

SPring-8/SACLA

INFORMATION 利用者情報



ISSN 1341-9668 SPring-8 Document D2020-005

Vol.25 No.2
Spring 2020

SPring-8/SACLA Information

目次
CONTENTS

理事長室から - コロナ後の世界を考える -
Message from President - The World After Corona -

(公財) 高輝度光科学研究センター 理事長
President of JASRI

雨宮 慶幸
AMEMIYA Yoshiyuki 87

1. 最近の研究から / FROM LATEST RESEARCH

最小の励起エネルギーをもつ原子核状態 ^{229m}Th の人工的生成
Artificial Production of the Lowest Energy Nuclear Excited State, ^{229m}Th

岡山大学 異分野基礎科学研究所
Research Institute for Interdisciplinary Science, Okayama University

海野 弘行

KAINO Hiroyuki

岡井 晃一

OKAI Kouichi

吉見 彰洋

YOSHIMI Akihiro

京都大学 複合原子力科学研究所

Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University

(国) 理化学研究所 放射光科学研究センター

RIKEN Spring-8 Center

(公財) 高輝度光科学研究センター 放射光利用研究基盤センター 回折・散乱推進室

Diffraction and Scattering Division, Center for Synchrotron Radiation Research, JASRI

平木 貴宏

HIRAKI Takahiro

増田 孝彦

MASUDA Takahiko

笹尾 登

SASAO Noboru

吉村 浩司

YOSHIMURA Koji

北尾 真司

KITAO Shinji

瀬戸 誠

SETO Makoto

玉作 賢治

TAMASAKU Kenji

依田 芳卓

YODA Yoshitaka 88

FY2014 Partner User Activity Report

Application of Synchrotron Radiation in Materials Crystallography

Department of Chemistry, University of Aarhus

Bo Iversen

Jacob Overgaard

Graduate School of Science, Hiroshima University

Yoshihiro Kuroiwa

Faculty of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba

Eiji Nishibori 96

2015 年度指定パートナーユーザー活動報告 1

粉末・多粒子 X 線回折によるその場構造計測基盤の構築

Development of Measurement and Analytical Techniques for Multi-Particles to the Future Fast Three Dimensional Structure Analysis

広島大学 大学院理学研究科

森吉 千佳子

Graduate School of Science, Hiroshima University

MORIYOSHI Chikako

大阪府立大学 大学院理学系研究科

久保田 佳基

Graduate School of Science, Osaka Prefecture University

KUBOTA Yoshiki

筑波大学 数物物質系 / エネルギー物質科学研究センター

西堀 英治

Faculty of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba / Tsukuba Research Center for Energy Materials Science

NISHIBORI Eiji 103

2015 年度指定パートナーユーザー活動報告 2

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

Advancement of High-Pressure Mineral Physics on the Earth and Related Materials using Large-Volume Press

愛媛大学 地球深部ダイナミクス研究センター

入船 徹男

Geodynamics Research Center, Ehime University

IRIFUNE Tetsuo 114

長期利用課題報告 1

金属ハライドペロブスカイト成膜過程のリアルタイム X 線回折

Real-Time X-ray Diffraction Analysis for the Organolead-Halide Perovskite Fabrication

(国) 産業技術総合研究所 太陽光発電研究センター

宮寺 哲彦

Research Center for Photovoltaics, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology

MIYADERA Tetsuhiko

大橋 昇

山本 晃平

OHASHI Noboru

YAMAMOTO Kohei

吉田 郵司

YOSHIDA Yuji

埼玉大学 大学院理工学研究科

阿内 悠人

Graduate School of Science and Engineering, Saitama University

AUCHI Yuto

東北大学 大学院工学研究科

丸山 伸伍

School of Engineering, Tohoku University

MARUYAMA Shingo

高川 佑輔

TAKAGAWA Yusuke

(公財) 高輝度光科学研究センター 放射光利用研究基盤センター 産業利用推進室

小金澤 智之

Industrial Application Division, Center for Synchrotron Radiation Research, JASRI

KOGANEZAWA Tomoyuki 120

長期利用課題報告 2

電気化学反応速度と HAXPES の *operando* 同時測定技術の開発

Development of Simultaneous/*Operando* Measurements of Electrochemical Reaction Rate and HAXPES

山梨大学 燃料電池ナノ材料研究センター
Fuel Cell Nanomaterials Center, University of Yamanashi

(株) 日産アーケ 解析プラットフォーム開発部
Analysis PF Department, Nissan ARC, Ltd.

(公財) 高輝度光科学研究センター 放射光利用研究基盤センター 産業利用推進室
Industrial Application Division, Center for Synchrotron Radiation Research, JASRI

渡辺 剛
WATANABE Takeshi

山梨大学 クリーンエネルギー研究センター
Clean Energy Research Center, University of Yamanashi

須田 耕平
SUDA Kohei
川本 鉄平
KAWAMOTO Teppei
松本 匡史
MATSUMOTO Masashi
今井 英人
IMAI Hideto
安野 聡
YASUNO Satoshi
小金澤 智之
KOGANEZAWA Tomoyuki
廣沢 一郎
HIROSAWA Ichiro
犬飼 潤治
INUKAI Junji

125

2. ビームライン/BEAMLINES

吸引力相殺型アンジュレータの開発と BL10XU への導入

Development of an Undulator Based on a Force-Cancellation System and Installation in BL10XU

(国) 理化学研究所 放射光科学研究センター
RIKEN SPring-8 Center

(公財) 高輝度光科学研究センター 光源基盤部門
Light Source Division, JASRI

鏡畑 暁裕
KAGAMIHATA Akihiro

岸本 輝
KISHIMOTO Hikaru

高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所
Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization (KEK)

田中 隆次
TANAKA Takashi
金城 良太
KINJO Ryota
清家 隆光
SEIKE Takamitsu
備前 輝彦
BIZEN Teruhiko
大橋 治彦
OHASHI Haruhiko
山本 樹
YAMAMOTO Shigeru

130

冷凍食品への放射光 X 線 CT 応用

Application of X-ray Computed Tomography using Synchrotron Radiation to Frozen Food

(公財) 高輝度光科学研究センター 放射光利用研究基盤センター 産業利用推進室
Industrial Application Division, Center for Synchrotron Radiation Research, JASRI

佐藤 眞直
SATO Masugu

135

3. 研究会等報告/WORKSHOP AND COMMITTEE REPORT

第 18 回 APS-ESRF-SPring-8-DESY 三極ワークショップ報告

Report on the 18th APS-ESRF-SPring-8-DESY Three-way Meeting

(公財) 高輝度光科学研究センター 放射光利用研究基盤センター 分光・イメージング推進室
Spectroscopy and Imaging Division, Center for Synchrotron Radiation Research, JASRI

為則 雄祐
TAMENORI Yusuke

138

SPRUC 第 2 回 BLs アップグレード検討ワークショップ報告

Brief Report of SPRUC 2nd Workshop on BLs Upgrade

SPring-8 ユーザー協同体 (SPRUC) 行事幹事/岡山大学 異分野基礎科学研究所
Research Institute for Interdisciplinary Science, Okayama University

横谷 尚睦
YOKOYA Takayoshi

143

4. SPring-8/SACLA 通信/SPring-8/SACLA COMMUNICATIONS

SPring-8/SACLA 利用研究課題募集 (2020B 期) の取扱について

Handling of Call for 2020B SPring-8/SACLA Research Proposals

登録施設利用促進機関 (公財) 高輝度光科学研究センター
Registered Institution for Facilities Use Promotion, JASRI

148

第 45 回 (2020A) SPring-8 利用研究課題の採択について

The Proposals Approved for Beamtime in the 45th Research Term 2020A

登録施設利用促進機関 (公財) 高輝度光科学研究センター 利用推進部
Registered Institution for Facilities Use Promotion, User Administration Division, JASRI

149

2020A 期 採択長期利用課題の紹介

Brief Description of Long-term Proposals Approved for 2020A

(公財) 高輝度光科学研究センター 利用推進部
User Administration Division, JASRI

154

第 44 回共同利用期間 (2019B) において実施された SPring-8 利用研究課題

2019B Proposal and User Statistics

登録施設利用促進機関 (公財) 高輝度光科学研究センター 利用推進部
Registered Institution for Facilities Use Promotion, User Administration Division, JASRI

160

2014 年度指定パートナーユーザー事後評価報告 - 3 - Post-Project Review of Partner Users Designated in FY2014 -3-	(公財) 高輝度光科学研究センター 利用推進部 User Administration Division, JASRI	166	
2015 年度指定パートナーユーザー事後評価報告 - 1 - Post-Project Review of Partner Users Designated in FY2015 -1-	(公財) 高輝度光科学研究センター 利用推進部 User Administration Division, JASRI	167	
2017A 期 採択長期利用課題の事後評価について - 2 - Post-Project Review of Long-term Proposals Starting in 2017A -2-	(公財) 高輝度光科学研究センター 利用推進部 User Administration Division, JASRI	169	
2019B 期において実施された SACLA 利用研究課題 (共用課題) について The SACLA Public Proposals and User Statistics in 2019B Research Term	登録施設利用促進機関 (公財) 高輝度光科学研究センター 利用推進部 Registered Institution for Facilities Use Promotion, User Administration Division, JASRI	171	
SPring-8 運転・利用状況 SPring-8 Operational Status	(国) 理化学研究所 放射光科学研究センター RIKEN SPring-8 Center	172	
論文発表の現状 Statistics on Publications Resulting from Work at SPring-8	(公財) 高輝度光科学研究センター 利用推進部 User Administration Division, JASRI	174	
最近 SPring-8 もしくは SACLA から発表された成果リスト List of Recent Publications	(公財) 高輝度光科学研究センター 利用推進部 User Administration Division, JASRI	178	
2019B 期における SPring-8/SACLA ユーザー要望等について SPring-8/SACLA User Requests in 2019B	登録施設利用促進機関 (公財) 高輝度光科学研究センター 利用推進部 Registered Institution for Facilities Use Promotion, User Administration Division, JASRI	199	
利用系グループ活動報告 放射光利用研究基盤センター 分光・イメージング推進室 分光解析 I グループ Activity Reports - Spectroscopic Analysis Group I, Spectroscopy and Imaging Division	(公財) 高輝度光科学研究センター 放射光利用研究基盤センター 分光・イメージング推進室 Spectroscopy and Imaging Division, Center for Synchrotron Radiation Research, JASRI	201	
5. 談話室・ユーザー便り / USER LOUNGE・LETTERS FROM USERS SPring-8 ユーザー協同体 (SPRUC) 会長に就任して Inauguration Address from the President of SPRUC	SPring-8 ユーザー協同体 (SPRUC) 会長 / 広島大学 大学院先進理工系科学研究科 Graduate School of Advanced Science and Engineering, Hiroshima University	木村 昭夫 KIMURA Akio	206
6. 告知板 / ANNOUNCEMENTS 「SPRUC 2020 Young Scientist Award」の実施について SPRUC 2020 Young Scientist Award - Call for Nominations -			207
SPring-8 シンポジウム 2020 SPring-8 Symposium 2020			208
第 4 回 SPring-8 秋の学校 開催のご案内 SPring-8 Autumn School 2020			209

コロナ後の世界を考える

公益財団法人高輝度光科学研究センター
理事長 雨宮 慶幸

新型コロナウイルス禍の終息がまだ見えない状況にあるが、コロナ後（AC：After Corona）は、コロナ前（BC：Before Corona）とは異なった世界になるだろうという議論を耳にする。14世紀に中央アジアからヨーロッパ全域を席卷したペスト流行は、ヨーロッパ全人口の4分の1にあたる推定2,500万人の命を奪った。ペスト流行は、カトリック権威から世俗の政治権力への移行、自然界の観察を重視するルネサンス及びそれに続く宗教改革の流れを作ったと言われている。1918年に米国から世界中に広まったスペイン風邪（インフルエンザ）は、全世界で推定4,000万人の死者を出し、その多くは第2波と第3波で命を奪われた。スペイン風邪は、第一次世界大戦の終結を早める結果になったと言われている。

上記のような疫病が歴史の転換点になり、世界の流れを変えてきたと観る疫病史観がある。今回のコロナ禍は歴史の転換点になる可能性があるかも知れない。実際、既に全世界に広がったコロナ禍は、政治、経済・産業構造、働き方、日常生活、人間関係など様々な側面で大きな影響を及ぼしている。また、各側面での現状の問題や今後の課題を顕著にあぶり出している。例を挙げれば、政治におけるガバナンスの在り方（民主主義 or 専制主義）、国際関係の在り方（一国主義 or 国際協力）、経済における物価・雇用の安定性確保、格差・貧困是正の問題、産業構造や働き方に関する課題、広くは日常生活における人間同士の繋がり方に関する課題（移動 or リモート）等である。

コロナ禍で明らかになったBC時代の社会の脆弱性を是正することが、AC時代に向けて私達が考えなければならない最も重要な事柄である。今後、個人として社会全体が責任を持って考え、行動しなければならないだろう。AC時代の世界全般に関して論ずることは私の能力を超えているので、身近に感じる事柄に関してのみ述べてみたい。

今後、加速すると考えられる科学技術分野は、ロボット技術に代表される遠隔・自動操作、5Gに代表される高速・大容量データ通信であろう。放射光科学に

おいても、今後、ロボット技術（遠隔・自動操作）と高速・大容量データ通信の導入が加速されるべきだと考える。コロナ禍の中、SPring-8/SACLAは、一般ユーザー向けの運転は中止しているが、新型コロナウイルスに関する研究課題を積極的に受け入れ、運転を継続している。目に見えないウイルスとの闘いにおいて、「目に見えない世界を可視化する放射光」は重要なツールである。AC時代において、放射光科学が果たすべき役割は益々大きくなると確信している。社会貢献・学術貢献に向けて、放射光科学に関わる一人ひとりが今まで以上の責任感と使命感を持って研究に取り組んでいくことが期待されている。

AC時代により必要とされることは、SDGs^[1]に対する取り組みである。SDGsは2015年の国連総会で採択された、「我々の世界を変革する持続可能な開発のための2030アジェンダ」で示された2030年に向けた具体的行動指針であり、達成すべき17の目標が設定されている。その中には、貧困、飢餓、健康、教育、平等、安全、経済、産業、生活、環境、平和、国際協調等、今回のコロナ禍で脆弱性が明らかになった事柄が多数含まれている。全世界が共有したコロナ禍を転機にして、全世界がSDGsの行動指針を実生活の中で共有することが重要である。

現時点（5月1日）では、緊急事態宣言により外出の抑制が求められている。コロナ禍を終息させるためには、個人個人の良識ある考えと行動様式が不可欠である。人間行動の抑制に関する問題は、自由 vs 規制、民主主義 vs 専制主義、個人 vs 全体に関わる人間社会の重要な問題である。この問題はコロナ禍に限らず、経済や環境問題にも関わっている。「欲望の時代の哲学」、「欲望の資本主義」等、人間の欲望の在り方が関心を集めている。AC時代を考える上で、個人個人として社会全体に内在している良心・良識を啓発する文化の構築、個人個人および人間社会の欲望の適切な方向付けが必要であると考えられる。その進め方や妥当性に関して、極論を避け、バランスを保ちながら考えていきたいと考えている。

[1] <https://ja.wikipedia.org/wiki/持続可能な開発目標>

最小の励起エネルギーをもつ原子核状態 ^{229m}Th の人工的生成

岡山大学 異分野基礎科学研究所

平木 貴宏、海野 弘行、増田 孝彦

岡井 晃一、笹尾 登、吉見 彰洋、吉村 浩司

京都大学 複合原子力科学研究所

北尾 真司、瀬戸 誠

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

玉作 賢治

公益財団法人高輝度光科学研究センター

放射光利用研究基盤センター 回折・散乱推進室 依田 芳卓

Abstract

トリウムの同位体の1つである ^{229}Th の原子核はおよそ 8 eV という、特異的に低いエネルギーの第一励起状態 (^{229m}Th) をもつ。 ^{229m}Th は真空紫外領域のレーザー光で励起が可能であるため、 ^{229}Th 原子核を用いた超高精度な“原子核時計”などの様々な応用の可能性があり、多くの研究者の興味を惹いている。しかしながら、 ^{229m}Th への励起や、 ^{229m}Th の脱励起光の観測に成功した例はない。一方、我々のグループは SPring-8 の高品質 X 線ビームを用いた独自の手法で ^{229m}Th を生成し、世界初の脱励起光観測に向けて研究を進めている。本記事では、2018 年の実験で成功した ^{229m}Th 生成実験について主に紹介する。

1. 特異な原子核トリウム 229

原子核には原子と同様に多数の励起状態が存在するが、原子核の励起エネルギースケールは keV や MeV であり、原子のように eV 領域のレーザーを使って状態間を操作することはできない。しかし例外が存在し、トリウム (原子番号 90) の同位体の1つであるトリウム 229 (^{229}Th) 原子核は、これまで実験的に存在が確認された 3,000 以上の同位体の中で最も、そして特異的に低い 8 eV 程度^[1]のエネルギーの第一励起状態が存在する。また、 ^{229}Th 原子核の第一励起状態は ^{229}Th 原子がイオンである時には脱励起寿命が数分から数時間程度と長い、アイソマー (核異性体) であると予想されている^[2]。

この ^{229}Th 原子核の特異性を活かした応用例が、原子核のレーザー分光、特に原子核遷移を用いた超高精度な時計である。現在 1 秒の定義は ^{133}Cs 原子の超微細分裂間の遷移を周波数標準として用いたもので、その精度は 10^{-16} 程度である。また現在開発の進んでいるレーザーを用いた光原子時計の相対不確かさは 10^{-18} 程度に達している^[3,4]。この原子時計の精度を決定している主な要因は原子と外場の相互作用による擾乱で

ある。一方、原子核は周囲を電子に遮蔽されているために外場の影響を受けにくく、 ^{229}Th 原子核のレーザー遷移を時計遷移として用いることで更に 1 桁程度の精度改善が期待されている^[5]。

^{229}Th の原子核のレーザー遷移を基礎物理に活用する研究も提案されている。微細構造定数 α はその名の通り定数であるものとして通常取り扱っているが、宇宙論では微細構造定数が実はわずかに時間変化する可能性が議論されている^[6]。 ^{229}Th のレーザー分光が実現すればこれまでより数桁良い感度が得られる可能性がある^[7,8]。

2. ^{229}Th 原子核アイソマー状態探索の現状

以上のような応用があるため、 ^{229}Th 原子核のアイソマー状態について精力的に研究が進められてきた。第一励起状態への励起エネルギー (E_{st}) の値を理論的に精度良く計算することは難しく、実験的に決定する必要がある。以下、これまでの研究を簡単に紹介する。

まず ^{229}Th の生成手法であるが、自然界に存在しない ^{229}Th は ^{233}U の α 崩壊でできたものを取り出して使用する。また ^{233}U が α 崩壊すると ^{229}Th 原子核の様々

な励起状態に遷移するが、それらの脱励起過程の中で一部が $^{229\text{m}}\text{Th}$ に遷移する。従来の研究ではこれが $^{229\text{m}}\text{Th}$ を生成する唯一の手法であった。

次に E_{ist} の測定について述べる。1970年代から行われてきた研究では、 E_{ist} は ^{233}U の α 崩壊で生成した ^{229}Th 原子核の様々な励起状態からの脱励起 γ 線の分光によって間接的に求めている。この手法では0.5 eVの精度で E_{ist} の値が得られている^[9]。最近になって、ドイツのグループは、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ 原子核イオンが中性化した際に放出される内部転換電子の観測に成功し^[10]、その後内部転換電子の運動エネルギーの測定から現在最も良い精度である $E_{\text{ist}} = 8.28 \pm 0.17 \text{ eV}$ が得られた^[11] (余談だが以下説明する我々のグループの今回の成果は論文^[1]と共に *Nature* 誌に特集号の形で記事になり、表紙には原子核時計のイラストが描かれている)。また内部転換過程による $^{229\text{m}}\text{Th}$ の脱励起は光放出よりずっと速く起こり、半減期は $7 \pm 1 \mu\text{s}$ である^[11]。

他にも、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ へ直接光励起する試みも行われてきた。このタイプの過去の実験では真空紫外領域の放射光を、波長を変えながら ^{229}Th 標的に照射し、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ へ直接光励起した後の脱励起光を観測しようとしたが、直接観測には未だ至っていない^[12,13]。また、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ は1価以上のイオンの状態ではイオン化エネルギーが E_{ist} より大きくなるため内部転換が起きず、真空紫外光を放出して脱励起するが、その寿命も実験的には分かっていない。

3. SPring-8 を用いた新たなアイソマー状態生成手法

上に述べたように、これまでの研究では $^{229\text{m}}\text{Th}$ の生成には ^{233}U の α 崩壊によって生成されたものを使用するしかなかった。一方、我々のグループは独自の手法で $^{229\text{m}}\text{Th}$ を生成し、そこからの脱励起光を観測しようとして研究を進めている。我々は直接 $^{229\text{m}}\text{Th}$ を光励起で生成する代わりに、図1のようにSPring-8の放射光を用いて1つ上の第二励起状態に励起させる手法を用いている。第二励起状態に励起された ^{229}Th の一部は第一励起状態に脱励起する、つまり $^{229\text{m}}\text{Th}$ の生成が人工的に実現できる。さて、第二励起状態に励起されたことを確認するためには、核共鳴散乱 (Nuclear Resonance Scattering, NRS) と呼ばれる物性物理で広く使われてきた手法を用いる。核共鳴散乱法では第

二励起状態の寿命程度遅れて脱励起 (主に内部転換過程) により発生するトリウム特性 X 線を観測する。本記事は主にこの核共鳴散乱法による $^{229\text{m}}\text{Th}$ の生成実験について説明するが、この観測は当初我々が予想していたより遥かに高難度であった。

図2に核共鳴散乱の時間スペクトルの概念図を示す。SPring-8のX線バンチビームをトリウム標的に照射すると、トリウムや周囲の物質との散乱により、主要な背景事象である即発事象が大量に発生する。通常の核共鳴散乱の場合、核共鳴励起状態の寿命が十分長い場合、遅れて発生する核共鳴散乱信号は即発事象と比較的容易に時間的に区別可能で、即発事象発生から遅れたタイミングのデータのみを取得することが可能であった (図2左)。一方、 ^{229}Th の第二励起状態の寿命は短く、過去の実験データと理論計算から、半減期100–200 ps程度と予想していた (実際測定した半減期は更に短く、検出できるギリギリのところにあつた)。ここまで短寿命であると、即発事象が出ている間データ取得を行わず核共鳴散乱信号のみのデータを取得する手法は利用できない。従って、大量の即発事象と核共鳴散乱を全て取得し、X線ビームのエネルギーを共鳴条件付近で変化させ、即発事象のテール部分のわずかな信号量の変化を観測する必要がある。言うまでもなく測定器の時間分解能が重要であるが、

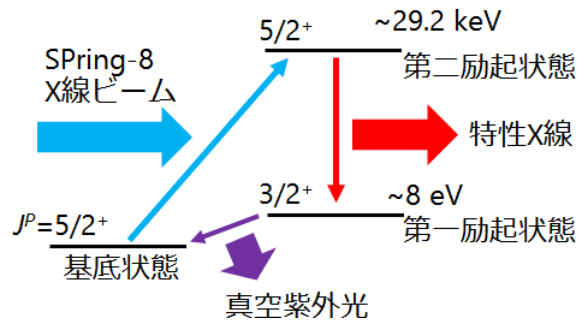


図1 核共鳴散乱を用いた $^{229\text{m}}\text{Th}$ 生成手法

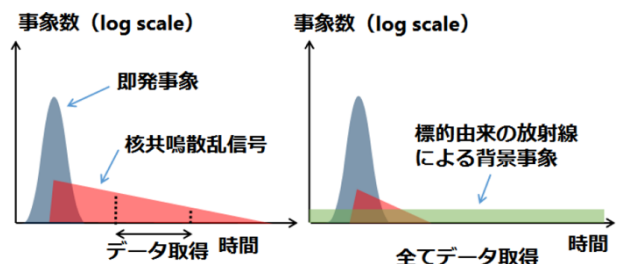


図2 核共鳴散乱の時間スペクトル。(左)通常核共鳴散乱実験の場合、(右) ^{229}Th 核共鳴散乱実験の場合。

それだけでなく数 100 ps 程度遅れて検出される信号があるとテール部分と重なってしまうため、そのような事象が少ない測定器を組む必要がある。なお、SPring-8 の電子ビームバンチは時間幅が半値全幅 40 ps 程度と検出器の時間分解能より短く、またバンチのテールも我々の実験でも問題にならないレベルである。この非常に品質の良いビームが利用できないと ^{229}Th の核共鳴散乱は観測できない。

^{229}Th の核共鳴散乱実験を難しくする 2 つ目の要因はトリウムが放射性元素であることに由来する。 ^{229}Th は半減期約 7800 年の放射性同位体^[14]で、ネプツニウム系列の 1 つである。そのため、 ^{229}Th やその娘核の崩壊に伴って発生する X 線や γ 線がバンチビームと非同期の背景事象として存在することになる (図 2 右)。 ^{229}Th 試料は貴重で大量に用意できるわけではないが、大量に用意したとしても核共鳴散乱信号がこの背景事象に埋もれてしまうのである。より細かい話をすると、 ^{229}Th の試料を入手するには、 ^{233}U が崩壊して生成されたものを分離して取り出して使用するが、実際には ^{233}U 中に ^{232}U が微量に混入しているため、分離する際その娘核の ^{228}Th も混入してしまう^[15]。この ^{228}Th の半減期は 1.9 年で、例えば分離後すぐに核共鳴散乱実験に使用するとトリウム系列の崩壊による背景事象が大量に存在するため信号の観測が難しい。我々の核共鳴散乱実験では、分離後長期間経てトリウム系列がほぼ崩壊しきった ^{229}Th 試料を用いている。

^{229}Th の核共鳴散乱実験が難しかった更なる理由は ^{229}Th 原子核の第二励起状態の励起エネルギー (E_{2nd}) の値が (我々が核共鳴散乱信号を発見するまでは) 精度良く分かっていなかったことにある。 E_{2nd} の値は過去の脱励起 γ 線の測定から 29190 eV 付近である^[16]ことは分かっていたが、数 eV の不定性があった。数 eV であれば十分小さいと思われるかもしれないが、 ^{229}Th の核共鳴散乱の場合は即発事象を削減するため、シリコン結晶を用いたモノクロメータで X 線ビームのエネルギー幅を狭くして核共鳴散乱を探索する必要があった。この点は次節の後半で更に詳しく説明する。

4. ^{229}Th 核共鳴散乱実験セットアップ

^{229}Th の核共鳴散乱探索実験は 2014~2017 年度までは SPring-8 の BL09XU で、2018 年度は BL19LXU

で行った。図 3 にビームラインのセットアップを示す。アンジュレータで生成された X 線ビームはまず Si(111)結晶を用いて単色化した後、更に別の Si(440)結晶を用いてエネルギー幅 0.26 eV (半値全幅) まで狭めた。X 線のエネルギーはこのモノクロメータの角度を調整することで変化させた。その後前節で述べた放射能バックグラウンドを低減するため、小径トリウム標的に複合屈折レンズを用いて X 線ビームを集光して照射した。標的位置でのビームサイズはおおよそ 0.15 mm (水平方向)、0.065 mm (鉛直方向) である。

トリウム標的はより小径に製作できる手法をいくつか試し、最終的に硝酸トリウム溶液をノズル (ϕ 0.15 mm) から加熱したグラファイト板 (ϕ 0.4 mm、深さ 0.2 mm) の溝に少量ずつ垂らしながら乾固させたものを使用した。図 4 に作成途中の標的写真を載せた。その後トリウムの飛散を防ぐため、2 枚のトリウム標的を張り合わせ、更にベリリウムカバーで外側を覆い密封した。また実験中は標的をアクリルボックスの中に配置し (X 線ビームはベリリウム窓を通過)、核燃料物質であるトリウムが万一にも外部に流出しないようにした。

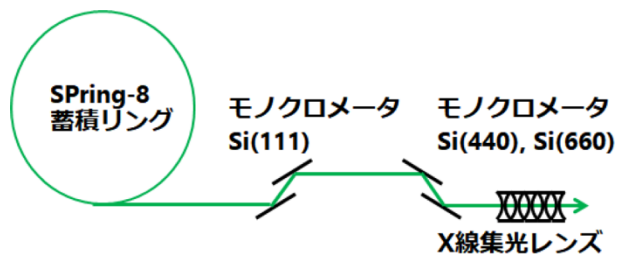


図3 ビームライン上流部セットアップ。はじめに Si(440)モノクロメータを用いて核共鳴散乱信号の探索を行い、信号の兆候を発見した後、よりエネルギー幅の狭い Si(660)モノクロメータに変えて詳細なスキャンを行った。

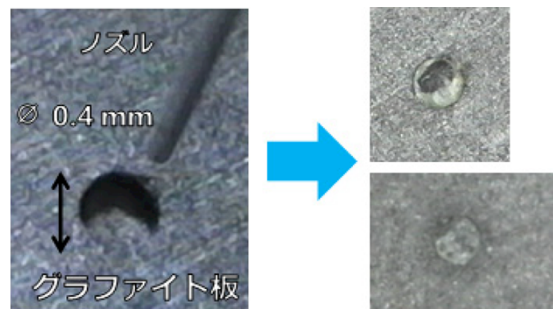


図4 作成した ϕ 0.4 mm のトリウム標的

前節で述べたように、 ^{229}Th の核共鳴散乱探索には高時間分解能、高レート耐性の検出器を用いる。それに加え背景事象の削減のため、各事象の X 線エネルギー情報も得られるセットアップを構築した。検出器系のセットアップを図 5 に示す。トリウム標的からの X 線信号はまず浜松ホトニクス社製の Si avalanche photodiode (APD) で検出する。この APD (S12053-05) は小型 (ϕ 0.5 mm) で空乏層が薄く時間分解能が良いがアクセプタンスが小さいため、我々は図 6 のように浜松ホトニクス社と共同で 3×3 チャンネルのアレイ状に APD を並べた検出器を製作した。各 APD 検出器からの出力信号は高速プリアンプにより増幅された後、constant-fraction discriminator (CFD) に入力され、デジタル信号を出力する。amplitude-to-time converter (ATC) は波高 (X 線エネルギー) 情報を遅延時間のデジタル情報として変換出力する回路で、1 MHz の高計数率の下でも動作可能である。また ATC では APD 波形のパルス時間幅の情報も出力している。この情報を用いることで信号のパイルアップのような即発事象のテール部分になりうる事象を解析で除くことに成功している。最後に、加速器側から送られるバンチタイミング信号、CFD および ATC のデジタル出力は 100 ps サンプルングのマルチヒット time-to-digital convertor (TDC) である MCS6 (FAST Comtec) で計測される。検出器の時間分解能は 120 ps (半値全幅) を達成し、また同時に約 20% (半値全幅) のエネルギー分解能をもっている。これらの検出器系の詳細については文献^[17-19]を参照されたい。

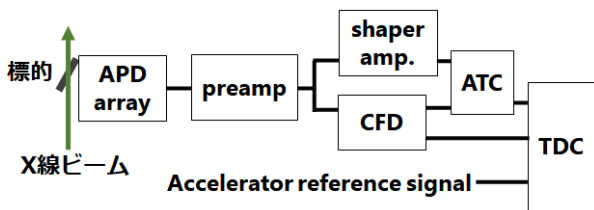


図 5 核共鳴散乱実験検出器系セットアップ

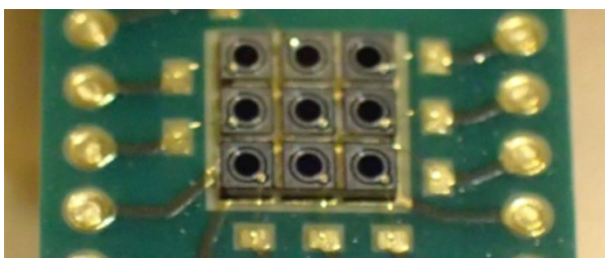


図 6 9 チャンネル APD 検出器

^{229}Th の核共鳴散乱探索実験ではモノクロメータの角度を調節し、回折する X 線のエネルギー (波長) を変化させる。この時、X 線のエネルギーはモノクロメータの角度から決定するのであるが、現実には実験環境の変化などで設定値からわずかにずれる。今回のような狭いエネルギー幅の X 線ビームで観測の難しい信号を探索する場合にはビームエネルギーが設定値と異なってしまうと再現性に欠け、核共鳴散乱ピークの発見が困難になる。

そこで産業技術総合研究所の協力の下、2018 年度の実験から検出器の下流側に Bond 法と呼ばれる手法を利用した^[20]X 線の絶対エネルギーモニターを設置し、X 線エネルギーの値に信頼がおける状況で核共鳴散乱探索実験を行った。図 7 に X 線エネルギー測定システムの概略図を示す。原理は単純で、シリコンの単結晶に X 線ビームを照射し、そのラウエ回折角と結晶の格子面間隔から X 線エネルギーを求める。実際には、シリコン結晶を回転させながら入射ビームの両側に現れるラウエ回折ピークを観測し、各ピークに対応する結晶の角度の差から X 線エネルギーを求める (図 7 上)。

ここで用いるシリコン単結晶は格子定数を正確に求めた結晶から切り出したものである (図 7 左下)^[21]が、格子定数は温度依存性をもつため、結晶の周りをケースと発泡スチロールのカバーで覆い (図 7 右下)、温度を常時モニターしている。また X 線エネルギーを高精度で求めるためには回転テーブルの測定精度が重要になってくる。この X 線エネルギーモニターでは

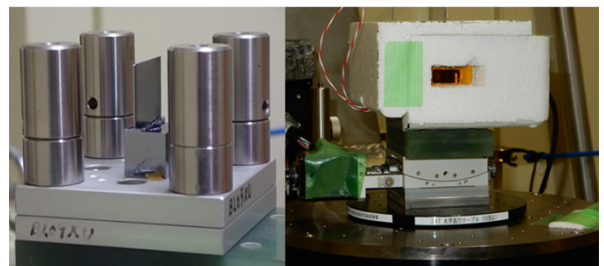
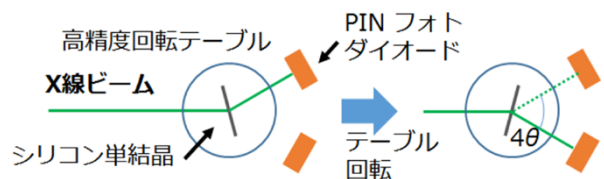


図 7 X 線エネルギー測定システム。(上) セットアップ、 θ はブラッグ角。(左下) シリコン結晶写真。(右下) 結晶カバー、回転テーブル写真。

産業技術総合研究所が開発したSelfAと呼ばれる自己校正機能が搭載されているロータリーエンコーダーを回転テーブルに用いている^[22]。このX線エネルギー測定システムによってX線エネルギーを0.1 eV以下の精度でモニターできるようになった。

5. ²²⁹Th 核共鳴散乱信号の発見

以下では2018年に行った実験について報告する^[23]。加速器の運転モードはバンチ間隔が均等である(23.6 ns) Aモードで実験を行った。核共鳴散乱信号のピークサーチでは1点30分のデータ取得をX線ビームの入射エネルギーを約0.1 eVずつ変化させながら行った。X線エネルギースキャンの3日目に核共鳴散乱信号の兆候を確認し、その後Si(440)モノクロメータをよりエネルギー幅の狭いSi(660)に変えて詳細なスキャンを行った。図8に、ある30分のデータ取得で得られた全APDチャンネル、全バンチビームのデータ

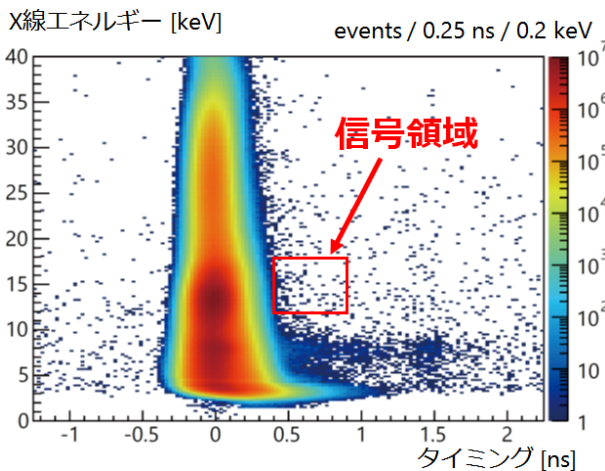


図8 検出事象のタイミング、エネルギー分布。

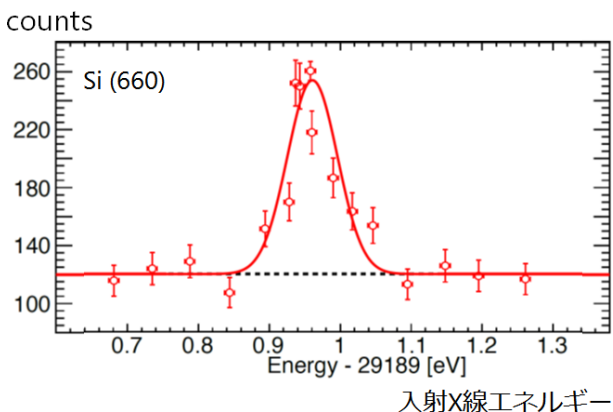


図9 核共鳴散乱信号の共鳴曲線。中心の誤差の小さい点は6時間、他の点は1時間のデータ。

を重ね書きした信号タイミング、エネルギー分布を示す。時間0付近の強いピークが即発事象によるものでそのピーク中心を時間の原点にとった。今回の解析では、0.4 ns から0.9 nsの時間領域と12-18 keVのエネルギー領域を核共鳴散乱の信号領域として設定した。

図9はSi(660)モノクロメータを用い、エネルギーをスキャンした時の信号数を縦軸にプロットしたものである。核共鳴散乱信号によるピークが明瞭に観測され、世界初の²²⁹Th アイソマー状態の人工的生成に成功した。

6. 解析

この実験では²²⁹Th原子核第二励起状態に関する様々な情報も得られた^[20]。第二励起状態の励起エネルギー(E_{2nd})は図9の核共鳴散乱ピークから 29189.93 ± 0.07 eVが得られた。この誤差はX線エネルギーモニターの安定性に由来する。第二励起状態の半減期はX線エネルギーを核共鳴エネルギー付近(共鳴条件)と、ずらした場合(非共鳴条件)の時間スペクトルの差分から 82.2 ± 4.0 psと得られた(図10)。この値は現在までに核共鳴散乱実験で測定された半減期の中で最短である(2番目は²⁰¹Hgの約630 ps^[24])。もし半減期が50 ps程度であれば観測はほぼ不可能で、その点では幸運であった。

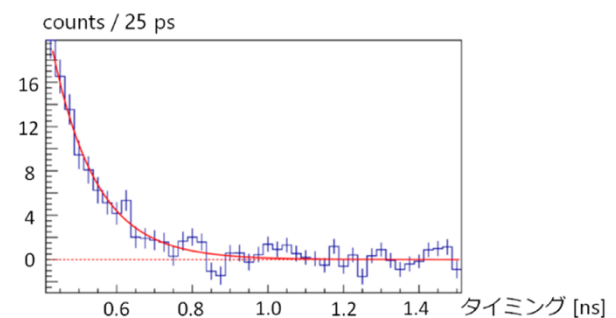
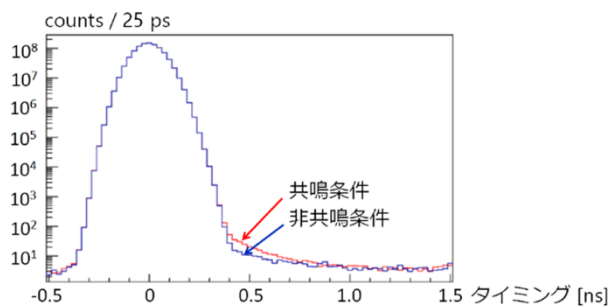


