の分析が求められている。このような分厚い試料を非破壊で測定するためには、高い物質透過能をもつ高エネルギーが求められるが、従来のSi素子を用いた検出器ではエネルギーが高くなるほど素子感度が悪くなるため、測定に時間がかかってしまう。そこで、新規にCdTe素子を用いたフォトンカウンティング型の2次元検出器Pilatus3XCdTe 300K-Wを導入・整備した。

Pilatus CdTe 300 KW (CdTe素子) とPilatus 100K (Si素子) の比較のために、入射光エネルギー38 keVと25 keVでSiO₂のXRD測定を行い、38 keVではSi素子の16倍も高感度に回折光を検出でき、25 keVでもPilatus CdTe 300 KWのカメラ長がPilatus 100 Kのカメラ長よりも290 mmも長い条件で、3.7倍に強度が増加することを確認した。さらに、この検出器はSi素子Pilatus 100 Kの長手方向に3つモジュールを重ねることで3倍の角度範囲が測定可能であり、一度に複数の回折線を測定できる。以上のように、高エネルギーX線領域を有効に活用してより実用的な蓄電池内部での反応を追跡できる基盤を整備した。

2. VS₄正極材料の充放電メカニズムの解明

近年、高い理論エネルギー密度を有する硫化物蓄電池が次世代の高容量蓄電池として注目されている。その中でも金属多硫化物であるVS₄は、2 Vのプラトー電位と高い理論容量（1195 mAh g⁻¹）を有し、遷移金属を含むことで単体硫黄などに比べ高い導電性を示し、また金属—硫黄結合を有することで電解液中への溶出が抑制されるという利点を持つ。これまでVS₄は負極材料として研究が盛んにされてきたが、VS₄を正極材料として用いたLi/金属硫化物蓄電池を実現するためには、正極として利用した際の充放電メカニズムを明らかにする必要がある。そこで、我々は炭素材を含まないVS₄を真空熱処理により合成し、正極材料として使った際の充放電メカニズムをX線全散乱による二体分布関数（pair distribution function: PDF）法とV K-edge、S K-edge XAFSを用いて調べ、Li/金属硫化物蓄電池の正極材料

として VS_4 が有望であることを明らかにした^[8]。真空中400℃の熱焼成により合成した VS_4 は単斜晶構造を持ち、平均粒径8 μm の針状形状を有する。この VS_4 を合剤電極にして3 Vから1 Vの範囲で充放電操作を行い、Li量を制御した各 Li_xVS_4 ($x = 1, 3$ or 5) 電極を作製した。PDF解析から2.0、2.4、2.8 ÅにそれぞれS-S結合、V-S相関、V-V相関に帰属されるピークが現れた。初回放電時の化学組成 Li_3VS_4 のときに6 Åを超える長距離秩序のピーク強度が下がり、それ以降の充放電過程でピーク強度がもとに戻らなかったことから、初回のLi挿入過程で低結晶性構造が生成していることがわかった。一方、6 Å以下の近距離秩序のピークは残っていることから、部分的に配位数や結合長は維持されていることがわかった。さらに、初回放電過程では2.0 ÅのS-S結合のピーク強度が減少し、S-S結合の切断が示唆され、初回充電過程ではS-S結合のピーク強度が増加し、S-S結合が再生成されるとともにV-S相関の2.4 Åのピークが初期の VS_4 よりも広がり、V原子周りの配位環境が変わっていることが示唆された。XAFS測定から充放電容量に対する吸収端の変化量がVに比べてSのほうが大きかったため、充放電容量を担っているものは主にS原子による酸化還元反応だと示唆された。以上のように、PDF解析とV K-edge、S K-edge XAFSを組み合わせることで、炭素材を含まない VS_4 の充放電メカニズムに関して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適用できる重要な知見である。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. Li_2SnS_3 と Li_3NbS_4 の固溶体電極の開発

Li含有硫化物はリチウムイオン伝導体や電極活物質として研究が盛んに行われている。その中でも、近年リチウムスズ硫化物が高リチウムイオン伝導固体電解質として注目が集まっている。例えば、 Li_2SnS_3 は規則的な岩塩構造を伴った単斜晶相であることが知られている。一方、近年我々がメカノケミカル法で合成した Li_2TiS_3 や Li_3NbS_4 は立方晶岩塩構造を持ち、2次電池の正極材料として400 mAh g^{-1} の可逆容量を示すことを明らかにしてきた^[9]。メカノケミカル法は、アモルファス相や高い対称性をもつ結晶構造を有する準安定構造を作り出すのに有効な手法である。そこで、我々は高い対称性を持つ立方晶 Li_2SnS_3 を合成し、同じく立方晶の Li_3NbS_4 と固溶化した際の電極特性を調べた^[10]。メカノケミカル法により合成した Li_2SnS_3 は単斜晶のXRDピークと異なり、立方晶岩塩構造を示した。この材料の放電特性は、低い電子伝導性により25 mAh g^{-1} 程と

小さかったため、高い電子伝導性をもつ Li_3NbS_4 と固溶体を作ることによって充放電容量の向上を試みた。その結果、XRDパターンとPDF解析結果から Li_3NbS_4 と Li_2SnS_3 は全領域にわたって立方晶岩塩構造の固溶体を形成することがわかった。さらに、PDF解析からNb-richな領域で4.0、5.3 Åあたりに見られる弱い相関から、平均的な原子位置は $Fm-3m$ 空間群の4a、4bサイトにいるが、局的にはそれぞれの位置からわずかに歪んだ位置にいることが示唆された。この固溶体の充放電容量を調べてみると、 Li_2SnS_3 量に比例して充放電容量の低下は見られないことから、2 V程度の電圧領域ではSnやNbではなく、S原子が主に酸化還元反応を担っていることが示唆された。また、Sn量が0.2と0.43では電子伝導性が 10^{-4} S cm^{-1} に対して、Sn量が0.69では 10^{-6} S cm^{-1} 台、1では 10^{-7} S cm^{-1} 台となることから、この系では電子伝導性に依存して容量が変化していると考えられる。以上の結果より、電子伝導性が高い Li_3NbS_4 を Li_2SnS_3 に固溶させて電子伝導性を向上させることで、 Li_2SnS_3 のS原子の酸化還元反応を活性化することができた。

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**, 268 (2014).
- [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**, 20750, (2014).
- [3] 村山美乃, 北田耕嗣, 福田勝利, 放射光 **28**, 161 (2015).
- [4] T. Kawaguchi, K. Fukuda, K. Tokuda, K. Shimada, T. Ichitsubo, M. Oishi, J. Mizuki and E. Matsubara, *J. Synchrotron Radiat.* **21**, 1247 (2014).
- [5] T. Kawaguchi, K. Fukuda, K. Tokuda, M. Sakaida, T. Ichitsubo, M. Oishi, J. Mizuki and E. Matsubara, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **17**, 14064 (2015).

- [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**, 124 (2015).
- [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**, 5909 (2016).
- [8] Kazuto Koganei, Atsushi Sakuda, Tomonari Takeuchi, Hikari Salaeve, Hironori Kobayashi, Hiroyuki Kageyama, Tomoya Kawaguchi, Hisao Kiuchi, Koji Nakanishi, Masashi Yoshimura, Toshiaki Ohta, Toshiharu Fukunaga, and Eiichiro Matsubara, *Solid State Ionics* **323**, 32 (2018).
- [9] Atsushi Sakuda, Tomonari Takeuchi, Kazuhiro Okamura, Hironori Kobayashi, Hikari Sakaebe, Kuniaki Tatsumi, and Zempachi Ogumi, *Scientific Reports* **4**, 4883 (2014).
- [10] Atsushi Sakuda, Kentaro Kuratani, Tomonari Takeuchi, Hisao Kiuchi, Tomoya Kawaguchi, Masahiro Shikano, Hikari Sakaebe, and Hironori Kobayashi, *Electrochemistry* **85**(9), 580 (2017).

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

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（Polymer Electrolyte Fuel Cell; 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、2017年度は31課題を実施し、順調に運用を行っている。以下に、2017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* RIXS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、表面化学吸着種や化学種吸着による電子状態の解明は、燃料電池電極触媒高性能化のための開発において重要な情報となる。2016年度に、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、燃料電池発電条件下でセル電位に依存した高エネルギー分解蛍光収量XANES（High Energy Resolution Fluorescence Detected（HERFD）-XANES）スペクトルの変化を計測するシステムを開発し、燃料電池の最も一般的な電気化学性能評価法であるCV（サイクリックボルタンメトリー）計測とHERFD-XANESの同時計測に成功した^[1]。2017年度は、燃料電池駆動下でPt触媒粒子表面への化学種吸着による電子状態変化の観察を行うことを目的として、*in-situ* RIXS（共鳴非弾性X線散乱）計測システムを構築した。実燃料電池セルか

らの非弾性散乱X線を8台の球面湾曲アナライザー結晶（Si 933面、R=820 mm）により分光し、2次元X線ピクセル検出器により検出を行う。本計測システムにより、CV測定とRIXS測定の同時測定に成功した。

3. 利用成果

3-1 *in-situ*時間分解XAFS計測によるPt/CおよびPt₃Co/C電極触媒の酸素雰囲気下での過渡応答反応素過程の解明^[2]

本研究では、*in-situ*時間分解XAFS計測システム（時間分解能: 20 ms）を用い、発電条件下における燃料電池のPt/CおよびPt₃Co/Cカソード触媒の酸化反応メカニズムと構造速度論の解明に成功した。これまで、燃料電池電極触媒の電極電位過渡応答反応については、カソードに加湿N₂を流した状態で測定されてきた。本研究では、100% N₂と10% O₂（90% N₂）のカソードガス切り替えと電位操作を同期し、より実用環境下に近い状態で2つのPt触媒の酸化反応の速度定数の相違を調べた。XAFSデータから得られたwhite line高さ、Pt-Pt結合、Pt-O結合の配位数等の構造パラメーターの電位過渡応答に対する時間変化から、高活性・高耐久なPt₃Co/Cでは、粒子表面層の酸化において、Ptの局所構造の変化量が低下するだけでなく、速度定数もPt/Cに比べて大きく低下し、酸化が抑制されていることがわかった。