図10 (上) 共鳴条件、非共鳴条件の時間スペクトル、(下) 差分の時間スペクトル。

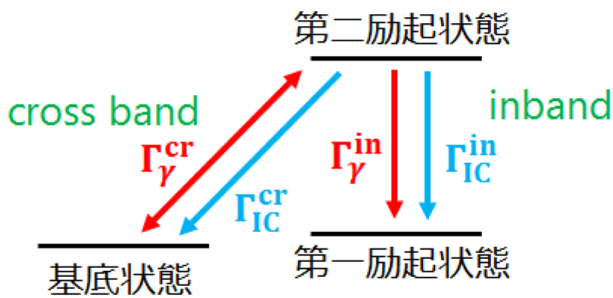
図 11 ^{229}Th 原子核第二励起状態の崩壊モード

図 11 のように第二励起状態は基底状態と第一励起状態の両方に脱励起し、また脱励起の際に光子 (γ) を放出する場合と内部転換 (IC) を起こす場合が存在する。 $^{229\text{m}}\text{Th}$ の生成レートを求めるには第二励起状態から第一励起状態への崩壊分岐比を知る必要があるが、これは以下のように求めた。まず全崩壊幅は第二励起状態の寿命の逆数である。第一励起状態への崩壊幅 (Γ_{γ}^{in} , Γ_{IC}^{in}) は過去の γ 線分光の実験データ^[16] と理論計算から得られ、基底状態に光子を放出する場合の崩壊幅 (Γ_{γ}^{cr}) は即発事象と核共鳴散乱信号の生成レートの比から得られる。これらを用いて第一励起状態への崩壊分岐比は 0.58 ± 0.07 と見積もられた。核共鳴散乱実験で使用したトリウム標的の場合、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ の生成レートは 2.5×10^4 /s 程度である。

7. アイソマー状態からの真空紫外光観測に向けて

以上のように SPring-8 の高品質ビーム、低線量小径トリウム標的、高時間分解能高レート耐性でエネルギー分解能をもつ測定器、高精度 X 線エネルギーモニターを全て活用し、ようやく核共鳴散乱法による ^{229}Th アイソマー状態 ($^{229\text{m}}\text{Th}$) 生成に成功した。しかし本番はこれからで、2019 年からは生成された $^{229\text{m}}\text{Th}$ からの真空紫外光観測を目標に BL19LXU で実験を続けている。真空紫外光の観測に成功すれば、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ の光放出寿命の測定、分光器を用いた脱励起真空紫外光の波長の精密測定を行い、 ^{229}Th のレーザー分光に大きく近づくことができる。

真空紫外光観測実験では 150 nm 付近の波長で標的の透過率が高く、内部転換を防ぐためイオン化した状態の $^{229\text{m}}\text{Th}$ を使用しなければならない。つまり、核共鳴散乱実験で使用したトリウム標的は使用できない。そのためウィーン工科大学のグループが作成した

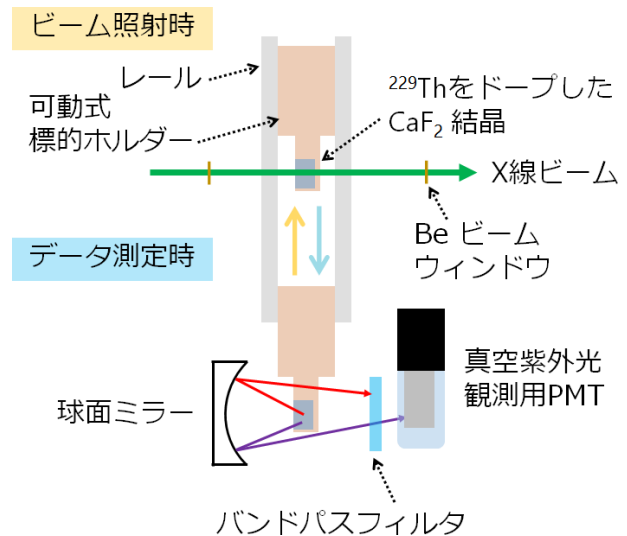


図 12 真空紫外光探索実験セットアップ

^{229}Th をドーブした CaF_2 結晶を標的として用いている。この結晶中ではトリウムは 4 価の状態でもドーブされていると考えられている^[25]。

図 12 に簡略化した真空紫外光探索実験セットアップを示す。真空紫外光の透過のため、セットアップ一式は真空チャンバー内に配置している。 $^{229\text{m}}\text{Th}$ から崩壊して発生した真空紫外光はアクセプタンスを稼ぐためミラーで集光し、真空紫外領域でのみ感度のある光電子増倍管で検出される。X 線ビーム照射中は背景事象が多いため、一定時間ビーム照射後ビームを切って結晶をミラー正面に移動させデータ取得を行う。照射後も CaF_2 結晶から様々な波長の光が放出される。そこで特定の波長の光のみを通過させるバンドパスフィルターを用い背景事象を削減する。更に X 線エネルギーを共鳴条件とずらしたデータを用意し差分をとる。これまでに行った実験では主に統計量の不足から真空紫外光の観測に至っていないが、より高濃度の ^{229}Th をドーブした結晶を使用することにより真空紫外光の観測を目指す。

謝辞

本研究の成果は多くの方々の協力があって初めて達成された。実験は SPring-8 の BL09XU (課題番号: 2014A1334, 2014B1524, 2015B1380, 2016A1420, 2016B1232, 2017B1335) および BL19LXU (課題番号: 2018A1326, 2018B1436, 2019B1619) で行った。SPring-8 での実験では理化学研究所の山口敦史

氏にご協力頂いた。核共鳴散乱実験で使用した ^{229}Th 試料は東北大学の小無健司氏、渡部信氏の協力の下調達した。トリウム標的は大阪大学の笠松良崇氏、理化学研究所の羽場宏光氏、重河優大氏、横北卓也氏の協力の下作成した。高精度 X 線エネルギーモニターは産業技術総合研究所の藤本弘之氏、渡部司氏の協力の下導入した。また核共鳴散乱観測実験の検出器スタディのため岸本俊二氏の協力の下、KEK の PF BL14A でテスト実験を行った。この場を借りて関係者に深く御礼申し上げる。

参考文献

- [1] B. Seiferle *et al.*: *Nature* **573** (2019) 243-246.
- [2] E. V. Tkalya *et al.*: *Phys. Rev. C* **92** (2015) 054324.
- [3] T. L. Nicholson *et al.*: *Nat. Commun.* **6** (2015) 6896.
- [4] N. Hunte mann *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **116** (2016) 063001.
- [5] C. J. Campbell *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **108** (2012) 120802.
- [6] J. P. Uzan: *Rev. Mod. Phys.* **75** (2003) 403-455.
- [7] V. V. Flambaum: *Phys. Rev. Lett.* **97** (2006) 092502.
- [8] J. Thielking *et al.*: *Nature* **556** (2018) 321-325.
- [9] B. R. Beck *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **98** (2007) 142501.
- [10] L. v. d. Wense *et al.*: *Nature* **533** (2016) 47-51.
- [11] B. Seiferle *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **118** (2017) 042501.
- [12] J. Jeet *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **114** (2015) 253001.
- [13] A. Yamaguchi *et al.*: *New J. Phys.* **17** (2015) 053053.
- [14] R. M. Essex *et al.*: *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **318** (2018) 515-525.
- [15] 三頭聰明、結城秀行：核データニュース **72** (2002) 50-59.
- [16] V. Barci *et al.*: *Phys. Rev. C* **68** (2003) 034329.
- [17] T. Masuda *et al.*: *Rev. Sci. Instrum.* **88** (2017) 063105.
- [18] T. Masuda *et al.*: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **913** (2019) 72-77.
- [19] T. Masuda *et al.*: *JPS Conf. Proc.* **27** (2019) 012020.
- [20] W. L. Bond: *Acta Crystallographica* **13** (1960) 814-818.
- [21] H. Fujimoto *et al.*: *Metrologia* **48** (2011) S55-S61.
- [22] T. Watanabe *et al.*: *Meas. Sci. Technol.* **25** (2014) 065002.
- [23] T. Masuda *et al.*: *Nature* **573** (2019) 238-242.
- [24] A. Yoshimi *et al.*: *Phys. Rev. C* **97** (2018) 024607.
- [25] S. Stellmer *et al.*: *Sci. Rep.* **5** (2015) 15580.

平木 貴宏 HIRAKI Takahiro

岡山大学 異分野基礎科学研究所
〒700-8530 岡山市北区津島中 3-1-1
TEL : 086-251-8489
e-mail : thiraki@okayama-u.ac.jp

海野 弘行 KAINO Hiroyuki

岡山大学 異分野基礎科学研究所
〒700-8530 岡山市北区津島中 3-1-1
TEL : 086-251-8489
e-mail : pamw1hq8@s.okayama-u.ac.jp

増田 孝彦 MASUDA Takahiko

岡山大学 異分野基礎科学研究所
〒700-8530 岡山市北区津島中 3-1-1
TEL : 086-251-8489
e-mail : masuda@okayama-u.ac.jp

岡井 晃一 OKAI Kouichi

岡山大学 異分野基礎科学研究所
〒700-8530 岡山市北区津島中 3-1-1
TEL : 086-251-8489
e-mail : k_okai@s.okayama-u.ac.jp

笹尾 登 SASAO Noboru

岡山大学 異分野基礎科学研究所
〒700-8530 岡山市北区津島中 3-1-1
TEL : 086-251-7768
e-mail : sasao@okayama-u.ac.jp

吉見 彰洋 YOSHIMI Akihiro

岡山大学 異分野基礎科学研究所
〒700-8530 岡山市北区津島中 3-1-1
TEL : 086-251-8499
e-mail : yoshimi@okayama-u.ac.jp

吉村 浩司 YOSHIMURA Koji

岡山大学 異分野基礎科学研究所
〒700-8530 岡山市北区津島中 3-1-1
TEL : 086-251-8499
e-mail : yosimura@okayama-u.ac.jp

北尾 真司 KITAO Shinji

京都大学 複合原子力科学研究所
〒590-0494 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2 丁目
TEL : 072-451-2471
e-mail : kitao@rri.kyoto-u.ac.jp

瀬戸 誠 SETO Makoto

京都大学 複合原子力科学研究所
〒590-0494 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2 丁目
TEL : 072-451-2445
e-mail : seto@rri.kyoto-u.ac.jp

玉作 賢治 TAMASAKU Kenji

(国) 理化学研究所 放射光科学研究センター
〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0802
e-mail : tamasaku@spring8.or.jp

依田 芳卓 YODA Yoshitaka

(公財) 高輝度光科学研究センター
放射光利用研究基盤センター 回折・散乱推進室
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0802
e-mail : yoda@spring8.or.jp

FY2014 Partner User Activity Report

Application of Synchrotron Radiation in Materials Crystallography

Bo Iversen¹, Jacob Overgaard¹, Yoshihiro Kuroiwa², Eiji Nishibori³¹Department of Chemistry, University of Aarhus, Aarhus, Denmark²Graduate School of Science, Hiroshima University, Japan³Faculty of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba, Japan

(1)

Initial PU Proposal No. / Beamline Name	2014A0078 / BL02B1										
PU Project Leader (Affiliation)	Bo Iversen (University of Aarhus)										
Research Experiment	Application of Synchrotron Radiation in Materials Crystallography										
Collaboration for Beamline Facility Upgrade	Structural dynamics infrastructure development and its leading use										
User Support	Help and support to the users using upgraded beamline facilities										
Research Term	14A	14B	15A	15B	16A	16B	17A	17B	18A	18B	Total
Number of Shifts Used	44.5	56.875	45	38.75	42	38.875	41.75	47.625	43.75	48	447.125
Number of Supported Proposals	3	1	5	1	1	2	1	2	1	1	18

(2) Overview of partner user activities

1) Initial goal for the PU program

The original priority for the Aarhus group in the Partner User Proposal was to establish that the beamline BL02B1 could consistently deliver high quality, high resolution, and low-temperature diffraction data of the utmost quality, for the purpose of charge density (CD) refinement using the multipole model. During this work, we used the molecular system, Rubrene, as benchmark system and we have continued to use this system extensively also following the end of this PU proposal. In addition, we performed accurate studies of inorganic compounds, such as transition metal sulfides, alkali salts, and intermetallic compounds in the realm of thermoelectric and 2D materials. Extraordinary results were obtained for van der Waals material TiS₂. It was also a priority to develop methods for light induced excited state crystallography. This relied on the access to a fast detector, which was investigated together with a research group in Nancy, France, and later with a commercial HPAD-detector from Dectris. We examined the use of a photon counting pixelated detector on the beamline BL02B1.

Time-resolved diffraction (TR-XRD) was addressed by PU member Prof. Yoshihiro Kuroiwa from Hiroshima University, as it was proposed by SPring-8 that it should be possible to make TR-XRD experiments under applied electric field at the BL02B1.

Finally, the initial proposal included plans by the Nishibori group to endow BL02B1 with capabilities for non-ambient crystallography. One of these was the development of high-pressure (HP) infrastructure at the beamline.

2) Collaboration for beamline upgrades

For CD studies, X-ray diffraction data require good statistics. The large cylindrical IP camera has successfully been used to collect high quality data having a large dynamic range and large area using a 1 shot image method. However, the disadvantage of the IP detector is its long readout- and erase-time, which is more than 8 minutes per image. We initially tried to evaluate a photon counting pixelated detector, imXPAD, to replace the IP for CD study. This was done together with University de Lorraine, including all the hardware and software adaptations that are required. Eventually, we could collect image data of

standard samples with imXPAD for CD study. Our plan was to measure a set of very accurate Bragg intensities on BL02B1 on an YTiO_3 perovskite type crystal using 35 keV radiation, and analyze the performance of the XPAD detector knowing that the detector chip is made from silicon.

Eventually, it was concluded that the high energy at the BL02B1 is not compatible with the Si-based detector chip in the imXPAD. At the time when this was carried out, the development of CdTe or AsGa intermetallic semiconductor materials was still in its infancy and not commercially available for large detectors, but this has since been altered, culminating in the purchase of a new CdTe detector by SPring-8 for installation at BL02B1.

In January 2018, a new PILATUS3 X CdTe detector was installed at BL02B1 by beamline scientist Dr. Kunihisa Sugimoto, and we used beamtime in 2018A and 2018B to very thoroughly investigate the capabilities of this detector. Initially, we attempted to adapt the new detector frame format to the existing Rigaku RAPID-AUTO software, but this was quickly abandoned, and instead we developed frame conversion software to enable the use of Bruker Apex3 software for data reduction. The detector control and subsequent software is now readily available for all users at the beamline. These results are now in press in *Journal of Applied Crystallography*^[26].

Prior to the introduction of the pixel-detector at BL02B1, the PU team developed the TR-XRD system, in which the timing of X-ray irradiation was synchronized with the RF signal of

SPring-8. Figure 1 shows the schematic image of the TR-XRD system used for a ferroelectric material BaTiO_3 . We have succeeded in capturing the change in crystal structure of BaTiO_3 during the polarization reversal by the pump-probe method using the chopped SR pulse X-rays of 30 keV from the train bunch in the D-mode operation with the temporal resolution of 685 ns. In the initial stage, the cyclic periods of applying AC and irradiating pulse X-rays are both the same 1 kHz. This system enabled us to collect a data set to reveal the intrinsic structural change in BaTiO_3 in 3 hrs. The incident X-ray intensity lost by the windows of X-ray chopper was negligible since the X-rays were well focused at the X-ray chopper at BL02B1. Using the tandem chopper system we tried to eliminate X-rays with higher energy more efficiently. However, half of the incident X-rays was lost at the windows of the choppers. In the current chopper system which we have developed, it is best to experiment with a single chopper using X-rays up to 30 keV. The chopped SR pulse X-rays from the single bunch in the H-mode operation with the temporal resolution of 50 ps was successfully obtained using the TR-XRD system for the focused X-rays, and was used for the quartz crystal. A data set for the crystal structure analysis was collected in 6 hrs. In this experiment, we have achieved to upgrade the TR-XRD system better to support any AC frequency.

α -quartz is a high-Q material. The resonant frequency is very sensitive to the sample thickness and the condition of the electronic anodes. In this sample, a clear resonant vibration was observed for

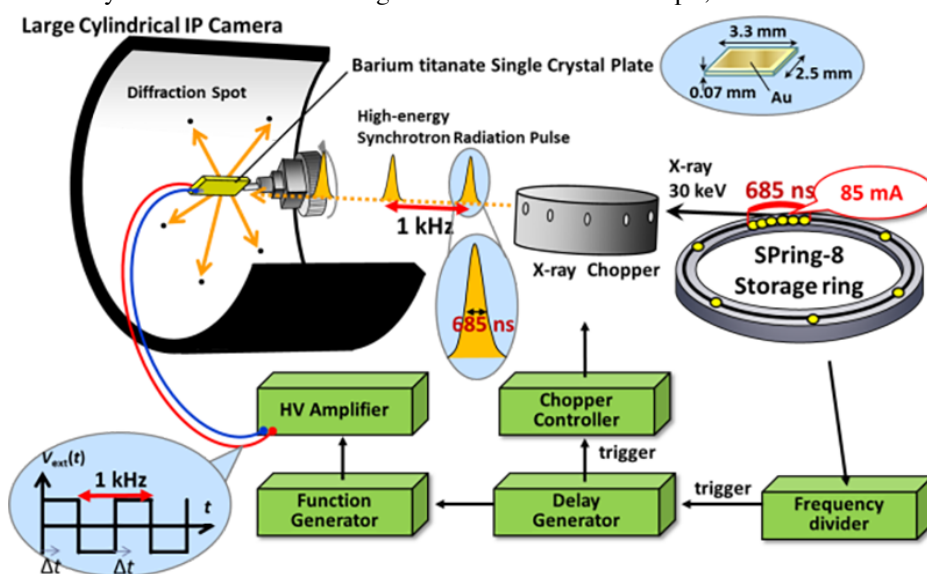


Figure 1 Time-resolved X-ray diffraction (TR-XRD) system for the D-mode operation. The system is available for any bunch modes using the focused X-rays.

the 30.05 MHz AC frequency. No significant resonant vibration could be observed for the 30.00 and 30.10 MHz AC. In fact, it is very difficult to prepare the quartz sample with a certain resonant frequency. The resonant frequency changes with small changes in the thickness of sample and electrode, and reproducible sample fabrication is difficult. Therefore, we upgrade the TR-XRD system to better support any AC frequency higher than 1 MHz. This improvement was achieved by a clever combination of the X-ray chopper and the programmed function generator, and applied to the quartz experiments. Nowadays, this technique is adopted in the time-resolved XMCD measurements for the magnetic materials excited by pulsed RF field at BL39XU (N. Kikuchi *et al.*: *IEEE Transactions on Magnetics*, DOI: 10.1109/TMAG.2017.2745211), and more in BL25SU.

For the non-ambient crystallographic investigations, Dr. Sugimoto installed a diamond anvil cell (DAC) and a pressure measurement system during the 2014A period. Prof. Nishibori advised convenient tools, such as a syringe for pressure medium, and a glue to fix gasket, for the DAC experiment. In addition, experimental procedures for single crystal DAC experiments were fully developed. Of particular importance was the problem of centering of sample for which a method was conceived. The reason that centering is problematic even though the crystal is visible through the diamond anvils is that the refractive index of diamond is high, so it is very difficult center the DAC using the already installed CCD camera system. Instead, we developed a centering method using an X-Y stage attached to a goniometer head. Finally, Dr. Sugimoto developed an automatic sampling system using a z-stage of CCD camera in collaboration with the partners.

3) Research Results related to Upgraded Beamline

3-a) Charge Density Results on Rubrene

One of our first results from BL02B1 was the CD of the organic semiconductor material, rubrene. This was published in *IUCrJ*^[3], in which we addressed the link between bulk properties and the microscopic CD. This relied on being able to determine small deviations in CD, which was possible due to the high data quality. The comparison of thermal parameters from X-rays and neutron experiments showed the best agreement ever found for an X-N study. The study also included

use of novel interaction descriptors such as the non-covalent indicator (Figure 2). This study represents the fulfilment of the first priority in the beamline upgrade. As part of the work, we established a strategy for data collection that was able to cover the full reciprocal space in the minimum amount of time, and optimizing the time with crystal exposure relative to image plate readout. These procedures were later adopted by other users.

3-b) Charge Density results on a Single Molecule Magnet.

We have successfully reduced the absorption in the samples by increasing the X-ray energy. Now, we are frequently using 50 keV radiation, and this seems to defer the crystal decay to the extent that some experiments are now possible. This is particularly successful for coordination complexes where the effect of decay seems to be most prevalent. We have thus managed to collect high-resolution CD data on the single molecule magnet $\text{Dy}(\text{dbm})_3(\text{bpy})$, where dbm = dibenzoylmethane, and for the first time managed to obtain an experimental model for the 4f valence density distribution in Dy^{3+} . In a first approximation, the electronic structure of a Dy^{3+} can be described as a pure $m_J = \pm 15/2$ state, which has a strongly oblate valence density distribution and very axial magnetic properties, while mixing of higher lying states into the

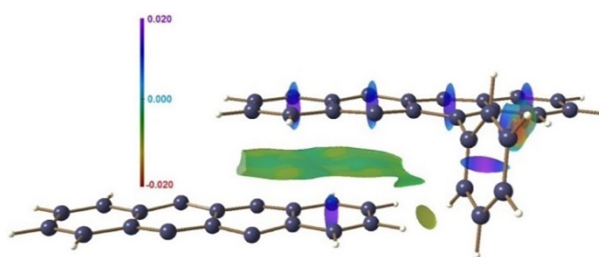


Figure 2 The NCI surface separating the dimers in the Cr...Cr stacking interaction in rubrene.

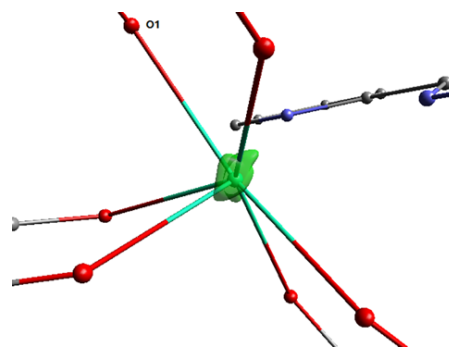


Figure 3 Isosurface of the density from the multipoles of the 4f CD around Dy in $\text{Dy}(\text{dbm})_3(\text{bpy})$.

ground state will perturb this lucid picture. We find clear deviations from the oblate density using the CD model using a multipole model including $l = 6$ terms to describe the f -electrons, as shown in Figure 3. The results indicate clearly that the approximation of a pure ground state is not reproduced in the experimental CD. The level of theory used in our study are expensive high-level state-of-the-art multiconfigurational calculations, which are also used throughout the molecular magnetic community, but our results indicate that they may not be accurate enough to reproduce the true, mixed electronic structure.

3-c) Charge Density in N-H-N Hydrogen Bond

$\text{H}_3\text{Co}(\text{CN})_6$ exhibits one of the shortest N-H-N hydrogen bonds in the literature, which shows strong isotope dependence. To investigate and quantify this isotope and temperature dependence, we studied the CD on both the hydrogenated and the deuterated compounds at different temperatures. The CD study will contribute with important knowledge about hydrogen bonds, which is a very important research topic with implications within fields such as enzyme catalysis and molecular self-assembly.

The structure presents a challenge for CD studies due to symmetry and light elements, and very accurate X-ray diffraction data are required. Thus, high-resolution X-ray diffraction data has been collected on both hydrogenated and deuterated samples at both 20 K and 100 K, up to 1.7 \AA^{-1} for the 20 K data and to 1.4 \AA^{-1} for the 100 K data and with high redundancy in all cases. To determine the hydrogen positions and thermal parameters accurately, the X-ray data were combined with high quality neutron powder diffraction data. The X-ray data has been modelled using the multipole model and analyzed using topological analysis. This indicates a double-covalently bonded hydrogen, which has never previously been observed in an N-H-N hydrogen bond (Figure 4). The behavior

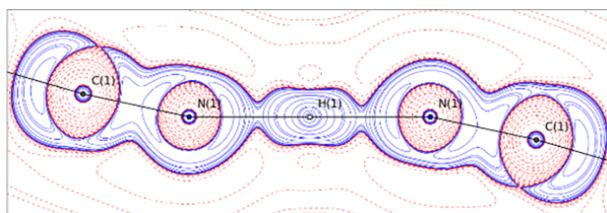


Figure 4 Laplacian of total electron density in the N-H-N plane of $\text{H}_3\text{Co}(\text{CN})_6$.

is very similar to what is observed in the O-H-O Low Barrier Hydrogen Bond (LBHB) in benzoylacetone, but in the present case the hydrogen bond seems to be even more symmetric. The cobalt atom shows a clear redistribution of charge as usually observed in an octahedrally coordinated transition metal complex, but with some degree of covalency in the Co-C bond. Many density-based observables are very similar to what is observed in a series of transition metal carbonyls, which is interesting as one would expect much more ionic character of the Co-CN bond from the formal charges of the atoms.

3-d) Installing and implementing a HPAD detector at BL02B1

The latest development was the implementation of the PILATUS3 X 1M CdTe detector at BL02B1. After successfully converting data to a usable format, it was found that both very strong and very weak data suffered from systematic errors. The problem was identified as being due to the fact that the given official specifications of the detector count rate is related to the instantaneous flux, not the total count across a whole peak. This results in systematic differences in strong intensities for different incoming beam flux, and the internal count-rate correction was found to be inadequate. Only significant beam attenuation for the collection of strong reflections has proven to circumvent this systematic error. Similarly, the estimated uncertainties of the very weak intensities are hampered by the use of particular programs, and we have also developed a routine to avoid these problems. These results have just been submitted. At the same time, we are continuing to work closely together with the detector manufacturer, Dectris, to investigate their latest Eiger detector, in which some of the unnoticed intrinsic errors have been eradicated. A detailed account of this work is currently in press.

4) User Support relating to Upgrade

In the PU support program, the PU group applied the upgraded TR-XRD system to quartz, in which the chopped SR pulse X-rays of 35 keV from the single bunch in the H-mode operation with the temporal resolution of 50 ps and the cyclic period of 26.1 kHz were used. The transient atomic displacements during a resonant thickness-shear vibration of the quartz are revealed under applied AC electric field.

The TR-XRD experiments carried out using the hybrid AC field is schematically shown in Figure 5 (Top). The AC field with 30.05 MHz was applied to the sample 1,000 times for 33 μ s. After the 5 μ s break, the AC field was applied again and repeated. The pulse X-rays are irradiated at the appropriated timing in the 995th cycle of the 1,000 cycle where the stable resonance were observed.

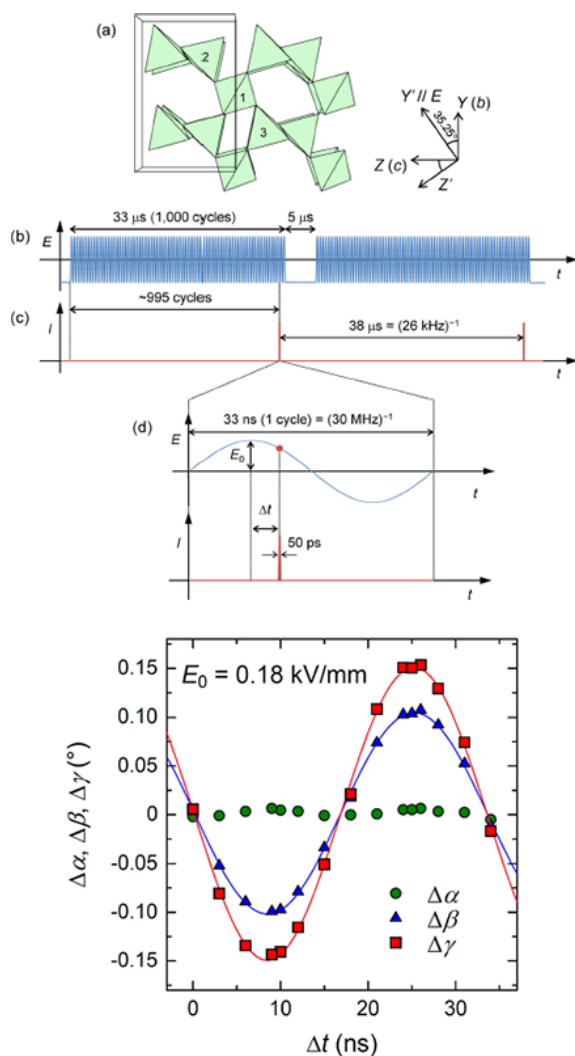


Figure 5 (Top) Crystal structure of α -quartz and schematic of the hybrid alternating electric field and repetitive short-pulse X-rays for TR-XRD. (a) Crystal structure of right α -quartz viewed along the X-axis. (b) An applied electric field consisting of 1,000 cycles of a 30 MHz sine wave and repetitions at 26.1 kHz. (c) Short-pulse X-rays with a pulse width of 50 ps and a repetitive frequency of 26.1 kHz. (d) Relationship between a cycle of the sine-wave electric field and an X-ray pulse. (Bottom) Time changes of the α , β , and γ angles in quartz under the resonant AC field.

Time changes of the α , β , and γ angles under the resonant AC field are indicated in Figure 5 (Bottom). The lattice strain resonantly amplified by the AC electric field is ~ 104 times larger than that induced by a static electric field. The resonantly amplified lattice strain is achieved by fast displacements of oxygen anions and collateral resilient deformation of Si–O–Si angles bridging rigid SiO₄ tetrahedra, which efficiently transduce electric energy into elastic energy.

5) Concluding remarks

We have developed experimental procedures that allow collection of the most accurate single crystal X-ray diffraction data ever making beamline BL02B1 the premier facility for accurate crystallographic studies in the world. The exceptional quality of the data obtained from an IP detector was demonstrated in crystals containing weak chemical interactions such as π - π -bonding, hydrogen bonding or van der Waals-bonding. We now need to spread the possibilities more generally in the crystallographic community and the results have opened up possibilities for high impact chemical bonding studies. We have introduced the imXPAD detector based on a Si-based detector chip and collected many data sets. However, the data quality was not sufficient for CD studies and CdTe based detectors are required. It was, however, essential to establish that the new CdTe detector can measure data of similar accuracy as the IP detector. In the case of metal organic crystals severe crystal decay was previously observed and this presents a general problem prohibiting studies using the image-plate setup. The solution was found with the faster detector technology, such as the PILATUS photon counting detector from the Dectris company being installed primo 2018.

We have developed the TR-XRD system with X-ray choppers synchronized with the RF signal of SPring-8. We upgraded the TR-XRD system better to support AC frequencies higher than 1 MHz. However, the current X-ray chopper is mainly designed for the D-mode operation. We will start to install the new X-ray chopper designed for the H-mode operation from 2018A. The design is already completed and much higher efficiency in collecting data with 50 ps temporal resolution is expected. The self-evaluation of goal achievement in the TR-XRD part should be 80%, because the new X-ray

chopper designed suitable for the H-mode operation is not installed at the moment.

We have obtained accurate HP CD results of diamond using DAC as shown in Figure 6. The R-values of multipole refinement are around 2% with $d > 0.35 \text{ \AA}$ data. However, it is still difficult to detect pressure dependence of strength of chemical bonding. We need higher quality data for the quantitative CD study including pressure dependence.

Finally, a workshop was held for all PU members in Tsukuba (see Figure 7 for a snapshot from the meeting). The participants included the Aarhus University group (Bo Iversen, Jacob Overgaard), the Grabowsky group from University of Bremen, Germany as well as scientists from SPring-8 BL02B1 and the single crystal beam line of J-PARC. We had a lively discussion of various topics that had appeared of importance over the lifetime of the PU project, such as benefits of a new detector, synergy of multiple facility use and so on. The meeting was very valuable and it contributes to the continuous development of the beamline.

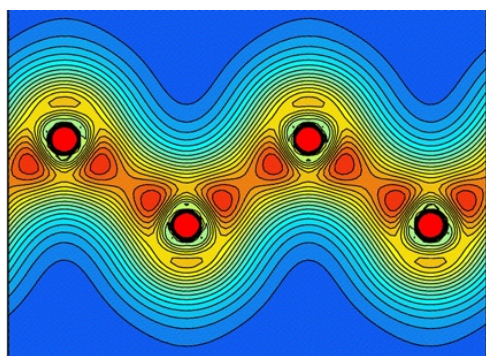


Figure 6 Valence CD of Diamond under 1.1 GPa pressure using DAC.



Figure 7 Discussion at PU-organized workshop in Tsukuba.

(3) List of papers (refereed papers)

- [1] SPring-8 publication ID = 28292
M. Shimada *et al.* "Optical Properties of Disilane-Bridged Donor-Acceptor Architectures: Strong Effect of Substituents on Fluorescence and Nonlinear Optical Properties" *Journal of the American Chemical Society* **137** (2015) 1024-1027.
- [2] SPring-8 publication ID = 29616
R. Iizuka *et al.* "Large Electric-field-induced Strain in Pseudo-cubic $\text{BaTiO}_3\text{-Bi}(\text{Mg}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3\text{-BiFeO}_3$ Ceramics" *Transactions of the Materials Research Society of Japan* **40** (2015) 295-299.
- [3] SPring-8 publication ID = 29703
V. Hathwar *et al.* "Quantitative Analysis of Intermolecular Interactions in Orthorhombic Rubrene" *IUCrJ* **2** (2015) 563-574.
- [4] SPring-8 publication ID = 31142
Y. Ishii *et al.* "Two Competing Soft Modes and an Unusual Phase Transition in the Stuffed Tridymite-type Oxide BaAl_2O_4 " *Physical Review B* **93** (2016) 134108.
- [5] SPring-8 publication ID = 31416
E. Magome *et al.* "Role of Structure Gradient Region on Dielectric Properties in $\text{Ba}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3\text{-KNbO}_3$ Nanocomposite Ceramics" *Japanese Journal of Applied Physics* **54** (2015) 10NB04.
- [6] SPring-8 publication ID = 31419
H. Tanaka *et al.* "Metal-Semiconductor Transition Concomitant with a Structural Transformation in Tetrahedrite $\text{Cu}_{12}\text{Sb}_4\text{S}_{13}$ " *Journal of the Physical Society of Japan* **85** (2016) 014703.
- [7] SPring-8 publication ID = 33183
M. Sist *et al.* "Carrier Concentration Dependence of Structural Disorder in Thermoelectric Sn_{1-x}Te " *IUCrJ* **3** (2016) 377-388.
- [8] SPring-8 publication ID = 34006
M. Sist *et al.* "Low-Temperature Anharmonicity in Cesium Chloride (CsCl)" *Angewandte Chemie International Edition* **56** (2017) 3625-3629.
- [9] SPring-8 publication ID = 34819
S. Ogura *et al.* "Antiferromagnetic Ordering in the Single-Component Molecular Conductor $[\text{Pd}(\text{tmdt})_2]$ " *Inorganic Chemistry* **55** (2016) 7709-7716.
- [10] SPring-8 publication ID = 34830
K. Qian *et al.* "Does the Thermal Evolution of Molecular Structures Critically Affect the Magnetic Anisotropy?" *Chemical Science* **6** (2015) 4587-4593.

- [11] SPring-8 publication ID = 35490
M. Tsuchiya *et al.* “ β -IminoBODIPY Oligomers: Facilely Accessible π -Conjugated Luminescent BODIPY Array” *Chemical Communications* **53** (2017) 7509-7512.
- [12] SPring-8 publication ID = 35492
Y. Ogino *et al.* “Solvent-Controlled Doublet Emission of an Organometallic Gold(I) Complex with a Polychlorinated Diphenyl(4-pyridyl)methyl Radical Ligand” *Inorganic Chemistry* **56** (2017) 3909-3915.
- [13] SPring-8 publication ID = 35556
S. Nakajima *et al.* “A Fluorescent Microporous Crystalline Dendrimer Discriminates Vapour Molecules” *Chemical Communications* **54** (2018) 2534-2537
- [14] SPring-8 publication ID = 35588
M. Sist *et al.* “Low-Temperature Anharmonicity in Cesium Chloride (CsCl)” *Angewandte Chemie* **129** (2017) 3679-3683.
- [15] SPring-8 publication ID = 37143
H. Kasai *et al.* “X-ray Electron Density Investigation of Chemical Bonding in van der Waals Materials” *Nature Materials* **17** (2018) 249-252.
- [16] SPring-8 publication ID = 37680
T. Fujita *et al.* “Hydrothermal Reactor for in-situ Synchrotron Radiation Powder Diffraction at SPring-8 BL02B2 for Quantitative Design for Nanoparticle” *The Journal of Supercritical Fluids* **147** (2019) 172-178.
- [17] SPring-8 publication ID = 37681
B. Zhou *et al.* “Single-Component Molecular Conductor [Pt(dmdt)₂]-a Three-Dimensional Ambient-Pressure Molecular Dirac Electron System” *Chemical Communications* **55** (2019) 3327-3330.
- [18] SPring-8 publication ID = 38679
T. Nakamura *et al.* “Bpytrisalen/Bpytrisaloph: A Triangular Platform That Spatially Arranges Different Multiple Labile Coordination Sites” *Inorganic Chemistry* **58** (2019) 7863-7872.
- [19] SPring-8 publication ID = 38680
V. Hathwar *et al.* “Low-Temperature Structural Phase Transitions in Thermoelectric Tetrahedrite, Cu₁₂Sb₄S₁₃, and Tennantite, Cu₁₂As₄S₁₃” *Crystal Growth & Design* **19** (2019) 3979-3988.
- [20] SPring-8 publication ID = 39854
C. Gao *et al.* “Observation of the Asphericity of 4f-electron Density and its Relation to the Magnetic Anisotropy Axis in Single-Molecule Magnets” *Nature Chemistry* **12** (2020) 213-219.
- [21] SPring-8 publication ID = 39855
M. K. Thomsen *et al.* “Insights into Single-Molecule-Magnet Behavior from the Experimental Electron Density of Linear Two-Coordinate Iron Complexes” *Inorganic Chemistry* **58** (2019) 3211-3218.
- [22] SPring-8 publication ID = 39856
P. C. Bunting *et al.* “A Linear Cobalt(II) Complex with Maximal Orbital Angular Momentum from a Non-Aufbau Ground State” *Science* **362** (2018) eaat7319.
- [23] SPring-8 publication ID = 39857
J. Overgaard *et al.* “Magnetism and Variable Temperature and Pressure Crystal Structures of a Linear Oligonuclear Cobalt Bis-Semiquinonate” *Dalton Transactions* **45** (2016) 12924-12932.
- [24] SPring-8 publication ID = 39890
M. W. Shi *et al.* “Measurement of Electric Fields Experienced by Urea Guest Molecules in the 18-Crown-6/Urea (1:5) Host-Guest Complex: An Experimental Reference Point for Electric-Field-Assisted Catalysis” *Journal of the American Chemical Society* **141** (2019) 3965-3976.
- [25] SPring-8 publication ID = 39891
K. Tolborg *et al.* “Low barrier hydrogen bonds in negative thermal expansion material H₃Co(CN)₆” *Chemistry a European Journal* **25** (2019) 6814-6822.
- [26] SPring-8 publication ID = 39895
L. Krause *et al.* “Accurate high-resolution single-crystal diffraction data from a Pilatus3 X CdTe detector” *Journal of Applied Crystallography* (2020) in press.