3-2 ラウエ型湾曲結晶を用いたPt-Au触媒のPt L_{III}端EXAFS解析^[3]

PEFCの高活性カソード触媒としてAuをコア、Ptを

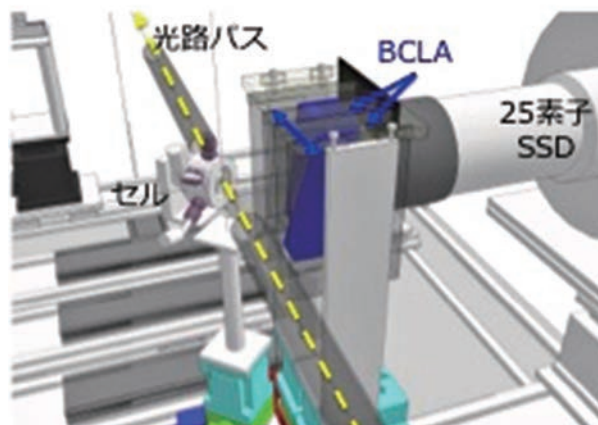


図1 BCLAを用いた蛍光分光XAFS計測システム概念図

シェルとしたPt-Auナノ粒子触媒が期待されている。本触媒粒子の電気化学反応メカニズムの解明には、PtおよびAuのXAFS解析が有効であるが、Pt L_{III} 端 (11.564 keV) と Au L_{III} 端 (11.919 keV) が近接しているため、広いエネルギー範囲でPt L_{III} 端 XAFS計測を行うことが困難であった。本研究では、湾曲ラウエ結晶アナライザー (Bent Crystal Laue Analyzer; BCLA) と25素子Ge検出器を用いた蛍光分光XAFS法 (図1) により、Pt L_{II} 蛍光X線を選択的に抽出し、Pt-Auナノ触媒粒子のPt L_{III} 端 XAFSスペクトルの計測に成功した。

3-3 大気圧HAXPESを用いた燃料電池電極膜内の電気的ポテンシャル測定^[4]

PEFCの更なる高性能化のためには、高機能電極触媒開発だけでなく、電極反応の重要な要因である電気的ポテンシャル分布を解明する必要がある。一般に、電気化学特性の計測にはサイクリックボルタンメトリー法や電気化学インピーダンス分光法などが用いられているが、これらの手法ではミクロスコピックな電気的ポテンシャル分布を観測するのは困難である。本研究では、BL36XUで開発した雰囲気制御型硬X線光電子分光装置 (Near-Ambient-Pressure Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy; NAP-HAXPES) を用い、燃料電位の電極電位に依存したカソード近傍の各構成物質の光電子ピークのシフトより、検出電極を用いずに電極内の各要素の電位を測定することに初めて成功した。これにより、燃料電池内の電気二重層電圧の正負極間電圧依存性等を観測することができた。

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] 岩澤康裕、関澤央輝、宇留賀朋哉 他, 2016年度 SPring-8・SACLA年報, 161.
- [2] S. Ozawa, M. Tada, *et al.*, *J. Phys. Chem. C*, **122** (2018) 14511.
- [3] Y. Wakisaka, Y. Iwasawa, K. Asakura, *et al.*, *Catalysis*, **8** (2018) 204.
- [4] L. Yu, Y. Takagi, T. Yokoyama, *et al.*, *Phys. Chem.*

Phys, **19** (2017) 30798.

電気通信大学

岩澤 康裕、坂田 智裕、東 晃太郎

電気通信大学、JASRI

宇留賀 朋哉、関澤 央輝

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. 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年度末まで2年間延期して実施した。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、2017年度は2016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2016年度と同様に17%弱にまで回復した。

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

後の解析と全般にわたる支援、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、XAFS、HAXPES測定データ標準化に向けた試料測定と粉末X線回折の合同研修会を実施した。更に光ビームプラットフォームの成果報告会においてXAFS標準試料データベース構築やHAXPES相対感度係数定量化への取り組みの紹介を行った。

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が、課題申請前の事前相談、実験準備、実験立会実施、実験後及び報告作成の相談など、実験課題全般にわたって相談・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、食品工学会と食品科学工学会での展示や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、次世代先端デバイス1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とした実施領域指定型の重点研究課題「産業新分野支援課題」は2014年度から2年間にわたり実施してきたが、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。

2017A期は第1期、第2期ともにそれぞれ申請があった3課題がすべて採択され、計6課題が実施された。2017B期は、第1期に申請された3課題のうち2課題が採択、第2期に申請された5課題のうち採択は2課題となり、実施された課題数は過去最少だった2016B期と同じ4課題であった。なお、2017B期で不採択になった4課題のうち3課題は再審査の結果、一般課題として採択された。2017年度に実施された産業新分野支援課題10課題の該当分野は4課題が食品加工、6課題は資源であった。

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

件としている。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、2017A期は第1期応募68課題、採択54課題、第2期応募37課題、採択26課題となり、応募数、採択数ともに2016A期はほぼ同じであった。2017B期は第1期の応募が69課題、採択55課題と2016B第1期と比較して20%以上少なくなったが、2017B第2期は応募が60課題、採択が40課題と2016B第2期よりも大幅に増加して、2017B期全体の応募課題及び採択課題数は2016B期とほぼ同じであった。

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、成果公開優先利用課題の実施は大学等の公的研究機関が中心であるが、2017年度は産業界（民間企業）所属者が実験責任者となった成果公開優先利用課題が14件（2017A期6件、2017B期8件）実施された。2017年度に共用ビームラインで産業界が実施した成果専有課題は147課題（2017A期65課題、2017B期82課題）で、うち63課題（2017A期26課題、2017B期37課題）は測定代行課題であった。

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の計測技術の高性能化を勘案しながら、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2回、ビームラインでの測定実習を行う研修会を6回（BL19B2 2回、

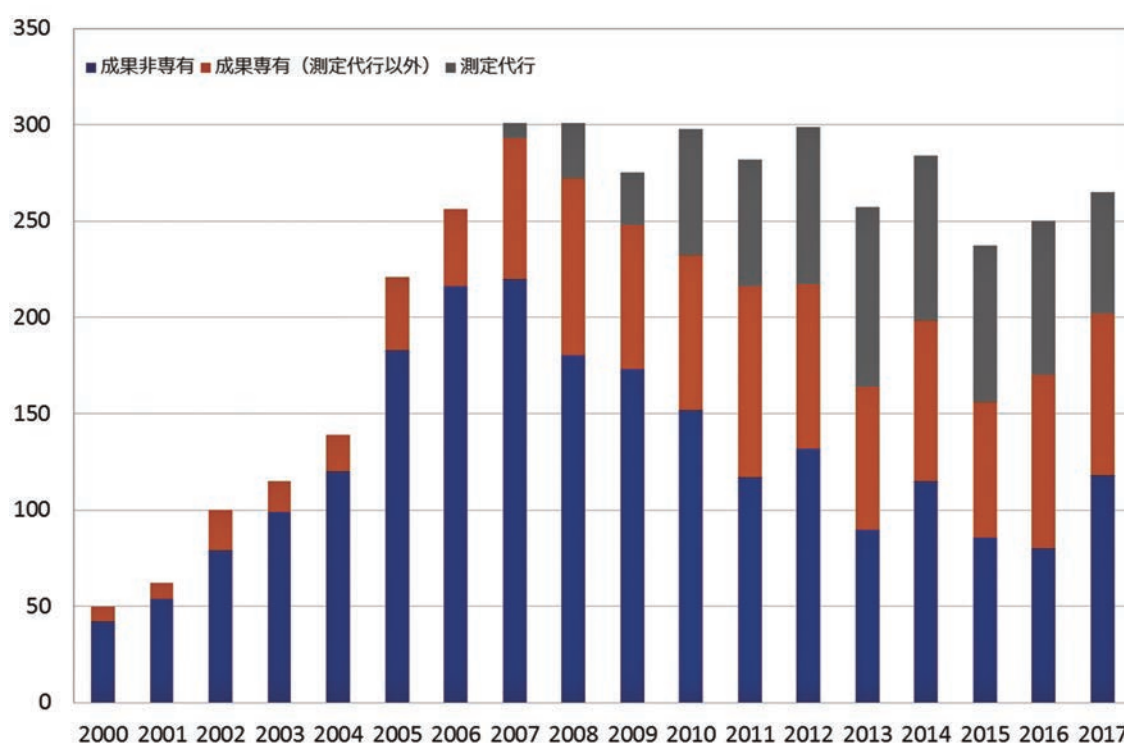


図1 民間企業実施課題数課題種別年次推移

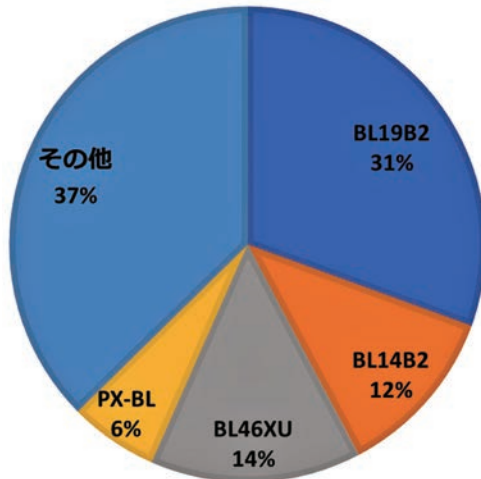


図2 2017年度ビームライン別民間企業実施全課題（専有と非専有の和）数割合

図2は2017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全課題（成果専有及び非専有課題の和）の割合は約57%（図2）、成果専有課題は約65%であり、特にBL19B2は成果専有課題の実施割合が40%と際立って高くなった。

JASRI 産業利用推進室

廣沢 一郎

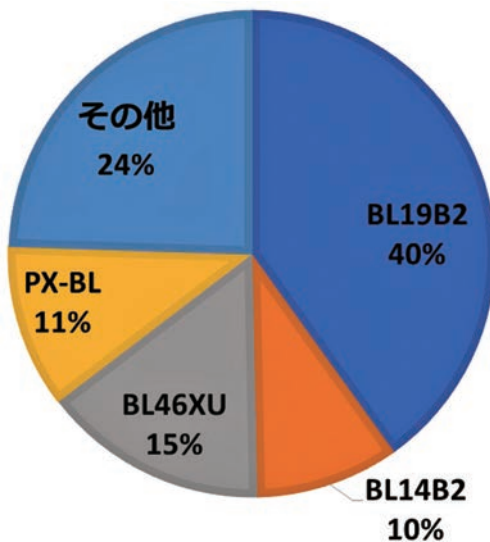


図3 2017年度ビームライン別民間企業実施成果専有課題数割合

BL14B2 2回、BL46XU 2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14回SPring-8産業利用報告会を川崎市産業振興会館で開催し252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、2015年度に大幅に少なくなったものの、2016、2017年度と2年連続の増加となった。成果専有課題は2016年度から15%程度減少したものの成果非専有課題が50%近く増加したために、全課題数では6%の増加となった。

3. 委員会活動

2017年度のSPring-8委員会活動について、JASRI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の審査等を行う「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開催した。

2. 委員会開催状況

以下に開催状況を示す。

第25回SPring-8選定委員会

〔開催日〕 2017年7月27日（木）

〔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. 2017B期SPring-8利用研究課題選定について
2. 2018A期以降のSPring-8産業利用分野の利用制度（2件）について
3. 2018A期SPring-8利用研究課題の募集および選定について
4. 専用施設の契約満了に伴う利用状況等評価と次期

計画審査結果について

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26回SPring-8選定委員会

〔開催日〕 2018年2月8日（木）

〔開催場所〕 フクラシア東京ステーション（東京都）

〔議 題〕

審議事項

1. 2018A期SPring-8利用研究課題選定について
2. 重点パートナーユーザー制度における指定期間の変更について
3. 2018B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. 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27回SPring-8利用研究課題審査委員会

〔開催日〕 2017年7月11日（火）

〔開催場所〕 SPring-8

〔議 題〕

1. 2017年度後期（2017B）SPring-8利用研究課題の選定
2. 2017A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. 2017A期 BL05XUの追加募集課題の選定について
4. 2017A時期指定課題および測定代行課題の選定について
5. 2017A期 PX-BL課題のシフト配分について
6. 既採択長期利用課題について
7. 2018年度以降のSPring-8利用制度について

第28回SPring-8利用研究課題審査委員会

〔開催日〕 2018年2月2日（金）

〔開催場所〕 SPring-8

〔議 題〕

1. 2018年度前期（2018A）SPring-8利用研究課題の選定

2. 2017B 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. 2017B 期 BL05XU、BL20XU、BL28B2、BL37XUの追加募集課題の選定について
4. 2017B 時期指定課題および測定代行課題の選定について
5. 2017B 期PX-BL 課題のシフト配分結果について
6. 既採択長期利用課題について
7. 重点パートナーユーザー制度における指定期間の変更について

第25回専用施設審査委員会

〔開催日〕 2017年6月30日（金）

〔開催場所〕 SPring-8

〔議 題〕

1. 兵庫県IDビームライン（BL24XU）利用状況等評価
2. 同 次期計画審査
3. その他

第26回専用施設審査委員会

〔開催日〕 2017年10月24日（火）

〔開催場所〕 SPring-8

〔議 題〕

1. 兵庫県IDビームライン（BL24XU）の再提出次期計画の確認について
2. レーザー電子光ビームライン（BL33LEP）の中間評価
3. サンビームBM・IDビームライン（BL16B2・16XU）の利用状況等評価/次期計画審査

第12回パートナーユーザー審査委員会

〔開催日〕 2017年5月26日（金）～6月8日（木）

〔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13回パートナーユーザー審査委員会

〔開催日〕 2017年11月28日（月）

〔開催場所〕 SPring-8

〔議 題〕

1. 2014年度指定パートナーユーザーの事後評価審査（1件）
2. 2016年度指定パートナーユーザーの延長面接審査（1件）
3. 2014年度指定パートナーユーザーの再延長面接審査（1件）

4. 既採択パートナーユーザー課題（5件）のビームタイム配分

第5回新分野創成利用審査委員会

〔開催日〕 2017年6月5日（月）

〔開催場所〕 SPring-8

〔議 題〕

1. 2017B 期「新分野創成利用」研究グループの面接審査（1件）
3. 2017B 期 新分野創成利用課題のビームタイム配分

第6回新分野創成利用審査委員会

〔開催日〕 2017年12月1日（金）～7日（木）

〔開催場所〕 - （メールによる書面審査）

〔議 題〕

1. 2018A 期の既採択新分野創成利用課題のシフト配分

第12回SPring-8/SACLA 成果審査委員会

〔開催日〕 2017年7月18日（火）

〔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. 公開技術報告書について
3. SPring-8/SACLA 利用研究成果集の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延期制度について
5. その他（成果関係統計資料他）

第13回SPring-8/SACLA 成果審査委員会

〔開催日〕 2017年12月18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年超再延期申請の状況を含む）
4. その他（成果関係統計資料他）

第3回科学技術助言委員会

〔開催日〕 2017年9月14日（木）、15日（金）

〔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		ネルギー加速器研究機構
4. 利用促進②		名誉教授
5. 講評	(委 員) 石川 哲也	国立研究開発法人理化学研究所
3. 委員会名簿 (2018年3月末時点で公開している委員会名簿)		放射光科学総合研究センター センター長
2017年度～2018年度SPring-8選定委員会		岩田 忠久 国立大学法人東京大学
(委 員 長) 佐々木 聡	国立大学法人東京工業大学	大学院農学生命科学研究科
	名誉教授	教授
(委員長代理) 雨宮 慶幸	国立大学法人東京大学	多元物質科学研究所 教授
	特任教授	佐々木 園 国立大学法人京都工芸繊維大学
(委 員) 岸本 浩通	住友ゴム工業株式会社	繊維学系ナノ材料物性研究室 教授
	研究開発本部分析センター	
	課長	
栗原 和枝	国立大学法人東北大学	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
	未来科学技術共同研究センター 教授	
島川 祐一	国立大学法人京都大学	高尾 正敏 元 国立大学法人大阪大学
	化学研究所 教授	特任教授/パナソニック株式会社
妹尾与志木	佐賀県立九州シンクロトロン光研究センター 副所長	高原 淳 国立大学法人九州大学
谷一 尚	山陽学園大学 副学長	先導物質化学研究所
	教授	所長・教授
月原 富武	公立大学法人兵庫県立大学	月原 富武 公立大学法人兵庫県立大学
	特任教授	特任教授・国立大学法人大阪大学 名誉教授
野村 昌治	大学共同利用機関法人	中川 敦史 国立大学法人大阪大学
	高エネルギー加速器研究機構 理事	蛋白質研究所 教授
藤原明比古	関西学院大学 教授	沼子 千弥 国立大学法人千葉大学
山縣ゆり子	国立大学法人熊本大学	大学院理学研究科 准教授
	教授	濱 広幸 国立大学法人東北大学
横溝 英明	一般財団法人総合科学研究機構 (CROSS)	電子光物理学研究センター
	中性子科学センター	センター長・教授
	理事長 センター長	平井 康晴 公益財団法人佐賀県地域産業支援センター
渡辺 義夫	公益財団法人科学技術交流財団	九州シンクロトロン光研究センター 所長
	あいちシンクロトロン光センター	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
	リエゾン (副所長格)	加速器研究施設
2017年度科学技術助言委員会		加速器第5研究系
(委 員 長) 雨宮 慶幸	国立大学法人東京大学	研究主幹・教授
	大学院新領域創成科学研究科 教授	古屋 和彦 富士フイルム株式会社
(副委員長) 下村 理	大学共同利用機関法人高エ	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2018年3月末時点のもの)

JASRI研究支援部

JASRI利用推進部

1. SACLA の現状と高度化

1-1. 運転・加速器

1. SACLA の運転および加速器の高度化

表1に2017年度の運転統計データを示す。秋からBL2/BL3のパルス振り分けが利用運転に導入された結果、全運転時間に占める利用運転の比率は約70%にまで上昇した。独立に運転を行っているBL1のユーザー利用時間を含めれば、全体で5400時間以上の利用運転時間を確保することができた。今後は、通年で振り分け運転の導入が計画されており、利用運転時間はさらに増加するものと予想される。振り分け運転の本格導入に伴い、ビームライン当たりのレーザーパルス数を確保するため、60 Hzのレーザー繰り返し（BL2/BL3で30 Hz/30 Hzの均等分割）を今後は標準とする。2016年度に引き続き、1年を通して高いレーザー強度を安定的に提供することができ、実験時のレーザー利用率もBL1、BL2/BL3共に97%という高い値が得られた。運転の複雑化に伴い、実験に提供する加速器の運転パラメータの種類も増えたことから、毎週月曜日を加速器やビームラインの調整等に割り当てる運転スケジュールの変更を行った。月曜日に、次の1週間に必要なパラメータの作成、定期的なアンジュレータビームラインのアライメント等、必要な作業を実施することとした。