2015 年度指定パートナーユーザー活動報告 1

粉末・多粒子 X 線回折によるその場構造計測基盤の構築

広島大学 大学院理学研究科 森吉 千佳子
 大阪府立大学 大学院理学系研究科 久保田 佳基
 筑波大学 数理物質系
 エネルギー物質科学研究センター 西堀 英治

(1)

指定時PU 課題番号/ビームライン	2015A0074/BL02B2								
PU 氏名 (所属)	森吉 千佳子 (広島大学)								
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								
高度化	迅速オペラント構造計測ステーションの整備								
利用研究支援	当該装置を用いた利用実験の支援								
利用期	15A	15B	16A	16B	17A	17B	18A	18B	合計
PU 課題実施シフト数	50.75	50.875	53.75	50.625	41.75	47.625	44.5	47.125	387
支援課題数	11	8	7	7	8	11	9	10	71

(2) PU 活動概要

1) 目標

本パートナーユーザー (以下、PU) グループは、代表者森吉千佳子 (広島大学教授) と、久保田佳基 (大阪府立大学教授)、西堀英治 (筑波大学教授) により構成される。粉末結晶構造解析のための共用ビームライン BL02B2 の高度化に協力するために 2015A 期にスタートした。

X 線構造解析は物質構造解明の中心的な役割を果たしてきた。さらに、昨今の X 線自由電子レーザー (XFEL) や次世代放射光源を用いた測定では、ナノメートルオーダーサイズの領域のフェムト秒オーダーの時間分解能の構造情報を引き出すことが可能になりつつあり、その場観察 (in-situ) や実使用下観察 (operand) など外場下での微小・大強度ビームによる測定が注目されている。データのある 1 次元方向に計測するだけの粉末・多粒子 X 線回折実験では、X 線源の高性能化の恩恵を最大限享受できる。高平行度の X 線を用いれば高分解能化のためのスリット系が不要であり、試料周りに広い空間が確保できるためである。本 PU 課題がスタートする以前から、BL02B2 では、大型デバイ・シェラーカメラと二次元イメージン

グプレート検出器を組み合わせ、試料周りの広い空間を活用して温度・電場・ガス雰囲気下など多様な外場変化用の機器が導入され、様々な分野の研究が実施されてきた。イメージングプレートはノイズが小さく広いダイナミックレンジのデータが観測されることから精密構造解析や電子密度レベルの結晶構造解析に適している。本 PU 課題では、近い将来に実現するであろう X 線源の高性能化を見据えて、既存の検出器システムを活かし発展させながら、新たに迅速なデータ収集のためのオンライン計測可能な一次元半導体検出器システムを導入することにより、in-situ や operand などの多彩な外場下で物質の三次元構造決定を可能とする多粒子回折データ収集システムを構築し、BL02B2 のポテンシャルをさらに引き出すことを目的とした。

2) 高度化への協力

PU 期間の前半で主に要素技術を立ち上げ、後半にはそれらを組み合わせたその場観察の環境整備と利用研究を進めた。高度化のコンセプトは、①既存のイメージングプレートと新規導入の一次元半導体検出器を共存し、これまで実績のある電子密度レベルの

精密構造研究のさらなる発展と迅速構造解析ステーションの構築を目指すこと、②可能な限りシステムを自動化することによりユーザーフレンドリーな実験ステーションを構築すること、③汎用性のあるシステムを提供し、ユーザー独自のオプションを持ち込んだ多様な実験を可能にすることである。以下、BL 担当者と協力して行った主要な高度化についてまとめる。

2-a) 多連装型半導体一次元検出器の整備

2015A 期に半導体一次元検出器 (DECTRIS 社製 MYTHEN 1K) を 6 台連装した多連装型検出器システムが導入され、BL 担当者を中心にオンライン測定ソフトウェアの整備が行われた。より広範囲のユーザーを想定し、初心者でも誤作動を引き起こすことなく安心して測定を実施できるよう使いやすいシステムが構築された。

図 1 に測定システムの概念図を示す。検出器を第一と第二の配置に設定して測定することによる全 2θ 範囲をカバーする標準的な測定モード (Double-step mode) の整備が行われ、角度分解能の高いデータの取得が可能となった。これにより、イメージングプレートでは検出が困難であった回折ピークのスプリットが観測されるようになるなど、物質の対称性や構造をより正確に調べるための測定が可能となった。2015B 期にユーザー利用が開始された。また、合成実験や化学反応実験などの時々刻々と構造変化する試料や、外場により破壊が起こる試料の場合は、1 データの測定時間を短縮することが本質的に重要である。このような測定を可能にするため、6 連装の半導体検出器を $\pm 2\theta$ 範囲に非対称に配置し、一度の測定で $2\theta < 35^\circ$ の強度データの取得が可能な測定モード

(Single-step mode) が採用された。さらに、1 つの検出器モジュールをある 2θ に固定し、特定の回折ピークのプロファイルを精密に測定するシステムが構築された。さらに、秒単位で構造変化が起こる試料を測定したり、温度や圧力などが変化する際の構造変化を効率的に検出したりするため、特定のピークの強度を連続的にモニターする機能が付与された。

2-b) ガス雰囲気下実験システム的设计、作成と立ち上げ

BL02B2 における高分解能粉末回折データのガス吸着その場測定は 2002 年より始まっているが、これまではガス導入ラインのリークチェックやこれらを回折計に設置する際に特別なアタッチメントが必要で光軸調整に時間がかかること、共用設備として整備されていないこと、リモート制御が難しいことが問題となっていた。本 PU 期間中に、新しいガス吸着用試料ホルダーとガス導入ラインが開発され、標準的回折計ステージに取り付け可能となり、数時間を要していた装置の立ち上げ時間が約 10 分へと大幅に短縮化された。そして、最終的に測定プログラムと連動した自動測定を可能にすることを目指し、2016A 期に BL 担当者と PU が協力して新しいガス導入その場測定システムの作製を開始した。実験におけるガス導入・排気手順を踏まえてバルブや圧力計などの配置を検討し、プログラムによりガス圧力を制御しながら粉末回折データを測定できる状態になった。そして、より使いやすいシステムが構築できるよう BL 担当者に提言を行いながら、このプロトタイプ機器の共用を開始した。その後、バルブを順次自動制御弁に置き換え、マスフローコントローラも組み合わせることによりデータ測定プログラムと連動した自動測定が可能となった。ガスラインの加温システムやインライン温湿度計、溶

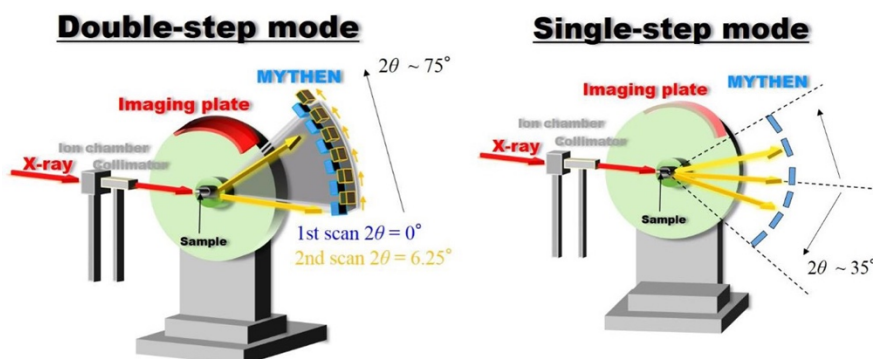


図 1 BLO2B2 の多連装半導体検出器システムに標準装備された 2 種類の測定モード。

媒蒸気の前処理や試料の加熱処理システムの導入など、オフライン機器についてもアップグレードや整備は現在に至るまで継続して実施されている。本装置によりユーザーはキャピラリに装填された試料を持参するだけで、様々なガス種で圧力と温度を精密制御した測定が容易にかつ迅速に行えるようになった。また、施設側と協力して汎用性の高い外場雰囲気制御装置を整備することにより、一般ユーザーによる独自のガス圧力制御装置の持ち込みはなくなり、ガス雰囲気下実験のハイスループット性、安全性が向上した。PUは実試料を用いたテスト測定として、ガス吸着プロファイルが良く分かっている多孔性配位高分子 CPL-1 を用いて、酸素吸着その場測定および結晶構造解析を行い、新しいその場測定システムの動作・性能確認を行った (Kawaguchi *et al.* 2017)。また、ユーザー支援課題において利用指導を行った。これらの支援活動の中でユーザーフレンドリーなシステムを念頭に置きながら操作環境の整備にも貢献したことにより、新しいシステムを用いて、多孔性配位高分子のガス吸着状態や合金ナノ粒子の水素吸蔵・放出、触媒特性の研究を始め多くの成果が創出され、今後もさらなるガス・蒸気雰囲気下実験の拡大が見込まれる。

2-c) 自動試料交換機とオンライン強度計測システムの整備

一次元半導体検出器のオンライン強度測定のポテンシャルを最大限に引き出すため、新しい自動試料交換機の導入 (30 または 50 試料が可能)、自動試料センタリング機構の開発、低温・高温 N_2 ガス吹付型温度制御装置との連携ソフトウェアの整備が行われた。実験ハッチの開閉を極力行うことなく多数の試料に対して温度制御が可能な回折実験が標準で実施できるようになった。

2-d) 高温電気炉の整備

酸化物材料などの特性を明らかにしたり、高温で起こる材料の化学反応機構を明らかにしたりするためには、 1000°C を超える高温環境が必要である。これを実現するため高温電気炉 (Anton Paar HTK 1200N with capillary extension) が導入された。BL 担当者により基本的なリモート制御システムと回折計に設

置するためのアタッチメントの開発が行われた。PUは、本装置の立ち上げ作業を行い、ガラスの結晶化や構造相転移する実試料の測定を行うことにより、装置の動作確認と装置の温度校正を行った。キャピラリに試料を装填した測定の場合には 1000°C まで、セラミックス材料などプレート状試料の測定を行う場合には 1200°C までの測定が可能となった。2015B 期後半から整備が行われ、2016A 期にはユーザー利用を開始した。

3) 研究成果

新しく導入された測定システムを活用した研究や支援を推進しながら、PU 独自の研究を行った。成果の一部を紹介する。

3-a) 超臨界ナノ材料合成の放射光その場観察装置の開発

超臨界水熱合成は、水の臨界点である 647.3 K 、 22.1 MPa 以上の温度圧力条件でナノ粒子を合成する手法である。ナノ粒子のサイズ・形状は温度・圧力などのパラメータに支配される。超臨界反応場の微視的な特性は未解明のままである。放射光粉末回折法を用いたその場観察により合成を原子スケールで追跡することで、反応場の微視的な特性の解明が期待できる。本研究では、BL02B2 における放射光その場観察用の装置を開発した。最適化した条件を用いて、 CeO_2 ナノ粒子の合成に対してその場観察測定を行った。

装置はサンプルセルと高圧ポンプで構成される。セルは Iversen ら (Aarhus 大学) の装置を参考に設計した。水溶液を入れたキャピラリが圧力容器である。キャピラリの材料は温度 673 K 、圧力 35 MPa に耐える熔融石英である。キャピラリの左右に配管を接続し、BL の実験ハッチ外から加圧する。キャピラリを加熱することで水溶液中にナノ粒子が合成され、同時に放射光を照射してその場観察測定を行った。

CeO_2 ナノ粒子の水熱合成に対して、放射光その場観察測定を行った。プリカーサーとして $0.1\text{ M Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 水溶液を用いた。入射 X 線の波長は 0.44 \AA を選択した。1 回の測定時間は 20 秒で、これを連続して 90 回、180 回あるいは 270 回行った。リートベルト解析により、スケール因子、格子定数、ピークの半値幅関数を決定した。

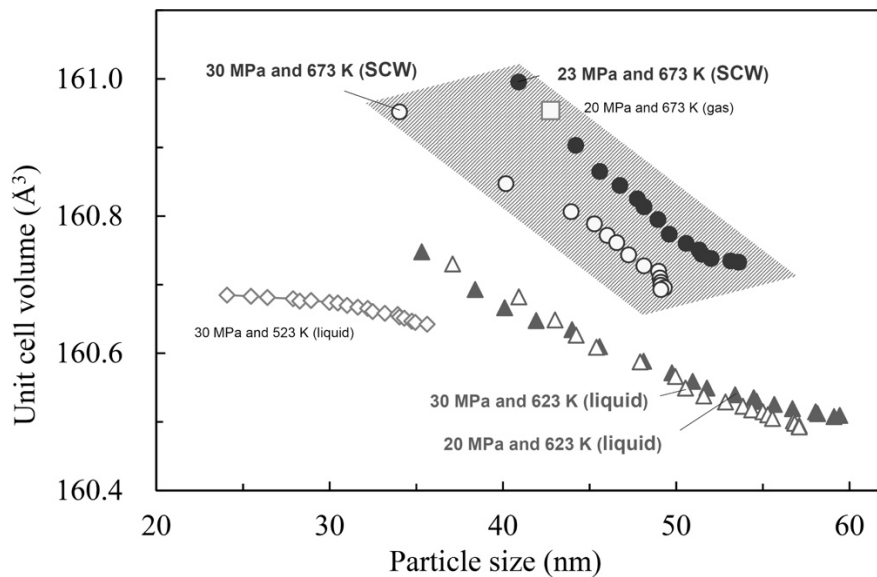


図2 CeO₂の単位胞体積の粒子サイズ依存性。

図2に単位胞体積の粒子サイズ依存性を示す。単位胞体積は格子定数から計算した。気相条件と液相条件では、同一の粒子サイズに対して単位胞体積が約0.3 Å³異なった。超臨界条件の結果は液相と気相の間に位置した。超臨界条件と液相条件では、単位胞体積の異なる圧力依存性が得られた。47 nmの粒子サイズにおいて、液相条件では10 MPaの圧力変化に対して単位胞体積がほとんど変化しなかったのに対し、超臨界条件では7 MPaの圧力変化に対して、0.1 Å³の相対的に敏感な圧力応答を観測した。

3-b) Hofmann型多孔性配位高分子のガス吸着構造解析

[M1(pz)M2(CN)₄] (pz = pyrazine, M1 = Fe, Co, Ni, M2 = Pt, Pd) と表される Hofmann 型多孔性配位高分子は、図3のような結晶構造を持ち、吸着分子の種類によるスピン転移の挙動の変化や、吸着量に伴う転移温度の連続的な変化など、ゲスト分子吸着による磁気物性の制御の観点から多くの研究がされている。一方で、多孔性配位高分子の物性に影響を与える因子として、骨格構造の金属イオンの置換がある。[M1(pz)Pt(CN)₄]化合物は、酸素吸着等温測定において、単位格子当たりCoおよびNi化合物では最大3分子、Fe化合物では最大2分子の酸素分子を吸着した。このガス吸着量の違いを理解するために、本研究ではBL02B2において、Co(pz)[Pt(CN)₄]およびFe(pz)[Pt(CN)₄]に対して、高性能化された計測システムを用いてガス

吸着下放射光粉末回折実験を行い、粉末X線結晶構造解析により結晶構造とガス吸着特性の関係を明らかにすることを目的とした。

酸素吸着の参照として調べた窒素吸着状態では、いずれの化合物においても窒素分子は細孔内で平行に配列し、その分子間距離は分子同士がちょうど接触するくらいの距離であった。また、ピラーのピラジン分子はゲスト分子を避ける方向に配向していた。酸素分

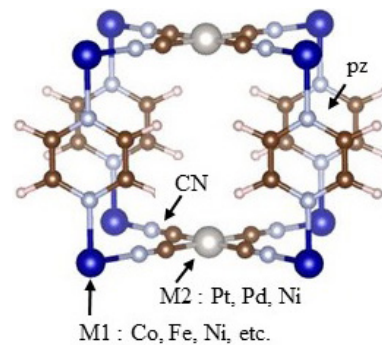


図3 Hofmann型多孔性配位高分子の結晶構造。

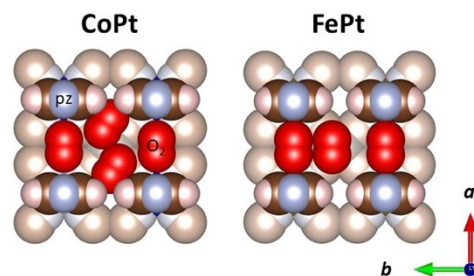


図4 CoおよびFe化合物の酸素吸着構造。酸素分子とpzピラー分子の面を示している。

子は窒素分子に比べてわずかに小さいが、Fe 化合物は測定温度において低スピン状態にあり、単位格子が3~5%小さくなっていた。そのため、図4に示すように酸素分子は窒素分子と同様な平行配列となっていた。ただし、分子間距離は短い部分と長い部分が混在していると思われる。一方、Co 化合物では、窒素分子に比べて酸素分子が入る空間は若干広いと、斜めにずれた平行配置をとり、窒素よりも1分子多く吸着されていると理解された。M2 = Pd の化合物についても同様な実験、解析を進めており、この系では、ゲスト分子と細孔の大きさのわずかな違いによって、吸着量と分子配列が決まっていることが分かりつつある。

3-c) 長尺 2θ アームを用いた高角度分解能測定による微小格子歪みの観測

FeV₂O₄ や CoV₂O₄ などのスピネル構造を持つバナジウム酸化物は温度降下に伴い多段の相転移を示す。これらは結晶構造の変化を伴った磁気秩序や軌道整列による相転移と考えられている。スピネル構造において八面体配位をとる V³⁺ イオンは t_{2g} 軌道に軌道自由度を持ち、軌道整列状態において 3d 電子がどの軌道を占有するかによって V-O 原子間距離が変化する。したがって、FeO₄ や VO₆ などの配位多面体の歪みを精度良く観測することにより間接的に軌道状態を推測することができる。本研究では、CoV₂O₄ およびその置換体の低温下における粉末結晶構造解析を行い、CoV₂O₄ における構造相転移の起源を明らかにすることを目的とした。

四面体配位サイトに遷移金属が入るスピネル酸化物は多数、構造・物性研究がなされているが、相転移に伴う格子歪みの大きさは、 $|1 - c/a|$ で 0.5~1.7% 程度の値をとる。ところが、CoV₂O₄ のそれは 0.06% 程度の極めて小さな値をとることが想定される。そのため微小な格子歪みを検知するために高角度分解能の回折データ測定が重要となる。本研究では、BL02B2 のデバイスレー回折計の 2θ アームにディフラクトメータ半径 1,146 mm の位置に MYTHEN モジュールを設置して高角度分解能測定 ($\Delta d/d \sim 0.02\%$) を行った。回折線幅は半値全幅で、 $0.008 \sim 0.009^\circ$ であった。その結果、図5に示すように Cr 置換体 Co(Cr_xV_{1-x})₂O₄ の、軌道整列に伴う極めて小さな正方晶歪みを観測するこ

とに成功した。このような高分解能粉末回折および結晶構造解析と磁化測定データを基に Cr や Mn 置換体の構造・磁気相図を作成した。そして、CoV₂O₄ の低温における2つの構造相転移がこの物質に固有のものであり、それぞれの相転移において、collinear から non-collinear なフェリ磁性への磁気相転移、V³⁺ イオンの軌道整列が支配的であることが明らかになった。

3-d) 鉛フリー強誘電セラミックスの電場誘起歪み発現機構の解明

強誘電セラミックスに電場を印加するとセラミックス全体が伸び縮みする。このような性質は、超音波発振器など多くのデバイスに応用されている。多くの強誘電セラミックスの電場誘起歪みは、格子そのものの歪みではなく自発電気分極の反転や回転が巨視的歪みにより寄与するとされている。この研究では、新しく開発した鉛フリーの圧電材料 BaTiO₃-Bi(Mg_{1/2}Ti_{1/2})O₃-BiFeO₃ セラミックスの巨視的な電場誘起歪みの発現機構を明らかにすることを目的とし、外部電圧を印加しながら格子歪みを明らかにするため、

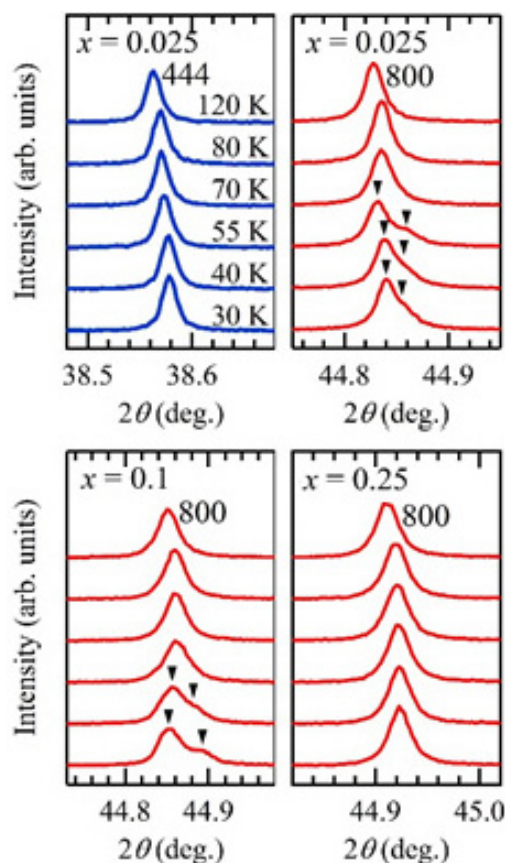


図5 Co(Cr_xV_{1-x})₂O₄ の回折プロファイルの温度依存性。

図6に示すような配置で、セラミックスに直流電場を印加しながら、一次元半導体検出器を用いて回折ピークシフトを観察した。その結果、巨視的な歪み-電場バタフライカーブと微視的な格子歪み-電場バタフライカーブは良く似ており、このセラミックスでは格子そのものが柔軟に伸び縮みすることにより巨視的歪みが発生することが明らかとなった。

このような電場下格子歪みの測定については、本PU期間の以前から測定を検討していた。しかし、イメージングプレート検出器は広い角度範囲の強度データを取得できる利点を持つ一方、角度分解能がやや劣ること、長時間の測定中に絶縁破壊が起こる場合があることから、わずかな格子歪みを迅速に検出することには困難があった。半導体検出器を用いてより高い角度分解能で測定を行うことにより、 10^{-5} ~ 10^{-6} オー

ダーの格子歪み-電場曲線を明らかにする測定を1シフト程度のビームタイムで実施できるようになった。今後、強誘電・圧電セラミックスの開発だけでなく、様々な材料やデバイス動作時の歪み測定への活用が期待される。

3-e) 溶液中イオン交換反応のその場観察 (Spring-8 publication ID = 39146)

水溶液中で触媒反応やイオン交換反応を示す化合物が数多く知られている。しかし、反応がどのように進行するか、中間生成物はあるのかなど、反応の最中に何が起きているのかについてはほとんど明らかにされていない。ここでは、水溶液中で層間に陰イオンを含む層状複水酸化物が別の陰イオンを含む溶液環境におかれたときどのようにイオン交換が進行する

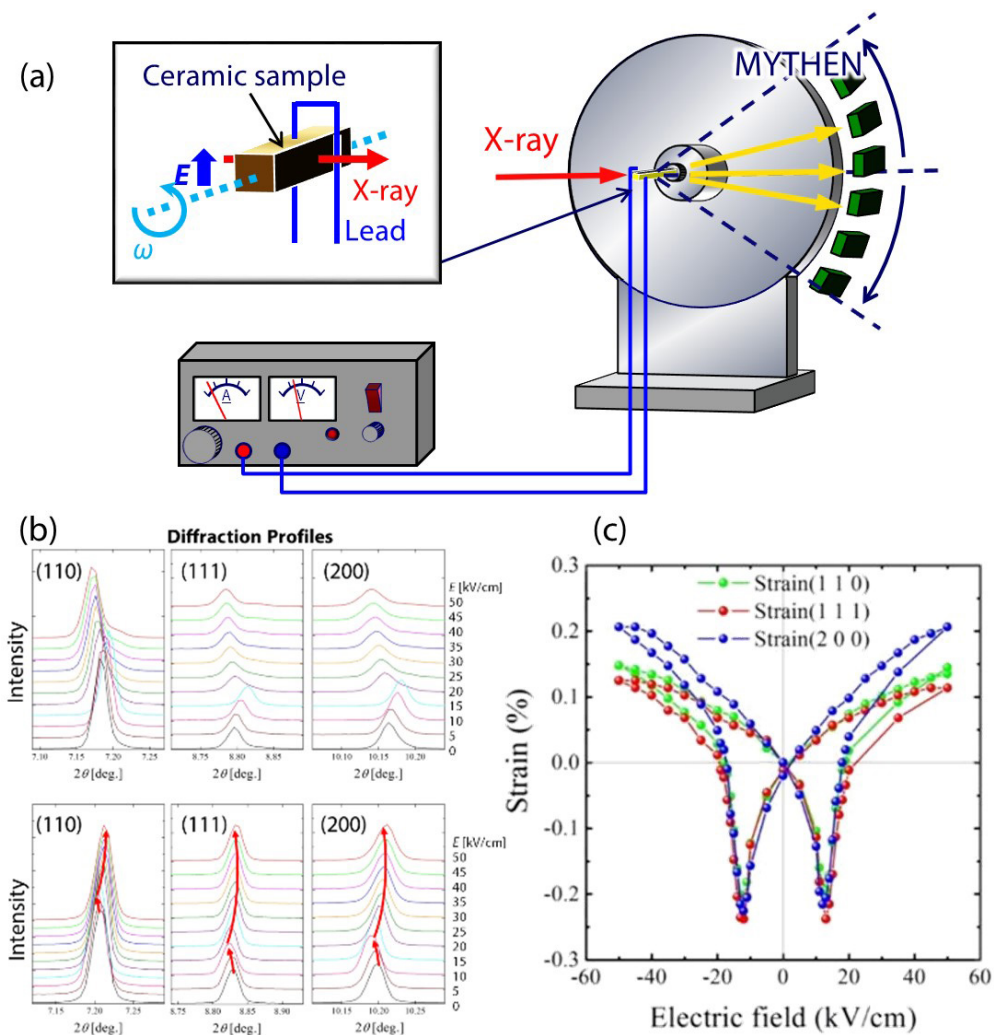


図6 (a) 圧電セラミックス試料の電場誘起格子歪み測定概念図。(b) 回折パターン電場変化の例。(c) 電場誘起格子歪みのバタフライカーブ。

かを調べるため、図7に示すような回折パターンの時間変化をミリ秒オーダーで測定する方法を検討した。試料を水などの溶媒に拡散して攪拌しながら、オートビュレットにより溶液を滴下し、その直後からの回折パターンを測定する。これにより、濃度の異なる溶液が滴下されたときの層状複水酸化物のイオン交換反応が進行する様子を観察した。

3-f) 未知構造決定と精密電子密度計測

3-f-1) 溶媒蒸気の識別が可能な新しい分子集合体材料を作成-取り込む分子に応じて蛍光が大きく変化する多孔性 dendrimer 結晶-

蛍光プローブは、神経ガスや重金属イオン、蛋白質、遺伝物質など、様々な分子の識別に用いられる。蛍光センシングは、蛍光消光、発現、強度変化、励起エネルギー移動型などのタイプに分けられる。蛍光発現型で、固体状態で使用可能な蛍光センサーは実用的に重要である。発光色変化を伴う蛍光センシングは、複数の検体を識別可能であることから、その特性を持つ材料開発が進められている。特に、表面積が大きくてナノメートルサイズのチャンネルを有する多孔性材料が、ガスや蒸気のセンシングで期待されている。

筑波大学物質工学域の山本洋平教授の研究グループは、 π 共役 dendrimer とよばれる巨大分子から、

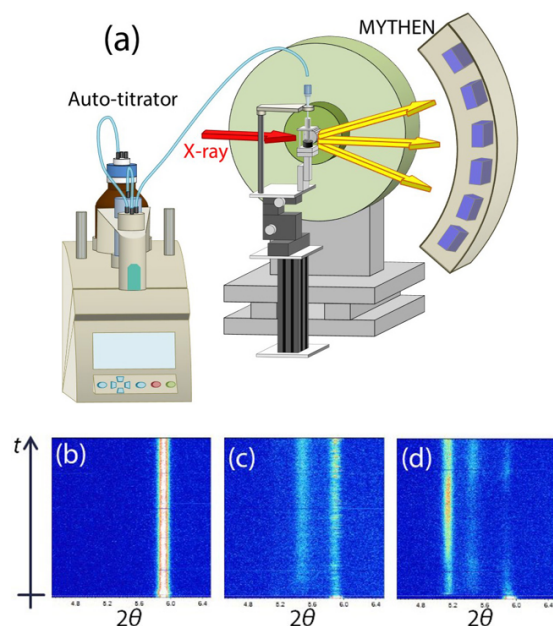


図7 (a) 溶液中イオン交換反応測定概念図。(b)、(c)、(d)はそれぞれ異なる濃度の溶液が滴下されたとき測定された層状化合物の回折パターンの時間変化。

多孔質の結晶性ファイバーを作成した。 dendrimer のコア部位には電子受容性のトリアジンが、シェル部位には電子供与性のカルバゾール dendrimer が用いられている。この分子は、熱活性化遅延蛍光を示し、塗布型有機 EL 素子のホール輸送層/発光層の応用が検討されている。溶液中における自己組織化挙動を検討した結果、蒸気拡散法によりファイバー状の構造体を形成することが分かった。

ファイバーの単結晶および粉末 X 線回折を SPring-8 の複数のビームライン BL02B1、BL02B2、BL26B2 を使用して行った。その結果、ファイバーは長軸方向に 1 次元のナノサイズのチャンネルを有することが明らかになった (図8)。

窒素ガス吸着測定より、このファイバーは $650 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上の BET 表面積を示した。この多孔性ファイバーを様々な溶媒蒸気に晒して蛍光観察を行ったところ、ほとんどの溶媒蒸気で蛍光発現が観測され、溶媒の種類により色が変化することが分かった。

3-f-2) アルミニウムの精密電子密度解析

アルミニウムは、非鉄金属の中で最大の産出量を持ち、窓のサッシから飛行機の部品まで幅広い産業応用を持つ重要な金属である。これまでの金属や合金の機械的性質の研究は、結晶の格子欠陥や組織構造と結び付けられてきた。しかし、欠陥や組織構造を持たない理想的な金属の性質は、量子力学的に決定されるべきである。

2000 年以降、計算科学や測定技術の進歩により、単純金属の電子分布と機械的性質との関係を量子力学的に理解しようと研究が進められている。特に、

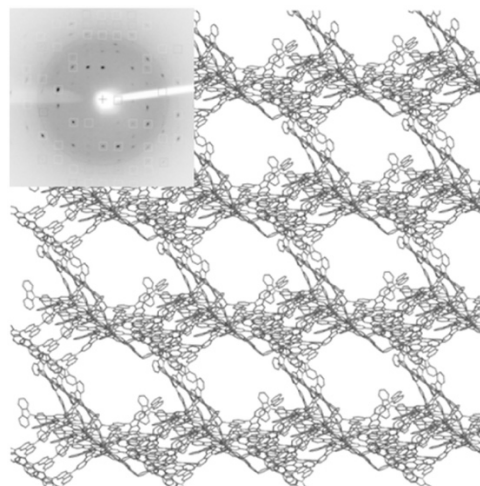


図8 1次元ナノチャンネルを持つ結晶構造。

2011年にアルミニウムの収束電子線回折で観測された電子分布において四面体サイトにおける電子のわずかな集積が、ほぼ自由な電子 (Nearly free electron: NFE) 近似で求めた電子分布からのずれとして観測された。この電子分布は第一原理計算でも予測され、現在、機械的性質との関係が提案されている。

2011年の研究では、収束電子線回折による電子分布の観測には、構造因子のうち最低次の2本のみが利用された。結晶全体の電子分布を表すには、最低次の2本のみでは不十分であるが残りは全てNFE近似と同じという仮定の基で電子分布が決定された。そこで本研究は、放射光を用いれば200本を超える構造因子の精密測定が可能なることに着目し、これを用いた電子分布の観測を行った。

BL02B2の大型デバイ・シェラーカメラで、30 K、波長0.328 Åの条件で粉末X線回折のデータを測定した。また、リートベルト法と多極子展開法の組み合わせにより、アルミニウムの電子分布を観測した。第一原理計算によりアルミニウムの電子分布を求め、観測値と比較した。

図9に、実験と理論計算でのアルミニウムの金属結合の電子分布を示す。どちらの結果でも、図中にアルミニウムの四面体サイトに、電子の集積によるピークが存在する。このピークは収束電子線回折や過去の理論計算で発見された電子の集積と一致した。ピークの高さを比較すると、実験の方が理論よりもわずかに高い値を示すことが分かった。

この高さの差の起源を調べるため、実験の金属結合の分布から計算の金属結合の分布を引き差分を調べた。その結果、アルミニウムの原子周りに、電子の集積による対称的な配置の原子軌道と類似した形状のピークが存在した。構造因子の値を詳細に調べたところ、実験構造因子も原子軌道的なモデルの値に近いこ

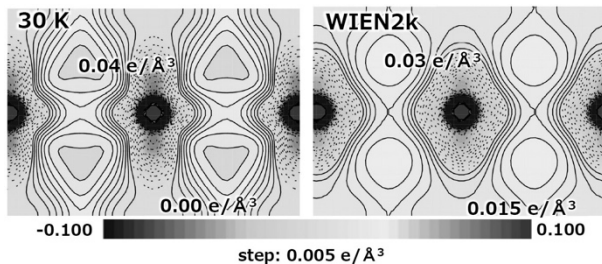


図9 実験と理論計算でのアルミニウムの金属結合の電子分布。

とが分かった。アルミニウムは、自由電子的なモデルで理解されてきたが、そのヤング率やせん断応力などの機械的特性は力を加える方向によって異なることが知られている。方向性を持った電子分布は、こうした機械的特性に説明を与えることを可能にする。

以上のように、新しく導入された多連装型半導体二次元検出器を活かした研究および既存のイメージングプレートを用いた研究のさらなる発展研究が行われた。さらに、本PU期間中にメンバーの久保田が2016年に、西堀が2017年にそれぞれ日本結晶学会学術賞を受賞した。

4) ユーザー支援

国内外の学会や講演会での講演、SPRING-8 シンポジウムやSPRUC 構造物性研究会などで成果発表、学協会での講習会、国内外の大学や研究機関および材料合成に関わる企業の研究者や開発担当者と打ち合わせなどの活動を行い、BL02B2の高度化内容および性能の周知を試みた。このような活動の結果、海外、企業、大学院生提案型課題などのユーザーを開拓した。また、BL02B2の既存ユーザーについても、多連装型検出器システムを活用することにより高分解能の放射光回折実験が従来よりもゆとりを持って実験できることが認識された。新規ユーザー、既存ユーザー共に、新しく導入した温度変化システム、ガス雰囲気下実験システム、高温電気炉の使用希望が拡大した。なお、ユーザーがこれらを利用して実験を行う際に要望を収集し、BL 担当者にフィードバックすることにより、よりユーザーフレンドリーなシステムが構築されただけでなく、ガス反応や溶液反応、化学反応中のX線回折によるその場観測などについて、新たな研究テーマが開発された。

支援課題の件数は、2015A~2016B期は33課題、2017A~2018Bは38課題であった。多孔性配位高分子のガス吸着実験、酸化物の基礎物性、新しい高温超伝導体の伝導メカニズムと結晶構造との相関、形状記憶合金の構造物性、触媒などの機能を示すナノシートの創出に向けた結晶化学、イオン交換物質、グリーンエネルギー変換材料の結晶化学、準結晶の構造科学、高効率の誘電・圧電セラミック材料開発のための構造物性研究、溶液反応実験のその場観測、電場印加構

造計測、超精密電子密度解析のための精密強度計測など、PU によるユーザー開拓と支援により多種多様な分野の測定が行われ、多くの成果が創出された。

5) 共用粉末回折 BL として期待される BL02B2 の今後の発展

本 PU 期間前半に行われた BL02B2 の高度化により、ユーザーのニーズが本質的に変化した。シンプルな温度変化測定だけではなく、様々な外場や環境下でのその場粉末回折計測に関する利用研究が増加し、約半数を占めるまでになった。数年前まではその場計測に関係する実験課題は 1~2 割程度であったことから、この新しいシステムがもたらした変革は大きく、本 PU の目指した目的の大部分は達成されたと考える。高度な実験を当たり前に行えるような、かつユーザーフレンドリーな実験ステーション環境を整えることが共用粉末回折 BL として求められる姿であると強く認識した。今後も in-situ や operando をキーワードとしたその場計測研究はさらに拡大すると予想される。このようなニーズを引き出し、かつシーズを創出するためには、SPring-8 の強みである高エネルギーの X 線を用いた広い逆空間領域でのデータを短時間で測定することが重要で、これが他の放射光施設との差別化につながると考える。学協会のアンケートの実施結果を参考にすると、サイズの大きな試料やバルク試料、重元素を主成分とする材料や溶液などに関する、多様な環境下でのその場計測や時間分解での構造計測に関する多くの要望が既に寄せられている。今後、国際動向も十分視野に入れながら BL02B2 の高度化と利用研究に取り組むことを目的とし、2019A 期より Aarhus 大学のメンバーを加えて新たな PU 課題「外場変化物質科学研究を実現する高エネルギー X 線多目的一次元回折」をスタートした。さらなる発展を目指したい。

(3) 成果リスト (査読付き論文)

SPring-8 利用研究成果登録データベースに登録済みで、PU 課題番号が関連づけられた査読付き論文のみを掲載します (その他、PU として支援した一般課題の発表論文やポスター発表、受賞歴など多数の成果がありますが、掲載スペースの都合上割愛しています)。

- [1] SPring-8 publication ID = 31176
I. Fujii *et al.* “Electric Field Induced Lattice Strain in Pseudocubic $\text{Bi}(\text{Mg}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ -modified BaTiO_3 - BiFeO_3 Piezoelectric Ceramics” *Applied Physics Letters* **108** (2016) 172903.
- [2] SPring-8 publication ID = 31418
H. Kasai *et al.* “Multiple Powder Diffraction Data for an Accurate Charge Density Study using Synchrotron Radiation X-ray” *Physica Scripta* **91** (2016) 043009.
- [3] SPring-8 publication ID = 31419
H. Tanaka *et al.* “Metal-Semiconductor Transition Concomitant with a Structural Transformation in Tetrahedrite $\text{Cu}_{12}\text{Sb}_4\text{S}_{13}$ ” *Journal of the Physical Society of Japan* **85** (2016) 014703.
- [4] SPring-8 publication ID = 31420
B. Zhou *et al.* “A Single-component Molecular Conductor with Metal-Metal Bonding, $[\text{Pd}(\text{hfdt})_2]$ (hfdt: bis(trifluoromethyl)tetrathiafulvalenedithiolate)” *Chemistry Letters* **45** (2016) 303-305.
- [5] SPring-8 publication ID = 32113
S. Takeda *et al.* “Off-Centering of Rare-Earth Ion in $(\text{Ba},\text{R})(\text{Ti},\text{Mg})\text{O}_3$ (R = Gd, Dy)” *Japanese Journal of Applied Physics* **55** (2016) 10TC08.
- [6] SPring-8 publication ID = 32498
B. Liu *et al.* “Unconventional Luminescent Centers in Metastable Phases Created by Topochemical Reduction Reactions” *Angewandte Chemie International Edition* **55** (2016) 4967-4971.
- [7] SPring-8 publication ID = 32829
H. Kasai *et al.* “Spatial Distribution of Electrons Near the Fermi Level in the Metallic LaB_6 through Accurate X-ray Charge Density Study” *Scientific Reports* **7** (2017) 41375.
- [8] SPring-8 publication ID = 33345
K. Moriai *et al.* “Synthesis of TiO_2 Nanotubes: Effect of Post-treatment on Crystallinity and Photocatalytic Activity” *Materials Research Express* **4** (2017) 045017.
- [9] SPring-8 publication ID = 34719
S. Takeda *et al.* “Structure Fluctuation in Gd- and Mg-Substituted BaTiO_3 with Cubic Structure” *Japanese Journal of Applied Physics* **56** (2017) 10PB10.
- [10] SPring-8 publication ID = 35131
Y. Maeda *et al.* “Improper Ferroelectricity in Studied Aluminate Sodalite for Pyroelectric Energy Harvesting” *Physical Review Applied* **7** (2017) 034012.