2016年冬期停止期間には、Coherent Synchrotron Radiation (CSR) によるビーム品質の劣化を抑制するDouble Double Bend Achromat (DDBA) ビーム輸送路^[1]（図1）が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された。この輸送路とBL3へのビーム

輸送路をパルス毎に切り替え使用可能な高精度パルス電源^[2]も同時に整備された。パルス電源とそれが駆動する振り分け電磁石を図2に示す。BL2、BL3それぞれ単独でのXFELの再現とユーザー運転の再開までが2016年度内に実施された。

2017年度は、ユーザー運転と並行して、整備したシステムによるパルス毎の振り分け運転試験、振り分け運転の下での各BLのレーザー出力の最大化とビーム制御システムの整備（例えば、各ビームライン毎にRF位相などのパラメータの微調整が実施できるGUI等の作成）、レーザーの再現化手法の確立、振り分け運転を継続しながら、片方のBLの運転パラメータのみを変更する手法の確立等々、ユーザー運転に必要な全ての手続きの確認と整備を夏までに実施した。DDBA ビーム輸送路によりCSRによる電子ビーム質の劣化が抑制できることも実験的に検証された^[1]。これにより、BL3単独運転で使用する10 kAを超える高いピーク電流を有する高密度電子ビームが振り分け運転に使用可能となった。安定性と短パルス性を維持したまま、レーザー強度を、これまでに比べ数倍引き上げることが可能となり、10 keVの光子エネルギーにおいて、パルスエネルギーが初めて0.5 mJ/pulseを上回った。図3にパルス振り分け運転時のBL2/BL3におけるレーザーパルスエネルギーの24時間のトレンドを、BL1と共に示す。

表1 SACLAの運転統計

	FY2017
Total Operation Time per Fiscal Year (Achieved / Planned)	6281.3/6357 hr
Operation Rate	~98.8%
Machine Tuning Time	701 hr
BL Tuning, Preparation & R&D Time	4574(BL2+BL3) hr
User Experimental Time (BL2,3+BL1)	5466 hr BL2,3=4242 hr BL1=1224 hr
Downtime in User Experiments	194 hr (BL2,3) 39.8 hr (BL1)
Laser Availability	~97% (BL2,3) ~97% (BL1)

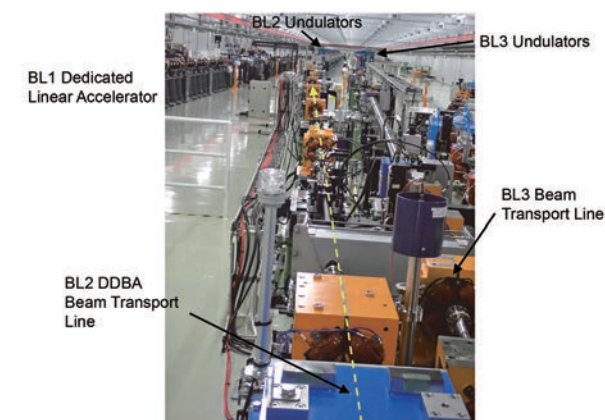


図1 加速器終端とBL2アンジュレータを繋ぐDDBAビーム輸送路

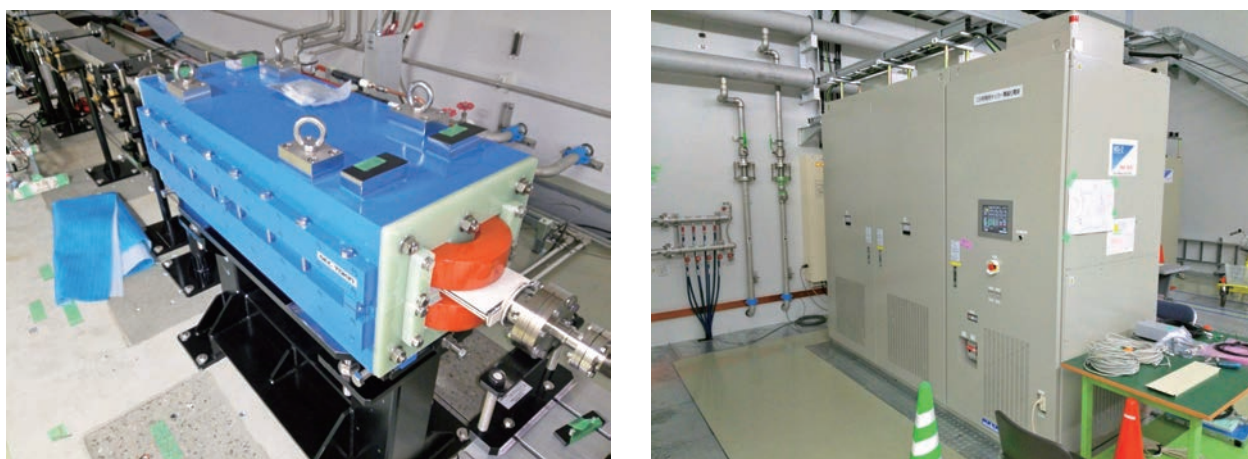


図2 振り分け電磁石（左）と開発した高出力パルス電源（右）

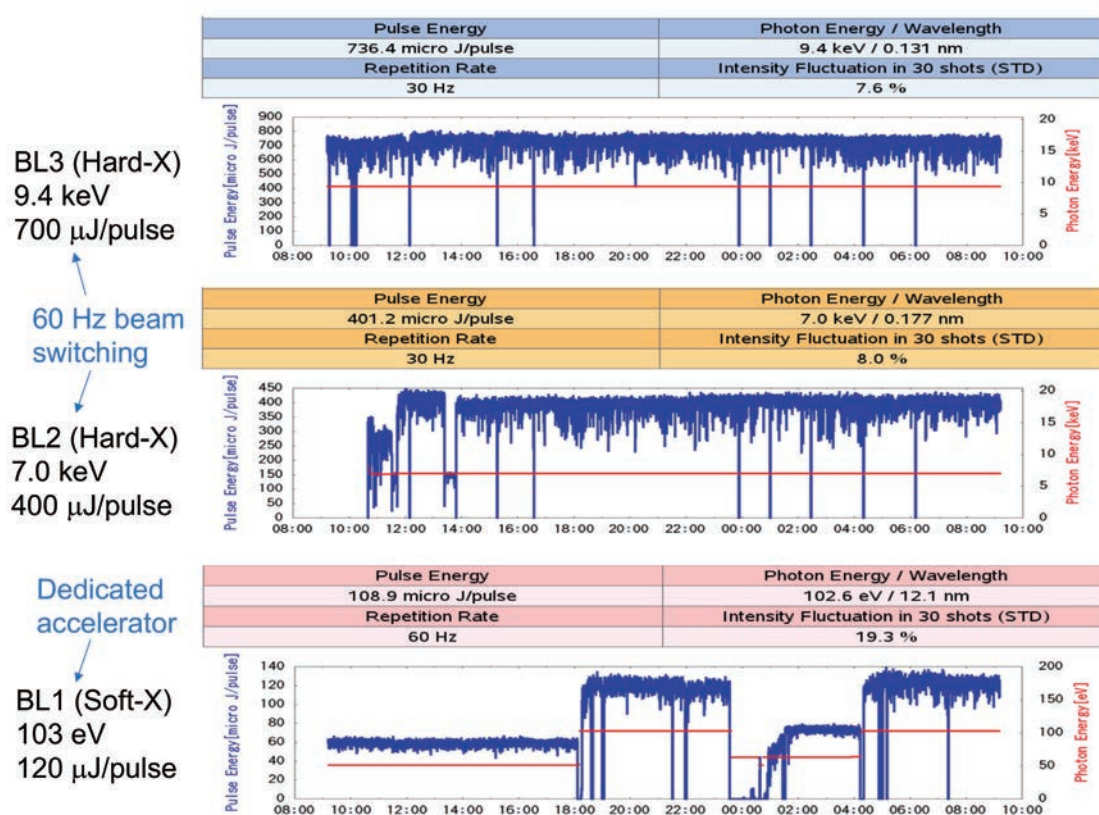


図3 2017年秋のBL1, BL2, BL3の3本のビームラインでのユーザー運転時のレーザー強度のトレンド
2本のXFELのビームライン、BL2 (7.0 keV) とBL3 (9.4 keV) には、振り分け運転により30 Hzの波長の異なるXFELが提供されている。
これとは独立に、SXFELビームラインBL1 (0.1 keV) では60 Hzでレーザーが提供されており、異なる3つの実験が実験ホールにて同時に実施されている。

References

- [1] T. Hara et al., *Proc. of FEL2017*, Santa Fe, NM, USA, pp. 216-218 (2017).
[2] C. Kondo et al., *Proc. of 8th IPAC*, Copenhagen, Denmark, pp. 3404-3407 (2017).

(田中 均)

2. 加速器制御の概要

2017年度はSPring-8とSACLAの制御の統合に向けてSCSS+の制御システムの入替えを行った^[3]。また、SACLAからSPring-8蓄積リングへのオンデマンドビーム入射スキームを実現するための制御システムの開発を進めた。

2016年度までのSPring-8とSACLAの制御系ではデータ管理の方法や使用するデータベースに相違があり統合する上で問題となっていた。これらを解消するための手

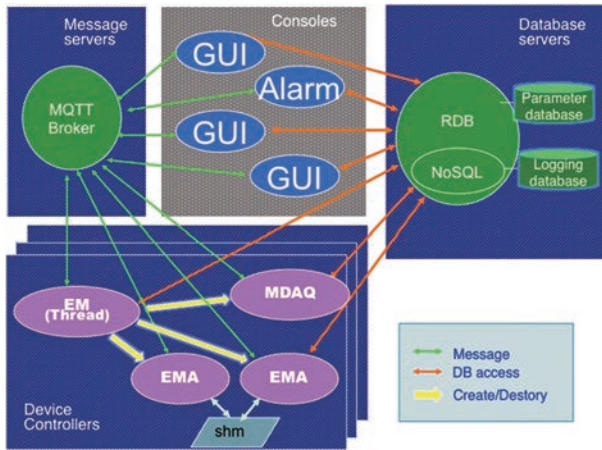


図4 ソフトウェア構成

段として制御システムの入れ替えを計画し、前段階として比較的サイズが小さく作業量が少ないSCSS+の制御システムを2017年度夏期停止期間に入れ替えた。現在使用しているソフトウェアフレームワークのMADOCAは20年前に蓄積リングのために設計されたフレームワークで当時の貧弱な制御用計算機の性能を前提にしている部分が少なからずある。また、ハードウェアに関してもVMEという規格自体30年以上前に開発されたものである。MADOCAのコンセプトを継承したまま、現代のソフトウェア、ハードウェアに最適化し、今後20年に渡って使用できるものとする必要がある。

ソフトウェアの構成に関しては2017年度末に行うSPring-8蓄積リングの制御系入れ替えをベースにパラメータデータベースの見直し、蓄積リングの制御に必要なパラメータをデータベース化してSPring-8のアップグレード後にも対応できるデータベースの構築を行った。以下に新しいシステムの概要を示す。

- プロセス間の通信プロトコルとしてMQTTをベースにしたMessaging Systemを使用する。MQTTはIoTで使われる大量のセンサーからのデータを扱うためにIBMによって開発され、ISOなどで標準化されていて多数の処理系が商用、非商用を問わず提供されている^[4]。
- データベースとして、Online DBとして書き込み性能に優れたCassandraを利用する^[5]。一方、Parameter DBおよびArchive DBとして管理性能、データの操作に優れたMariaDBを採用した^[6]。
- データ収集系として各制御計算機から直接データベースにデータを書き込むMDAQと呼ばれるプロセスを用意した。MDAQおよびフィードバックを行うEMAと呼ばれるプロセスも全てEMから呼び出す形式としたためシステムの立ち上がり時にはEMのみが立ち上がるシンプルな構成とした。

ソフトウェアの全体構成を図4に示す。

SACLAからSPRING-8蓄積リングへのオンデマンドビーム入射を実現するための制御システムの開発を行った。各高周波加速システムとキッカー電磁石電源に目的のビームルートの情報を与えることを想定して、リフレクティブメモリーの利用を前提としたシステムの開発をテストベンチで行い、2017年度末からSCSS+でビームルート切り替えソフトウェア+リフレクティブメモリーのテストを行った。VME上のプロセスのリアルタイム性およびデータ転送速度には限界があるため、プロセス間の通信の最適化などを中心に開発を行った。

References

- [3] T. Fukui et al., "Status of the Control System for the SACLA/SPring-8 Accelerator Complex", ICALEPCS2017, Barcelona, Spain, pp. 1995-1999 (2017).
[4] <http://mqtt.org>
[5] <http://cassandra.apache.org>
[6] <https://mariadb.com>

(福井 達)

理研 放射光科学研究センター
XFEL研究開発部門

田中 均

先端光源開発研究部門 制御情報グループ

福井 達

1-2. ビームライン・実験ステーション・産業利用

2017年度より3本のビームラインの同時利用が本格的に始まり、供用開始から6年目にしてSACLAの利用は新しいフェーズに入った。2016年度に開始された軟X線FELビームライン（BL1）の共用に続き、2本の硬X線FELビームライン（BL2、BL3）の同時利用が2017B期から開始された。これにより、2016年度に約4000時間であった共用ビームタイムの総計が、約5500時間へと大幅に増加した。また、ビームタイムの有効利用につなげるため、フィージビリティチェックのためのビームタイム（FCBT）が2017B期より導入された。このFCBTでは、ビームタイムの1ヶ月前を目処に、最長で6時間、実際にXFELを利用して試行的な実験を行う。これにより、試料の出来具合や信号強度などの情報をあらかじめ入手でき、ビームタイムに備えることができる。

利用運転スキームの大きな変化に加えて、ビームラインと実験ステーションの高度化も継続的に進められている。2017年度には、サブペタワット級の高出力レーザーを利用した実験システムの調整運転がBL2において行われ、2018年度からの共用の準備が整えられた。BL3には、新しいナノメートル集光光学系が導入され、100ナノメートル程度の集光ビームがより安定に供給されるようになっている。また、BL3の光源部においてセルフシーディング用の反射型光学系が新しく導入され、調整実験において良好な結果が得られた。

BL1についても、光源の安定化やビームライン透過率向上などの改良が施され、光子エネルギー100 eVにおいてパルスエネルギー100マイクロジュール程度のFELを安定的に供給できるようになった。SACLAに先立って共用を始めたSCSS試験加速器における経験も活かされ、ユーザーによる利用実験は早い段階から本格化している。既に、初期のユーザーによる成果が論文として発表されはじめている。

ハードウェアを中心とした開発・高度化に加えて、実験用ソフトウェアの高度化も行われた。特に、基本的な実験操作のためのプログラミングインターフェースとして、実験制御API（Application Programming Interface）が整備された。このAPIを活用することにより、より迅速で高度な測定および解析が可能となっている。さらに、複数ビームラインの同時利用が本格化するなかで、利用支援の効率化にもつながっている。

上記のような施設の高度化を利用成果につなげるため、施設者としてXFEL利用の裾野拡大の取組みを進めている。主要な取組みのひとつが、産業利用の推進である。2014年度から開始されたSACLA産学連携プログラムは、2016年度よりSACLA産業利用推進プログラムとなり、2017年度も継続して実施されている。2017年度には6件の課題が採択され、材料の特性変化や劣化の過程など、不可逆的な変化を短時間露光の測定によって追跡する試験などが行われた。

もうひとつの主要な取組みが、若い人材の育成を目的としたSACLA大学院生研究支援プログラムである。2017年度には3人の研究生が実習を行い、軟X線のナノメートル集光システムの開発や量子電磁気学理論の検証といった特色のある研究を行った。

以下の部分では、ビームライン・実験ステーションの高度化の具体例として、反射型セルフシーディング用光学系、ナノビーム利用実験システム、高出力レーザー利用実験システム、実験制御APIの概要を述べるとともに、代表的な利用成果を紹介する。

・反射型セルフシーディング用光学系

現状のSACLAはSASE方式のXFELであるため^[1]、そのスペクトルは50 eV程度のバンド幅の中に数十の細かいスパイク構造を有している。そのため、モノクロメーターを利用して半値全幅（FWHM）1 eV程度の単色ビームを利用する場合には強度が著しく低下する。大強度かつ線幅の狭いXFELを発振するために、セルフシード方式の開発が行われてきた。当初SACLAでは、薄いダイヤモンド結晶を用いた透過型セルフシード^[2]のシステムがBL3に導入され、発振試験が行われてきた。このシステムでシーディングには成功したもの、出力の安定性が不十分であったため、ユーザー実験への提供までには至らなかった。新しい方式として、2017年度より、反射型セルフシードの開発に着手した。反射型セルフシードでは、アンジュレータ列の前半で発振したSASE-XFELをシリコン結晶のBragg反射を利用して単色化し、シード光として後半のアンジュレータで増幅する。ただし、結晶による単色化の過程で延長されるXFELの光路長を最小限にとどめる必要がある。そこで、ギャップ約90マイクロメートルのマイクロチャンネルカット結晶を利用した光学系をアンジュレータ区間

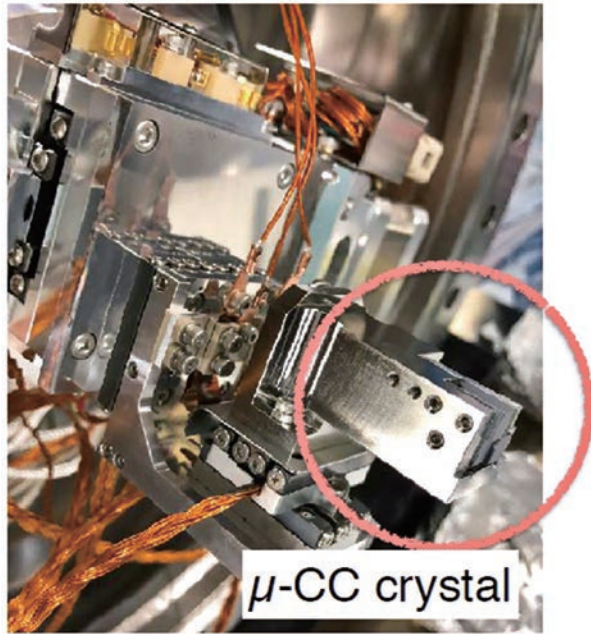


図1 BL3のアンジュレータ区間に導入されたシリコンのマイクロチャンネルカット結晶。10 keV以上の光子エネルギーにおいて、セルフシーディングにおけるXFELの遅延時間を150 fs以内に抑えることができる。