- [11] SPring-8 publication ID = 35487
H. Nishino *et al.* “Formation and Characterization of Hydrogen Boride Sheets Derived from MgB₂ by Cation Exchange” *Journal of the American Chemical Society* **139** (2017) 13761-13769.
- [12] SPring-8 publication ID = 35488
T. Tsukamoto *et al.* “Mechano-, Thermo-, Solvato-, and Vapochromism in Bis(acetato-*κ*O)[4'-(4-(diphenylamino)phenyl)](2,2':6'2"-terpyridine-*κ*³N,N',N")zinc(II) and Its Polymer” *Chemical Communications* **53** (2017) 9805-9808.
- [13] SPring-8 publication ID = 35491
T. Tsukamoto *et al.* “A Simple Zinc(II) Complex that Features Multi-Functional Luminochromism Induced by Reversible Ligand Dissociation” *Chemical Communications* **53** (2017) 3657-3660.
- [14] SPring-8 publication ID = 35555
K. Suekuni *et al.* “Retreat from Stress: Rattling in a Planar Coordination” *Advanced Materials* **30** (2018) 1706230.
- [15] SPring-8 publication ID = 35556
S. Nakajima *et al.* “A Fluorescent Microporous Crystalline Dendrimer Discriminates Vapour Molecules” *Chemical Communications* **54** (2018) 2534-2537.
- [16] SPring-8 publication ID = 36245
S. Kim *et al.* “Structural and Electrical Characteristics of Potential Candidate Lead-Free BiFeO₃-BaTiO₃ Piezoelectric Ceramics” *Journal of Applied Physics* **122** (2017) 164105.
- [17] SPring-8 publication ID = 36625
T. Sasaki *et al.* “Tightly Binding Valence Electron in Aluminum Observed through X-ray Charge Density Study” *Scientific Reports* **8** (2018) 11964.
- [18] SPring-8 publication ID = 36692
K. Kanazawa *et al.* “Mechanochemical Synthesis and Characterization of Metastable Hexagonal Li₄SnS₄ Solid Electrolyte” *Inorganic Chemistry* **57** (2018) 9925-9930.
- [19] SPring-8 publication ID = 36714
Z. Zhang *et al.* “Study of Materials Structure Physics of Isomorphic LiNbO₃ and LiTaO₃ Ferroelectrics by Synchrotron Radiation X-ray Diffraction” *Japanese Journal of Applied Physics* **57** (2018) 11UB04.
- [20] SPring-8 publication ID = 36715
Z. Zhang *et al.* “Synchrotron-Radiation X-ray Diffraction Evidence of the Emergence of Ferroelectricity in LiTaO₃ by Ordering of a Disordered Li Ion in the Polar Direction” *Applied Physics Express* **11** (2018) 071501.
- [21] SPring-8 publication ID = 37145
L. Song *et al.* “Enhanced Thermoelectric Performance and High-Temperature Thermal Stability of P-type Ag-doped β-Zn₄Sb₃” *Journal of Materials Chemistry A* **6** (2018) 4079-4087.
- [22] SPring-8 publication ID = 37503
E. Nishibori *et al.* “Structure Factors and Charge-Density Study of Diamond at 800 K” *Acta Crystallographica Section B* **74** (2018) 651-659.
- [23] SPring-8 publication ID = 37504
K. Suekuni *et al.* “Atomic-Scale Phonon Scatterers in Thermoelectric Colusites with a Tetrahedral Framework Structure” *Journal of Materials Chemistry A* **7** (2019) 228-235.
- [24] SPring-8 publication ID = 37505
T. Usuki *et al.* “Effects of Substituents on the Blue Luminescence of Disilane-Linked Donor-Acceptor-Donor Triads” *Molecules* **24** (2019) 521.
- [25] SPring-8 publication ID = 37538
Y. Zheng *et al.* “Extraordinary Thermoelectric Performance in MgAgSb Alloy with Ultralow Thermal Conductivity” *Nano Energy* **59** (2019) 311-320.
- [26] SPring-8 publication ID = 37582
S. Shimono *et al.* “Phase Transitions with Extremely Small Tetragonal Distortion in Substitution Systems of CoV₂O₄ by High-Angular-Resolution Synchrotron Powder Diffraction” *Journal of Solid State Chemistry* **273** (2019) 37-44.
- [27] SPring-8 publication ID = 37681
B. Zhou *et al.* “Single-Component Molecular Conductor [Pt(dmdt)₂]-a Three-Dimensional Ambient-Pressure Molecular Dirac Electron System” *Chemical Communications* **55** (2019) 3327-3330.
- [28] SPring-8 publication ID = 37682
S. Shimono “Phase Transitions and Orbital Order in Vanadium Spinel Oxide CoV₂O₄” *Doctoral Thesis* (Osaka Prefectural University) (2019).
- [29] SPring-8 publication ID = 38603
K. Kifune *et al.* “Boundaries of the X Phases in Sb-Te and Bi-Te Binary Alloy Systems” *Crystals* **9** (2019) 447.
- [30] SPring-8 publication ID = 38607
C. Liu *et al.* “Dynamic Ag⁺-Intercalation with AgSnSe₂ Nano-Precipitates in Cl-Doped Polycrystalline SnSe₂ toward Ultra-High Thermoelectric Performance” *Journal of Materials Chemistry A* **7** (2019) 9761-9772.

[31] SPring-8 publication ID = 38608

L. Qu *et al.* "Porous Molecular Conductor: Electrochemical Fabrication of Through-Space Conduction Pathways among Linear Coordination Polymers" *Journal of the American Chemical Society* **141** (2019) 6802-6806.

[32] SPring-8 publication ID = 39146

R. Sasai *et al.* "Development of a Novel Time-Resolved Synchrotron-Radiation X-ray Diffraction Measurement System for In Situ Observation of Crystal Structure in Aqueous Solution during Chemical Reaction: Application to the Anion-Exchange Reaction of a Layered Double Hydroxide from Chloride to Nitrate" *Bulletin of the Chemical Society of Japan* **92** (2019) 1986-1992.

[33] SPring-8 publication ID = 39430

S. Noda *et al.* "Structural Fluctuation of $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ in the Cubic Phase" *Japanese Journal of Applied Physics* **58** (2019) SLLA06.

森吉 千佳子 MORIYOSHI Chikako

広島大学 大学院理学研究科
〒739-8526 広島県東広島市鏡山 1-3-1
TEL : 082-424-7399
e-mail : moriyosi@sci.hiroshima-u.ac.jp

久保田 佳基 KUBOTA Yoshiki

大阪府立大学 大学院理学系研究科
〒599-8531 大阪府堺市中区学園町 1-1
TEL : 072-254-9193
e-mail : kubotay@p.s.osakafu-u.ac.jp

西堀 英治 NISHIBORI Eiji

筑波大学 数理物質系/エネルギー物質科学研究センター
〒305-8571 茨城県つくば市天王台 1-1-1
TEL : 029-853-6118
e-mail : nishibori.eiji.ga@u.tsukuba.ac.jp

2015 年度指定パートナーユーザー活動報告 2

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

愛媛大学 地球深部ダイナミクス研究センター
入船 徹男

(1)

指定時PU 課題番号/ビームライン	2015A0075/BL04B1								
PU 氏名 (所属)	入船 徹男 (愛媛大学)								
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								
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								
利用研究支援	当該装置を用いた利用実験の支援								
利用期	15A	15B	16A	16B	17A	17B	18A	18B	合計
PU 課題実施シフト数	51	50.75	53.625	49.75	41.75	47.375	44.375	47.875	386.5
支援課題数	0	0	0	1	0	2	2	2	7

(2) PU 活動概要

本PU 活動においては、BL04B1 に設置されている大容量川井型マルチアンビル超高压装置 (KMA) を活用した、地球及び関連物質の高温高压下での結晶構造変化の精密測定や多様な物性測定のため、(1) 超高压装置・光学系の高度化と関連技術の開発を行い、(2) これを用いた地球深部物質の変形・破壊実験や弾性波速度測定などの先端研究を推進する一方で、(3) 関連分野及び他分野のユーザー支援も行った。以下にこれら3 項目に関する活動の概要を報告する。

1) 超高压装置・光学系の高度化と関連技術開発

光学系の高度化

2 次元回折システムの高度化及び新たな光学系 (図1) の導入を行い、より高速かつ高品質な回折データ収集を可能とした。この結果、応力及び歪の測定が効率的に行えるようになり、高温高压下における岩石の変形及び破壊物性評価が高い時間分解能にて評価できるようになった。従来は、単色 X 線の光軸上に大型の 2 次元 X 線 CCD を出し入れすることで、応力及び歪の測定を行ってきた。しかしこれには毎回数分程度

の時間を消費するため、数十分～数時間の岩石変形実験における応力・歪測定の時間分解能を低下させる要因となっていた。本光学系の導入によって、応力・歪測定のたびに大型の 2 次元 X 線 CCD を出し入れする必要がなくなったため、1 回に必要な 10 分程度の応力・歪測定において 3 分程度の時間節約が可能となった。この結果、応力及び歪の測定が効率的に行えるようになり、高温高压下における岩石の変形及び破壊物性評価が高い時間分解能にて評価できるようになった。

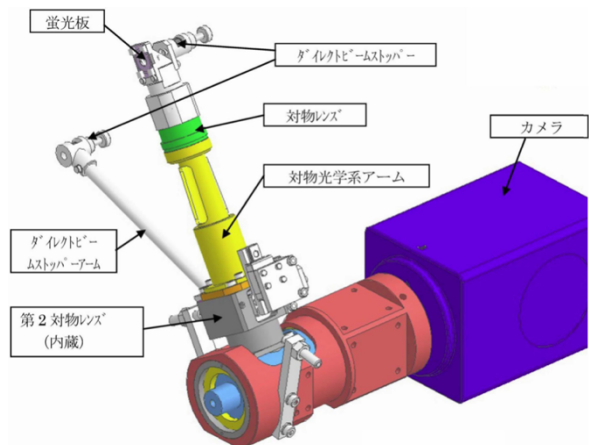


図1 BL04B1 に設置した、X 線カメラ及び 2 次元 X 線 CCD 用の単色 X 線用光学系。

微小超音波信号検出システムの改良

超音波測定システムをハッチ内に移設し、電気的ノイズ軽減の措置を講じることで、より高精度の音速測定が可能となる実験環境を実現した。また、最新のオシロスコープ及び波形発生装置をビームラインに導入するとともに、耐ノイズ性の同軸ケーブルを導入することによって、高温高压下において測定される弾性波のシグナル／ノイズ比を改善することに成功した。これらにより、下部マントル上部の 30 万気圧領域までの弾性波速度精密測定を可能にした。

新規超硬物質の超高压発生技術への応用

PU 側が開発・導入した新しい超硬合金 (WC) や焼結ダイヤモンド (SD)、ナノ多結晶ダイヤモンド (NPD = ヒメダイヤ) などを用いた、KMA による発生可能圧力・温度領域の拡大を行った。WC に関しては、企業との共同研究の結果、生み出された新たな製品を用いて、従来の KMA による限界 (40 GPa 程度) を大きく打破する 50 GPa 領域の圧力発生を可能にした。また、SD アンビルを用いた実験では、高温発生技術の開発に取り組み、70 GPa 領域で 2300 K の安定的な高温発生とともに、このような領域での X 線その場観察実験を可能にした。更に NPD アンビルを用いた圧力発生技術の開発を行い、SD アンビルを用いた場合に比べてはるかに効率よく、最大 88 GPa までの圧力発生が可能であることを明らかにした (図 2)。

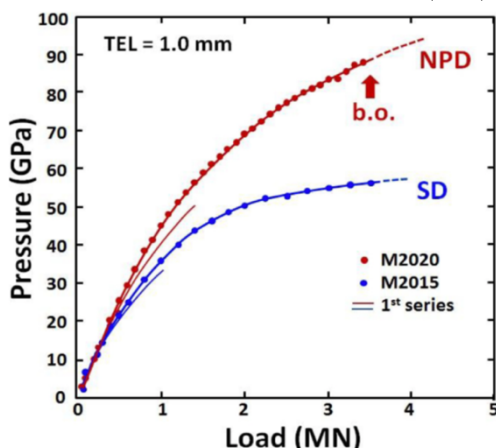


図 2 NPD アンビルにより達成した、88 GPa の発生圧力。SD アンビルと比べ、より高い圧力発生効率を実現している (Irifune *et al.*: *C. R. Geosci.*, 2019)。b.o. = blow-out による実験終了、M2015、M2020 = 実験番号、1st series = 最初の予備的実験、TEL = アンビルトランケーションサイズ。

高压変形下における AE 測定技術の開発

自動車で運搬可能なコンパクトな微小破壊音 (アコースティックエミッション=AE) 測定システムを導入した (図 3)。本システムは波形収集記録装置とプリアンプ、発振器、ノイズフィルタから構成される。SPring-8 をはじめとした放射光施設においては環境由来のノイズが多いため、それが AE 波形に悪影響を与えることが問題となっていた。ノイズは AE 波形から初動時刻を決定する際に誤差を増大させるといった問題を引き起こすため、高压下の直径数 mm 程度の試料から発生する微弱な AE の 3 次元震源位置を精密に決定する上で、ノイズの影響を軽減することは技術的に重要である。このノイズ問題の対策として、シグナル／ノイズ比を高くするために高性能のプリアンプ (及び同軸ケーブル) を用いること、及び測定系のインピーダンスの整合化が重要であることが分かり、本 PU 活動において、空間分解能 ±1 mm 程度の AE 震源位置決定精度を有する測定システムの開発に成功した。

その他の技術開発

熱電対は高温高压実験での温度測定に幅広く用いられているが、その起電力への圧力の効果は 3 GPa を越える高压下ではよく分かっていない。このため、こ

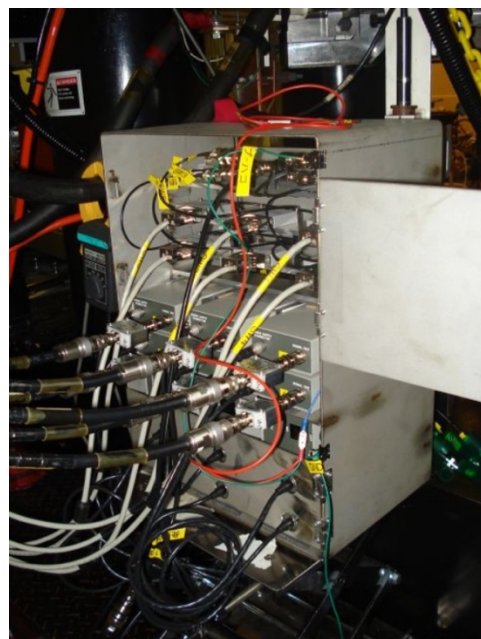


図 3 BL04B1 に設置した、ハッチ内外を結ぶ同軸ケーブルと AE 信号増幅用プリアンプ。

これらの実験に基づいた温度の見積もりは大きな不確定性を持っている。本PUでは、単線法により熱電対起電力の圧力効果を決定するための新しい実験手法を開発した。大容量KMAを用いることにより、従来の圧力を越える高圧下で起電力測定を行い、同時に放射光 X 線を用いることにより単線上の圧力経路の定量的測定を実現した。この方法に基づいた実験によって得られた 7 GPa、600°C までのクロメルとアルメルのゼーベック係数の圧力効果は過去の低温・低圧での結果と調和的であった。

2) 大容量 KMA による先端的地球深部科学研究の推進 地球深部物質のレオロジー物性の解明

地球内核を構成していると考えられる六方最密充填 (hcp) -Fe の格子選択配向を解明することを目的として Fe 及びアナログ物質である Zn の変形実験を、BL04B1 に設置の D-DIA 型変形実験装置 MADONNA を用いて高温高圧下にて行った。これまでの我々のせん断変形実験からは、hcp-Fe の主要なすべり系は底面すべりであることが示唆されている。新たに行った一軸圧縮及び一軸引張実験により得られた選択配向はこの考えと調和的であった (図 4)。比較的低压で行われた Zn を用いたせん断変形実験では、理想的な方位を持った底面すべりの選択配向が得られた。このことはこれまでの hcp-Fe のせん断変形では高圧下のために一軸圧縮成分を含んでいたことを示唆する。以上の結果を総合的に判断して、hcp-Fe の主要なすべり系が底面すべりであると結論づけた。

このことは、地球内核の複雑な地震波速度異方性を理解する上で鍵となる物質科学的情報である。

また、hcp-Fe の流動則の決定を目指して、一軸圧縮変形実験を行った。圧力 17–18 GPa、温度 150–450°C の条件下で、温度ステップ実験と歪速度ステップ実験を行い、各ステップにおける歪速度と定常応力を測定した。その結果、本実験のような低温条件では hcp-Fe の流動強度は温度や歪速度にあまり強く依存せず、その値は 2–3 GPa 程度であった。

この他、地球型惑星においてプレートテクトニクスが起きるかどうかを左右するパラメータである、プレートの強度を実験的に決定すべく、地球の上部マントルの温度圧力条件下における斜方輝石 (上部マントルにおいてカンラン石に次いで 2 番目に多い鉱物) の流動則の決定を目指した実験も行った。

下部マントル条件下での弾性波速度測定

WC アンビルを用いた KMA と、本PUで高度化した超音波速度測定システムを用いて、未分化マントルの代表的化学組成であるパイロライト組成の試料 (ブリッジマナイト + フェロペリクレス + カルシウムペロブスカイト) の弾性波速度を、上部マントルから下部マントル最上部に相当する高温高圧下 (最高 28 GPa、1700 K) で測定した。この結果、パイロライトの弾性波速度は、代表的な地震波速度モデルである PREM とよく一致した。また、これまで測定が困難であったカルシウムペロブスカイトに対して、マントル遷移層下部～下部マントル最上部条件下での弾性波

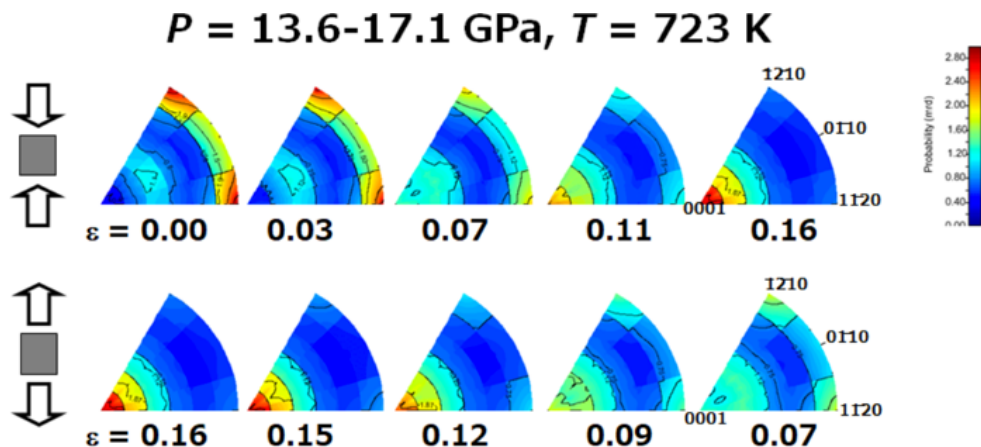


図4 高温高圧下での圧縮及び引張試験に伴う hcp-Fe の結晶選択配向 (Nishihara *et al.* *Earth Planet. Sci. Lett.*, 2017) 。 ϵ = 歪。

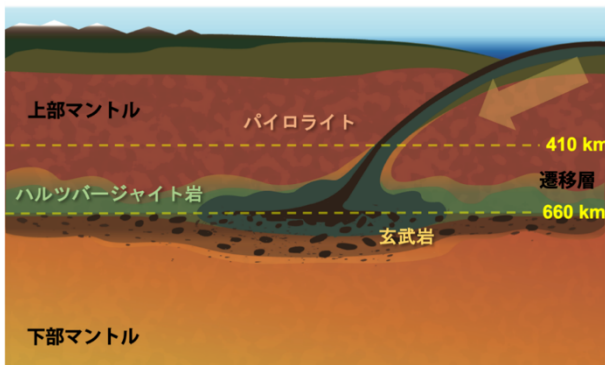


図5 弾性波速度測定結果に基づく最上部マントル物質構成の新しいモデル (Greaves, Irifune *et al.*: *Nature*, 2019)。

速度を明らかにした。この結果から、下部マントル最上部に玄武岩的組成の物質が存在することを予測した (図5)。

また、下部マントルの主要構成鉱物であるブリッジマナイトの弾性波速度における水の影響を明らかにする実験を、約 20 GPa、900 K の条件下までで行った。測定はブリッジマナイト準安定領域内での P-V-T-Vp-Vs データ収集であり、温度は 900 K までに限定した。予備的な結果であるが、水の影響によりブリッジマナイトの P 波速度・S 波速度とも遅くなることが明らかとなった。

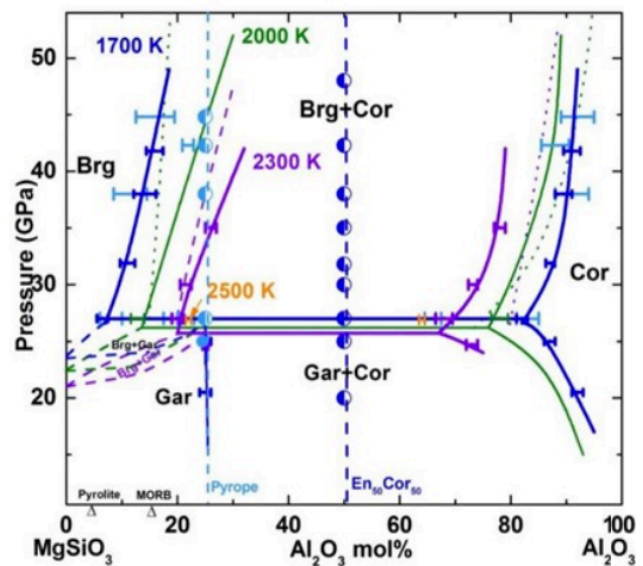
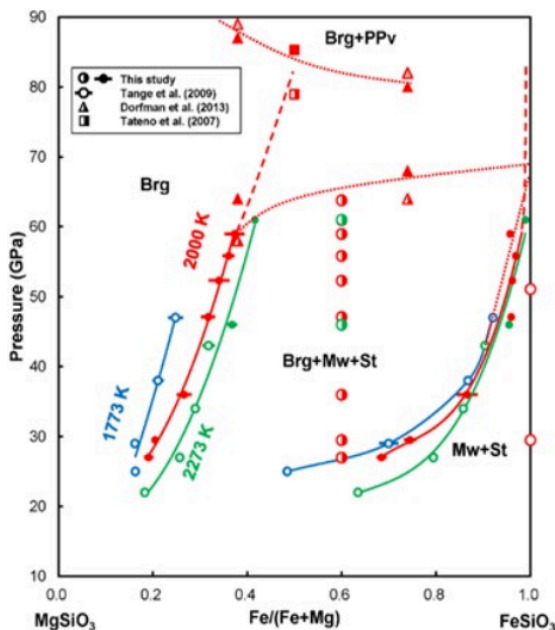


図6 下部マントルの主要鉱物である $\text{MgSiO}_3\text{-FeSiO}_3$ 系 (左: Arimoto, Irifune *et al.*: *Phys. Earth Planet. Inter.*, 2019) 及び $\text{MgSiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ 系 (Liu, Nishi *et al.*: *J. Geophys. Res.*, 2017) の相関係。

SD アンビルによる下部マントル条件下の相変化・密度変化

PU で開発された SD アンビルを用いた KMA 実験による高温高压実験技術に基づき、下部マントル領域での相平衡実験及びマントル鉱物の状態方程式の精密決定を行った。FeOOH の相平衡実験の結果、55 GPa、1000 K 付近で FeOOH の 9% 程度の急激な体積減少が観察され、これが Fe のスピン転移によることを明らかにした。また同様に、Fe を含む AlOOH 高压相や phase H においても鉄のスピン転移による大きな密度減少が確認され、このような体積減少は地球内部物質を想定した多成分系でも起こりうる現象であることを示した。

一方で、コランダム圧媒体の使用とセル形状の最適化により可能となった 60–70 GPa 領域の安定加熱技術に基づき、 $\text{MgSiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ 系や、 $\text{MgSiO}_3\text{-FeSiO}_3$ 系の相関係を高温高压下で精密に決定した (図6)。一方で新たに開発した放射光 X 線その場観察における閉鎖系実験法を用いて、Al に富む含水ブリッジマナイトの状態方程式の決定を試みた。30–40 GPa、300–1500 K の条件でデータ取得に成功し、Al に富む含水ブリッジマナイトの熱弾性特性を決定することを可能とした。

高圧下変形実験による稍深発・深発地震の発生メカニズム

沈み込むスラブ内の深さ 40–150 km にて発生する稍深発地震の発生メカニズムを実験的に解明すべく、高温高圧下にて一軸圧縮変形を被るカンラン岩試料内に発生する AE 測定実験を行った (図 7)。600–950°C の温度条件において、低歪においては AE 発生を伴わない塑性変形が進行した一方で、高歪においては AE 発生を伴う塑性変形が進行し、最終的には破断面を形成した。一方、より高温側の 1000°C では AE 発生を伴う塑性変形が進行したものの、高歪において破断面形成は確認されなかった。更に高温の 1100°C では、AE 発生を伴わない塑性変形のみが進行した。これらの結果より、スラブ内地震は塑性変形に伴う微小クラックの形成に由来している可能性が示唆されるとともに、アセノスフェアに相当する高温領域では微小クラック形成が起きない (すなわち地震が起きない) ものと考えられる。回収試料中に発達した断層面を透過型電子顕微鏡にて観察した結果、カンラン石が部分溶融した痕跡 (溶融ガラス) が確認された。そのガラスの化学組成より、断層面において変形のエネルギーが局所集中した結果、断熱不安定現象が発生した結果、瞬間的に温度が 1840°C にまで上昇 (もとの温度は 900°C 以下) したことが明らかになった。

また、同様の実験を水に飽和したハルツバーガイトの一軸圧縮試験及び AE 測定実験を沈み込むスラブ内浅部条件下 (1–2 GPa、500–700°C) にて行った。いずれの場合でも、差応力が封圧を超えていないにもかかわらず断層形成に至ることが確認された他、AE をほとんど発生させずに断層すべりが起きる“サイレント地震”現象も確認された。また、上部マントル条件下 (2–5

GPa、900–1100°C) における斜方輝石多結晶体の変形実験も行った。

3) ユーザー支援活動

単色 X 線利用実験

既述の高度化にて導入した、「X 線カメラ及び 2 次元 X 線 CCD を共存させるための光学系」の利用を希望する一般ユーザーへの支援を行った。本 PU 期間中、BL04B1 の単色光学系のヘビーユーザーである岡山大学及び九州大学のグループは継続して本光学系を使用した。また、ドイツ連邦共和国バイロイト大学の川添氏 (現広島大学) へは、当光学系及び D-DIA 型変形試験機の使用に関する支援を継続的に行った。更に、独自の変形試験機を導入した堀田氏 (九州大学) へ技術的アドバイスなどを行ったが、堀田氏らのグループは現在も BL04B1 の継続的なユーザーとなっている。なお、これらの支援は、愛媛大学先進超高压科学研究拠点 (PRIUS) の利用を通じた形で行われた。

超音波測定実験

既述の高度化で導入した、「高圧下弾性波速度測定システム」の利用を希望する一般ユーザー (東北大学、東京大学、大阪大学などのグループ) への支援を行った。また、当初 PU メンバーであったが、PU 期間中に広島大学に異動となった井上氏へは重点的に支援を行った。この点は、井上氏は川添氏とともに広島大学にて高圧地球科学の研究拠点の構築を進めており、今後広島大学からの BL04B1 の利用拡大を図るため重要であると判断したためである。なお、これらの支援の一部は、PRIUS 利用を通じた形で行われた。

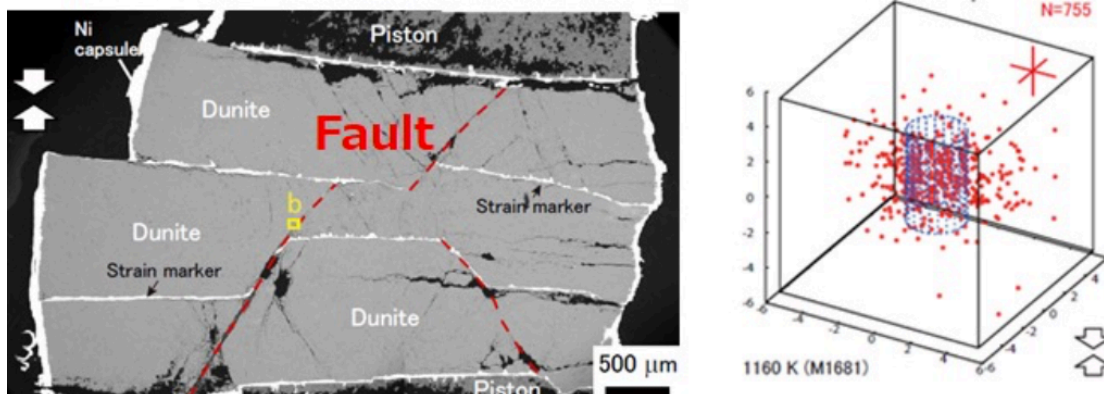


図 7 下部マントルの主要鉱物である $\text{MgSiO}_3\text{-FeSiO}_3$ 系 (左: Arimoto, Irifune *et al.*: *Phys. Earth Planet. Inter.*, 2019) 及び $\text{MgSiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ 系 (Liu, Nishi *et al.*: *J. Geophys. Res.*, 2017) の関係。右図の圧媒体は 1 辺 11 mm。

新素材アンビル利用実験

新しい WC アンビルに関しては、論文や学会発表を通じた情報開示により、BL04B1 ユーザーなどの利用を促進している。同じアンビルを用いてアンビルの形状やセル構成を工夫することにより、パイロイト大学のグループでは 60 GPa 領域の圧力発生も報告した。また NPD アンビルに関しては、PU としてこれを用いた技術開発を行うとともに、PRIUS 利用を通じて SPring-8 を含め国内外の多くのグループに提供して共同研究を進めた。

(3) 成果リスト (査読付き論文)

SPring-8 利用研究成果登録データベースに登録済みで、PU 課題番号が関連づけられた査読付き論文のみを掲載します (その他、PU として支援した一般課題の発表論文やポスター発表、受賞歴など多数の成果がありますが、掲載スペースの都合上割愛しています)。

- [1] SPring-8 publication ID = 31163
T. Kunimoto *et al.* “Pressure Generation to 50 GPa in Kawai-type Multianvil Apparatus using Newly Developed Tungsten Carbide Anvils” *High Pressure Research* **36** (2016) 97-104.
- [2] SPring-8 publication ID = 31189
Y. Nishihara *et al.* “Determination of Pressure Effect on Thermocouple Electromotive Force using Multi-Anvil Apparatus” *High Pressure Research* **36** (2016) 121-139.
- [3] SPring-8 publication ID = 31938
S. Gréaux *et al.* “Sound Velocities of Aluminum-Bearing Stishovite in the Mantle Transition Zone” *Geophysical Research Letters* **43** (2016) 4239-4246.
- [4] SPring-8 publication ID = 34614
T. Ohuchi *et al.* “Intermediate-Depth Earthquakes Linked to Localized Heating in Dunite and Harzburgite” *Nature Geoscience* **10** (2017) 771-776.
- [5] SPring-8 publication ID = 34615
T. Ohuchi *et al.*: “Flow behavior and microstructures of hydrous olivine aggregates at upper mantle pressures and temperature” *Contributions to Mineralogy and Petrology* **172** (2017) 65.
- [6] SPring-8 publication ID = 35385
Z. Liu *et al.* “Phase Relations in the System MgSiO₃-Al₂O₃ up to 2300 K at Lower Mantle Pressures” *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* **122** (2017) 7775-7788.

- [7] SPring-8 publication ID = 35791
Y. Nishihara *et al.* “Deformation-Induced Crystallographic-Preferred Orientation of hcp-iron: An Experimental Study using a Deformation-DIA Apparatus” *Earth and Planetary Science Letters* **490** (2018) 151-160.
- [8] SPring-8 publication ID = 37433
T. Ohuchi *et al.* “Semi-Brittle Behavior of Wet Olivine Aggregates: the Role of Aqueous Fluid in Faulting at Upper Mantle Pressures” *Contributions to Mineralogy and Petrology* **173** (2018) 88.
- [9] SPring-8 publication ID = 38625
T. Arimoto *et al.* “Phase Relations of MgSiO₃-FeSiO₃ System Up to 64 GPa and 2300 K Using Multianvil Apparatus with Sintered Diamond Anvils” *Physics of the Earth and Planetary Interiors* **295** (2019) 106297.
- [10] SPring-8 publication ID = 38892
M. Nishi *et al.* “Solid Solution and Compression Behavior of Hydroxides in the Lower Mantle” *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* **124** (2019) 10231-10239.
- [11] SPring-8 publication ID = 38893
M. Nishi *et al.* “Thermal Equation of State of MgSiO₄H₂ Phase H Determined by in situ X-ray Diffraction and a Multianvil Apparatus” *Physics and Chemistry of Minerals* **45** (2018) 99-1001.
- [12] SPring-8 publication ID = 38905
S. Gréaux *et al.* “Sound Velocity of CaSiO₃ Perovskite Suggests the Presence of Basaltic Crust in the Earth’s Lower Mantle” *Nature* **565** (2019) 218-221.
- [13] SPring-8 publication ID = 38913
T. Irifune *et al.* “High Pressure Generation in Kawai-type Multianvil Apparatus using Nano-Polystalline Diamond Anvils” *Comptes Rendus Geoscience* **351** (2019) 260-268.

入船 徹男 *IRIFUNE Tetsuo*

愛媛大学 地球深部ダイナミクス研究センター
〒790-8577 愛媛県松山市文京町 2-5
TEL : 089-927-9645
e-mail : irifune@dpc.ehime-u.ac.jp

長期利用課題報告 1

金属ハライドペロブスカイト成膜過程のリアルタイム X 線回折

国立研究開発法人産業技術総合研究所 太陽光発電研究センター
 宮寺 哲彦、大橋 昇、山本 晃平、吉田 郵司
 埼玉大学 大学院理工学研究科 阿内 悠人
 東北大学 大学院工学研究科 丸山 伸伍、高川 佑輔
 公益財団法人高輝度光科学研究センター
 放射光利用研究基盤センター 産業利用推進室 小金澤 智之

Abstract

長期利用課題（課題番号：2017A0136～2018B0136）において金属ハライドペロブスカイトや有機半導体の成膜過程のリアルタイム X 線回折測定や、有機薄膜のコンビナトリアルライブラリの X 線回折測定に取り組んだ。本稿では金属ハライドペロブスカイトのレーザー蒸着過程のリアルタイム X 線回折について報告する。近年注目を集めているペロブスカイト太陽電池において、成膜過程の解析は重要な研究課題であると言える。SPring-8 の BL46XU に設置し、X 線回折リアルタイム測定が可能な小型レーザー蒸着装置を構築した。当該装置を用いて金属ハライドペロブスカイトの共蒸着過程および交互積層過程のリアルタイム X 線回折測定を実施し、薄膜形成過程のダイナミクスを解析することに成功した。特に交互積層過程においては平坦な PbI_2 結晶が Layer-by-layer で形成されていくことを示すラウエ振動やペロブスカイトに変換されていく過程での格子定数変化など特異なダイナミクスを見出すことに成功した。結晶成長ダイナミクス解析に関する当該測定システムの利点を示すことができたため、今後のペロブスカイト太陽電池の研究開発における重要な研究ツールになるものと考えられる。

1. 研究背景

地球温暖化問題による二酸化炭素削減に向けたエネルギー政策の見直しに端を発し、東日本大震災による原子力発電事故以来、太陽光発電などの再生可能エネルギーの普及が急務となっている。その中でも、有機系新材料を用いた太陽電池によりシリコン太陽電池では為し得なかった低コスト化を実現することが期待されている。特に 2009 年に宮坂らにより報告され^[1]、その後急速に発展し^[2,3]、短期間で 25% を超える高い光電変換効率を達成したペロブスカイト太陽電池は低コストかつ高効率な次世代太陽電池として注目され、国際的に研究開発競争が激化している。

ペロブスカイト太陽電池は発電層に金属ハライドペロブスカイトが用いられる（図 1）。これは、無機材料であるハロゲン化金属と有機材料であるハロゲン化アミンにより合成された有機無機ハイブリッド材料であり、A サイトには有機アミン、B サイトには金属、X サイトにハロゲンが配置された ABX_3 構造のペロブスカイト結晶をとる。

作製手法としては製造プロセスの低コスト化が可能となる溶液プロセスと精密な製膜制御が可能となる真空蒸着プロセスの両観点から研究開発が進められている。一方で、両プロセスともに、製膜過程の背後にある基礎メカニズムに関する知見がほとんど得られておらず、各研究機関のノウハウに頼った開発となっている現状がある。我々の研究グループではこれまで、SPring-8 の放射光 X 線を利用して溶液プロセス^[4]のリアルタイム X 線回折測定を実施し、結晶成長ダイナミクスの解析に取り組んできた。また、真空蒸

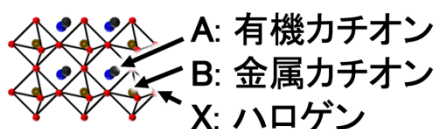
金属ハライドペロブスカイト(ABX_3)

図 1 金属ハライドペロブスカイト

着プロセスにおいても有機単結晶上での金属ハライドペロブスカイトのヘテロエピタキシャル成長に関する研究⁹⁾を推進し、*ex-situ*実験ではあるが結晶成長ダイナミクスに関する知見を得てきた。このように、溶液プロセス、真空蒸着プロセスの両観点から金属ハライドペロブスカイト結晶成長メカニズム解明に向けた研究に取り組んできた。SPring-8 長期利用課題（課題番号：2017A0136～2018B0136）においてはこれまでの取り組みをさらに発展させるべく、リアルタイム X 線回折（溶液プロセスおよび真空蒸着プロセス）およびコンビナトリアルライブラリ（測定効率向上のため同一基板上に異なる条件の薄膜を構築したサンプル）の X 線回折実験に取り組んだ。装置開発から、予備検討、実際の測定に至るまでの各段階を効率よく推進することができたのは長期利用課題ならではのであると考えている。構築したこれらのシステムを活用して金属ハライドペロブスカイトや、有機半導体薄膜の結晶成長メカニズム解明を目指した取り組みを行った。本稿ではこれらのうち、真空蒸着プロセスのリアルタイム X 線回折を実現する装置開発と当該システムによる金属ハライドペロブスカイトのリアルタイム X 線回折実験について紹介する。

2. リアルタイム X 線回折測定システム

金属ハライドペロブスカイトおよび有機半導体の真空成膜過程のリアルタイム X 線回折測定を実現するため、図 2 に示すシステムを構築した。材料の加熱昇華には波長 808 nm の IR レーザーを真空チャンバー内

の材料に照射することにより行った。この IR レーザーを用いた蒸着法は長期利用課題参画者である東北大のグループにより開発された手法であり、また、当該手法が鉛ハライドペロブスカイト材料の成膜にも有効であることを筆者らが実証してきた⁹⁾。本研究では放射光施設に持ち込み可能な小型の IR レーザー蒸着チャンバーを設計した。IR レーザー蒸着の基本構成の他に、放射光 X 線の導入および回折 X 線を透過する Be 窓、X 線回折に必要な試料の位置および角度を調整するためのマニピュレータが搭載されている。当該装置を SPring-8 の BL46XU に持ち込み、ハッチ内に設置して測定を行った。IR レーザー蒸着関連の機器はハッチ外に設置したパソコンに USB 接続されており、遠隔操作で成膜制御ができるシステムとなっている（EXCEL VBA により筆者が構築した自作プログラム）。

X 線波長は 1 Å、入射角 0.24° の斜入射条件で実験を行った。回折像は 2 次元検出器 PILATUS 300K を用いて検出した。X 線連続照射によるサンプルへのダメージを抑制するため、アッテネータにより入射 X 線強度を低減させ、また、測定間隔は 10 秒あたり 1 フレーム（露光時間 1 秒）とした。X 線回折連続測定終了後に 2 mm 程度サンプルをずらして連続照射していない位置での回折像を取得し、サンプルへのダメージを確認した。蒸着時の成膜レートの測定は水晶振動子膜厚計を用いており、 CH_3NH_2 のように再蒸発しやすい材料は製膜レートの校正が困難なため、本稿で示す製膜レートの値は測定器に表示される生データで示す。

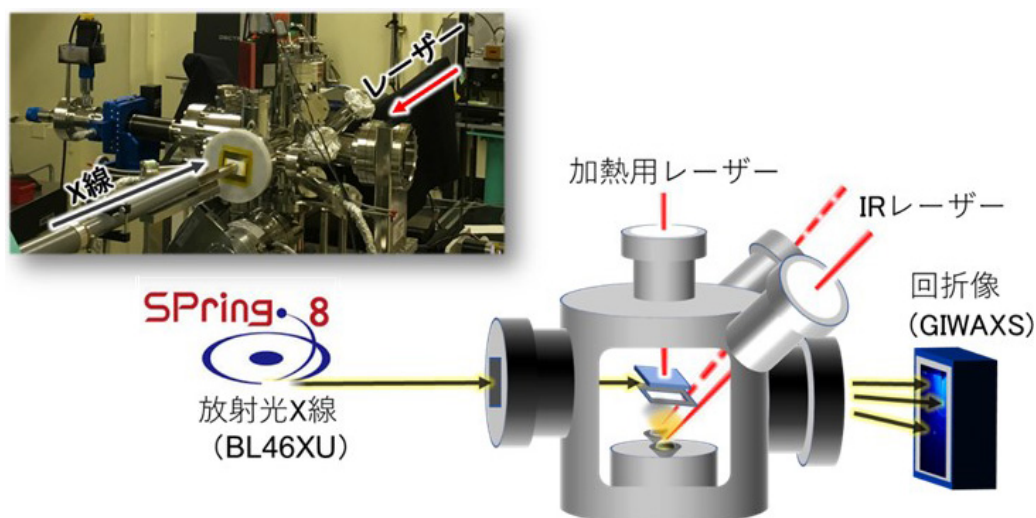


図 2 レーザー蒸着過程のリアルタイム X 線回折

3. CH₃NH₃PbI₃ リアルタイム結晶成長解析

金属ハライドペロブスカイトは、ハロゲン化金属とハロゲン化アミンあるいはハロゲン化セシウムを混合することで合成される。例えば、PbI₂とCH₃NH₃Iを混合することでCH₃NH₃PbI₃が生成する。真空プロセスにより製膜する方法としては、それぞれの材料を同時に供給する“共蒸着法”と、交互に供給する“交互積層法”の2通りの成膜方法が用いられる。本研究では共蒸着および交互積層の両手法におけるCH₃NH₃PbI₃製膜過程のリアルタイムX線回折測定を行った。

まず、共蒸着法によりCH₃NH₃PbI₃を製膜したリアルタイムX線回折の結果について説明する。ITO付きガラス基板にバッファ層としてPEDOT:PSSを塗布したものを基板として用いた。基板温度は室温とし、PbI₂とCH₃NH₃Iを同時に供給し、リアルタイムX線回折測定を実施した。成膜前のX線回折像にはBe窓からの回折リングなどが検出されている(図3(a))。

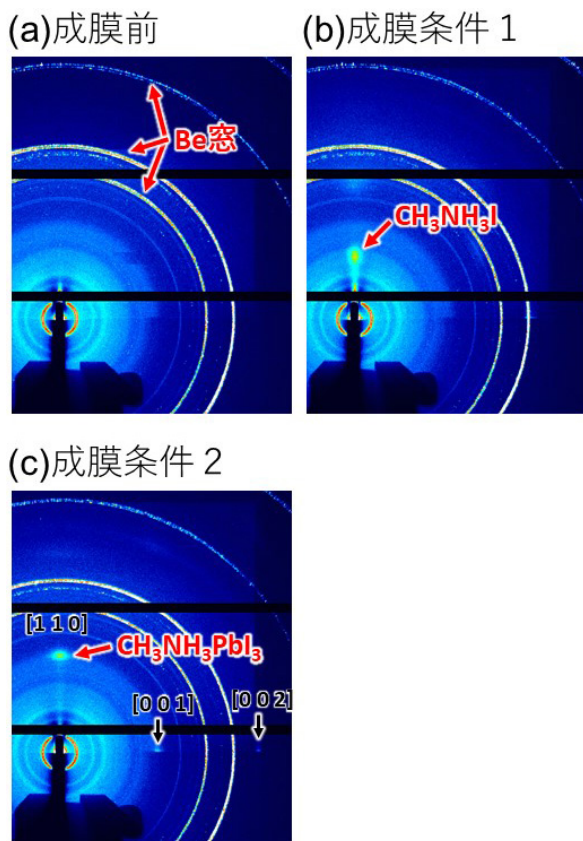


図3 共蒸着法によるCH₃NH₃PbI₃成膜過程のX線回折。(a) 成膜前の基板の回折像。(b) PbI₂:CH₃NH₃I = 0.03 Å/s:0.06 Å/sの条件で13分製膜した薄膜の回折像。(c) PbI₂:CH₃NH₃I = 0.05 Å/s:0.05 Å/sの条件で35分製膜した薄膜の回折像。

まずPbI₂を0.03 Å/s、CH₃NH₃Iを0.06 Å/sの比率で13分間供給した。この成膜条件は適切な化学量論比に対してCH₃NH₃Iが過剰な条件で製膜しており、図3(b)に示すようにペロブスカイトの回折ピークではなく、CH₃NH₃I由来の回折ピークが出現している。そこで供給レートを再調整し、同一サンプルに対し、PbI₂が0.05 Å/s、CH₃NH₃Iが0.05 Å/sの比率で54分間供給した。成膜開始30分後の回折像には(1 1 0)配向したペロブスカイト結晶の存在を示すスポット状の回折パターンが見出された(図3(c))。本システムを用いることで、回折パターンをリアルタイムで観察しながら成膜条件を調整することが可能となり、適切な化学量論比のペロブスカイト結晶をその場で調整しながら構築することが可能となる。成膜レートの校正が困難な当該材料系に適した手法であると言える。

次に、交互積層製膜プロセスによるCH₃NH₃PbI₃のリアルタイムX線回折の結果について説明する。基板として、Glass/ITO/PEDOT:PSSの上にさらに真空蒸着によりパラセキシフェニル(p-6P)とルブレンを積層製膜したものをを用いた。ルブレン結晶上にCH₃NH₃PbI₃を製膜することでヘテロエピタキシャル成長により高結晶ペロブスカイト薄膜が形成されることをこれまでに見出しており⁶⁾、本実験では高結晶ルブレン上でのペロブスカイトの交互積層過程のリアルタイムX線回折測定を実施した。基板温度は室温とし、まずPbI₂を供給し、その後CH₃NH₃Iを供給するプロセスをリアルタイムで観察した。成膜前のX線回折像にはBe窓由来のパターンの他にルブレンからの回折が検出されている(図4(a))。まず、PbI₂を0.1 Å/sのレートで100 Å製膜すると、強く(0 0 1)配向したPbI₂の回折パターンが観測された(図4(b))。また、PbI₂成膜途中の回折像の時系列データにはラウエ振動とみられる振動パターンが見出された⁷⁾(図4(c))。これは極薄膜PbI₂から生じるパターンであり、結晶が1層ずつ積層されていく平坦表面であることを示唆しており、振動構造を解析することでPbI₂の層数を見積もることができる。このPbI₂薄膜にCH₃NH₃Iを0.05 Å/sのレートで供給すると、PbI₂の回折スポットが弱くなり、強く(1 1 0)配向したCH₃NH₃PbI₃の回折パターンが出現した(図4(d))。また反応初期にはPbI₂のスポットが低角側にシフトしており、PbI₂の格子が面

外に拡張する現象が見出された。350 Å 程度の $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ を供給したところで PbI_2 のスポットが消失し、 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ の回折パターンとなった。以上のように、高結晶ルブレン薄膜上での PbI_2 と $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ の交互積層プロセスによって $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ を構築する過程をリアルタイムで X 線回折測定した。得られた PbI_2 (六方晶) および $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ (正方晶) は強く面外配向していることが分かったが、両者で結晶系が大き

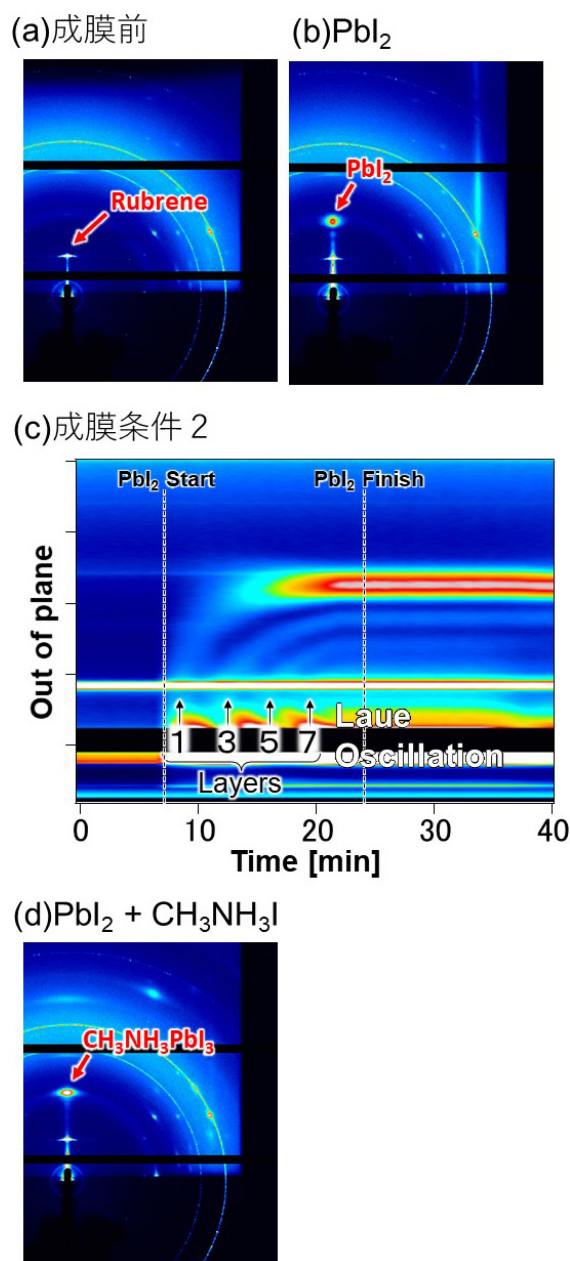


図4 交互積層法による $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 成膜過程の X 線回折。(a) 成膜前の基板の回折像。(b) PbI_2 を 100 Å 製膜した薄膜の回折像。(c) PbI_2 成膜中のリアルタイム X 線回折。(d) PbI_2 を 100 Å 成膜後 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ を 350 Å 製膜した薄膜の回折像。

く異なっており、反応中に PbI_6 六面体が面外方向に回転していることが示唆される。本研究では PbI_2 回折パターンのラウエ振動、 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ へ反応していく際の格子定数変化や PbI_6 六面体の面外方向への回転など、製膜ダイナミクスに関する特異な知見を得ることに成功した。

4. まとめと今後の展望

本稿では SPring-8 長期利用課題の取り組みのうち、金属ハライドペロブスカイトのレーザー蒸着過程のリアルタイム X 線回折測定に関する研究について解説した。レーザー蒸着による精密成膜とリアルタイム X 線回折を組み合わせた測定システムを駆使することで、金属ハライドペロブスカイトの結晶成長ダイナミクスに関する特異な知見を得ることができた。この長期利用課題においては他に金属ハライドペロブスカイトの塗布成膜過程リアルタイム X 線回折測定、有機薄膜のコンビナトリアルライブラリ X 線回折測定に取り組んだ。本研究での取り組みは、リアルタイム解析を時間軸とし、コンビナトリアル解析を空間軸とした多次元解析であると言える。構築した多次元解析ツールを相補的に活用していくことで成膜メカニズムを様々な観点から解析していくことが可能となる。実際に東北大の実験においてはコンビナトリアル解析によりペリレンの巨大グレインが形成される現象を見出し、レーザー蒸着リアルタイム GIWAXS 解析により成膜メカニズムを解明しており¹⁸⁾、一貫した研究ツールとしての有用性が実証されている。今後も構築したシステムを活用して多次元解析を行っていくことで、有機半導体材料および有機無機ハイブリッド材料のプロセス解析や材料探索研究に取り組んでいく。

謝辞

本研究は科学研究費補助金 (16H05978) の支援を受けて実施した。関係各位に感謝する。

参考文献

- [1] A. Kojima *et al.*: *J. Am. Chem. Soc.* **131** (2009) 6050-6051.
- [2] M. M. Lee *et al.*: *Science* **338** (2012) 643-647.

- [3] J. Burschka *et al.*: *Nature* **499** (2013) 316-319.
[4] T. Miyadera *et al.*: *Nano Lett.* **15** (2015) 5630-5634.
[5] T. Miyadera *et al.*: *APL Mater.*, in press. (DOI: 10.1063/1.5142307)
[6] T. Miyadera *et al.*: *ACS Appl. Mater. & Interfaces* **8** (2016) 26013-26018.
[7] S. Kowarik *et al.*: *Eur. Phys. J. Special Topics* **167** (2009) 11-18.
[8] 高川佑輔他：応用物理学会 2019 年秋

宮寺 哲彦 MIYADERA Tetsuhiko

(国) 産業技術総合研究所 太陽光発電研究センター
〒305-8565 茨城県つくば市東 1-1-1 中央 5-1
TEL : 029-861-3054
e-mail : tetsuhiko-miyadera@aist.go.jp

大橋 昇 OHASHI Noboru

(国) 産業技術総合研究所 太陽光発電研究センター
〒305-8565 茨城県つくば市東 1-1-1 中央 5-1

山本 晃平 YAMAMOTO Kohei

(国) 産業技術総合研究所 太陽光発電研究センター
〒305-8565 茨城県つくば市東 1-1-1 中央 5-1

吉田 郵司 YOSHIDA Yuji

(国) 産業技術総合研究所 太陽光発電研究センター
〒305-8565 茨城県つくば市東 1-1-1 中央 5-1

阿内 悠人 AUCHI Yuto

埼玉大学 大学院理工学研究科
〒338-8570 埼玉県さいたま市桜区下大久保 255

丸山 伸伍 MARUYAMA Shingo

東北大学 大学院工学研究科
〒980-8579 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-07

高川 佑輔 TAKAGAWA Yusuke

東北大学 大学院工学研究科
〒980-8579 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-07

小金澤 智之 KOGANEZAWA Tomoyuki

(公財) 高輝度光科学研究センター
放射光利用研究基盤センター 産業利用推進室

長期利用課題報告 2

電気化学反応速度と HAXPES の *operando* 同時測定技術の開発

山梨大学 燃料電池ナノ材料研究センター 須田 耕平、川本 鉄平
株式会社日産アーク 解析プラットフォーム開発部

松本 匡史、今井 英人
公益財団法人高輝度光科学研究センター 放射光利用研究基盤センター
産業利用推進室 安野 聡、渡辺 剛、小金澤 智之、廣沢 一郎
山梨大学 クリーンエネルギー研究センター 犬飼 潤治

Abstract

電気化学反応速度と硬 X 線光電子分光スペクトルの同時測定が可能な *operando* 装置を開発した。電極触媒などの測定サンプルに対して反応物を含んだ溶液を温度・流速制御のもと層流で供給し続けるため、電気化学反応を厳密に測定あるいは任意に制御することができる。一方、溶液と超高真空の異なった環境を 15 nm 程度の厚さの Si_3N_4 ウィンドウで「つなげる」ことにより、*operando* 硬 X 線光電子分光スペクトルを行うことも可能となった。本装置の機構および本装置を用いて得られた結果について報告する。

1. はじめに

電気化学とは、電極と電解質溶液との界面で生じる電子移動を伴った化学反応を扱う学問・技術領域である。燃料電池、二次電池、光触媒、半導体デバイス、めっき、腐食・防食、生物化学、電気化学センサ、非鉄精錬、電解合成・重合など、電気化学反応を利用した技術は極めて幅広く使用されており、現代の科学と産業の根幹を担っている^[1-5]。

電気化学反応を定量的に理解するためには、電気化学反応速度を精密に測定することが重要である。例えば、燃料電池においては、電極触媒に反応物を一定流量で供給した際の単位面積あたりの電気化学反応速度を定量的に測定することにより発電量が推定できる。また、腐食の速度や防食の効果を定量的に測定することなども可能である。電極反応の解析に有効な電気化学的測定法として、電極表面への溶液の定常的な対流を構築することにより物質移動速度を制御し、それにより電極反応活性（電荷移動過程）を再現性良く定量的に解析可能な「対流ボルタンメトリー」があり、その代表例が「回転リングディスク電極（Rotating Disk Electrode: RDE）法」と「チャンネルフロー電極（Channel Flow Electrode: CFE）法」である。RDE

法では、ディスク状の電極を溶液中に配置し、一定速度で回転させながら電気化学反応に伴う電流を測定する。電極表面の溶液は、電極の回転運動によって外側に流され、それを補う溶液が回転軸を中心軸として電極に向かって流れ、定常的な物質輸送が実現される。RDE 法では、サンプルのセッティングも実験も比較的簡単である。一方で、通常、溶液はフラスコなどに入れられることが多く、温度や圧力を一定に保つことは容易ではない。さらに、フラスコ中の溶液では反応物が減少し反応生成物が増加していくため、長時間の測定にも向いていない。近年、燃料電池、二次電池、金属腐食、表面処理などの分野で CFE 法による測定結果が注目を集めている^[6-8]。図 1 に、CFE 法による電気化学測定の模式図を示す。テフロンなどで作製されたセルに流路高さ 1 mm 以下の直方体流路を構築する。サンプルはセルに埋め込み、図 1 の下側に見られるように、セルの壁面とサンプル表面を同一平面上に設定する。このように、CFE 法ではサンプルを回転させるのではなく、チャンネル内に電解液を層流で供給する。こうして、反応物の拡散速度を厳密に制御した条件下で、サンプルにおける電気反応速度を、電流として測定する。溶液を外部から供給することにより

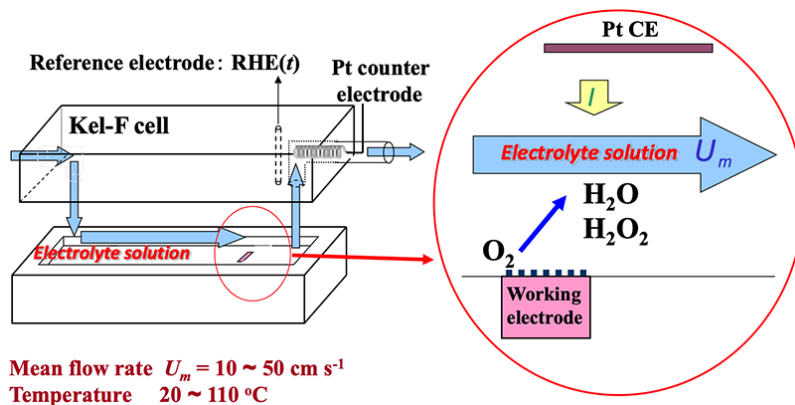


図1 チャンネルフロー電極法概念図。

反応が定常に至る時間が短く、再現性が良い。さらに、温度や圧力の制御が容易であることが、RDE 法に対する大きな利点である。

電気化学反応測定速度という「機能」を定量しながら、電気化学反応の反応場である電極の電子状態を測定することで、電極表面および反応物質の原子、分子の結合状態を明らかにでき、反応制御（つまり、機能制御）に向けた極めて重要な情報が得られる。電気化学反応中の物質の構造や電子状態をその場で解析しようとする試みはこれまでに繰り返し取り組まれており、赤外光やラマン散乱光、プローブ顕微鏡、実験室系 X 線などが使用されてきた⁹⁻¹²⁾。近年ではシンクロトロン放射光の利用も活発であり、さらに測定対象も燃料電池用触媒のナノ粒子など実用系に広がっている¹³⁻¹⁹⁾。X 線回析、X 線吸収微細構造測定などによる構造解析の他にも、マイクロセルを超高真空チャンバー内に取り込んで、硬 X 線光電子分光 (Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy: HAXPES) 測定を行うことによる電子状態解析なども試みられている²⁰⁾。ところが、これら電気化学反応下での物質の構造・電子状態の解析は、ほとんどが測定中に反応物を供給できない状態で行われてきた。さらに、拡散速度を厳密にコントロールしながら測定中に反応物を供給し続け、電気化学反応を測定あるいは任意に制御しながら物質の構造・電子状態を解析した例は、これまでほとんどなかった。

我々は、電気化学反応を測定あるいは任意に制御しながら、物質の電子状態を HAXPES 測定する技術を開発した。これにより、反応制御に向けた材料開発や、

産業プロセスの効率化などに対して、飛躍的な寄与をすることが期待される。

2. 装置

図2に、開発した測定の概念図を示す。図2右側では、電気化学反応を定常的に進行させ、かつ反応速度を厳密に決定するために、図1に示したチャンネルフローセルを縦置きにして、温度・流速を制御した状態で電解液を上方へ流通しながら、三電極法で電気化学反応速度を測定した^{6,8)}。サンプルでの電気化学反応速度の測定は、Si₃N₄ ウィンドウに接していない溶液側となる。図2に緑で「測定サンプル」と示した部分はモデルでは厚みを持って見えるが、実際の測定では層流

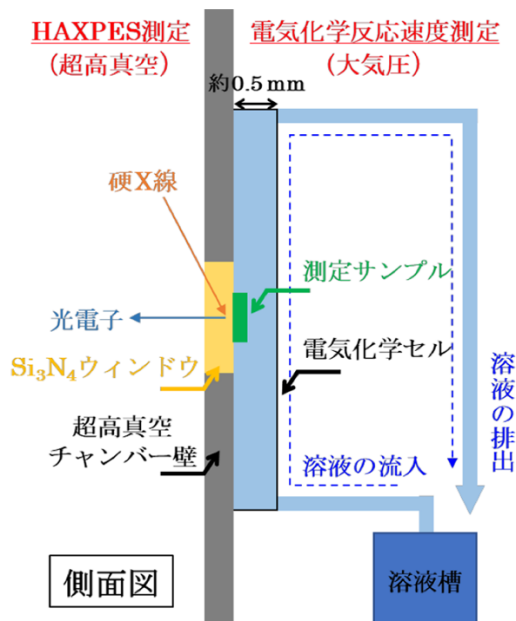


図2 電気化学反応速度・硬 X 線光電子分光同時測定装置概念図。

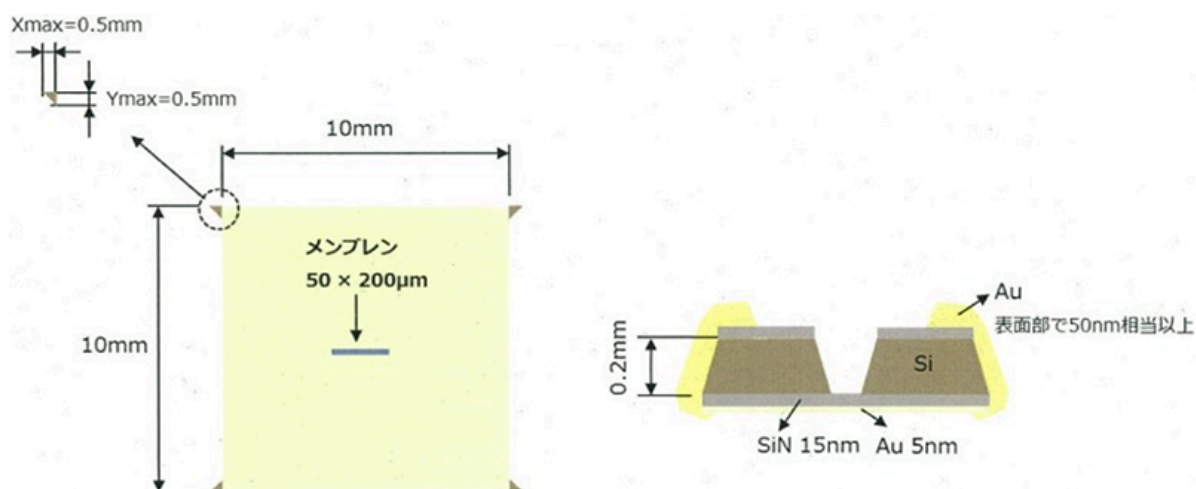


図3 Si₃N₄メンブレンのウィンドウ付き Si 基板。

を保つことが可能なだけ薄くする。図 2 左側は、HAXPES 測定を行った SPring-8 BL46XU の超高真空チャンバーの内部を示している。電気化学反応速度と HAXPES の同時測定を行う箇所には直径 5 mmφ の貫通穴を設けている。その貫通穴を塞ぐように、サンプルへの電位印加を可能とするために厚さ 5 nm で Au コーティングした 10 mm × 10 mm の Si₃N₄メンブレン付き Si 基板 (図 3) をエポキシ接着剤で取り付けた。Au コーティングした部分中央の 1 mm (垂直方向) × 4 mm (水平方向) のみを薄膜電極として用いるために、この部分以外はテフロンコーティングして電気化学的に絶縁した。さらに、Si₃N₄メンブレン付き Si 基板の中央部の真空側をエッチングすることによって、50 μm (垂直方向) × 200 μm (水平方向) × 20 nm (厚さ方向、Si₃N₄メンブレン 15 nm + Au 5 nm) の極薄ウィンドウを構築した。この Au/Si₃N₄ウィンドウが、電気化学反応速度測定を実現しながら HAXPES のための X 線および光電子のやり取りをする重要な役割を果たしている。また、超高真空チャンバーには、Si₃N₄メンブレンと接触する箇所にも Au コーティングをしており、サンプルを電氣的にグラウンドに落としている。50 μm × 200 μm × 20 nm 厚のウィンドウは、電解質水溶液を流通させながら逆側を超高真空引きしても、十分な耐久性を有していた。

チャンネルフローセルと装置外部に用意した溶液槽とはテフロンチューブで接続されており、温度や濃度を制御した電解質水溶液を、ポンプによってサンプルに一定速度で供給した。

3. 実験

電解液には 0.1 M 過塩素酸水溶液を使用し、層流条件を維持しながら、流量 75 mL min⁻¹ で電極へ供給した。電極電位は、0.4 V vs. Ag/AgCl sat. KCl とした。蒸着 Au 薄膜は、そのまま電極として使用した。

HAXPES 測定は SPring-8 BL46XU で行った。アナライザーは Focus 社製 HV-CSA 300/15 を使用した。X 線エネルギーは 14 keV とした。X 線サイズは、水平方向が 200 μm、垂直方向が 450 μm であり、サンプルへの X 線入射角は 45 度とした。Au 3d_{5/2} ピーク測定のための、パスエネルギーは 200 eV、エネルギーステップは 0.21 eV、X 線照射時間を 0.5 秒/step、積算回数は 10 回とした。

4. 結果

図 4(a) に、蒸着した Au 電極の電流電位曲線 (Cyclic Voltammogram: CV) を示す。Au の CV に見られる特徴的な酸化還元電流曲線が確認できた^[21]。図 4(b) に、0.4 V vs. Ag/AgCl sat. KCl で得られた電流の時間変化測定 (クロノアンペロメトリー) の結果を示す。約 0.8 mA の電流が得られており、これは溶液中に含まれた酸素など微量な不純物の還元電流と考えられる。

図 5 に、図 4(b) の電流を測定しながら測定した Au 3d_{5/2} HAXPES スペクトルを示す。点線がレファレンスとして測定した真空中の金属 Au、青色の実線が、今回、電気化学測定をしながら測定した 5 nm の Au 薄膜のものである。両者のピークが一致し、電気化学測定中に、Au が金属の状態として観察された。

一方で、今回の HAXPES では Au 薄膜の表面だけを測定しているわけではなく、残念ながら触媒活性と電極の電子状態との対応がついているわけではない。Au 薄膜は対象となるサンプルの基板として用いることが本来の目的であり、今後は、実サンプルを Au 薄膜上に展開して、研究を進める計画である。

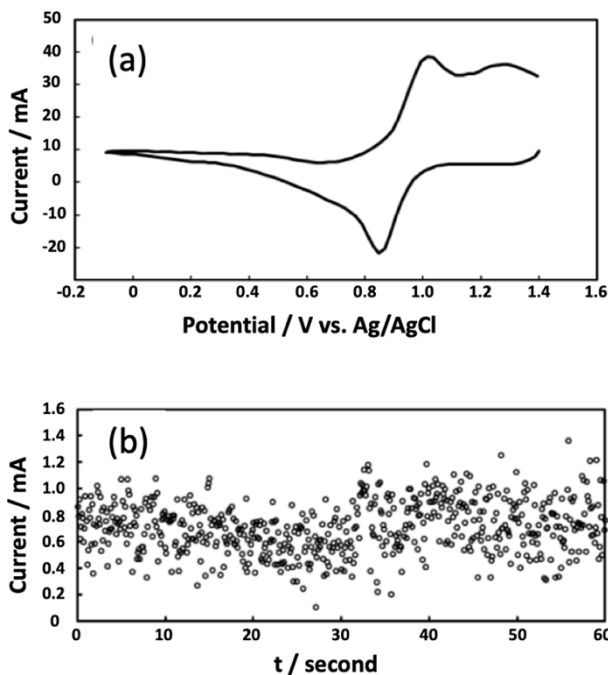


図4 Au/Si₃N₄ 薄膜電極の CV(a) と 0.4 V vs. Ag/AgCl sat. KCl において測定されたクロノアンペロメトリー(b)。

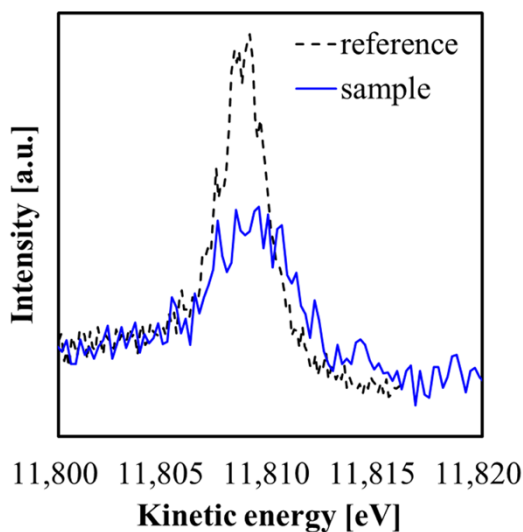


図5 電極反応測定中に測定された Au 薄膜電極の HAXPES データ (青線)。点線は、レファレンスの Au 金属サンプル。横軸は、光電子の運動エネルギーである。

5. まとめ

CFE 法を用いて電気化学反応速度の測定 (あるいは設定) を行いながら、HAXPES により電極の電子状態を測定することの可能な *operando* 分析装置の開発に成功した。今後は、対象とする試料を用いた測定を続けながら、日本発の技術として世界に展開していきたい。

謝辞

本研究は、NEDO SPer-FC プロジェクトの下で行われた。SPring-8 における測定は、長期利用課題 (2017A0138、2017B0138、2018A0138、2018B0138) および一般課題 (2019A1770) にて行われた。長期利用課題の採択が無ければ、本装置の開発は不可能であった。測定のサポートも含め、JASRI に深く感謝する。

参考文献

- [1] M. Watanabe, H. Yano, D. A. Tryk, H. Uchida *et al.*: *J. Electrochem. Soc.* **163** (2016) F455.
- [2] J.-M. Tarascon and M. Armand: *Nature* **414** (2001) 359-367.
- [3] A. Kudo and Y. Miseki: *Chem. Soc. Rev.* **38** (2009) 253-278.
- [4] Y. Shao, J. Wang, H. Wu, J. Liu, I. A. Aksay and Y. Lin: *Electroanalysis* **22** (2010) 1027-1036.
- [5] A. B. Laursen, S. Kegnaes, S. Dahl and I. Chorkendorff: *Energy Environ. Sci.* **5** (2012) 5577-5591.
- [6] H. Yano, T. Uematsu, J. Omura, M. Watanabe and H. Uchida: *J. Electroanal. Chem.* **747** (2015) 91-96.
- [7] M. Chiwata, H. Yano, S. Ogawa, M. Watanabe, A. Iiyama and H. Uchida: *Electrochemistry* **84** (2016) 133-137.
- [8] H. Nishikawa, H. Yano, J. Inukai, D. A. Tryk, A. Iiyama and H. Uchida: *Langmuir* **34** (2018) 13558-13564.
- [9] K. Itaya: *Prog. Surf. Sci.* **58** (1998) 121-247.
- [10] P. Carisson, B. Holmström, H. Kita and K. Uosaki: *J. Electroanal. Chem.* **283** (1990) 425-433.
- [11] M. Wakisaka, Y. Udagawa, H. Suzuki, H. Uchida and M. Watanabe: *Energy Environ. Sci.* **4** (2011) 1662-1666.
- [12] H. Uchida, H. Yano, M. Wakisaka and M. Watanabe: *Electrochemistry* **79** (2011) 303-311.
- [13] M. F. Toney and J. McBreen: *Interface* **2** (1993) 22.
- [14] K. I. Pandya, R. W. Hoffman, J. McBreen and W. E. O'grady: *J. Electrochem. Soc.* **137** (1990) 383.

- [15] G. Tourillon, D. Guay and A. Tadjeddine: *J. Electroanal. Chem.* **289** (1990) 263-278.
- [16] B. M. Ocko, J. Wang, A. J. Davenport and H. S. Isaacs: *Phys. Rev. Lett.* **65** (1990) 1466.
- [17] M. F. Toney, J. G. Gordon, M. G. Samant, G. L. Borges, O. R. Merloy, L.-S. Kau, D. G. Wiesler, D. Yee and L. B. Sorensen: *Phys. Rev. B* **42** (1990) 5594.
- [18] S. Kobayashi, M. Aoki, M. Wakisaka, T. Kawamoto, R. Shirasaka, K. Suda, D. A. Tryk, J. Inukai, T. Kondo and H. Uchida: *ACS Omega* **3** (2018) 154-158.
- [19] K. Kakinuma, K. Suda, R. Kobayashi, T. Tano, C. Arata, I. Amemiya, S. Watanabe, M. Matsumoto, H. Imai, A. Iiyama and M. Uchida: *ACS Appl. Mater. Interfaces* **11** (2019) 34957-34963.
- [20] T. Masuda, H. Yoshikawa, H. Noguchi, T. Kawasaki, M. Kobata, K. Kobayashi and K. Uosaki: *Appl. Phys. Lett.* **103** (2013) 111605.
- [21] T. Albrecht, K. Moth-Poulsen, J. B. Christensen, J. Hjelm, T. Bjørnholm and J. Ulstrup: *J. Am. Chem. Soc.* **128** (2006) 6574-6575.

須田 耕平 SUDA Kohei

山梨大学 燃料電池ナノ材料研究センター
 〒400-0021 山梨県甲府市宮前町 6-43
 (現所属)
 名古屋大学 全学技術センター
 〒489-0965 愛知県瀬戸市南山口町 250 番 3
 「知の拠点あいち」内あいちシンクロトロン光センター
 TEL : 0561-76-8331
 e-mail : k.suda@nusr.nagoya-u.ac.jp

川本 鉄平 KAWAMOTO Teppei

山梨大学 燃料電池ナノ材料研究センター
 〒400-0021 山梨県甲府市宮前町 6-43
 TEL : 055-254-7092
 e-mail : tkawamoto@yamanashi.ac.jp

松本 匡史 MATSUMOTO Masashi

(株) 日産アーク 解析プラットフォーム開発部
 〒237-0061 神奈川県横須賀市夏島町 1 番地
 TEL : 046-867-5172
 e-mail : m-matsumoto@nissan-arc.co.jp

今井 英人 IMAI Hideto

(株) 日産アーク 解析プラットフォーム開発部
 〒237-0061 神奈川県横須賀市夏島町 1 番地
 TEL : 046-867-5172
 e-mail : imai@nissan-arc.co.jp

安野 聡 YASUNO Satoshi

(公財) 高輝度光科学研究センター
 放射光利用研究基盤センター 産業利用推進室
 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
 TEL : 0791-58-0802
 e-mail : yasuno@spring8.or.jp

渡辺 剛 WATANABE Takeshi

(公財) 高輝度光科学研究センター
 放射光利用研究基盤センター 産業利用推進室
 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
 TEL : 0791-58-0802
 e-mail : t5511001@spring8.or.jp

小金澤 智之 KOGANEZAWA Tomoyuki

(公財) 高輝度光科学研究センター
 放射光利用研究基盤センター 産業利用推進室
 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
 TEL : 0791-58-0802 ext 3377
 e-mail : koganeza@spring8.or.jp

廣沢 一郎 HIROSAWA Ichiro

(公財) 高輝度光科学研究センター
 放射光利用研究基盤センター 産業利用推進室
 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
 TEL : 0791-58-2804
 e-mail : hirosawa@spring8.or.jp

犬飼 潤治 INUKAI Junji

山梨大学 クリーンエネルギー研究センター
 〒400-8511 山梨県甲府市武田 4-3-11
 TEL : 055-220-8185
 e-mail : jinukai@yamanashi.ac.jp

吸引力相殺型アンジュレータの開発と BL10XU への導入

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

田中 隆次、金城 良太

公益財団法人高輝度光科学研究センター 光源基盤部門

清家 隆光、鏡畑 暁裕、備前 輝彦

岸本 輝、大橋 治彦

高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所

山本 樹

Abstract

吸引力相殺型アンジュレータとは、周期磁場を発生する上下磁石列の間に働く吸引力を相殺する機構を備えた、新たな概念に基づくアンジュレータである。同機構により、上下磁石列を保持し、またそれらのギャップを高精度に制御する駆動架台に加わる機械負荷が磁石列の自重程度にまで軽減される。このため駆動架台を構成する様々な部品への要求仕様が緩和され、その構造を大幅に簡素化することが可能になる。駆動架台の構造簡素化はアンジュレータの製造コストの削減や製造期間の短縮に極めて有効であるため、その実用化に向けた研究開発が著者らのグループによって行われてきた。原理検証や各種試験を経て最初の実用機が2018年3月に完成し、1年間のビーム試験を経て SPring-8 の BL10XU 用光源として導入された。

1. はじめに

SPring-8 を始めとする放射光施設では、アンジュレータと呼ばれる装置が多数設置されており、電子ビーム軸の上下に対向して設置された磁石列が発生する周期磁場で電子を蛇行させることにより準単色な高輝度放射光を生成する。アンジュレータ放射光の波長は、電子のエネルギー、磁場周期長、及び磁場振幅に依存するが、一般的には上下磁石列の間隔(ギャップ)を制御することで磁場振幅を調整し、波長を選択する。

一般的なアンジュレータでは、高エネルギー電子を十分に大きな振幅で蛇行させるため、強力な永久磁石(通常はネオジウム磁石)が利用されており、この結果、上下磁石列に働く吸引力はメートルあたり1トン近くに達する。このため磁石列を保持するアンジュレータの機械部(駆動架台)は、(1)強力な吸引力の下で、(2)全長数メートルに及ぶ磁石列を上下に対向した状態で保持し、(3)それらのギャップを数ミクロンの精度で均一に保った状態で、(4)数ミリメートルの広範囲にわたって上下に昇降させる必要がある。これらの条件を満たすためには、高い機械剛性と機械精度が求められるため、アンジュレータの駆動架台は必然的

に重厚長大で複雑な構造となる。

上記の問題は、いわゆる真空封止型アンジュレータ(In-Vacuum Undulator: IVU)ではより顕著である。これは、真空槽内部に設置された上下磁石列間に働く強力な吸引力を、大気側に設置された駆動架台が制御する必要があるためであり、そのために膨大な数の部品類が必要となる。

上述した問題の元凶となっているのは、上下磁石列間に働く強力な吸引力であることは明らかである。言い換えると、仮に「吸引力を何らかの方法で軽減する、さらには完全に相殺する」ことができれば、アンジュレータの駆動架台の構造は大幅に簡素化される。我々のグループではこの概念に基づく「吸引力相殺型アンジュレータ」の実用化、特に短周期領域におけるIVUへの応用に向けて研究開発を進めてきた。本稿ではその詳細について報告する。