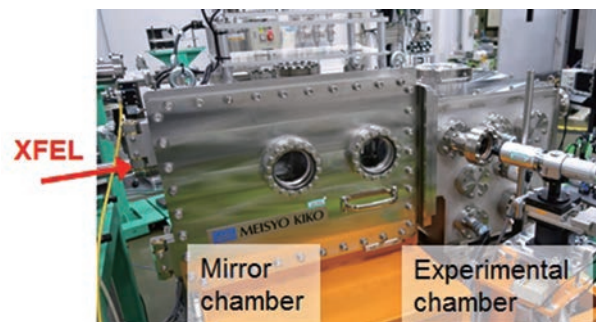


図2 新しい100ナノ集光ビーム利用実験システム。

に導入し（図1）、2018年初めより反射型セルフシーディングの試験実験を開始した。2018年度には、このシステムを利用してシード型XFELの提供を目指す。

・新100ナノ集光ビーム利用実験システム

SACLAのBL3では、2段集光システムによる50ナノ集光ビームを実現し^[3]、X線2光子吸収^[4]やXFEL励起X線レーザー^[5]など、非線形X線光学分野を中心に多くの研究成果が生み出されてきた。しかし、この2段集光システムはSACLAの供用開始以前に設計されたものであり、最近のSACLAのパラメータとのマッチングが十分ではなかった。また、KBミラー光学系を2セット組み合わせたシステムのため、多大な調整時間を要するとともに、安定性も十分ではなかった。これらの課題を解決するため、現状のSACLAのパラメータに最適化させた1段集光光学系と、付随する利用実験チャンバーの開発を行った（図2）。新しいKBミラー光学系は長さ

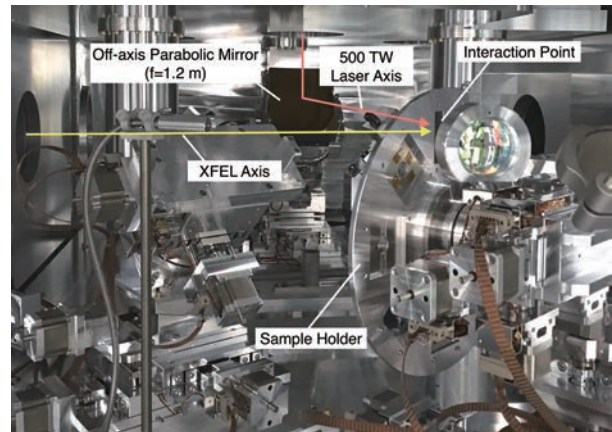


図3 500 TWレーザー利用実験基盤の実験チャンバー内部概観。

250 mmの2枚の楕円ミラーから成り、上流側の縦方向集光ミラー、下流側の横方向集光ミラーの反射角はそれぞれ4.0 mrad、3.8 mradである。ミラーの開口は縦1000 μm 、横950 μm であり、以前の2段集光光学系と較べてビームの透過率が増大した。日常的な調整においても縦200 nm、横100 nm程度の集光サイズに到達することが可能となり、集光強度として 10^{20} W/cm^2 を達成した。実験チャンバーには、自動ステージによって固体サンプルをスキャンできる機構が備えられている。以前の2段集光光学系を利用した実験は基本的にすべて実施可能であり、更に、液体ジェットサンプルや発光分光計測などのニーズにも応えられる拡張性を有している。これらの実験システムはSACLAの2017B期より共用に供された。

・高出力レーザー利用実験システム

XFEL-Spring-8相互利用実験施設においては、2018年度から予定されている共用化へ向けて500 TWレーザーを利用した実験基盤システムの立ち上げを進めた（図3）。新たに導入されたシンクロロックシステムを利用し、SACLA加速器の5.7 GHz RF信号を参照して500 TWレーザーの発振器を時間同期させた。この同期システムを利用し、500 TWレーザーとXFELの試料位置での到達時間ジッターを測定したところ、30 fs程度（rms）であることが確認された。一方、500 TWレーザー単体では、高出力運転試験として、パルス圧縮後のエネルギーを定格の12 J超に維持しつつ、1 Hzでの継続運転（30分間）を行い、安定して運転が行えることを確認した。また、高強度での試料照射試験として、1 J級のエネルギーを持ったレーザーパルス（FWHM）程度のスポットに集光し、試料へ照射した。この時、レーザーパルスは、焦点距離1.2 mの軸外し放物面鏡を用いて固体平板試料上に集光した。推定されるレーザー集光強度は 10^{18} W/cm^2 を超え、試料へのレーザー照射に伴

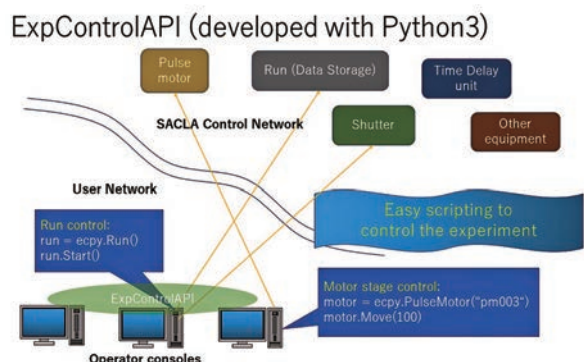


図4 実験制御API (ExpControlAPI) の概略図。

う高エネルギー (MeV オーダー) の電子発生、試料材料の特性X線の発生などが、整備済みの診断装置により確認された。このように順調に整備が進み、2018A期より共用を開始する。

・実験制御API

これまでSACLAでは、モーター制御や検出器制御といった実験操作を行うためのGUI (Graphical User Interface) アプリケーションをユーザーに提供してきた。これらのGUIアプリケーションは、既に測定手法が確立した実験においては有効に活用されている。しかし、機能が固定されているため、日々高度化するSACLAの利用実験への迅速な対応には不向きであった。そこで、これらをAPIレベルで分解・整理し、その機能をユーザーが呼び出すことを可能にするPythonライブラリを2016年度より開発し (図4)、2017年9月末に実験制御API (ExpControlAPI) として試用版をリリースした。その後、4カ月の試用期間を経て、2018年1月末に正式版 (ver1.0.0) のユーザー提供を開始した。ExpControlAPIは、リリース当初から様々なユーザー実験や施設スタッフによるビームライン調整作業の利便性を向上させるために活用されてきた。さらに、ExpControlAPIを利用して既存のGUIを再構築し、ニーズに合わせて容易に高度化できる拡張性の高いGUIの整備を進めた。

・代表的な利用成果

2017年度においても、フェムト秒露光による構造解析実験、高いピーク強度を利用したX線量子光学実験など、XFELの特徴を活かした成果が多く生まれた。ここでは代表的な3例を簡単に紹介する。

理研の當舎専任研究員、久保専任研究員、城主任研究員 (研究当時) らのグループは、化学反応が進行中の酵素に対して連続フェムト秒結晶構造解析を行った。光照

射によって一酸化窒素 (NO) を放出するケージド化合物を一酸化窒素還元酵素の結晶に浸み込ませ、光学レーザーとXFELを組み合わせたポンププローブ計測を適用した。これにより、酵素とNOの反応開始から0.02秒後の構造を決定し、酵素がNOを取り込む様子を捉えることに成功した^[6]。

ストックホルム大学のKim研究員とNilsson教授らのグループは、XFELのフェムト秒パルスを利用して過冷却状態にある水滴のX線散乱実験を行った。様々な温度での計測データや、水素を重水素に置換した重水 (D_2O) に対する計測結果を解析し、水に「液-液相転移」が存在し、その相転移において原子核の量子効果が重要な働きをすることを示した^[7]。

ESRFのChumakov博士と理研のBaron主任研究員らのグループは、SACLAの強力なX線パルスによって共鳴励起された多数の鉄原子核 (^{57}Fe) からのX線放射を1光子単位で精密に計測した。その結果、原子核超放射現象の観測に成功し、今から60年以上前に提唱された超放射理論を検証することができた^[8]。

上記の他にも多くの興味深い成果が発表されており、SACLAのホームページで論文等のリストが公開されている^[9]。

参考文献

- [1] E. L. Saldin et al., *Nucl. Instrum. Meth.* **475**, 357-362. (2001).
- [2] J. Amann et al., *Nature Photon.* **6**, 693-698, (2012).
- [3] H. Mimura et al., *Nature Commun.* **5**, 3539 (2014).
- [4] K. Tamasaku et al., *Nature Photon.* **8**, 313-316 (2014).
- [5] H. Yoneda et al., *Nature* **524**, 446-449 (2015).
- [6] T. Tosha et al., *Nat. Commun.* **8**, 1585 (2017).
- [7] K. H. Kim et al., *Science* **358**, 1589-1593 (2017).
- [8] A. I. Chumakov et al., *Nature Phys.* **14**, 261-264 (2018).
- [9] <http://xfel.riken.jp/research/index.html>

JASRI XFEL利用研究推進室

登野 健介、城地 保昌、犬伏雄一

理研 放射光科学研究センター

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、藪内 俊毅

2. 委員会活動

2017年度のSACLA委員会活動について、JASRI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15回SACLA選定委員会

〔開催日〕2017年8月9日（水）

〔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. 2017B期SACLA利用研究課題の審査結果について
2. 2018A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16回SACLA選定委員会

〔開催日〕2018年1月17日（水）

〔開催場所〕フクラシア東京ステーション（東京都）

〔議題〕

審議事項

1. 2018A期SACLA利用研究課題の審査結果等について
2. 2018B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13回SACLA利用研究課題審査委員会

〔開催日〕2017年7月25日（火）

〔開催場所〕SPRing-8/SACLAサイト

〔議題〕

1. 委員長代理の指名
2. SACLA利用研究課題審査委員会の役割について
3. SACLAの現状について
4. 2017B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
5. 2018A期SACLA利用研究課題の公募について

第14回SACLA利用研究課題審査委員会

〔開催日〕2017年12月27日（水）

〔開催場所〕姫路・西はりま地場産業センター（じばさんびる）

〔議題〕

1. SACLAの現状について
2. 2018A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. 2018B期SACLA利用研究課題の公募について

3. 委員会名簿（2018年3月末時点で公開しているSACLA選定委員会名簿）

2017年度－2018年度SACLA選定委員会

（委員長）雨宮 慶幸 国立大学法人東京大学
特任教授

（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）旭 良司 株式会社豊田中央研究所
スマート材料デザイン研究