2. 吸引力相殺の原理

ある装置に加わる機械負荷を軽減する際に最も一般的なものは、バネを利用する方法である。実際、この目的のために駆動架台にバネが装着されたアンジュレータの

建設例が多数報告されている。しかしながら、一般的なバネを利用するだけでは、アンジュレータの吸引力を完全に相殺することは不可能である。これは、アンジュレータの吸引力 (F) がギャップ (g) に対して高度に非線形な挙動を示すためである。具体的には、

$$F \propto \exp\left(\frac{-2\pi g}{\lambda_u}\right)$$

で与えられる。ここで λ_u は磁場周期長である。一般的なバネは変位に対して線形な力を発生するため、上記で示したように指数関数的な挙動を有する吸引力を完全に相殺することは不可能である。このため、全長やバネ係数が異なる複数のバネを利用する方法や、非線形バネを利用する方法などが提案され、一部は実用化されている。ただしこれらの手法では、吸引力発生源である磁石列から離れた位置においてバネを装着する構造が採用されており¹⁾、磁石列自体に働く吸引力が軽減されるわけではない。このため、真空槽内に磁石列を保持する IVU には適さない。この問題を避けるため、バネを磁石列自体に装着する方法も開発されているが²⁾、この場合はアンジュレータの品質を検査するための磁場測定が困難であるという問題があり、精密な調整を必要とする短周期アンジュレータには適さない。

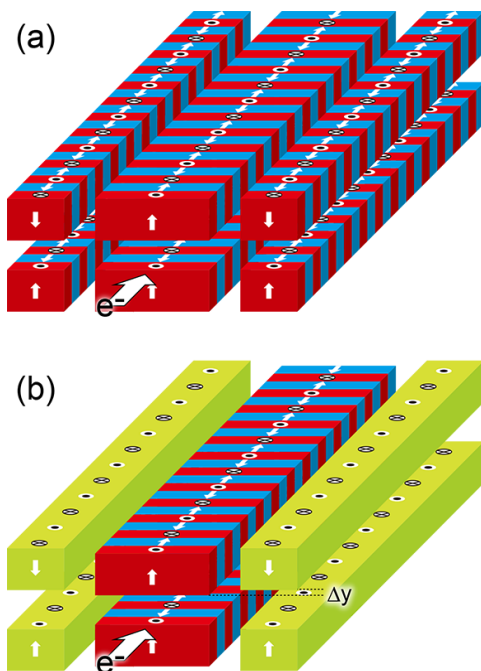


図1 補助磁石列を用いる吸引力相殺機構。(a)では補助磁石列として通常のアンジュレータ磁石列を、(b)では周期着磁された単一磁石を利用。

上記の議論を踏まえ、我々はバネではなく補助磁石列が発生する反発力を利用する方法³⁾について検討を行った。補助磁石列を利用する方法とは図1(a)に示す通り、通常のアンジュレータ磁石列(主磁石列)の左右に、位相を反転した磁石列(従って反発力を発生する磁石列)を配置し、これら3列の磁石列をまとめて保持する方法である。左右に配置された反発磁石列の周期長を主磁石列と同一とすることで、同じギャップ依存を有する(ただし符号は逆の)磁気力が働き、磁石列の形状や寸法を最適化することで吸引力は完全に相殺される。この方式は IVU に容易に適用可能であり、また、従来の方法に基づく磁場測定も可能である。一方で、必要な永久磁石ブロックやそれに伴う部品類の数が3倍となり、必ずしもコスト削減につながらない恐れがある。

そこで我々は図1(b)に示すように、反発磁石列に多極着磁法⁴⁾で周期的に着磁された長尺単一磁石(以後、多極磁石)を利用する方法を提案し、これに基づく吸引力相殺機構の開発を行った⁵⁾。多極着磁法とは、周期長よりも長い(100 mm~200 mm 程度)磁石ブロックをアンジュレータ磁石列と同様の周期構造で着磁する方法であり、本来は極短周期領域(10 mm 以下)におけるアンジュレータの製造を容易にする方法として考案されたものである⁶⁾。多極磁石が発生する周期磁場の振幅は通常のアンジュレータ磁石列が同条件で発生する値の7割程度であり、磁気力(\propto 磁場の平方)としては半分程度となるが、多極磁石の幅を主磁石列と同程度(左右2列分の合計で2倍)とすることで、吸引力を完全に相殺することが可能となる。この方式では、磁石ブロックや関連する部品類の数量増加は僅かであり、磁石列製造に関わるコストや労力は、通常のアンジュレータのそれと比較しても大差はない。またこの方式では、反発力の微調整が容易に可能である。具体的には、反発磁石列と主磁石列の垂直方向の相対位置(図1(b)の Δy)を最適化する。反発力(F_r)と吸引力(F_a)の比は、

$$\frac{F_r}{F_a} \propto \exp\left(\frac{-4\pi\Delta y}{\lambda_u}\right)$$

で与えられるため、多極磁石底部に挿入するシム板の厚さなどを調整し、 Δy を最適化することで F_r/F_a を実効的に1に近づけることが可能である。

吸引力相殺試験結果の一例を図2に示す。全長140 mmの単一磁石ブロックを28 mmの周期で多極着磁し、同じ周期のアンジュレータ磁石列の左右に取り付けたサンプルを2つ対向させて設置し、それらのギャップを関数として磁気力を測定した。多極磁石が吸引力をほとんど完全に相殺していることがわかる。図2下段を見ると明らかなように、この条件では反発力が若干勝っているが、残留磁気力は高々1 kg程度であり、磁石列の自重よりも遥かに小さい。

ちなみに図2の例では Δy を実験的に最適化するために、多極磁石底部に異なる厚さのシム板を挿入して測定を繰り返した。この結果、最適値 $\Delta y = -0.2$ mmが得られた。このように、吸引力と反発力の測定結果が事前に予測された値と異なっていた場合でも、吸引力を相殺するためのパラメータ (Δy) を高い精度で容易に決定することが可能である。

上記で述べた吸引力相殺機構の開発と並行して、吸引力相殺を前提とした軽量かつシンプルな構造を持つ駆動架台の開発や、組立作業や調整作業を効率的に行うための磁石列の開発などが行われた。これらを組み合わせることで、従来と異なる設計に基づく新たな

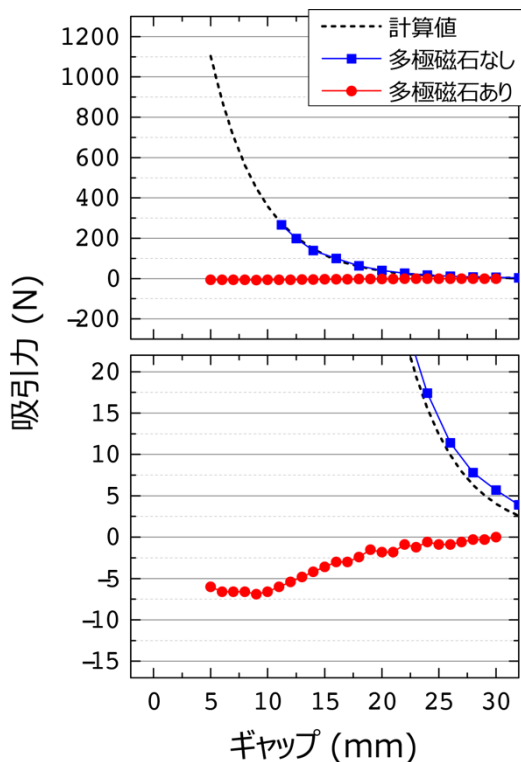


図2 吸引力相殺試験結果の一例。点線は多極磁石なしの場合の計算結果。下段は上段と同じデータの拡大表示。

IVUの概念が確立した。我々はこれをIVU-IIと称し、その標準化に向けた取り組みを進めている。

3. BL10XU用光源としてのIVU-IIの開発

SPring-8では、前項で述べた標準化の一環として、BL10XU用光源としてIVU-IIの導入を決定し、2017年度に建設を開始した。アンジュレータパラメータを表1に示す。

アンジュレータの全長3.6 mはSPring-8の次期計画SPring-8-IIにおける直線部の長さに適合するように決定した。また、現時点で許可される最小ギャップは8 mmであるが、機械的な設計としては5 mmまでが可能である。

図3に、ギャップ8 mmにおける磁場分布測定結果から求めた位相誤差分布を示す。位相誤差とはアンジュレータの磁場品質を表す指標であり、物理的な意味としては、アンジュレータの各周期で形成される光パルスの時間的なばらつきを光の位相として表したものである。標準偏差は3°程度であり、これは一般的なアンジュレータとして十分に良好な値であり、吸引力相殺のための多極磁石による磁場性能への影響は無視できる(補正可能である)ことを意味している。

表1 BL10XU用IVU-IIパラメータ

周期長	28 mm
全長	3.6 m
最小ギャップ	8 mm
最大ギャップ	40 mm
最大K値	2.3
最大磁場	0.87 T

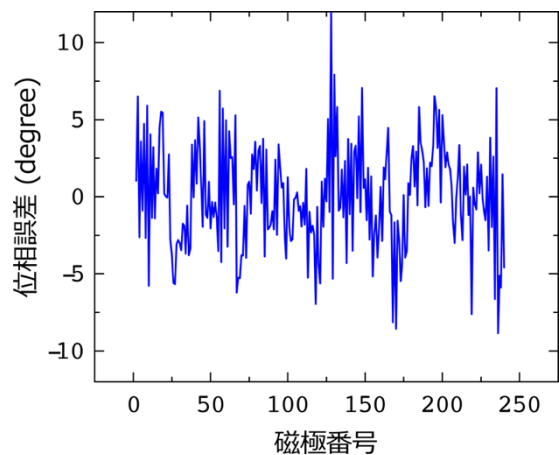


図3 調整作業完了後の位相誤差分布測定結果

ちなみに、従来型のアンジュレータで位相誤差 3° を達成するためには数週間以上に及ぶ調整作業（磁石ブロックの入れ替えや反転、いわゆるシミング）が必要であるが、今回製作した IVU-II では 3 日程度で完了している。これは、採用した磁石列の構造が効率的な調整作業を可能にしているためであり、その有効性を示している。

上述した調整作業や組立作業、ベーキング作業などを経て、IVU-II の実用第 1 号機が 2018 年 3 月に完成した。その後、1 年間のビーム試験やギャップ開閉試験を経て、2019 年 4 月に BL10XU 用光源として運用を開始した。図 4 に SPring-8 蓄積リングに設置された IVU-II 第 1 号機の写真を示す。

4. 今後の展望

アンジュレータの開発において、本稿で紹介した吸引力相殺という概念は、駆動架台の簡素化という本来の目的以外にも様々な可能性を秘めている。その中でもギャップ開閉の高速化は重要な応用の一つである。数トンにも及ぶ吸引力のために、従来型駆動架台のギャップ開閉速度は毎秒数百マイクロン程度であり、このため、時分割 XAFS のために SPring-8 の BL28XU、33XU、36XU など導入されているチャンネルカット結晶をサーボモーターで駆動するコンパクト分光器の波長変更速度に追従することができない。このためこれらのビームラインでは、テーパアンジュレータと呼ばれる、磁石ギャップが上流から下流にかけて徐々に狭くなる（あるいは広くなる）特殊なアンジュレータを導入し、バンド幅を意図的に広げることで対応している。この場合、利用可能なフラックスは数分



図 4 稼働中の BL10XU 用 IVU-II

の 1 に減少するが、XAFS 測定に必要なバンド幅においてほぼフラットなスペクトルが得られるため、高速な波長スキャンが可能となる。吸引力相殺型アンジュレータでは機械負荷が大幅に（2 桁近く）軽減されるため、ギャップ変更速度の大幅な向上が可能であり、コンパクト分光器に匹敵するギャップ開閉が可能であれば、時分割 XAFS という応用分野における光源性能の向上に大きく貢献することが期待される。ただしこのためには、アンジュレータのギャップとコンパクト分光器のブラッグ角との同期を担保することが重要であり、今後の研究開発の課題となる。

謝辞

IVU-II の開発にあたり、長谷川照晃氏（2018 年 3 月まで理化学研究所在籍）、久間正之氏（2019 年 3 月まで高輝度光科学研究センター在籍）のお二人に多大なるご支援・ご助力を頂いた。ここに感謝の意を表す。

参考文献

- [1] N. Strelnikov *et al.*: *Phys. Rev. Accel. Beams* **20** (2017) 010701.
- [2] O. Marcouille *et al.*: *Proceedings of IPAC2010*, Kyoto, Japan, 3102-3104. (Geneva, Switzerland: JACoW)
- [3] T. Bizen *et al.*: *AIP Conference Proceedings* **705** (2004) 175-178.
- [4] S. Yamamoto *et al.*: *Journal of Synchrotron Radiation* **26** (2019) 1902-1910.
- [5] R. Kinjo *et al.*: *Review of Scientific Instruments* **88** (2017) 073302.

田中 隆次 TANAKA Takashi

(国) 理化学研究所 放射光科学研究センター
〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0802
e-mail : ztanaka@spring8.or.jp

金城 良太 KINJO Ryota

(国) 理化学研究所 放射光科学研究センター
〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0802
e-mail : r-kinjo@spring8.or.jp

清家 隆光 SEIKE Takamitsu

(公財) 高輝度光科学研究センター 光源基盤部門
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0802
e-mail : sesblg@spring8.or.jp

鏡畑 暁裕 KAGAMIHATA Akihiro

(公財) 高輝度光科学研究センター 光源基盤部門
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0802
e-mail : kagamihata@spring8.or.jp

備前 輝彦 BIZEN Teruhiko

(公財) 高輝度光科学研究センター 光源基盤部門
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0802
e-mail : bizen@spring8.or.jp

岸本 輝 KISHIMOTO Hikaru

(公財) 高輝度光科学研究センター 光源基盤部門
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0802
e-mail : khikaru@spring8.or.jp

大橋 治彦 OHASHI Haruhiko

(公財) 高輝度光科学研究センター 光源基盤部門
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0802
e-mail : hohashi@spring8.or.jp

山本 樹 YAMAMOTO Shigeru

高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1
TEL : 029-864-5624
e-mail : shigeru.yamamoto@kek.jp

冷凍食品への放射光 X 線 CT 応用

公益財団法人高輝度光科学研究センター
放射光利用研究基盤センター
産業利用推進室 佐藤 眞直

Abstract

放射光を用いた X 線 CT 測定 of 冷凍食品分野への応用を目的とした技術開発事例を紹介する。冷凍食品中の凍結組織を構成する氷と食材の密度差は小さく、管球光源の白色 X 線を用いた実験室系の X 線 CT 装置ではその組織を識別することは困難である。この問題の解決手段として、放射光から得られる高輝度単色 X 線を活用することで凍結組織の X 線 CT 断層像のコントラストを向上し、冷凍食品内部組織の非破壊観察を実現可能か、産業利用ビームライン BL19B2 において技術検討した。まず、X 線 CT 装置上で冷凍試料を凍結保持するための液体窒素吹付試料冷却装置を開発した。この装置を用いて冷凍マグロ試料の X 線 CT 測定を行った。その結果、凍結組織中のマグロの筋肉成分の凝集組織と氷を明確に識別できるだけでなく、得られた X 線線吸収係数の分布の定量的なデータから冷凍による組織の密度変化の評価にまで応用可能になることが示された。

1. はじめに

食品の冷凍保存技術は、現代の食品工業において、多様化する食生活に欠かせない存在となった冷凍食品、生産工程の低コスト化を目的としたプロセスの細分化に伴う原材料の保管、搬送時の品質維持、等様々な場面で重要な技術となっている。その技術開発における主たる課題は冷凍、保存、解凍の過程における品質劣化の抑制である。冷凍中の食材（肉、魚、等）の組織損傷の主因は氷結晶の粗大化にある。つまり、この冷凍組織の制御が劣化抑制のカギであり、そのため氷結晶の形態観察技術は冷凍プロセス開発において重要である。

X 線 CT (Computed Tomography) 技術は「そのまま」の冷凍組織中の氷結晶の形態を観察するための効果的な分析技術となり得る。しかしながら、冷凍組織の観察については、氷結晶と食材の密度差が小さいため、氷と食材の X 線の透過率差が小さく、管球光源の白色 X 線を用いる通常の実験室系 X 線 CT 装置ではこれらを識別するための十分な吸収コントラストを得ることが困難である。そのため、従来の凍結組織の X 線 CT 観察ではフリーズドライにより氷結晶部分を除去して空洞化して観察する手法^{1,2)}が採られているが、フリーズドライ処理による組織への影響が懸念され、X 線 CT の利点である非破壊観察という特徴

を活かしきれていない。

我々は、高輝度な単色 X 線を利用可能な放射光を応用することで、冷凍食品の X 線 CT 像における密度差の小さい氷と食材間のコントラストを向上し、凍結組織の非破壊 3 次元観察を実現することが可能か検討した³⁾。

2. 実験

本技術検討に当たり、X 線 CT 装置の試料ステージ上で冷凍試料を凍結状態で保持するための試料冷却装置を開発した。その仕様において検討すべき課題としては、以下の点があげられる。まず、X 線 CT 測定はサンプルを 180°回転させながら X 線透過像を測定するため、試料環境制御装置にはこのサンプルを回転させる自由度を確保する必要がある。また、対象とする冷凍食品は多様な形態を持つ（肉、魚、麺類、等）ため、熱伝導型の冷却機構では対応が困難である。以上の点を考慮し、サンプルの冷却は液体窒素吹付を用いた。図 1 に開発した冷却装置の外観写真を示す。冷凍試料は凍結状態のまま太さ約 5 mm 角、長さ約 20 mm 程度の角柱状に成型し、X 線 CT 装置の試料回転ステージの回転中心に垂直にセットする。この試料を、X 線を透過させるための窓を上流側、下流側に設けた金属筒で上から覆い、その上方から液体窒素蒸気を吹

き付けて試料を冷却する構造となっている。この構造を持つことで、吹き付けた液体窒素蒸気が外気を巻き込んで試料を霜付かせることなく凍結状態を維持することができる。また、この金属筒は2重構造となっており、液体窒素蒸気が通る内筒と外気にさらされる

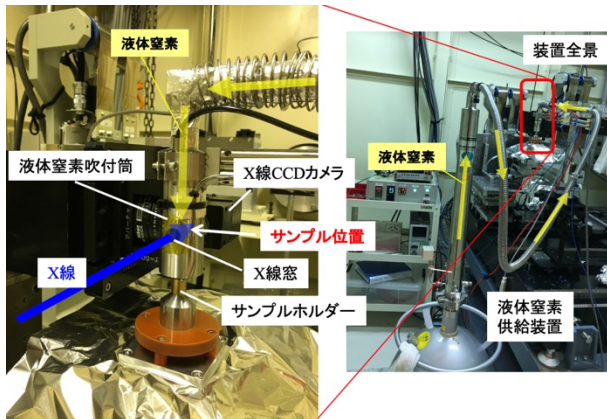


図1 X線CT用液体窒素吹付試料冷却装置の外観

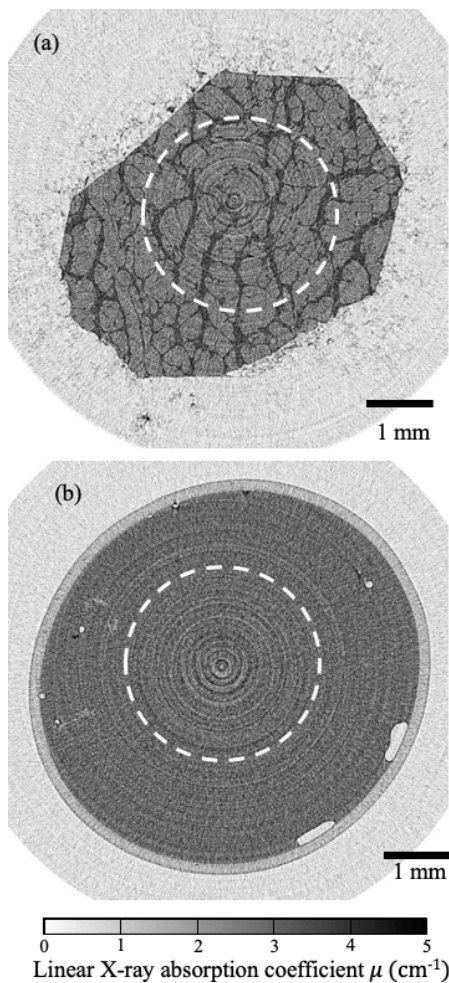


図2 冷凍マグロ(a)、及び冷凍していない生のマグロ(b)の断層像³⁾

外筒の間にヒーターで室温に温度を維持した乾燥窒素ガスを通すことで X 線窓を含む装置外部の霜付きを防止する機構も持っている。これにより長時間凍結状態を維持したまま安定的に冷凍試料の X 線 CT 測定実験が可能である。

実験は BL19B2 の X 線 CT 装置で行った (この装置は現在 BL14B2 に移設されており、本稿で紹介する実験技術は BL14B2 で実施可能である)。ここでは冷凍したマグロの凍結組織観察例³⁾を紹介する。試料は凍結したまま $5 \times 5 \times 15 \text{ mm}^3$ 程度の角棒状に整形して回転ステージ上に設置し、開発した試料冷却装置で約 -30°C で冷却しながら X 線 CT 測定を行った。実験条件は X 線の波長 = 1 \AA (エネルギー = 12.4 keV)、測定試料と X 線カメラシステムまでの距離 = 約 10 cm である。X 線透過像の取得は、イメージングユニット：浜松ホトニクス AA40、CCD カメラ：浜松ホトニクス C4880-41S の組み合わせで行った。取得した透過像の画素サイズは $2.9 \mu\text{m}$ であった。測定試料を回転スピード $1.2^\circ/\text{秒}$ で 180° 回転させながら、露光時間 0.12 秒 で 258 枚の透過像を測定した。1 測定に必要な時間は約 2.5 分であった。測定したデータから断層像への再構成処理は Filtered Back Projection 法⁴⁾を用いて行った。

3. 結果と考察

図 2(a)に測定したマグロの冷凍試料の断層像を示す。像の濃淡は下のカラースケールに示すように測定試料中の X 線線吸収係数 μ の分布を示し、色が濃い程 μ が大きい、すなわち密度が大きいことを示している。比較のため、図 2(b)に冷凍していない生のマグロの断層像も合わせて示す。この生の試料は直径約 6 mm のストロー内に封入して測定した。見てわかるように、生の試料の断層像はほぼ均一な μ の分布を示しているが、冷凍試料では生の試料よりも μ が小さい淡色の領域の中に μ が大きい濃色の筋状組織を形成している凍結組織が明確に識別できる。これはすなわち、冷凍することにより生の試料よりも密度の小さい領域と密度の大きい筋状の組織に相分離した組織が形成されたことを意味する。これらは、氷の密度はマグロの筋肉組織の主成分である蛋白質よりも小さいことを考えると、 μ が小さい領域は水、 μ が大きい筋状の組織は

筋肉組織が凝縮して形成されたものと推定される。

前述の推定に対し定量的な考察を行った。まず図2の各断層像の白い破線で示した領域について、画素値の頻度分布を評価した。図3にその頻度分布のグラフを示す。横軸は μ 、縦軸が画素値の頻度分布である。黒点が冷凍試料、灰色の点が生試料のデータを比較して示している。生試料の頻度分布はその組成が試料内で均一であることを反映して、ガウス関数で表現される単一のピークを示している。これに対し、冷凍試料の頻度分布は、 μ の大きい側に非対称な肩を持っており、分離した組織の組成に対応する2つのピークの和になっていると考えられる。これら2つのピークをピークフィッティングにより分離した結果をグラフ中に実線と破線で示しており、それぞれ実線が淡色の領域、破線が濃色の筋状の組織に相当すると考えられる。ピークの中心値はそれぞれの組織の μ の平均値に相当する。実線のピークの中心値は、 $\mu = 2.59 \text{ cm}^{-1}$ となり、水の μ の計算値 2.45 cm^{-1} とほぼ一致することから、淡色の領域が氷に相当することが確認できる。さらに、生試料のピーク位置と冷凍試料の筋状組織の破線のピーク位置を比較すると、前者よりも後者の方が μ の大きい方にシフトしていることから、冷凍によって筋肉組織が筋状の組織に凍結濃縮されて平均密度が大きくなっていることが推定される。

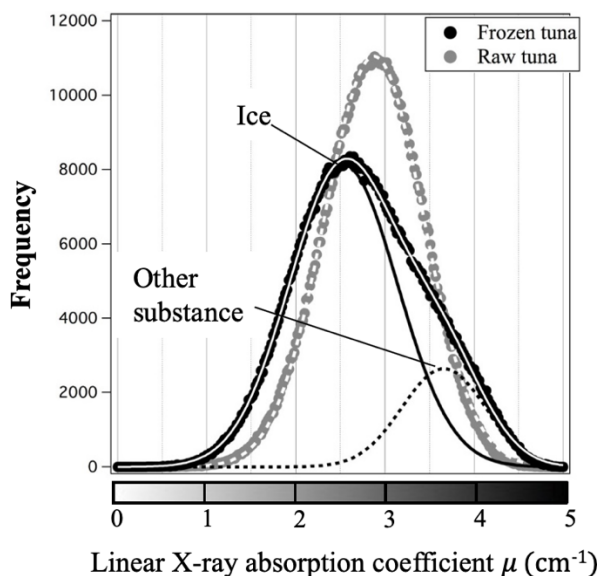


図3 マグロ試料の断層像(図2)の画素値の頻度分布^[3]。黒点のプロットが冷凍試料データ。灰色の点のプロットが生試料のデータ。

4. まとめ

放射光を X 線光源として用いることで活用することが可能となった高輝度単色 X 線の効果で、X 線 CT による冷凍食品内部の凍結組織の非破壊観察が可能であることが明らかになった。また、実験室系の X 線 CT 装置では困難であった密度差の小さい氷組織と食材との識別が可能となるだけでなく、X 線線吸収係数の分布の定量評価が可能となることで、凍結濃縮による構成成分の濃度変化を定量的に評価することまで可能となる事が示された。この冷凍食品試料の X 線 CT 測定を可能にするために開発した液体窒素吹付試料冷却装置は現在産業利用ビームライン BL14B2、BL46XU で運用している X 線 CT 装置においてユーザー実験に供している。この装置の利用に興味のある方は私もしくは上記ビームラインの担当者にご連絡ください。

参考文献

- [1] R. Mousavi, T. Miri, P. W. Cox and P. J. Fryer: *J. Food Sci.* **70** (2005) 437-442.
- [2] R. Mousavi, T. Miri, P. W. Cox and P. J. Fryer: *Int. J. Food Sci. and Tech.* **42** (2007) 714-727.
- [3] M. Sato, K. Kajiwara and N. Sano: *Jpn. J. Food Eng.* **17** (2016) 83-88.
- [4] 橋本雄幸、篠原広行：「C 言語による画像再構成の基礎」(医療科学社：東京、2006) 245-261.

佐藤 真直 SATO Masugu

(公財) 高輝度光科学研究センター
放射光利用研究基盤センター 産業利用推進室
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0924
e-mail : msato@spring8.or.jp

第18回 APS-ESRF-SPring-8-DESY 三極ワークショップ報告

公益財団法人高輝度光科学研究センター

放射光利用研究基盤センター 分光・イメージング推進室

為則 雄祐

1. はじめに

APS-ESRF-SPring-8-DESY 三極ワークショップは、1994年にESRFにおいて第1回目が開催されて以来、約18ヶ月の間隔でAPS、ESRF、SPring-8の3施設の持ち回りによって開催されてきた。本ワークショップは、高エネルギーの大型放射光施設としての各施設の現状を報告するとともに、共通して抱える技術的課題の解決に向けて、施設間の連携を強化する場となってきた。“三極”の名称は、アメリカ・アジア・ヨーロッパの3大陸を表し、2010年からはDESYが加わって、4施設にてワークショップが行われている。

ワークショップの開催から約四半世紀が経過し、18回目の開催となる今回は、2020年2月11～12日の日程で、ESRFにおいて開催された。本来、今回はSPring-8で開催される順番であったが、ちょうどESRF-EBS (ESRF-extremely brilliant source) のマシンのインストールが完了する2019年11月末が開催時期にあたることから、ESRFで開催することが決まった。さらに、ESRF-EBSのマシンコミッショニング時期を考慮して開催が翌年2月に延期され、結果的に上述の開催日となったとのことである。結果的に、この時期に開催されたことによってESRF-EBSのコミッショニングに関する情報を得ることができ、また実際に改修後の施設を見学することもできたため、非常に有意義な会議となった。

2. 開催前夜

筆者にとって、三極ワークショップへの参加は初めてであり、また、グルノーブル (ESRF) も初めての訪問であった。かつては冬季オリンピックが開催された地であり、寒さを覚悟しての渡航であったが、日本と同じくこちらも暖冬で、町中には雪など全く無く、初日は10°Cを超える陽気であった。現地の人と話をし

ても、この陽気は異常とのことであった。ただ、周囲を見渡すと、まわりには頂に雪化粧をしたアルプスの山々がそびえ、町中を移動する際にも、景観の良さが目についた。

会議に参加するにあたり、関係者が移動した2月9～10日にかけて、ドイツにSabine (サビーネ) と名前がついたハリケーンが接近した¹⁾。そのため、ドイツ国内の鉄道が止まり、飛行機も欠航が相次ぎ、ドイツからの参加者や、ドイツ経由で移動した日本からの参加者の移動に大きな影響があった。ドイツからの参加者に聞いたところでは、今回ほど大規模に交通がマヒした経験は無いとのことであった。また、アメリカからのフライトにも影響があったようで、アメリカからは渡航できなかった参加者も多数あった。筆者はアムステルダム経由で渡航したが、デンマーク上空あたりからハリケーンの影響で揺れが激しくなり、飛行機の到着に遅れがでた。その結果、空港では、蓄積リング棟1周分ほどの距離を必死に走って乗り継ぐという一幕もあった。いろいろとトラブルはあったものの、(筆者の知る限りでは) 日本からの参加者は皆無事に現地へ到着し、ワークショップに参加の運びとなった。



図1 会場となった ESRF-EBS の外観。正面の建物は、フェーズIで増設された実験ホール。

3. 各施設からの報告_ESRF-EBS

初日は、“Status report by the DGs”、“Accelerator project report”、“Science report by the DoRs”、“Science Highlight from the facilities”と題した4つのセッションが、また2日目の午前には、“Facilities’ instrumentation program”と題したセッションが設けられ、それぞれのセッションにおいて各施設からの報告が行われた。個々の発表については、会議のプログラムを末尾に示したのでそちらを参照していただき、ここでは特に印象に残った発表を中心に紹介したい。特に、ESRF-EBSの進捗とコミッショニングに関する見事な発表は、今回のワークショップを通したハイライトであった。そこで、最初に少し紙面を割いて、まずはESRF-EBSの現状について報告する。

ESRFのアップグレード計画はESRF-EBSと呼ばれ、フェーズI(2009～2015年)とフェーズII(2015～2022年)の2段階で進められている²⁾。フェーズIは、加速器に先だって戦略的にビームラインの再編を行う計画であり、実験ホールの拡張に加えて、長尺ビームラインの建設なども行われている。2015年にフェーズIは終了し、その後、加速器のアップグレードであるフェーズIIに計画が引き継がれている。フェーズIの終了後、数年間ではあるが古いリングのまま、再編されたビームラインを用いた利用研究が行われている。ESRFの調べによると、フェーズIにおけるビームラインアップグレードの結果、発表された論文数に大きな変化は無いが、インパクトファクターが37%程度増加したとの報告があった。ビームラインの集中的なアップグレードが、研究の質的向上に寄与しているという調査結果は興味深い。アップグレードの議論では、既存の測定環境が維持されるかどうか意識が向きがちになるが、同じくビームラインのアップグレードを先行して進めているSPring-8においても、今後どのようなサイエンスを展開し、そのために測定環境をどのように向上させていくのか、という視点は、ESRF-EBSの例を見ても、今後の議論においてもっと意識されるべきであろう。

冒頭に紹介したとおり、アップグレード計画のフェーズIIも順調に進行している。2019年の11月にはマシンのインストールが終了し、12月2日からはコミッショニングが開始されている。ESRF-EBSは、ハ

イブリッド7 bend achromat (BA)のラティスを採用し、蓄積電流は200 mA、水平エミッタンスは133 pm-radを目指した計画である²⁾。ESRF-EBSからの報告によると、12月6日に、ESRF-EBSの蓄積リングに電子を蓄積し、その後、12月15日には世界最小となる水平エミッタンス308 pm-radを達成している。この結果は、ESRF-EBSのホームページでも速報として紹介されていたので、ご覧になった方も多いと思う³⁾。さらに2020年に入り、1月30日には100 mAの蓄積を達成し、同日、5 mA運転条件下でフロントエンドスリットをあけて、ビームラインへの光の導入に成功している。この時点で、27本中26本のビームラインでマシンの改造前とほぼ同じ位置で光を確認したとのことである。2月7日には蓄積電流は180 mAに達し、三極ワークショップに至っている。図2は、ワークショップ中に現地で撮影した運転モニタである。蓄積電流180 mAで、すでにトップアップ運転が行われていることが分かる。また、同日に制御室を見学したところ、当日の水平エミッタンスは200 pm-rad程度まで向上していた。

2日目最後のサイトツアーでは制御室の見学も行われ、コミッショニング風景を見学することができた。そこでは、ピンホールカメラで観察したビームのプロファイルを観察しながら、調整が行われていた(図3)。理屈では分かっていたものの、実際に丸いビームが映された画面は、放射光光源が新しい時代に入ったことを実感させるのに十分なインパクトであった。

これまでに紹介した通り、ESRF-EBSのコミッショニングは順調に進んでおり、現在の蓄積電流は、リングの真空により制限されているとのことであった。



図2 ESRF-EBSの運転状況表示モニタ。

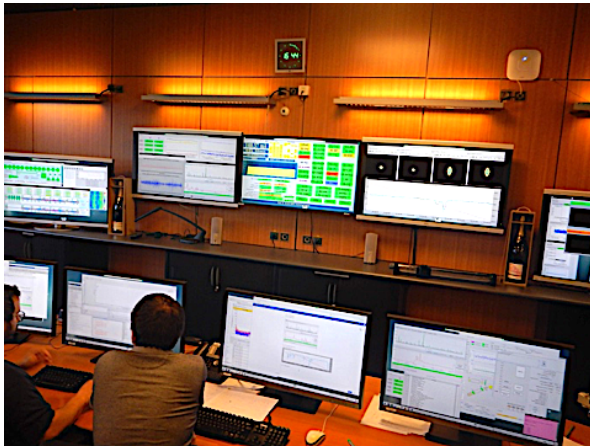


図3 制御室のコミショニング風景。壁際に置かれた中央の3枚のモニタの両脇に置かれているのが、本文中で紹介した2本のワイン。

まだ半年のコミショニング期間が残っていることを考えると、順次真空が枯れて行くことでこの問題は解決されるものと予想される。余談になるが、制御室に2本のワインが飾っており、それらには“200”という数字が書き込まれていた(図3)。ESRF-EBSのスタッフに尋ねたところ、飾ってあるワインは200 mAの蓄積を達成したらお祝いに開けることになっているという意味だそうで、目標までもう少しだと楽しそうに話しておられた(この原稿を執筆している間に、ESRF-EBSのホームページ上では、はやくも2月29日に200 mAの蓄積に成功したとの発表があった³⁾。未確認ではあるが、2本のワインボトルはすでに開けられたものと推察される)。

現在の入射効率は、90%程度とのことである。これまでのコミショニング過程で、蓄積リング中に2箇所ゴミが入っていることが発見され(1箇所はワイヤで、もう1箇所はアルミくずとのこと)、その都度、リングの真空を破って対処したとのことであった。2ヶ月程度の期間に、何度も真空作業に対処されている作業経過からも、現地スタッフのESRF-EBSへの意気込みが感じられた。また、小数バンチ運転である16バンチ運転もすでにテストしており、25 mAの蓄積に成功しているとのことであった。

蓄積リングのコミショニング開始当初は、放射線安全管理の問題上、実験ホールへの立ち入りは安全系のスタッフのみに制限されていたとのことであったが、ちょうど三極ワークショップの直前にこの制限が



図4 ESRF-EBSの実験ホール内の風景。

緩和されたとのことで、我々もサイトツアーで実験ホールや制御室などを見学することができた。ESRF-EBSの実験ホールでは、実際にX線を使用する光学ハッチや実験ハッチに加えて、試料準備室や制御環境などが全て区分けされた小屋に納められていた(図4)。また、フェーズIIの予算は2022年度まで継続することによって、フラッグシップビームラインと命名された4本の新規BLの整備が引き続き行われるとのことであった。

ESRF-EBSでは、この後も引き続きコミショニングが行われ、3月2日からはビームラインを含めてコミショニングを行い、8月25日からはユーザー運転を再開する予定とのことであった。現時点では、アップグレード計画においては、ESRF-EBSは他施設よりも一歩先を進んでいる。同業者としては悔しくもあるが、その一方で、低エミッタンスリングではどのように計測技術が進展するのか、また、どのような新しいサイエンスが展開されるのか、しばらくはESRF-EBSの動向に注目することになりそうである。

4. 各施設の現状とアップグレード計画の進捗

次に、ESRF-EBS以外の3施設の状況について報告する。

PETRA III、PETRA IV : PETRA IIIでは、拡充された Paul P. Ewald ホール、Ada Yonath ホールの整備状況と、Ewald ホールに新たに建設された P61B (large volume press)、P62 (Anomalous Small Angle Scattering)、ならびに建設中の P66 (Time-resolved UV Luminescence) の紹介があり、最初に

建設された Laue ホールを含めると、現在は合計で 23 本のビームラインが稼働中とのことであった。

PETRA IV へのアップグレード計画については、2019 年 12 月に Conceptual design report (CDR) を発表したとの報告があった^[4]。今後は設計を進めて Technical design report (TDR) を取りまとめる作業を行い、2022 年に TDR を発表の予定とのことである。その後、2025 年から建設を行い、2027 年に運転開始する計画とのことであったが、PETRA IV も予算の問題を抱えており、これまで提案されていた計画よりも少しずつ遅れている様である。

また、DESY のキャンパス内に、CXNS (Centre for X-ray and Nano Science)、CMWS (Centre for Molecular Water Science)、CSSB (Centre for Structural Systems Biology) など、多くの研究センターの建設が計画されているとの紹介があった。ハンブルグ大学を含め、この地区を科学地区として整備する計画とのことであった。

APS、APS-U : APS からは、新しい高速チョッパーの開発に関する発表が印象に残った。MEMS (Micro Electro Mechanical Systems) で加工された薄いシリコン結晶を高速で振動させ、300 ps 以下の時間幅で、入射 X 線を回折させて切り出すことに成功したとのことである^[5]。APS では、将来の方向性の 1 つとして “resolution with speed” というテーマを掲げており、サイエンスハイライトにおいても、ビームライン 7-BM におけるスプレーのトモグラフィ計測の成果などが紹介されていた。次期光源においては光源輝度の向上が期待され、今後、時分割計測の活性化はさらに加速しそうな気配であった。

APS-U (APS-upgrade) 計画においては、昨年末に APS-U 計画の CD-3 が採択され、リングの改修に向けた準備が始まったとの報告があった^[6]。これからコンポーネントの準備を始め、2022 年の冬に APS をシャットダウンしてマシンをアップグレードし、2026 年から利用再開を目指しているとのことである。

SPring-8、SPring-8-II : SPring-8 からは少ないダウンタイムで安定して運転されている状況が報告された他、加速器の進捗として蓄積リングへの SACLA 入射・キッカーシステムの feedforward システム、吸引力相殺アンジュレータなどの状況が報告された。ま

た、施設のアップグレード計画においては、日本では東北放射光計画が採択されたため、そちらと合わせて将来計画が検討されている状況が紹介された他、SPring-8 ではビームラインアップグレードに着手した現状などが報告された。

その他、全体として、発光分光／非弾性散乱装置の整備と、その利用が進んでいることが印象に残った。ESRF-EBS からはよく知られた ID20、ID26 のビームラインの紹介があった他、PETRA からはテング領域 (2840 eV) における利用と、サイエンスハイライトとして軌道イメージングの成果が報告された^[7,8]。APS からも、多層膜コートされたモンテルミラーと quartz 結晶を用いた RIXS 装置により、10 meV 以下の高分解能を達成した話題が紹介された^[9]。SPring-8 も発光分光器は整備を進めてきており、この先の利用をしっかりと考えることの重要性を改めて認識した。

2 日目の午後は、2 月 10 日にパラレルで行われた 2 つのサテライトワークショップ (Optics Workshop と Data Management Workshop) のまとめが報告された。特に、Data Management workshop の報告では、次期光源で予想される大量データについて、ストレージ・解析・データポリシーなど多方面から話題が寄せられた状況が報告されたが、当然ながら、1 日のワークショップでは議論しきれず、次回の会議でも引き続き議論が行われることが確認された。Data Management は、いずれの施設でも喫緊の課題として、その対策に追われている状況が伺えた。

5. おわりに

最後に、ESRF-EBS 関係者への謝辞を込めて、今回のワークショップをお世話していただいた、Anne-Françoise Maydew さんの話題を紹介したい。

今回のワークショップでは、会議を通して非常に行き届いた運営が行われていた。その陣頭指揮を執られていた Anna さんとバンケットで同席し、いろいろとお話をお伺いすることができた。Anna さんは、10 年程前に学会に参加するために来日された経験をお持ちとのことで、その際、会議に加えて日本で訪れた観光地や商店において、日本人スタッフの親切で丁寧な対応に感銘を受けられたと熱心に話しておられた。フランスに帰国後は、次は会議などでグルノーブルを訪

れる人に満足してもらおうと、所属するチームのメンバーに日本での経験を伝え、発破かけて頑張ってもらったとのことであった。昨年のラグビーワールドカップでも話題となったが、いわゆる日本の「おもてなし」に感銘を受けられたわけで、スポーツのみならず、学術交流も日本の文化を伝えることに一役買っていることを実感することとなった。

さて、今回のワークショップは、SPRING-8において2021年の2~3月の期間に開催されることが決まった。ビームラインアップグレードを含め、主催者としてSPRING-8はどのような進捗報告ができるのか、はたまた「おもてなし」の本来として海外からの関係者をどのように迎えるのか。ESRF-EBSでの開催が変則であったため、本来の開催周期に戻すために今回のワークショップは1年後である。

表1 初日(2月11日)のプログラム

title	Speaker
Status Report PETRA	E. Weckert (DESY)
Status Report APS	S. Streiffer (ANL)
Status Report SPRING-8	T. Ishikawa (SPRING-8)
Status Report ESRF	F. Sette (ESRF)
Accelerator : APS Report	S. Streiffer (ANL)
Accelerator : SPRING-8 Report	T. Watanabe and H. Tanaka (SPRING-8)
Accelerator : PETRA Report	R. Wanzenberg (DESY)
Accelerator : ESRF-EBS Report	P. Raimondi (ESRF)
SPRING-8 Science Report	M. Yabashi (SPRING-8)
PETRA Science Report	C. Schroer (DESY)
APS Science Report	J. Lang (APS)
ESRF Science Report	H. Reichert, J. Susini (ESRF)
Scientific Highlights from PETRA	H. Gretarsson (DESY)
Scientific Highlights from APS	D. Mills (APS)
Scientific Highlights from SPRING-8	A. Q. Baron (SPRING-8)
Scientific Highlights from ESRF	H. Reichert, J. Susini (ESRF)

表2 2日目(2月12日)のプログラム

Title	Speaker
APS instrumentation program, leveraging HPC resource at Argonne	J. Lang (APS)
SPRING-8 detector program and recent progress on the CITIUS detector	T. Hatsui (SPRING-8)
PETRA	H. Graafsma (DESY)
Detector developments for ESRF-EBS	P. Fajardo (ESRF)
Parallel Session I: Infrastructure, Supporting Technologies	
APS	J. Smith (APS)
SPRING-8	M. Yamamoto (SPRING-8)
PETRA	R. Doehrmann (DESY)
The new ESRF accelerator timing system	N. Janvier (ESRF)
Parallel Session II: Cryo-EM preparation	
Cryo-ED and EM for higher-resolution and higher precision structure analysis	K. Yonekura (SPRING-8)
PETRA	O. Seock (DESY)
APS	K. Wiaderek (APS)
ESRF	E. Kandiah (ESRF)
Optics workshop summary	R. Barrett (ESRF)
Data management workshop summary	R. Dimper (ESRF)

参考文献

- [1] 外務省渡航安全ページ：
<https://www.anzen.mofa.go.jp/od/ryojiMailDetail.html?keyCd=78565>
- [2] CDRをはじめ、ESRF-EBSに関する情報は、以下のHPから入手可能である。
<https://www.esrf.eu/about/upgrade>
- [3] 以下のHPに、これまでのコミッションに関する速報が報告されている。
<https://www.esrf.eu/cms/live/live/en/sites/www/home/news/general.html>
- [4] CDRをはじめ、PETRA IVに関する情報は、以下のHPから入手可能である。
https://photon-science.desy.de/facilities/petra_iv_project/index_eng.html
- [5] P. Chen *et al.*: *Nature communications* **10** (2019) 1158.
- [6] APSのアップグレードに関する情報は、以下のHPから入手可能である。
<https://www.aps.anl.gov/APS-Upgrade>
- [7] B. Leedahl *et al.*: *Nature communications* **10** (2019) 5447.
- [8] H. Yavaş *et al.*: *Nature Physics* **15** (2019) 559-562.
- [9] J. Kim *et al.*: *Scientific Reports* **8** (2018) 1958.