	領域 領域リーダー
岩井伸一郎	国立大学東北大学 教授
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
濡木 理	国立大学法人東京大学 教授
宮永 憲明	国立大学法人大阪大学 レーザー科学研究所 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
米田 仁紀	国立大学法人電気通信大学 教授

(所属・役職は2018年3月末時点のもの)

JASRI研究支援部
JASRI利用推進部

SPRING-8/SACLA 利用研究状況

【2017年度の利用統計】

SPRING-8

利用期		2017A	2017B	備考
利用期間		2017.4-2017.7	2017.10-2018.2	
共用施設	応募課題数	947	1,000	
	採択課題数	678	761	
	実施課題数	718	857	非応募課題含む
	実施シフト数	5737	6638	1シフト = 8時間
	成果専有課題数	35	48	実施課題数の内数
	成果専有課題のシフト数	128.25	145.375	実施シフト数の内数
	時期指定課題数	7	16	実施課題数の内数
	時期指定課題のシフト数	13.5	47.25	実施シフト数の内数
	測定代行課題数	29	46	実施課題数の内数
	測定代行課題のシフト数	10	21.5	実施シフト数の内数
	延べ利用者数	4,835	5,885	
専用施設	実施課題数	326	355	
	実施シフト数	4086.25	4641.5	1シフト = 8時間
	成果専有課題数	12	28	実施課題数の内数
	成果専有課題のシフト数	16.375	51.375	実施シフト数の内数
	延べ利用者数	3,228	3,659	
ユニークユーザー数		5,093		
当該年度はじめて利用したユーザー数 (内数)		1,971		過去5年間施設利用来所がなかった者数

SACLA

利用期		2017A	2017B	備考
利用期間		2017.3-2017.7	2017.9-2018.3	
BL1	応募課題数	9	10	
	採択課題数	7	8	
	実施課題数	7	8	
	実施シフト数	48	54	1シフト=12時間
	成果専有課題数	0	0	
	成果専有課題のシフト数	0	0	
	時期指定課題数	0	0	
	時期指定課題のシフト数	0	0	
BL2 / BL3	応募課題数	75	75	
	採択課題数	36	42	
	実施課題数	36	42	
	実施シフト数	162	189.5	1シフト=12時間
	成果専有課題数	0	0	
	成果専有課題のシフト数	0	0	
	時期指定課題数	0	0	
	時期指定課題のシフト数	0	0	
延べ利用者数		577	642	

【2017年度パートナー・ユーザー】

	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 lversen	研 究 テ ー マ: Application of synchrotron radiation in materials crystallography
		所属 University of Aarhus	高 度 化: 構造ダイナミクス分析基盤整備と先導的活用
		期間 2014-2017年度*	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	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
		所属 大阪大学	高 度 化: 軟X線ナノビームラインの整備と先導的活用
		期間 2014-2017年度*	利用研究支援: 当該装置を用いた利用実験の支援
3	BL02B2 (粉末結晶構造解析)	氏名 森吉 千佳子	研 究 テ ー マ: 粉末・多粒子X線回折によるその場構造計測基盤の構築
		所属 広島大学	高 度 化: 迅速オペランド構造計測ステーションの整備
		期間 2015-2018年度*	利用研究支援: 当該装置を用いた利用実験の支援
4	BL04B1 (高温高圧)	氏名 入船 徹男	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
		所属 愛媛大学	高 度 化: 高圧高温条件下での弾性率および変形・破壊挙動測定システムの高度化
		期間 2015-2018年度*	利用研究支援: 当該装置を用いた利用実験の支援
5	BL20XU (医学・イメージングII)	氏名 戸田 裕之	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さらなる高度化
		所属 九州大学	高 度 化: マイクロCTの多元イメージング化並びにマルチスケール化
		期間 2015-2018年度*	利用研究支援: 当該装置を用いた利用実験の支援
6	BL43IR (赤外物性)	氏名 佐々木 孝彦	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
		所属 東北大学	高 度 化: 赤外ビームラインの整備と先導的活用
		期間 2016-2017年度	利用研究支援: 当該装置を用いた利用実験の支援
7	BL09XU (核共鳴散乱)	氏名 三村 功次郎	研 究 テ ー マ: 強相関電子系における量子臨界現象解明のための共鳴硬X線光電子分光および共鳴発光分光の複合計測技術の構築
		所属 大阪府立大学	高 度 化: 共鳴硬X線光電子分光計測技術の基盤開発
		期間 2017-2018年度	利用研究支援: 当該装置を用いた利用実験の支援
8	BL10XU (高圧構造物性)	氏名 廣瀬 敬	研 究 テ ー マ: 超高温高圧ダイヤモンドセル実験の新展開
		所属 東京工業大学	高 度 化: 極限環境下におけるX線回折複合計測技術の高度化
		期間 2017-2018年度	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

【過去10年間の利用実績（実施課題数）】

年	SPring-8				SACLA			
	産業界	大学等教育機関	国公立研究機関	海外機関	産業界	大学等教育機関	国公立研究機関	海外機関
2008	445	914	380	151				
2009	443	929	381	151				
2010	550	960	367	170				
2011	508	1,058	365	167				
2012	483	1,001	371	152	2	24	14	12
2013	426	914	326	138	2	23	18	11
2014	471	1,113	345	176	2	23	20	12
2015	400	1,106	304	142	0	26	21	21
2016	423	1,142	330	161	6	33	20	18
2017	449	1,285	349	173	6	30	25	32

【過去10年間の利用実績（利用者数）】

年	SPring-8	SACLA
2008	12,686	
2009	12,938	
2010	14,496	
2011	14,758	
2012	15,249	758
2013	13,381	678
2014	16,178	830
2015	15,281	1,079
2016	16,113	1,188
2017	17,607	1,219

年別査読有り論文発表等登録数（2018年3月31日現在）

Beamline Name			Public Use Since	~2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	Total	
Public Beamlines	BL01B1	XAFS	(1997. 10) Tecournal	298	59	58	75	65	74	92	75	82	84	15	977	
	BL02B1	Single Crystal Structure Analysis	(1997. 10)	108	13	19	12	18	36	42	36	40	33	8	365	
	BL02B2	Powder Diffraction	(1999. 9)	373	65	67	82	59	96	71	80	92	68	11	1064	
	BL04B1	High Temperature and High Pressure Research	(1997. 10)	132	21	21	22	16	20	19	16	16	13	5	301	
	BL04B2	High Energy X-ray Diffraction	(1999. 9)	140	26	28	23	28	28	33	37	43	28	9	423	
		Technical Journal						1								
	BL08W	High Energy Inelastic Scattering	(1997. 10)	104	12	12	20	19	15	13	19	14	16		244	
	BL09XU	Nuclear Resonant Scattering	(1997. 10)	92	9	9	13	13	15	15	18	16	14	6	220	
	BL10XU	High Pressure Research	(1997. 10)	236	24	35	32	28	21	30	29	29	28	9	501	
	BL13XU	Surface and Interface Structure	(2001. 9)	105	16	18	27	6	16	20	23	34	22	5	292	
	BL14B2	Engineering Science Research II	(2007. 9)	2	16	25	32	36	53	53	60	48	55	16	396	
		Technical Journal						1							3	
	BL19B2	Engineering Science Research I	(2001. 11)	105	20	18	35	53	57	61	63	62	60	17	551	
		Technical Journal						1	1	1	2				5	
	BL20B2	Medical and Imaging I	(1999. 9)	150	15	17	24	35	28	25	34	24	25	3	380	
	BL20XU	Medical and Imaging II	(2001. 9)	78	24	36	27	21	40	44	38	37	25	3	373	
	BL25SU	Soft X-ray Spectroscopy of Solid	(1998. 4)	240	21	21	25	22	24	31	20	19	20	5	448	
		Technical Journal						2							2	
	BL27SU	Soft X-ray Photochemistry	(1998. 5)	243	15	24	31	18	41	35	25	35	23	2	492	
	BL28B2	White Beam X-ray Diffraction	(1999. 9)	72	14	9	15	10	21	18	21	18	25	1	224	
	BL35XU	High Resolution Inelastic Scattering	(2001. 9)	61	5	9	12	8	14	13	16	15	15	3	171	
	BL37XU	Trace Element Analysis	(2002. 11)	62	12	22	23	13	32	28	32	27	26	4	281	
		Technical Journal								1					1	
	BL38B1	Structural Biology III	(2000. 10)	228	53	48	48	60	58	48	65	59	34	7	708	
	BL39XU	Magnetic Materials	(1997. 10)	130	28	15	19	21	20	25	19	22	30	4	333	
	BL40B2	Structural Biology II	(1999. 9)	260	31	44	42	43	70	54	54	58	50	15	721	
		Technical Journal							1		1				2	
	BL40XU	High Flux	(2000. 4)	65	13	11	13	18	37	21	31	39	24	9	281	
	BL41XU	Structural Biology I	(1997. 10)	446	78	66	66	53	65	55	60	63	43	9	1004	
	BL43IR	Infrared Materials Science	(2000. 4)	53	10	6	8	11	8	11	17	15	20	5	164	
	BL46XU	Engineering Science Research III	(2000. 11)	66	14	20	22	15	37	28	52	49	37	5	345	
		Technical Journal										1	1		2	
	BL47XU	HXPES・MCT	(1997. 10)	173	27	27	31	17	36	36	27	28	30	7	439	
	Technical Journal											1		1		
Public Use at Other Beamlines	BL11XU	GST Quantum Dynamics I	(1999. 3)	13											13	
	BL14B1	GST Quantum Dynamics II	(1998. 4)	38	3	3	2	1		1					48	
	BL15XU	WEBRAM	(2002. 9)	29	2	1	1	1		1					35	
	BL17SU	RIKEN Coherent Soft X-ray Spectroscopy	(2005. 9)	5	2	1	7	6	11	12	5	2	3	4	58	
	BL19LXU	RIKEN SR Physics	(2002. 9)	5						1	1	2	1	1	11	
	BL22XU	JAEA Actinide Science I	(2004. 9)	5					1						6	
	BL23SU	JAEA Actinide Science II	(1998. 6)	42	2	2		2	3	2					53	
	BL26B1	RIKEN Structural Genomics I	(2009. 4)				3	8	2	9	5	14	13	2	56	
	BL26B2	RIKEN Structural Genomics II	(2009. 4)			1		5	3	5	7	10	7	4	42	
		Technical Journal										1			1	
	BL29XU	RIKEN Coherent X-ray Optics	(2002. 9)	12	1					1				1	15	
	BL32XU	RIKEN Targeted Proteins	(2010. 10)				5	5	8	9	16	8	13	4	68	
	BL44B2	RIKEN Materials Science	(1998. 5)	14								6	3	2	23	
	BL45XU	RIKEN Structural Biology I	(1997. 10)	65	11	8	9	6	7	9	13	20	9	2	159	
		Subtotal		4250	662	701	806	740	997	971	1014	1046	897	201	12285	
Contract Beamlines	BL03XU	Advanced Softmaterials	(2009. 11) Technical Journal			1	5	8	24	21	14	17	16	3	109	
								35	42	39	36	33	30		215	
	BL07LSU	The University-of-Tokyo Outstation Beamline for Materials Science	(2009. 11)			1	5	6	10	13	12	18	14	3	82	
	BL08B2	Hyogo Prefecture BM	(2005. 9)			1	1	3	6	7	5	5	8	1	37	
		Technical Journal						7	1	18	7	4			41	
	BL11XU	GST Quantum Dynamics I		60	7	9	6	13	16	14	8	18	17	3	171	
	BL12B2	NSRRC BM	(2001. 9)	96	7	28	13	25	22	21	27	29	22	6	296	
	BL12XU	NSRRC ID	(2003. 2)	26	5	15	10	14	11	16	19	16	22	4	158	
	BL14B1	GST Quantum Dynamics II		77	16	18	16	11	10	15	19	16	18	6	222	
	BL15XU	WEBRAM	(2001. 4)	83	30	35	51	41	61	56	47	58	46	8	516	
	BL16B2	Sunbeam BM	(1999. 9)	31	6	8	6	4	3	6	4	10	8	1	87	
		Technical Journal		2				18	15	14	8	15	20	1	93	
	BL16XU	Sunbeam ID	(1999. 9)	26	6	6	2	2	2	3	4	11	8	3	73	
		Technical Journal						20	19	14	14	21	15	1	104	
	BL22XU	JAEA Actinide Science I		38	8	15	10	10	14	19	15	14	14	6	163	
	BL23SU	JAEA Actinide Science II		115	23	15	22	20	17	27	19	23	14	8	303	
	BL24XU	Hyogo Prefecture ID	(1998. 10)	118	8	5	6	7	8	5	4	5	3	3	172	
		Technical Journal						11	3	10	3	1	4		32	
	BL28XU	RISING II	(2012. 4)						3	9	5	5	4	1	27	
	BL31LEP	Laser-Electron Photon II	(2013. 10)							1		3	2		6	
	BL32B2	Pharmaceutical Industry	(2002. 9) → (2012. 3)	21	1	2	3	4	4	4	2	2	3	2	28	
	BL33LEP	Laser-Electron Photon	(2000. 10)	30	5	8	4	4	4	2	2	2	3	2	68	
BL33XU	Toyota	(2009. 5)				3	5	2	8	4	10	16	1	49		
	Technical Journal					2	5	4	5	3	4	1		24		
BL36XU	Catalytic Reaction Dynamics for Fuel Cell	(2013. 1)						1	7	6	7	12	1	34		
BL44XU	Macromolecular Assemblies	(2000. 2)	144	30	21	49	57	58	48	58	48	53	6	572		
	Subtotal		865	152	188	212	230	272	300	273	315	300	66	3173		
RIKEN Beamlines	BL17SU	Coherent Soft X-ray Spectroscopy		38	13	12	10	13	3	7	5	8	3		112	
	BL19LXU	SR Physics		59	11	7	9	11	12	13	9	4	3		138	
	BL26B1	Structural Genomics I		123	13	15	7	8	7	4	5	4	1		187	
	BL26B2	Structural Genomics II		45	6	19	18	19	13	4	3	7	9		143	
	BL29XU	Coherent X-ray Optics		131	9	16	8	16	15	9	10	14	6	4	238	
	BL32XU	Targeted Proteins					2	9	8	8	7	13	1		48	
	BL43LXU	Quantum NanoDynamics							1		1	1			3	
BL44B2	Materials Science		182	10	9	12	11	14	13	17	14	3		285		
BL45XU	Structural Biology I		164	9	8	9	9	11	9	13	12	4		248		
	Subtotal		742	71	86	75	96	84	67	70	77	30	4	1402		
SACLA	Beamline Name			Public Use Since	~2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	Total
	BL1	SXFEL	(2016. 3)												2	2
	BL2/BL3	XFEL2/XFEL1	(2012. 3)						1	13	27	37	46	34	10	168
Hardware / Software R & D					379	32	39	35	56	67	12	33	43	52	8	756
NET Sum Total					5310	806	885	958	926	1189	1085	1160	1224	1063	225	14831
Technical Journal					2				89	80	97	67	74	67	2	480

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

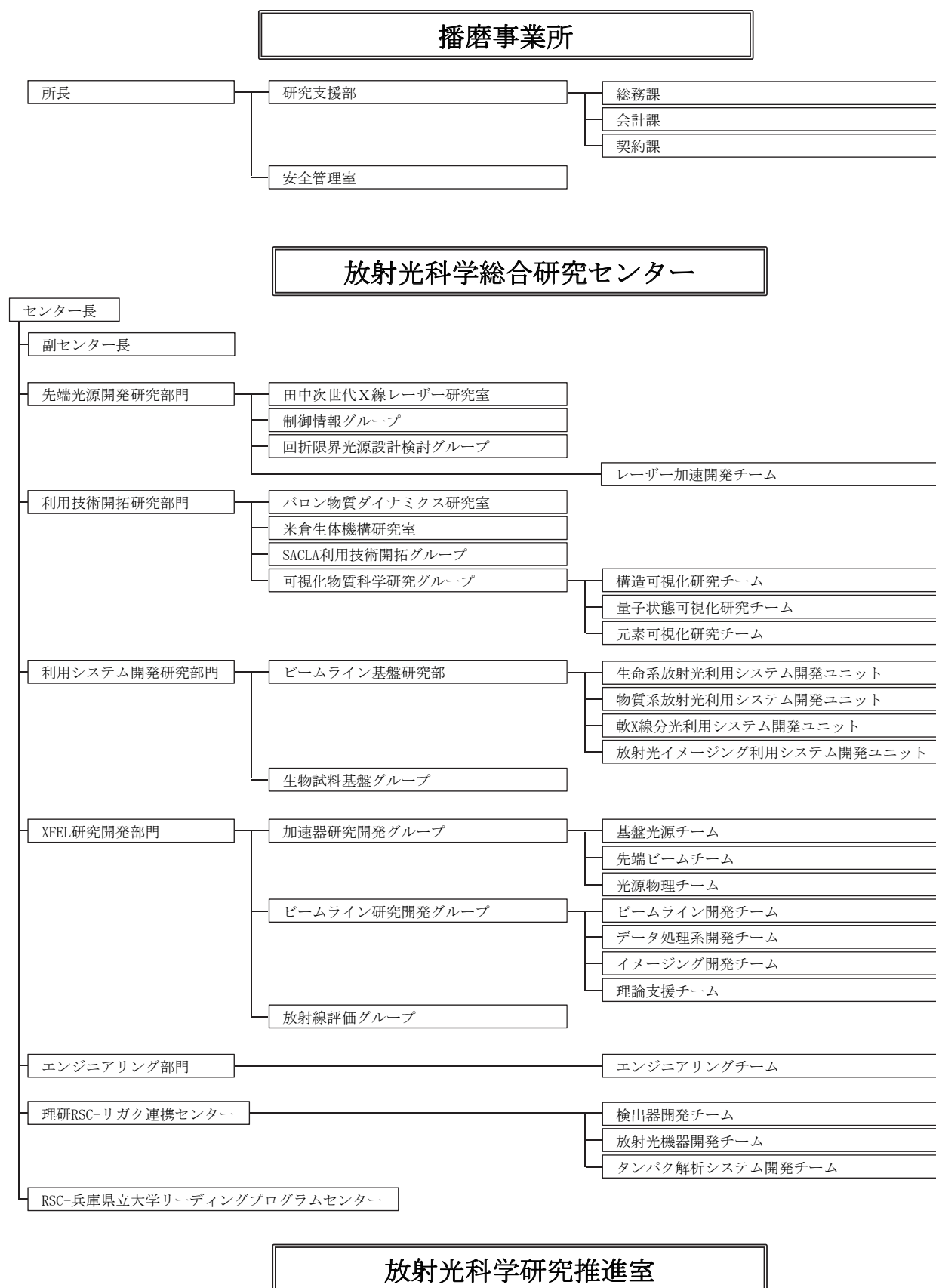
NET Sum Total：実際に登録されている件数（本表に表示していない実験以外に関する文献を含む）

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 2018 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 での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。

理化学研究所 播磨地区 組織図【2018年3月現在】



SPring-8・SACLA 年報 2017年度

RIKEN 2018-074

平成30年12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