為則 雄祐 TAMENORI Yusuke

(公財) 高輝度光科学研究センター
放射光利用研究基盤センター 分光・イメージング推進室
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0833
e-mail : tamenori@spring8.or.jp

SPRUC 第 2 回 BLs アップグレード検討ワークショップ報告

SPring-8 ユーザー協団体 (SPRUC) 行事幹事
岡山大学 異分野基礎科学研究所

横谷 尚睦

1. 概要

SPRUC 第 2 回 BLs アップグレード検討ワークショップが、2020 年 2 月 21-22 日の日程で、SPring-8 放射光普及棟大講堂で開催された。本ワークショップ (WS) の目的は、第 1 回 WS や SPring-8 シンポジウム 2019 での議論を踏まえ、それ以降の技術開発動向やビームライン (BL) アップグレードの具体的なプラン、更には、検討事項を共有するとともに、今後の継続的な BL アップグレードに向けた議論を行うことである。212 名の参加者 (SPRUC 会員 101 名、施設関係者 109 名、来賓・文部科学省 2 名) が全国から集まった。コロナウィルス感染の広がりが心配されており、マイクの消毒や会場の換気、さらには看護師常駐などの対応がなされる中での開催であったが、昨年を上回る人数の参加者が集まり、活発な議論が行われた。以下、プログラムに沿って本 WS の様子を報告する。

2. 初日

13:00 より、主催者側から水木純一郎 SPring-8 ユーザー協団体 (SPRUC) 会長、石川哲也理化学研究所放射光科学研究センター (RSC) センター長、雨宮慶幸高輝度光科学研究センター (JASRI) 理事長、及び来賓の文部科学省 科学技術・学術政策局 研究開発基盤課 量子研究推進の對崎真楠室長補佐の挨拶で、本 WS が始まった。



写真 1 会場の様子

2.1 総合セッション SPring-8 の現状と展望

総合セッションの前半「今後に向けた SPRUC の役割」では、水木会長から科学技術立国日本を牽引する SPring-8 における施設とユーザー (SPRUC) の役割、SPRUC の重要性についてメッセージがあった。藤原明比古 SPRUC 庶務幹事からは、ビームラインの高度化・高性能化およびアップグレードに関する議論の経緯、施設側からの共用 BL 再編計画案などについての説明と、本 WS の趣旨説明がなされた。

引き続き、総合セッションのメインテーマ「話題提供：先端放射光施設の動向」について、施設側から 4 名の講演があった。理研の矢橋牧名氏からは「施設側の最近の取り組み」と題して、BL 再編・アップグレードに関する進め方、基本方針、Scheme、Objective について、その背景となる SPring-8/SACLA を取り巻く状況も含めて説明があった。2020-2021 年度の BL 改修計画案として、(1) HAXPES (硬 X 線光電子分光法: Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy) ビームラインの集約、(2) NRS (核共鳴散乱法: Nuclear Resonant Scattering) /IXS (X 線非弾性散乱法: Inelastic X-ray Scattering) の連携によるアクティビティの強化、(3) BL20B2 のアップグレードが進行中であることが報告された。加えて、SPring-8-II に向けた高度化要素技術として、ユビキタス・ナノ (ナノ顕微、時間分解、多次元解析)、超高輝度高エネルギー X 線 (30-100 keV) の活用 (BL05XU)、汎用分析の拡充、の重要性が指摘された。理研の初井宇記氏からは「検出器の開発動向と将来展望」と題して、現在開発が進行中の積分型 CITIUS 検出器などについての報告があった。性能比較から、CITIUS 検出器は従来検出器 (計数型) に比べて飛躍的に性能が向上していることが見て取れた。JASRI の城地保昌氏からは「DAQ インフラ整備の課題と将来展望」として、今後のデータ量の急激な増加に対する取り組み

に関して、大規模データの効率処理に向けてのデータプラットフォームの標準化、大規模データ処理のためのネットワーク基盤整備、実験系ネットワークの更新に向けての方向性などについての検討状況が報告された。JASRI の櫻井吉晴放射光利用基盤センター副センター長（為則雄祐氏の代理）からは「3 極ワークショップ報告」と題して、3 極ワークショップのハイライトであった ESRF-EBS (Extremely Brilliant Source) を中心に報告がなされた。3 極ワークショップは APS、ESRF、SPring-8、PETRAIII の研究動向などについて議論する WS であり、次回は 2021 年 2-3 月に SPring-8 で開催予定ということである。詳細は、本誌の研究会等報告において掲載。質疑の時間には、SPring-8-II が他の施設に対して有するアドバンテージに関する質問などがあり、SPring-8-II ではエミッタンス追求はしないか安定性は向上するかもしれないこと、電気代は削減される方向であり、浮いた予算は R&D に使うことになるという回答があった。

2.2 個別セッション 1

休息と集合写真撮影を挟んで、後半のセッション「HAXPES を中心とした BL 再編とアップグレードの現状」が始まった。理研の玉作賢治氏から「施設での検討状況・計画」と題して、HAXPES 利用高度化ワーキンググループ (WG) の設立の経緯と本日までの活動についての報告と、WG での検討事項 (将来構想案、学術系 HAXPES エンドステーションの集約プランの作成、運用・利用研究効率化プランの作成) について説明がなされた。BL09XU 及び BL47XU の HAXPES 担当の JASRI 保井晃氏からは BL09XU と BL47XU の HAXPES 装置を BL09XU に統合して配置する計画について、計画内容 (第 1 ハッチ：共鳴 HAXPES、第 2 ハッチ：ナノ集光による nano-HAXPES など)、ビームラインの配置案、光学系の検討状況の詳細について説明があった。実質的なビームタイムの増加が見込めるだけでなく、これを機に BL の光学系を一新するため、性能も向上するとのことであった。

ユーザー側からは、SPRUC・大阪大学の関山明氏より「研究会での検討状況・展望・要望」と題した報告があった。BL09XU と BL47XU の共用 HAXPES の統合計画についての、SPRUC 研究会における検討経緯およ

び SPRUC 研究会から提出された SPring-8 の HAXPES ビームライン計画の要望書の要点の説明があった。加えて、HAXPES2019 会議からの最近の HAXPES のトレンドについて紹介があり、background 解析、Tender (2-5 keV) 領域の HAXPES、新しい装置光源の開発、外場印加 HAXPES、HAXPES を実施する上での課題について話題提供があった。

2.3 意見交換会とランプセッション

意見交換会は、SPring-8 食堂において立食形式で行われた。藤原明比古 SPRUC 庶務幹事の司会のもと、月原富武 SPRUC 顧問の挨拶により始まった。豪華な食事を囲み情報交換の場となった。

その後、普及棟に会場を戻し、ランプセッション「SPRUC：これまで、これから～持続可能な組織への展望～」が始まった。高尾正敏企画委員長の司会のもと、趣旨説明がなされ、「若手中堅に 20 年後を語って貰おう!!」のお題のもと 4 分野を代表した若手・中堅ユーザーが講演した。ライフサイエンスの立場から講演された東北大学大学院生命科学研究所の田中良和氏は、構造生物学における SPring-8 の役割や、クライオ電子顕微鏡の性能向上による構造生物学の動向変化について説明した。これまでの研究ノウハウの蓄積があるので、SPring-8 とクライオ電子顕微鏡により SPring-8 が世界一の共用構造生物学施設になるとのこと。地球科学、高圧科学の立場から講演された愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センターの河野義生氏は、取り組むべきサイエンスのビジョンやどのように ESRF、APS と戦うのかについての戦略の必要性、分野連携の重要性を指摘していた。化学・材料の立場から講演された京都大学化学研究所の小川紘樹氏は「ソフトマテリアル材料の視点から考える今後の小角 X 線散乱法への期待 (要望)」と題して、高分子材料の観点からみた今後の放射光 SAXS 法



写真 2 意見交換会の様子

について、現状の課題と今後の方向性について説明した。高分子の構造と機能に関連づけるためには、構造の不均一性の理解が重要であり、そのための研究手法として SAXS-Computed Tomography 法の必要となる諸性能が示された。X 線光学と計測高性能化の立場から講演された東北大学多元物質科学研究所の矢代航氏は、3D イメージングを中心として 10 年後の予想、期待しているインターラクシオンフリーイメージング、20 年後の研究テーマとして脳活動の可視化による脳の機能の研究について説明した。その後の質疑応答では、研究会間のコミュニケーションの重要性、20 年後の研究テーマを考える上でコンピュータの発展を考慮に入れることの重要性が指摘されていた。

3.2 日目

3.1 個別セッション 2 (前半)

9:00 より個別課題セッション 2 の前半「NRS/IXS を中心とした BL 再編とアップグレードの現状」が開始された。土曜日ではあったが、会場の普及棟大講義室は参加者で埋まった。司会の田中行事幹事から、2 日目のプログラムに関する簡単な説明がなされたのち、「施設での検討状況・計画 (施設)」に関する講演が JASRI の依田芳卓氏と内山裕士氏よりなされた。依田氏は「NRS/IXS : BL 再編とアップグレード : 施設での検討状況・計画」と題して、核共鳴散乱実験 (NRS) の BL09XU から BL35XU への移設に関して、これまでの検討過程及び内容について説明した。NRS 実験には強度が必要であるため、BL35XU を主として用い、測定できない核種については BL19LXU を用いる案が示された。また、BL アップグレードの詳細についても説明された。続いて、JASRI 内山氏より、BL35XU での IXS 研究の現状と、BL35XU への NRS 移設後の変更点と問題点について説明があった。マシンタイム減少を補うためには効率的な運用が必要であるとのこと。2021 年 1 月から 2021 年 7 月のスケジュールについても説明された。

SPRUC 側から核共鳴散乱ユーザーの代表として兵庫県立大学の小林寿夫氏より「核共鳴散乱研究会での検討状況、展望、要望」と題する講演があった。利用者 : SPRUC と施設 : 理研・JASRI の間でどのように情報共有や検討、議論が行われたかについて報告された。飛び

入りで理研の Baron 氏より、試料のサイズ (中性子との比較) と測定エネルギー領域 (Low-Q は中性子では難しい) の観点から IXS の特徴についてコメントが出された。続いて SPRUC 不規則系物質先端科学研究会を代表して、広島大学の乾雅祝氏から、高分解能 IXS と不規則系物質について ESRF と SPring-8 において行われたこれまでの研究の Review があり、フォノン研究における Low-Q 領域の重要性が、複雑系やユニットセルの大きい物質を例にあげて説明された。

JASRI 櫻井吉晴放射光利用基盤センター副センター長 (上杉健太郎氏の代理) より、「BL20B2 における多層膜分光器の設置とその影響 (効果)」と題する講演があり、BL20B2 多層膜分光器設置の検討の概要と、このアップグレードにより光束密度が現状より 20-100 倍になること、どのような革新的なイメージング分析技術導入が可能になるかについての説明があった。

3.2 個別セッション 2 (後半)

10 分間の休憩後に、「今後の BL 再編とアップグレードに向けた課題の洗い出し」と題した午前後半のセッションが始まった。JASRI の櫻井放射光利用基盤センター副センター長より「施設での検討状況問いかけ」と題して、2018 年 SPring-8 シンポジウムで確認された、方針及び BL 再定義、についての再確認があり、実験ステーションの再編、ビームラインの高度化、共用理研専用 BL 間の連携強化の 3 つの検討課題について現状と本 WS での議論内容、今後の再編対象 BL (予定) が示された。また、SPring-8 再編の時期に当たる第 5 期研究会の役割に対する要望 (科学技術の動向を踏まえた研究展開に対する議論、利用者側からの要望のとりまとめなど) が示された。

引き続き、JASRI 鈴木基寛氏より「BL39XU マルチ結晶 X 線発光分光装置-開発状況と利用シーズ-」と題した報告があり、整備を進めてきたマルチ結晶 X 線発光分光器 (2020 年度からユーザー利用) の統計精度、スループット向上について、海外装置との比較ののち、測定オプション (高エネルギー分解能 XAS、高エネルギー分解能 X 線発光 XES 分光、X 線ラマン散乱) 毎に測定例が紹介された。SPring-8-II 計画を視野に、利用展開を考えてもらいたいとの要望が出された。ユーザーの立場から SPRUC・京都大学の朝倉博行氏より「化学分

野での発光分光計測に対する期待」と題して報告があった。触媒研究を進める上での、発光と組み合わせた EXAFS (範囲拡張 EXAFS) および XAS の高分解能化 (ランタノイド元素の XANES) によるメリット、何ができるか、利用者からの要望、ビームラインへの期待が語られた。セッションの最後は、司会の田中行事幹事により総合討論のための要点整理が行われた。(1) BL アップグレードのメリットデメリット、(2) 共用から専用 BL への議論、(3) BL アップグレードの先に SPring-8-II があるとの観点の必要性が指摘された。

3.3 総合討論

午後は総合討論にあてられた。司会は、藤原明比古 SPRUC 庶務幹事 (SPRUC 副会長の坂田修身氏に代わり) が務めた。(1) システム、施設—ユーザー間の意見交換の課題、(2) HAXPES、(3) IXS、NRS、Imaging、(4) 発光分光の4つの討論項目について順番に議論がなされた。今後の進め方に関して、藤原明比古 SPRUC

庶務幹事からは、議論の場を増やす必要性を感じるので、SPring-8 シンポジウムと検討 WS の他に、状況に応じて適宜検討会を行うのが良いのではという意見が出された。石川 RSC センター長からは、これは始まりで、今後 BL 再編が10年程度の時間スケールで起こること、議論の場を増やすことが重要であるとのコメントが出された。櫻井放射光利用基盤センター副センター長からは、ユーザーの要望はマシンタイムの利用から成果の創出へシフトしているので、利用制度の変更も必要とのコメントが出された。

3.4 ラップアップ

次期 SPRUC 会長の木村昭夫氏の司会のもとラップアップが始まった。水木 SPRUC 会長より、持続可能未来を目指して、SPring-8 はユーザーと施設が対等な立場で運営していくことにより科学技術先進国を牽引するという事を再認識したというコメントがあり、今後の SPRUC 活動への期待が述べられた。

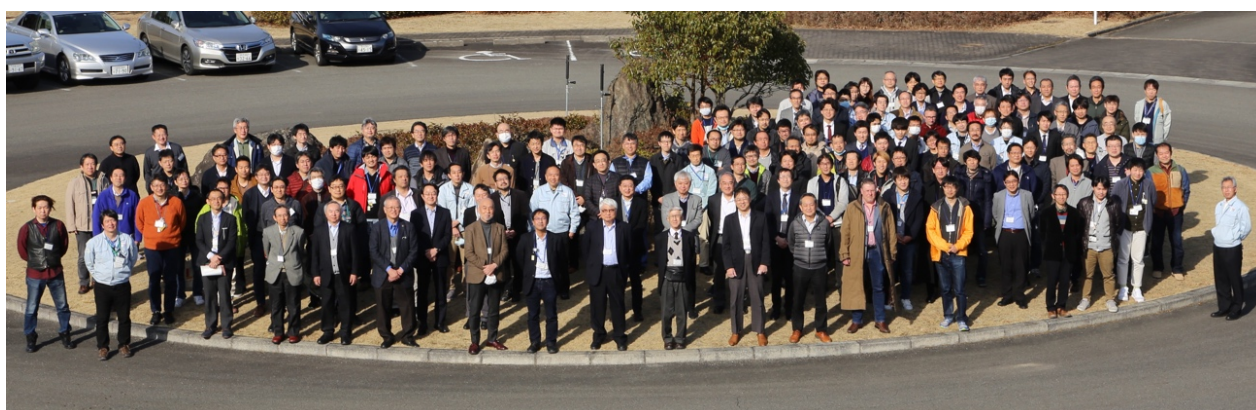


写真3 集合写真

プログラム

2月21日(金)	
13:00-13:15	開会式 (主催者挨拶: SPRUC、理研、JASRI) ご来賓ご挨拶 (文部科学省 科学技術・学術政策局 研究開発基盤課 量子研究推進室)
【総合セッション】 SPring-8 の現状と展望 (司会: 副会長 本間穂高)	
13:15-13:40	<今後に向けた SPRUC の役割> 1. 会長からのメッセージ (会長 水木純一郎) 2. 経緯と論点整理 (庶務幹事 藤原明比古)
13:40-15:10	<話題提供: 先端放射光施設の動向> 1. 施設側の最近の取り組み (理研 矢橋牧名) 2. 検出器の開発動向と将来展望 (理研 初井守記) 3. DAQ インフラ整備の課題と将来展望 (JASRI 城地保昌) 4. 3 極ワークショップ報告 (JASRI 為則雄祐 (櫻井吉晴)) 5. 質疑

15:10-15:30	集合写真撮影・休憩
【個別課題セッション1】 (司会: 利用委員長 有馬孝尚)	
15:30-17:00	<HAXPES を中心とした BL 再編とアップグレードの現状> 1. 施設での検討状況・計画 (理研 玉作賢治・JASRI 保井晃) 2. 研究会での検討状況・展望・要望 (SPRUC・阪大 関山明) 3. 自由討論
17:15-19:00	<意見交換会 (有料) > (食堂)
【ランプセッション】 (司会: 企画委員長 高尾正敏)	
19:15-	<SPRUC: これまで、これから~持続可能な組織への展望~>

2月22日(土)	
【個別課題セッション2】(司会：行事幹事 田中義人)	
09:00-10:40	<p><NRS/IXS/イメージングを中心としたBL再編とアップグレードの現状></p> <ol style="list-style-type: none"> 施設での検討状況・計画 (施設) (JASRI 依田芳卓・内山裕士) 研究会等での検討状況・展望・要望 (SPRUC・兵庫県立大 小林寿夫) 研究会等での検討状況・展望・要望 (SPRUC・広大 乾雅祝) 多層膜モノクロメータの設置によって期待される新たな研究展開 (JASRI 上杉健太郎 (櫻井吉晴)) 質疑応答・自由討論
10:40-10:50	休憩
10:50-11:50	<p><今後のBL再編とアップグレードに向けた課題の洗い出し></p> <ol style="list-style-type: none"> 施設での検討状況・問い合わせ (JASRI 櫻井吉晴) 新整備された発光分光装置の新たな利用展望 (JASRI 鈴木基寛) 化学分野での発光分光計測に対する期待 (SPRUC・京都大 朝倉博行) 質疑応答 総合討論のための論点整理 (行事幹事 田中義人)
11:50-12:40	昼食休憩
【総合討論】(司会：庶務幹事 藤原明比古)	
12:40-14:10	<ol style="list-style-type: none"> 検討項目確認 各検討事案についての自由討論 (次期アップグレード対象の顕在化、これまでにない新たな領域創出の議論含) 全体討論 (議論しなかった項目含)
【ラップアップ】(司会：次期会長 木村昭夫)	
14:10-14:20	まとめと研究会への依頼 (会長 水木純一郎)

横谷 尚睦 YOKOYA Takayoshi

岡山大学 異分野基礎科学研究所

〒700-8530 岡山県岡山市北区津島中3丁目1-1

TEL : 086-251-7897

e-mail : yokoya@cc.okayama-u.ac.jp

SPring-8/SACLA 利用研究課題募集（2020B 期）の取扱について

登録施設利用促進機関

公益財団法人高輝度光科学研究センター

平素は SPring-8/SACLA の利用促進事業に格別のご支援ご協力を賜り心より御礼申し上げます。

SPring-8/SACLA は、新型コロナウイルス感染症の感染拡大の影響のため、ユーザー利用、及び 2020B 期の課題募集に関しましても、通常の運用ができない状況となっております。利用者の皆様にはご迷惑をおかけいたしますが、適宜 SPring-8/SACLA User Information 公式 HP 等により利用者の皆様に情報を発信して参りますので、ご留意の程お願い申し上げます。

SPring-8/SACLA User Information 公式 HP

ユーザー利用の再開に関する情報

SPring-8 <https://user.spring8.or.jp>

SACLA <http://sacla.xfel.jp>

課題募集に関する情報

SPring-8 <https://user.spring8.or.jp/?p=19319>

SACLA <http://sacla.xfel.jp/?p=10944>

ご不明な点がございましたら下記までお問い合わせください。

[問い合わせ先] 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
公益財団法人高輝度光科学研究センター 利用推進部 共用推進課
TEL : 0791-58-0961 FAX : 0791-58-0965
SPring-8 e-mail : sp8jasri@spring8.or.jp
SACLA e-mail : sacla.jasri@spring8.or.jp

第 45 回 (2020A) SPring-8 利用研究課題の採択について

登録施設利用促進機関

公益財団法人高輝度光科学研究センター
利用推進部

公益財団法人高輝度光科学研究センター (JASRI) では、SPring-8 利用研究課題審査委員会 (PRC) において SPring-8 の利用研究課題を審査した結果を受け、SPring-8 選定委員会の意見を聴き、以下のように第 45 回共同利用期間 (2020 年 4 月 1 日～7 月 26 日 (放射光利用 279 シフト、1 シフト=8 時間)) における利用研究課題を採択しました。ただし、産業利用 I、II および III ビームライン (BL19B2、BL14B2 および BL46XU) は 2020A を 3 期に分けて募集しており、これらのビームラインについては第 1 期の 2020 年 4 月 1 日～5 月 23 日 (114 シフト) における課題を採択しました。表 1 に利用研究課題公募履歴を示します。

1. 募集、審査および採択の日程

[募集案内公開と応募締切]

2019 年 10 月 25 日 SPring-8 ホームページで主要課題の募集案内公開

(利用者情報 2019 年 11 月号に募集案内記事を掲載)

11 月 19 日 成果公開優先利用課題、長期利用課題応募締切

12 月 5 日 一般課題、大学院生提案型課題および領域指定型重点研究課題 (先進技術活用による産業応用課題) 応募締切

[課題審査、選定、採択および通知]

2020 年 1 月 16 日～30 日

各分科会による課題審査

1 月 31 日 SPring-8 利用研究課題審査委員会 (PRC) による課題審査

2 月 13 日 SPring-8 選定委員会の意見を聴取

2 月 13 日 JASRI として採択決定し、応募者に審査結果を通知

題として応募された課題のうち一般課題として採択された課題の課題種は一般課題として整理)。2-2 に先進技術活用による産業応用課題の応募数と採択数を示します。また、表 3 に成果非専有課題としての科学技術的妥当性の審査対象となる課題 (成果非専有一般課題、大学院生提案型課題、先進技術活用による産業応用課題および長期利用課題) への応募 743 件について、ビームラインごとの応募課題数、採択課題数、採択率および配分シフト数、並びに採択された課題の 1 課題あたりの平均配分シフト数を示します。表 4 には全応募 813 課題について、申請者の所属機関分類と課題の研究分野分類の統計を示します。このうち、所属機関および研究分野について全体に対する割合をそれぞれ図 1 および図 2 に示します。SPring-8 と SACLA、J-PARC の MLF、または「京」を含む HPCI と連携して利用する課題として、SPring-8 には 10 件の応募があり、うち 8 件が採択されました。なお本記事の統計には、産業利用ビームラインの第 2 期および第 3 期分、並びに期中に随時募集する成果専有時期指定課題 (測定代行課題、産業利用準備課題含む) 等は含まれていません。

2. 応募および採択状況

2020A の新規応募課題数は 813、採択課題数は 607 でした。表 2 に 2020A 期の利用研究課題の課題種別の応募課題数および採択課題数と採択率 (%) を示します。2-1 に決定課題種別の統計を示します (重点課

3. 採択課題

2020A 期の採択課題の一覧は、SPring-8 ホームページに掲載しています。以下をご覧ください。

ホーム > 利用案内 > 研究課題 > 採択・実施課題一覧
<http://www.spring8.or.jp/ja/users/proposals/list/>

表1 利用研究課題 公募履歴

利用期	利用期間	ユーザー 利用シフト*	応募締め切り**	応募課題数	採択課題数
第1回:1997B	1997年10月-1998年03月	168	1997年01月10日	198	134
第2回:1998A	1998年04月-1998年10月	204	1998年01月06日	305	229
第3回:1999A	1998年11月-1999年06月	250	1998年07月12日	392	258
第4回:1999B	1999年09月-1999年12月	140	1999年06月19日	431	246
第5回:2000A	2000年02月-2000年06月	204	1999年10月16日	424	326
第6回:2000B	2000年10月-2001年01月	156	2000年06月17日	582	380
第7回:2001A	2001年02月-2001年06月	238	2000年10月21日	502	409
第8回:2001B	2001年09月-2002年02月	190	2001年05月26日	619	457
第9回:2002A	2002年02月-2002年07月	226	2001年10月27日	643	520
第10回:2002B	2002年09月-2003年02月	190	2002年06月03日	751	472
第11回:2003A	2003年02月-2003年07月	228	2002年10月28日	733	563
第12回:2003B	2003年09月-2004年02月	202	2003年06月16日	938	621
第13回:2004A	2004年02月-2004年07月	211	2003年11月04日	772	595
第14回:2004B	2004年09月-2004年12月	203	2004年06月09日	886	562
第15回:2005A	2005年04月-2005年08月	188	2005年01月05日	878	547
第16回:2005B	2005年09月-2005年12月	182	2005年06月07日	973	624
第17回:2006A	2006年03月-2006年07月	220	2005年11月15日	916	699
第18回:2006B	2006年09月-2006年12月	159	2006年05月25日	867	555
第19回:2007A	2007年03月-2007年07月	246	2006年11月16日	1099	761
第20回:2007B	2007年09月-2008年02月	216	2007年06月07日	1007	721
第21回:2008A	2008年04月-2008年07月	225	2007年12月13日	1009	749
第22回:2008B	2008年10月-2009年03月	189	2008年06月26日	1163	659
第23回:2009A	2009年04月-2009年07月	195	2008年12月11日	979	654
第24回:2009B	2009年10月-2010年02月	210	2009年06月25日	1076	709
第25回:2010A	2010年04月-2010年07月	201	2009年12月17日	919	665
第26回:2010B	2010年10月-2011年02月	210	2010年07月01日	1022	728
第27回:2011A	2011年04月-2011年07月	215	2010年12月09日	1024	731
第28回:2011B	2011年10月-2012年02月	195	2011年06月30日	1077	724
第29回:2012A	2012年04月-2012年07月	201	2011年12月08日	816	621
第30回:2012B	2012年10月-2013年02月	222	2012年06月28日	965	757
第31回:2013A	2013年04月-2013年07月	186	2012年12月13日	880	609
第32回:2013B	2013年10月-2013年12月	159	2013年06月20日	905	594
第33回:2014A	2014年04月-2014年07月	177	2013年12月12日	874	606
第34回:2014B	2014年10月-2015年02月	230	2014年06月19日	1030	848
第35回:2015A	2015年04月-2015年07月	207	2014年12月11日	1030	685
第36回:2015B	2015年09月-2015年12月	198	2015年06月11日	974	632
第37回:2016A	2016年04月-2016年07月	216	2015年12月10日	907	699
第38回:2016B	2016年09月-2016年12月	198	2016年06月02日	977	637
第39回:2017A	2017年04月-2017年07月	210	2016年12月08日	947	678
第40回:2017B	2017年10月-2018年02月	240	2017年06月08日	1000	761
第41回:2018A	2018年04月-2018年08月	228	2017年12月07日	931	719
第42回:2018B	2018年10月-2019年02月	234	2018年06月07日	982	744
第43回:2019A	2019年04月-2019年07月	222	2018年12月06日	957	681
第44回:2019B	2019年09月-2020年02月	234	2019年06月21日	1011	729
第45回:2020A	2020年04月-2020年07月	336	2019年12月05日	(813)	(607)

*ユーザー利用へ供出するシフト(1シフト=8時間)で全ビームタイムの80%

**一般課題の応募締め切り日

応募・採択課題数について:2006B以前は応募締め切り日**の値である。

2007A以降は、期終了時の値(産業2期募集、生命科学等分科会留保課題、時期指定課題、緊急課題を含む)を示す。

2020Aは今後、産業利用ビームラインの第2・3期分、期中随時募集の成果専有時期指定課題等があるため現在の値は括弧内に示す。

表2 2020A SPring-8 利用研究課題の課題種別応募および採択課題数と採択率

2-1

決定課題種*	応募課題数	採択課題数	採択率 (%)	採択課題のシフト充足率 (%) ****
一般課題 (成果非専有) **	670	490	73.1	95.8
一般課題 (成果専有)	48	48	100.0	100.0
大学院生提案型課題*	53	34	64.2	88.4
(重点) 先進技術活用による産業応用課題*	8	8	100.0	100.0
成果公開優先利用課題	22	22	100.0	100.0
長期利用課題*	12	5	41.7	100.0
総計	813	607	74.7	95.7
科学審査対象課題**のみの合計	743	537	72.3	95.4

*重点課題で応募のうえ一般課題として採択されたものは、それぞれ決定した課題種で応募数を表示。
 **一般課題等のうち SACLA、J-PARC/MLF または「京」を連携して利用する課題は、SPring-8 では応募 10 課題のうち 8 課題を採択。
 ***成果専有課題と優先利用課題を除いた課題。
 ****PX-BL 課題 (期中に配分シフトを決定する生命科学/タンパク質結晶構造解析分野関係課題) を除く。

2-2

応募課題種	応募課題数	重点課題としての採択課題数	一般課題としての採択課題数	重点課題としての採択率 (%)	課題採択率 (%)
(重点) 先進技術活用による産業応用課題	10	8	1	80.0	90.0

表3 2020A ビームラインごとの審査対象課題*の採択状況

ビームライン	応募課題数計	採択課題計	採択率 (%)	配分シフト数計**	1 課題あたり平均配分シフト**
BL01B1 : XAFS	53	31	58.5	209	6.7
BL02B1 : 単結晶構造解析	31	22	71.0	126	5.7
BL02B2 : 粉末結晶構造解析	47	35	74.5	168	4.8
BL04B1 : 高温高圧	10	9	90.0	87	9.7
BL04B2 : 高エネルギー X 線回折	34	26	76.5	214	8.2
BL05XU : 施設開発 ID	3	3	100.0	12	4.0
BL08W : 高エネルギー非弾性散乱	15	14	93.3	216	15.4
BL09XU : 核共鳴散乱	29	12	41.4	183	15.3
BL10XU : 高圧構造物性	51	23	45.1	162	7.0
BL13XU : 表面界面構造解析	26	17	65.4	210	12.4
BL14B2 : 産業利用 II	12	12	100.0	76	6.3
BL17SU : 理研 物理学 III	8	7	87.5	59	8.4
BL19B2 : 産業利用 I	10	8	80.0	47	5.9
BL19LXU : 理研 物理学 II	7	3	42.9	57	19.0
BL20B2 : 医学・イメージング I	30	28	93.3	215	7.7
BL20XU : 医学・イメージング II	33	19	57.6	168	8.8
BL25SU : 軟 X 線固体分光	21	17	81.0	192	11.3
BL26B1 : 理研 構造ゲノム I***	2	2	100.0	18	9.0
BL26B2 : 理研 構造ゲノム II***	-	-	-	-	-
BL27SU : 軟 X 線光化学	16	11	68.8	111	10.1
BL28B2 : 白色 X 線回折	23	18	78.3	202	11.2
BL29XU : 理研 物理学 I	-	-	-	-	-
BL32XU : 理研 ターゲットタンパク***	-	-	-	-	-
BL35XU : 高分解能非弾性散乱	27	15	55.6	222	14.8
BL37XU : 分光分析	28	18	64.3	204	11.3
BL38B1 : 理研 構造生物学 I	-	-	-	-	-
BL39XU : 磁性材料	20	14	70.0	189	13.5
BL40B2 : 構造生物学 II	42	39	92.9	219	5.6
BL40XU : 高フラックス	32	19	59.4	210	11.1
BL41XU : 構造生物学 I***	1	1	100.0	25	25.0
BL43IR : 赤外物性	18	18	100.0	216	12.0
BL44B2 : 理研 物質科学	6	4	66.7	27	6.8
BL45XU : 構造生物学 III***	-	-	-	-	-
BL46XU : 産業利用 III	12	9	75.0	66	7.3
BL47XU : 光電子分光・マイクロ CT	23	13	56.5	114	8.8
PX-BL (BL41XU、45XU、26B1、26B2、32XU)	73	70	95.9	-	-
総計	743	537	72.3	4224	7.9

*成果非専有一般課題、大学院生提案型課題、重点 I 課題、長期利用課題
 **1 シフト=8 時間
 ***PX-BL 対象 BL (PX-BL 運用以外の対象課題の課題数およびシフト数)
 産業利用ビームラインの第 2・3 期募集分等は含まず。

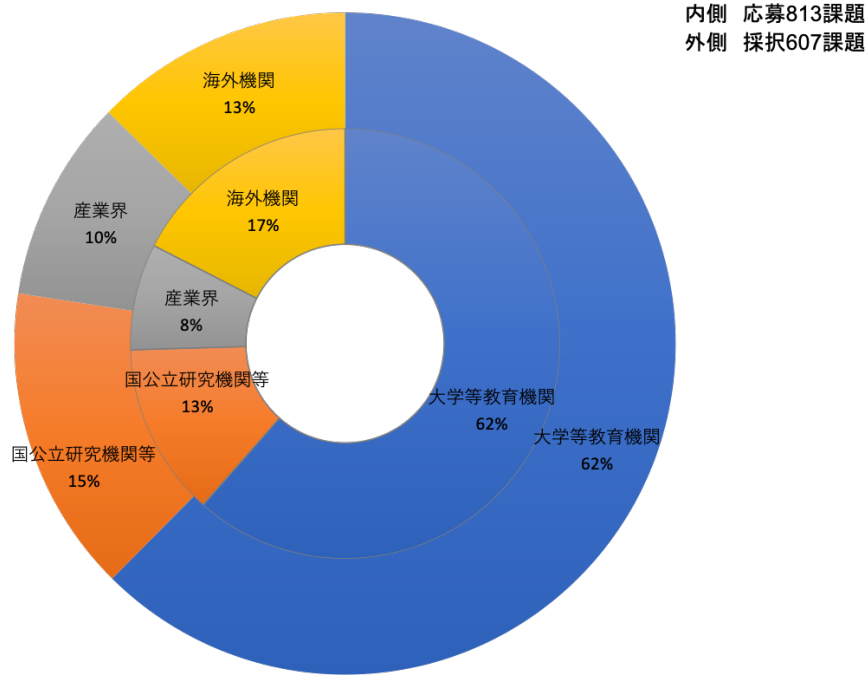


図1 2020A 所属機関別 応募/採択課題数割合

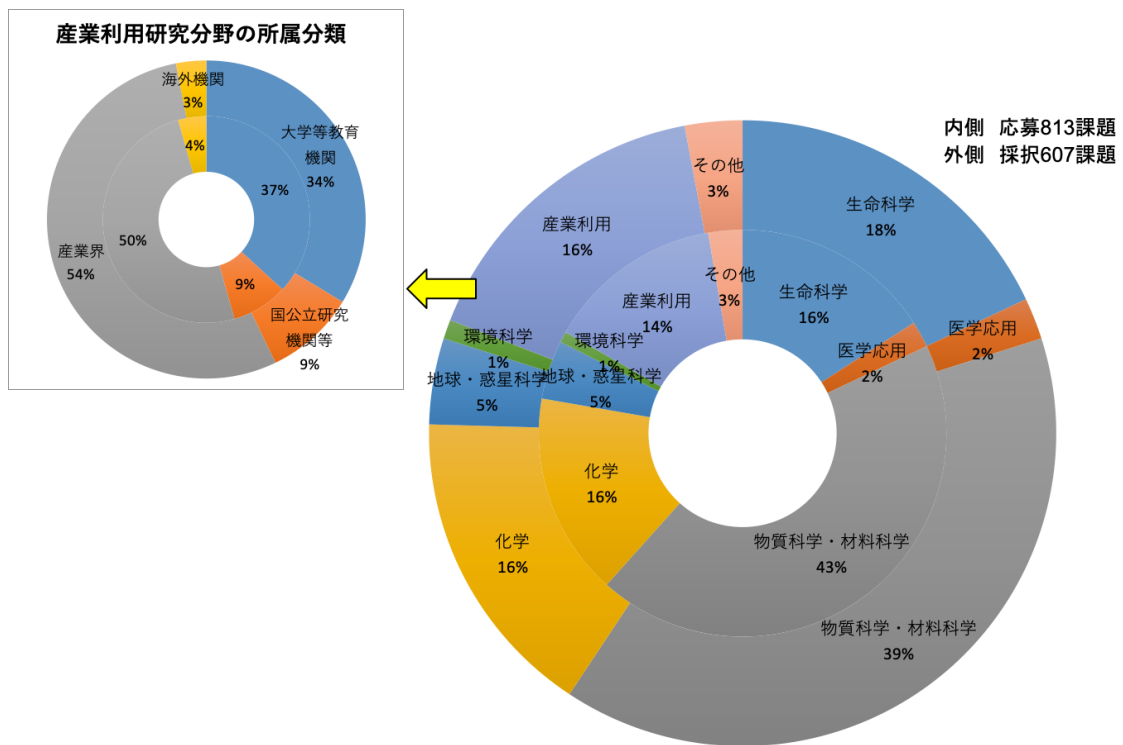


図2 2020A 研究分野別 応募/採択課題数割合

表 4 SPring-8 2020A 応募・採択結果の機関および研究分野分類

機関分類	課題分類		生命科学		医学応用		物質科学・材料科学		化学		地球・惑星科学		環境科学		産業利用		その他*		総計		採択率 (%)
	決定課題種	課題数/シフト数	応募	採択	応募	採択	応募	採択	応募	採択	応募	採択	応募	採択	応募	採択	応募	採択	応募	採択	
大学等教育機関	一般課題 (非専有)	課題数	72	63	10	6	202	144	81	65	19	14	1	1	29	22	9	8	423	323	76.4
		シフト数	221	165	96	51	1945	1301	555	447	191	141	18	18	184	139	78	75	3288	2337	71.1
	一般課題 (専有)	課題数							1	1					3	3			4	4	100.0
		シフト数							2	2					7	7			9	9	100.0
	大学院生提案型課題	課題数			1	1	27	17	11	7	2	1			2	2	1	1	44	29	65.9
		シフト数			12	8	198	114	60	33	21	9			21	21	12	12	324	197	60.8
	先進技術活用による産業応用課題	課題数													2	2			2	2	100.0
		シフト数													14	14			14	14	100.0
	成果公開優先利用課題	課題数					2	2	10	10					4	4			16	16	100.0
		シフト数					9	9	78	78					27	27			114	114	100.0
長期利用課題	課題数	3	2			3	1	2	1	1	1			2	0			11	5	45.5	
	シフト数	63	51			99	15	55	13	18	18			30	0			265	97	36.6	
合計	課題数	75	65	11	7	234	164	105	84	22	16	1	1	42	33	10	9	500	379	75.8	
	シフト数	284	216	108	59	2251	1439	750	573	230	168	18	18	283	208	90	87	4014	2768	69.0	
国立研究機関等	一般課題 (非専有)	課題数	15	15	4	4	36	28	8	7	8	6	4	4	10	9	11	8	96	81	84.4
		シフト数	54	36	57	54	371	306	96	69	84	54	27	21	70	60	111	84	870	684	78.6
	一般課題 (専有)	課題数	3	3															3	3	100.0
		シフト数	0	0															0	0	-
	大学院生提案型課題	課題数					1	1											1	1	100.0
		シフト数					3	3											3	3	100.0
	成果公開優先利用課題	課題数					6	6											6	6	100.0
シフト数						65	65											65	65	100.0	
合計	課題数	18	18	4	4	43	35	8	7	8	6	4	4	10	9	11	8	106	91	85.8	
	シフト数	54	36	57	54	439	374	96	69	84	54	27	21	70	60	111	84	938	752	80.2	
産業界	一般課題 (非専有)	課題数					1	0							18	14			19	14	73.7
		シフト数					6	0							129	117			135	117	86.7
	一般課題 (専有)	課題数	5	5			2	2							33	33			40	40	100.0
		シフト数	0	0			4	4							92	92			96	96	100.0
	先進技術活用による産業応用課題	課題数													6	6			6	6	100.0
シフト数														51	51			51	51	100.0	
合計	課題数	5	5	0	0	3	2	0	0	0	0	0	0	57	53	0	0	65	60	92.3	
	シフト数	0	0	0	0	10	4	0	0	0	0	0	0	272	260	0	0	282	264	93.6	
海外機関	一般課題 (非専有)	課題数	30	20	2	2	69	34	17	7	7	4	2	1	4	3	1	1	132	72	54.5
		シフト数	284	99	24	24	821	397	232	69	62	27	9	6	45	36	6	6	1483	664	44.8
	一般課題 (専有)	課題数	1	1															1	1	100.0
		シフト数	0	0															0	0	-
	大学院生提案型課題	課題数					6	3	1	0	1	1							8	4	50.0
		シフト数					92	48	5	0	24	12							121	60	49.6
	長期利用課題	課題数													1	0			1	0	0.0
シフト数														30	0			30	0	0.0	
合計	課題数	31	21	2	2	75	37	18	7	8	5	2	1	5	3	1	1	142	77	54.2	
	シフト数	284	99	24	24	913	445	237	69	86	39	9	6	75	36	6	6	1634	724	44.3	
合計	課題数	129	109	17	13	355	238	131	98	38	27	7	6	114	98	22	18	813	607	74.7	
	シフト数	622	351	189	137	3613	2262	1083	711	400	261	54	45	700	564	207	177	6868	4508	65.6	
採択率 (%)	課題数	84.5		76.5		67.0		74.8		71.1		85.7		86.0		81.8		74.7			
	シフト数	56.4		72.5		62.6		65.7		65.3		83.3		80.6		85.5		65.6			

*ビームライン技術、素粒子・原子核科学、考古学、鑑識科学、安全管理

2020A 期 採択長期利用課題の紹介

公益財団法人高輝度光科学研究センター
利用推進部

2020A 期は 12 件の長期利用課題の応募があり、5 件が採択されました。採択された課題の審査結果および実験責任者による研究概要を以下に示します。

－ 採択課題 1 －

課題名	放射光 X 線を用いた巨大な自己集合中空錯体群の構造解明と機能創出
実験責任者名 (所属)	藤田 誠 (東京大学)
採択時の課題番号	2020A0168 (BL26B1)、 2020A0179 (BL41XU)
ビームライン	BL26B1、BL41XU (併用)
審査結果	採択する

[審査コメント]

本申請では、前課題に引き続き、放射光を用いて初めて得られる結晶構造などを基に、中空構造を有する有機分子ないしペプチドの金属錯体化合物の設計および合成を実施することが目的となっており、以下の 4 つの内容として計画されている：(1) 新規中空錯体の構築と構造解析、(2) 巨大中空錯体の構築と構造解析、(3) 巨大中空錯体へのタンパク質包接と構造解析、(4) ペプチド断片のフォールディングとアセンブリ。

これまでの複数回にわたる長期利用課題の実施を含め、長期の取り組みが結実し、いずれの内容においても、独自性の高い研究で世界をリードしている。これらをますます拡大させることは、科学技術の発展において重要といえる。なかでも、この中空錯体の内部空間を利用した新たな反応制御法や構造解析法の開発の可能性を持ち、今後の継続的発展や新分野創製の期待も大きい。なお、タンパク質の構造解析への応用は内包分子の配列を結晶析出において制御するための新たな取り組みが必要と思われる。

SPRING-8 の利用に関しては、標的となる分子がいずれもタンパク質やウイルス粒子に相当する大きな構造を有しかつ溶媒領域が多いために、結晶調製の難度

が高く、回折能の低い微小結晶となるケースが多いため必須といえる。この種の研究では試料調製が律速であり、トライアルアンドエラーによるフィードバックで試料の性質を改善するために、計画的な実施が必要と理解できる。要求されているシフト数や頻度を考えると、PX-BL の利用制度を活用した一般課題でも実施可能かもしれないが、これまで以上に利用時間が増大しそうなことのほか、内容が複合領域研究のために、PX-BL を L1 分科外の他分野から計画的に利用するために長期利用課題として実施する必要性は認められる。

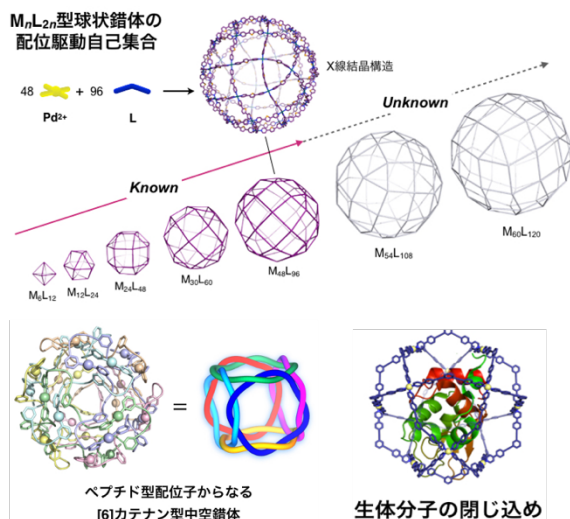
以上、申請者らは巨大な自己集合中空錯体の創製で世界をリードしてさらに発展させる計画を示しており、実施体制についても支障がないと判断されることから、「SPRING-8 の特長を活かし、科学技術分野において傑出した成果を生み出す研究、新しい研究領域および研究手法となる研究、産業基盤技術を著しく向上させる研究などの一層の展開を図る」長期利用課題として選定することがふさわしいと認められる。

[実験責任者による研究概要]

我々はこれまで、配位駆動自己集合を基盤技術としてさまざまな中空錯体を構築し、その内部空間を活用した新しい機能創出を行ってきた。すなわち、孤立ナノ空間の内部における特異な物質変換、新物性の発現、巨大分子のカプセル化、および分子ナノ環境の内包などをこれまでに達成している。自然界における自己集合に迫るほど多成分の精密自己集合を達成することは、基礎科学的な興味にとどまらず、巨大かつ精密に構造

制御された界面構造を利用した合成反応への応用や生体高分子との複合利用といった展開においても極めて重要となる。これまでの研究において、折れ曲がり二座配位子と Pd(II)イオンとの自己集合により構築される M_nL_{2n} 型球状錯体について、構成成分数が 90 あるいは 144 に達する巨大錯体の構築と構造決定に成功するとともに、これらの錯体構造が 4 価の拡張ゴールドバーク多面体とよばれる新たな多面体系列によって定義されることを発見し、ものづくりのサイドから理論（幾何学）に対する知見をフィードバックするに至った (*Chem* 1 (2016) 91-101, *Nature* 540 (2016) 563-566)。さらに最近では、配位駆動自己集合のさらに複雑な中空構造への展開 (*ACIE* 59 (2020) 3450-3454) に加えて、特異なフォールディングを示す人工ペプチド鎖を主骨格とした配位子の開発により、24 の交差数をもつ極めて複雑な [6]カテナン型中空錯体の構築といった新たな潮流を生み出している (*Nat. Chem.* 10 (2019) 5687)。これらはいずれも SPring-8 における単結晶 X 線回折測定により構造決定を行った。

そこで本長期利用課題においては、これら種々の中空構造のさらなる開発を進めるとともに、タンパク質をはじめ生体ナノ分子の閉じ込め技術に主眼を置いた応用研究のさらなる推進に努める。これにより、生体分子の構造解析や他の手法では捉えることが困難な特異状態の観測に我々の技術を活用するとともに、これら生体分子の安定性や機能の改変とライフサイエンスにおける応用を目指す。



－ 採択課題 2 －

課題名	膜輸送体の結晶構造解析
実験責任者名 (所属)	豊島 近 (東京大学)
採択時の課題番号	2020A0171
ビームライン	BL41XU
審査結果	採択する

【審査コメント】

本課題は、前長期利用課題（イオンポンプの結晶構造解析：2018A0144～2019B0144）を継承しつつ、

(1) 生物学的に重要なカルシウムポンプ (Ca^{2+} -ATPase)、(2) 各種疾患にも関わる Na^+/K^+ -ATPase を対象に、それらの反応サイクル中に蓄積する各種中間体の結晶構造を決定するとともに、(3) 脂質二重膜の可視化および (4) 脂質分子の配置を制御するタンパク質の基礎研究をとおして、プロトンから脂質二重膜にわたるマルチスケール構造生物学を展開することを目的としている。

申請者は $Ca^{2+}/Na^+/K^+$ -ATPase の構造解析に取り組み、 Ca^{2+} -ATPase においては 14 個の反応中間体を解明するなど傑出した研究成果を挙げてきた。膜タンパク質の反応中間体の結晶は格子長が長くかつ回折能が低いと、それらの回折実験に SPring-8 の光源と整備されたビームラインが必須であることは論を俟たない。また、本課題が目的としている難結晶性膜タンパク質の構造解析やコントラスト変調による脂質二重膜の可視化においては、回折実験の結果を次の結晶調製に反映させるフィードバックサイクルを加速させつつ安定的に回して行くことが鍵となる。そのためにも、長期間にわたって計画的に SPring-8 を利用する必要があると判断される。

複数の対象 (1) ～ (4) を連携させながら研究を実施する利点を活かしつつ、進捗状況に応じてポイントを絞るなどの軌道修正を適宜行うことにより、

「SPring-8 の特長を活かし、科学技術分野において傑出した成果を生み出す研究、新しい研究領域および研究手法となる研究、産業基盤技術を著しく向上させる研究などの一層の展開を図る」長期利用課題として配分されたビームタイムから最大限の研究成果が引き出され、それらが SPring-8 から世界に向けて発信されることを期待する。

[実験責任者による研究概要]

これまでに、長期利用課題として (i) 筋小胞体カルシウムポンプ (Ca^{2+} -ATPase, SERCA1a) の種々の状態の結晶構造決定、並びにその薬物との複合体の結晶構造解析、(ii) ナトリウムポンプである Na^+ , K^+ -ATPase の結晶構造解析、(iii) 膜蛋白質結晶中の脂質二重膜の可視化を遂行してきた。本長期利用課題では、さらに、(iv) 脂質二重膜中の磷脂質を一つの層から他の層へと区別なく移層する蛋白質、スクランブラーゼの構造決定をも目指す。

当面の重点は (i) の Ca^{2+} -ATPase に関しては、2つある Ca^{2+} 結合サイトの段階的の形成の構造生物学の完成と、最も広く発現し、重篤な皮膚疾患である Darrier 病の原因ともなる SERCA2b の複数の状態の構造解析の完成にある。SERCA は 2 個の Ca^{2+} を順に結合し、濃度勾配に逆らって輸送する。2 個目の Ca^{2+} 結合が化学反応 (ATP から SERCA への磷酸転移) を引き起こす。そのシグナルの構造的実体を知りたいのであるが、これまでの研究から、2 つの結合サイトの形成過程は Mg^{2+} や K^+ も関与する予想外に複雑なものであることが判明してきた。本長期利用課題中での完成を目指している。(ii) の Na^+ , K^+ -ATPase に関しては、 Na^+ 存在下、かつ磷酸アナログや ATP アナログの非存在下で得られる結晶の構造解析が当面の目標である。これも予想外なことに 3 つのサイトのうち 2 つだけに Na^+ が結合した状態の構造も得られ、長年論争が続いている 3 つの Na^+ の結合順に結論を与えることができることが判明した。その完成を目指している。(iii) の脂質二重膜の可視化に関しては、溶媒コントラスト変調と重原子多重同型置換法の 2 つの手法の開発を続けている。2 つの手法のどちらにも適した結晶が得られたので、本長期利用課題で本格的なデータ収集と解析を行いたい。

— 採択課題 3 —

課題名	高強度金属材料の超高サイクル疲労における内部微小き裂発生・進展機構
実験責任者名 (所属)	中村 孝 (北海道大学)
採択時の課題番号	2020A0172
ビームライン	BL20XU
審査結果	採択する

[審査コメント]

本提案課題は、従来は破壊につながらないと考えられていた小さな歪が、 10^7 回を超える多数回繰り返されることによって発生する超高サイクル疲労破壊機構を解明するため、超高張力鋼やチタン合金等の高強度金属の疲労における内部微小き裂の発生および進展を、位相コントラスト結像型 CT を活用し、200 nm を越える空間分解能で数~数十ミクロンの大きさの内部き裂を可視化することを主たる目的とした研究である。き裂と組織の時間変化を同時に観察することに特色がある。実験試料として (1) ($\alpha + \beta$) 型チタン合金: Ti-6Al-4V、(2) β 型チタン合金: Ti-22V-4Al、(3) 超高強度鋼 (析出硬化型 SUS630) を用い、基礎モデル実験を行うとともに、普遍的なき裂発生機構の提案を行うことを目指している。

分科会としては、単に現象の観察にとどまらず、き裂発生機構の科学的な解釈と理解をしっかりと行い、き裂の起こりにくい材料設計への指針と具体的な材料開発への応用に結び付けられるように研究を進めることを強く希望する。目標は明確であり、新しい *in-situ* 高速ピエゾ疲労試験機の開発計画も妥当であるとともに、他分野への波及効果も認められることから、「SPRING-8 の特長を活かし、科学技術分野において傑出した成果を生み出す研究、新しい研究領域および研究手法となる研究、産業基盤技術を著しく向上させる研究などの一層の展開を図る」長期利用課題として推進すべきと評価し、採択する。

[実験責任者による研究概要]

超高張力鋼やチタン合金等の高強度金属において、 10^7 回程度以上の繰返し数で疲労強度が大幅に低下する特異現象 (超高サイクル疲労) が近年広く知られるようになった。これは材料内部を起点とするき裂の発生・進展により生じる。しかし、X 線や超音波を用いた通常の非破壊検査技術では、超高サイクル疲労で問題となる数~数十 μm の大きさの内部き裂の検出は極めて困難である。このため、その破壊機構には未だに不明点が多く、超高サイクル疲労の評価法は確立していない。そこで本研究では、位相コントラスト結像型 CT を活用し、200 nm を越える空間分解能で数~

数十 μm の内部疲労き裂の発生・進展過程を非破壊で捉えることを試みる。超高張力鋼およびチタン合金を対象として、疲労試験とCT観察を繰り返すことにより、微小疲労き裂の発生位置、発生寿命、進展速度、進展経路を明らかにする。また、*in-situ*高速ピエゾ疲労試験機を新たに開発し、対象とするき裂を確認しつつ、その開閉口挙動をリアルタイムで計測する技術を構築する。以下に本研究が有する3つの特色を述べる。

(1) 超高超力鋼とチタン合金の2系統の材料を対象として、内部き裂の観察を試みること。

内部き裂は、材料に含まれる数~数十 μm 程度の非金属介在物を起点とするタイプと、組織を構成する結晶粒や結晶粒界を起点とするタイプの2つに大別される。本研究では、前者の代表として、析出硬化型ステンレス鋼SUS630を、後者の代表として($\alpha+\beta$)型チタン合金Ti-6Al-4Vおよび β 型チタン合金Ti-22V-4Alを用いる。これらはいずれも工業的に重要な高強度金属であり、それぞれにおける内部き裂の発生、進展過程を明らかにし、介在物起点型と材料組織起点型の特徴を抽出することにより、材料によらない普遍的なき裂進展モデルを構築する。

(2) き裂と組織の同時観察を4Dで行うこと。

位相コントラスト結像型CTを用いることにより、き裂と組織を同時に観察すること(3D観察)や、き裂が組織のどの部分をどのように進展していくかを捉える(+1D観察)ことが可能となる。このような4D観察をSEMに匹敵する分解能で行うことにより、内部き裂発生進展挙動に関する詳細な知見を蓄積する。

(3) ビームラインに設置する*in-situ*高速ピエゾ疲労試験機を開発すること。

小型の高速ピエゾ疲労試験機を新たに開発することで、対象とするき裂をビームライン上で確認しつつ、その開閉口挙動をリアルタイムで計測する。これにより、疲労き裂の進展や停留に大きな影響を与えるき裂閉口現象を定量的に評価することができる。また、このシステムは超高サイクル疲労のみならず、様々な材料評価の研究へも応用が可能であり、X線CT技術の高度化に寄与する。

機械の高速化、高経年化は年々加速しており、 10^7 回を越える領域における疲労信頼性の確保は工業的に重要な課題である。上記の特色をもつ本研究を着実に遂

行することで、超高サイクル疲労の評価法や防止法の提案につなげ、この課題の解決を目指す。

－ 採択課題4 －

課題名	宇宙地球化学試料のマイクロ XRF-XAFS 研究の新展開:高エネルギー領域への展開や超伝導転移端検出器の導入
実験責任者名(所属)	高橋 嘉夫(東京大学)
採択時の課題番号	2020A0174 (BL01B1)、 2020A0180 (BL37XU)
ビームライン	BL01B1、BL37XU(併用)
審査結果	採択する

[審査コメント]

本長期利用課題は、環境問題や資源問題から惑星進化に至るまで、幅広い地球惑星科学試料を対象として、原子・分子レベルの化学素過程の視点からその理解を目指すものである。

本長期利用課題で取り組む課題として、(1)はやぶさ2帰還試料の分析に基づく太陽系進化史の解明、(2)REE・レアメタル資源形成機構の解明、が挙げられている。いずれも地球惑星科学分野で重要な研究対象であると同時に、社会的関心も高い研究であることから、高い科学的重要性を持つものと判断できる。これらの課題の研究手法として、BL37XUの硬X線ナノビームを用いたXAFS・XRF分析による微量元素の組成や化学種の決定、および、イメージング計測による微小域の化学状態分布や元素の相関の計測が計画されている。また、これらの計測精度をさらに向上させるため、(1)妨害元素の影響の低減や定量評価精度の向上を目指した高エネルギーX線利用法の開発、(2)超伝導転移端検出器(TES)を用いた高エネルギー分解能XRF/XAFS実験が計画されている。いずれも微量元素の化学分析や、それらの局所解析技術の高度化を目指した挑戦的な課題であり、2年の研究期間を設定し、長期利用課題として実施することが妥当である。このように、提案された研究テーマはそれぞれ、地球環境科学において重要であると考えられると同時に、SPring-8における微量元素分析技術の向上に資するものであり、「SPring-8の特長を活かし、科学技術分野において傑出した成果を生み出す研究、新しい研究領域および研究手法となる研究、産業基盤技術を著し

く向上させる研究などの一層の展開を図る」長期利用課題として選定する。

なお、はやぶさ2帰還試料については、はやぶさ2が予定通り帰還できるか未知の部分があるため、状況に合わせて臨機応変に対応することが必要である。また、TES検出器については、検出原理に起因するカウンtrateの低さなどの課題があり、その利用に当たっては未知の部分もある。高エネルギーナノビームの利用と合わせて、ビームライン担当者と十分な技術的打合せを行った上で、ビームタイムに臨んで頂きたい。

[実験責任者による研究概要]

放射光マイクロ/ナノ XRF-XAFS 法は、宇宙地球化学試料中の微量元素マッピングや局所化学種分析として不動の地位を占めている。しかし、依然問題なのが計測目的とする極/超微量元素の微弱蛍光 X 線に対するそれ以外の元素からの高強度な妨害 X 線(蛍光 X 線や散乱 X 線)の干渉である。本課題ではこの解決のため、(i) これまでマイクロ/ナノビームが利用できなかった高エネルギー領域(40 keV 以上)での本法の実施、(ii) これまで放射光への本格利用がなかった高エネルギー分解能を持つ超伝導転移端検出器(TES)の利用、の2つの革新的技術を用いて、極微量元素の超高感度マイクロ/ナノ XRF-XAFS 法を実現し、新規性の高い宇宙地球化学研究を推進する。また TES を用いた発光分光の併用による多元素同時化学種マッピングなどへの道も拓く。特に本研究では、高エネルギー領域計測の展開および超伝導転移端検出器導入による超高感度極微量計測の実現による新しいマイクロ/ナノ XRF-XAFS 分析法を開発し、持続可能な社会の実現に関わるレアアース(REE)資源の効果的な探査・抽出法の確立や、人類の夢に関わる「はやぶさ2」による小惑星リュウグウ採取の分析など、インパクトの大きな応用研究に展開する。これらの研究の手法的な意義について、以下の2点が挙げられる。

1. 新規マイクロ/ナノ XRF-XAFS 分析法: 射光マイクロ/ナノビームを用いた蛍光 X 線検出による元素マッピング法および局所 X 線吸収微細構造(XAFS)法において問題となる目的極微量元素の蛍光 X 線に対するそれ以外の混在元素の高強度な蛍光 X 線や散乱 X 線の干渉の問題を解決するため、本研究では、(1) 高エネルギー X 線を用いたマイクロ/ナノ XRF-XAFS および(2) TES を用いたマイクロ/ナノ XRF-XAFS 分析

を展開する。

2. 定量分析や発光分光に着目したマイクロ/ナノ XRF-XAFS 分析法: ここで着目する高エネルギーマイクロ/ナノ XRF-XAFS 法や TES-XRF-XAFS 法は、従来行われてきたマイクロ/ナノ XRF-XAFS 法に比べて、(1) 微量元素の濃度定量が可能、(2) エネルギー分散型の検出器ではあるが発光分光に利用できる可能性がある、などの利点があると期待される。

これらの研究で期待される成果として、以下が挙げられる。

研究1. レアアース(REE)資源の分析

REE は、ハイテク産業に必須な元素である一方で、資源としては地域偏在性があり供給リスクが高いため、REE 資源の開発や資源からの高効率な回収は、日本にとって急務な課題である。しかし、こうした資源中のREEのホスト相や存在状態は未解明であるため、効果的な探査や高効率な回収を進める上で問題となっている。そこで本研究では、今後重要なREE資源としてイオン吸着型鉱床(申請者が国内で発見)や鉄マンガ団塊に注目して研究を進める。その際、地球化学試料を普遍的に含むTi、Mn、Fe、Baなどに干渉されることなくREEを検出することで、レアアースの濃集機構やホスト相の同定が可能になる。

研究2. リュウグウ試料の分析

本研究で開発した分析を、はやぶさ2帰還試料(リュウグウ試料)に適用する。ここでもREEを主対象とするが、REEは惑星進化の研究にしばしば利用されており、その分析を行うことは、リュウグウがどの程度始原的な物質であるかの重要な情報になる。またCM2コンドライト類似のリュウグウ試料(Sugita *et al.* (2019))では、多量にある有機物相にREEが濃集する可能性もある。またCe、Tm、Ybなどで異常値が出る可能性もあり、これらは惑星物質凝縮時の元素分配を反映する。試料のサイズが小さく(30ミクロン以下)、非破壊局所分析が要求されるリュウグウ試料において、微量元素分析が可能なのはマイクロ/ナノ XRF-XAFS 法のみであり、研究1と同様の方法で、リュウグウ試料中のREEなどの微量元素組成や化学種解析を進める。

研究3. その他の環境試料への展開

その他、福島第一原発事故で放出された放射性セシウム濃集粒子や生体中の水銀の化学種解明など、多様な環境科学への適用も期待される。

－ 採択課題 5 －

課題名	ミリ秒時間分解能マルチビーム 4DX線トモグラフィの開発とその応用
実験責任者名 (所属)	矢代 航 (東北大学)
採択時の課題番号	2020A0176
ビームライン	BL28B2
審査結果	採択する

〔審査コメント〕

本研究は、SPring-8 の偏向電磁石からの白色 X 線を複数のラウエ型分光器で独立に回折させ、ビームの方向を変えることによって試料に多方向から X 線を同時に照射することを可能とし、試料を回転させることなく CT 撮影を行う光学系の開発を目的としている。回転の必要がないため、ミリ秒の時分割 CT 撮影が可能である。これは独創的なアイデアであり、既に国際学会で高い評価を得ている。目標も計画も明確に設定されているが、限られた投影数しか得られない、方向によって X 線エネルギーが異なるといったデメリットもあり、これらの問題に対応しつつ装置の開発改良を進めるには長期的な取り組みが必要であり、「SPring-8 の特長を活かし、科学技術分野において傑出した成果を生み出す研究、新しい研究領域および研究手法となる研究、産業基盤技術を著しく向上させる研究などの一層の展開を図る」長期利用課題としての実施が適している。

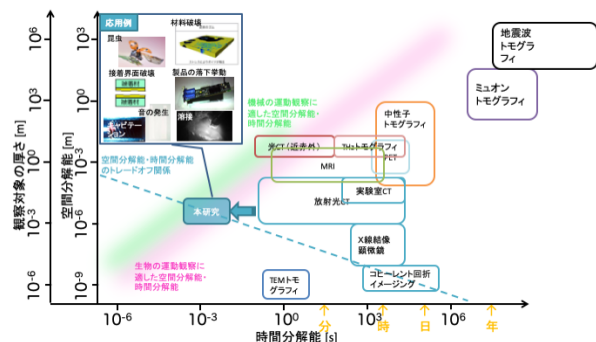
本研究は挑戦的な技術開発であるが、開発の目的は様々な応用分野での本技術の利用にあり、最終的には本手法を使って初めて本質に迫る未知の現象の解明を期待したい。一方で2年という期間で技術開発と応用研究の両方で傑出した成果を挙げることは困難であると予想され、本課題の期間内では応用研究を視野に入れて共同研究者を増やしつつ、手法を完成させることを主目的として実施することが妥当と考えられる。

〔実験責任者による研究概要〕

非平衡系の内部には多くの未知の高速現象が存在すると考えられる。本研究では、X 線のマルチビーム化と最先端の高度データサイエンス技術により、試料を回転することなく、前人未踏の ms オーダーの時間分解能、10 μm の空間分解能の 4D (3D+時間) X 線 CT を実現するための基盤技術の確立を目指し、応用

研究への展開を進める。さらには、マルチビーム化技術の派生技術 (元素識別 CT、EXAFS CT) の有効性についても検証する。生きた生物内部の現象や材料の破壊過程など、繰り返しが不可能な非平衡系のダイナミクスをそのまま観察できるという特長を活かして、生命・材料科学における新規現象の発見から、動的バイオメティクス応用まで、基礎研究から新規イノベーション創出に至る新たなフロンティアの開拓をねらう。

下図は、可視光に対して不透明な試料内部を三次元的に非破壊で観察する計測技術の時間分解能および空間分解能を概略的に示したものである。本研究が目指す ms オーダー時間分解能、10 μm の空間分解能は実は空白地帯であったことが分かる。一方で、ピンク色で示したゾーンは、例として、生物の運動観察に適した空間分解能、時間分解能を示している。このゾーンは、生物が運動に使用するエネルギーが、その体内での生命現象も含めて、概ね数[J/kg・s]であるとして与えたもので、人工物の機械的な運動に対応するゾーン (緑色のゾーン) は、それよりも 1~2 桁上であるが、我々が日常生活で触れる現象はほぼこれらのオーダーのエネルギーで生じており、科学技術上および産業上極めて重要な研究対象である。すなわち、本研究は、生命・材料科学における多様な現象を対象とするものである。例えば、生きた生物 (昆虫など) 内部の現象、材料の破壊過程、液体のふるまいの観察などのサイエンティフィックな研究から、インテリジェント材料の開発や動的バイオメティクス応用など超スマート社会実現に向けた新規イノベーション創出に至る研究まで、様々な応用展開が考えられる。



第44回共同利用期間（2019B）において実施された SPring-8 利用研究課題

登録施設利用促進機関

公益財団法人高輝度光科学研究センター
利用推進部

第44回共同利用期間（2019B）におけるSPring-8の共同利用は、2019年9月から2020年2月にかけて実施されました。この期間の放射光利用は、ビームライン1本あたり294シフト [1シフト=8時間] でした。

2019Bでは26本の共用ビームライン（共用施設）と、7本の理研ビームラインにおけるビームタイムの一部が共用に供されました。産業利用に特化した3本の共用ビームライン BL14B2、BL19B2 および BL46XU は、2019B 第1期（2019年9月下旬～11月上旬）、第2期（同年11月中旬～12月中旬）および第3期（2020年1月中旬～2月下旬）と、利用期を3期に分けて課題募集・選定が行われました。専用ビームライン（専用施設）については、2019B期の稼働数は前期より引き続き19本でした。

働数は前期より引き続き19本でした。

表1に、SPring-8 共用施設の2019B 課題種別の課題数と実施シフト数を示します。表2に、SPring-8 専用施設の2019B 実施課題数とシフト数を示します。表3に、2019B 期にSPring-8 共用施設で実施された利用研究課題の課題数とシフト数について実験責任者の所属機関分類および研究分野分類を示します。表4に、1997B-2019B 課題種別実施課題数の推移を示します。

表2 SPring-8 専用施設の2019B 実施課題数とシフト数

課題種	実施課題数合計	実施シフト数合計
専用ビームライン（成果非専有）	310	3846.625
専用ビームライン（成果専有）	34	93.375
合計	344	3940

表1 SPring-8 共用施設^(注1)の2019B 課題種別の課題数と実施シフト数

課題種	応募課題数	採択課題数	課題採択率 (%)	採択課題の実施数	非応募課題 ^(注2) の実施数	実施課題数合計	実施シフト数合計
一般課題（成果非専有）	764	522	68.3	514	49	563	4588.75
一般課題（成果専有）	42	42	100.0	41	11	52	192.375
大学院生提案型課題	89	53	59.6	52	0	52	345
時期指定課題	21	21	100.0	20	0	20	54.875
測定代行課題 ^(注3)	40	40	100.0	40	0	40	20.25
産業利用準備課題	10	10	100.0	10	0	10	2.125
先進技術活用による産業応用課題	5	4	80.0	4	0	4	40.25
放射光施設横断産業利用課題	7	4	57.1	4	0	4	35.125
成果公開優先利用課題	33	33	100.0	33	0	33	243.125
長期利用課題					14	14	280.25
重点パートナーユーザー課題	(2019B 期は新規公募なし)				8	8	326.375
新分野創成利用課題 (新分野創成を行おうとする 研究グループによる課題)	0	0	-	0	9	9	65.25
合計	1011	729	72.1	718	91	809	6193.75

(注1) 理研ビームラインからの一部共用供出ビームタイムの利用を含む。

(注2) 既に採択等された課題で、当該期の応募・採択等プロセスを要しないもの。

(注3) BL14B2、BL19B2、BL46XU で実施。

表3 2019B に SPring-8 共用施設^(注1) で実施された利用研究課題の所属機関分類および研究分野分類

機関分類	課題分類	課題数/ シフト数	研究分野							計	
			生命科学	医学応用	物質科学・ 材料科学	化学	地球・惑星 科学	環境科学	産業利用		その他 ^(注2)
大学 等 教育 機関	一般課題 (成果非専有)	課題数	71	4	156	74	17	2	56	9	389
		シフト数	412.5	41.875	1407.375	497.25	187.125	21	352	83.375	3002.5
	一般課題 (成果専有)	課題数							2		2
		シフト数							4.875		4.875
	大学院生提案型課題	課題数		1	19	11	2		14	1	48
		シフト数		6	130.375	65.625	9		90	6	307
	時期指定課題	課題数			2				1		3
		シフト数			2				2		4
	測定代行課題	課題数							2		2
		シフト数							1		1
	先進技術活用による産業 応用課題	課題数							1		1
		シフト数							5.875		5.875
	放射光施設横断産業利用 課題	課題数							2		2
		シフト数							20.625		20.625
	成果公開優先利用課題	課題数	1		8	9		1	3		22
シフト数		2.5		59.5	64		8.75	8		142.75	
長期利用課題	課題数	2		3	2	2	2		1	12	
	シフト数	23.75		101.75	10	42	41		14.375	232.875	
重点パートナーユーザー 課題	課題数			5	1	2				8	
	シフト数			187.125	44.75	94.5				326.375	
新分野創成利用課題	課題数			1	6					7	
	シフト数			5.875	47.375					53.25	
計	課題数	74	5	194	103	23	5	81	11	496	
	シフト数	438.75	47.875	1894	729	332.625	70.75	484.375	103.75	4101.125	
国 立 研 究 機 関 等	一般課題 (成果非専有)	課題数	16	4	27	6	8	4	12	7	84
		シフト数	145.625	44.625	276.125	56.75	83.25	23.5	79.25	67.875	777
	一般課題 (成果専有)	課題数	1						2		3
		シフト数	13.5						2		15.5
	時期指定課題	課題数			1					1	2
		シフト数			26					5	31
	測定代行課題	課題数							2		2
シフト数								2.25		2.25	
成果公開優先利用課題	課題数	3		5						8	
	シフト数	34.875		43.875						78.75	
計	課題数	20	4	33	6	8	4	16	8	99	
	シフト数	194	44.625	346	56.75	83.25	23.5	83.5	72.875	904.5	
産 業 界	一般課題 (成果非専有)	課題数			2				29		31
		シフト数			11.625				227.75		239.375
	一般課題 (成果専有)	課題数	3		2	1			36	1	43
		シフト数	3.25		8	1.875			139	1	153.125
	時期指定課題	課題数			4				9	1	14
		シフト数			7				12	0.625	19.625
	測定代行課題	課題数							35		35
		シフト数							15.75		15.75
	産業利用準備課題	課題数							10		10
		シフト数							2.125		2.125
	先進技術活用による産業 応用課題	課題数							3		3
		シフト数							34.375		34.375
放射光施設横断産業利用 課題	課題数							2		2	
	シフト数							14.5		14.5	
成果公開優先利用課題	課題数							3		3	
	シフト数							21.625		21.625	
新分野創成利用課題	課題数							2		2	
	シフト数							12		12	
計	課題数	3		8	1			129	2	143	
	シフト数	3.25		26.625	1.875			479.125	1.625	512.5	
海 外 機 関	一般課題 (成果非専有)	課題数	19	2	23	6	5	2	2	2	59
		シフト数	132.75	24	264	65.375	41.75	24	24	18	569.875
	一般課題 (成果専有)	課題数	2				1		1		4
		シフト数	12				5.875		1		18.875
	大学院生提案型課題	課題数			3					1	4
		シフト数			29.25					8.75	38
	時期指定課題	課題数	1								1
		シフト数	0.25								0.25
	測定代行課題	課題数							1		1
		シフト数							1.25		1.25
長期利用課題	課題数		1					1		2	
	シフト数		18					29.375		47.375	
計	課題数	22	3	26	6	6		5	3	71	
	シフト数	145	42	293.25	65.375	47.625		55.625	26.75	675.625	
課題数合計			119	12	261	116	37	9	231	24	809
シフト数合計			781	134.5	2559.875	853	463.5	94.25	1102.625	205	6193.75

(注1) 理研ビームラインからの一部共用供出ビームタイムの利用を含む。

(注2) 素粒子・原子核科学、考古学、ビームライン技術他。

2019B の延べ利用者数は、共用施設 5,378 人、専用施設 3,102 人でした。表 5 に、SPring-8 共用施設および専用施設利用実績の推移を示します。表 5 の値を利用シフト数合計と共に示したものが図 1 です。利用シフト数合計は、表 5 の「利用時間」に利用した共用・専用ビームラインの数（理研ビームラインの一部共用への供出分を含む。但し、理研ビームラインは共用供出割合で換算）を掛けた数値となっています。図 2 には、SPring-8 共用施設の利用研究課題の応募・採

択数の推移実績を採択率と共に示します。応募・採択課題数は、2006B 以前は一般課題締め切り時、2007A 以降は期の途中で申請・採択される成果専有時期指定課題、測定代行課題および産業利用ビームラインの第 2 期および第 3 期申請分を含めた、期の終わりの値を示します。利用シフト数合計は、上記と同様に表 5 の「利用時間」に利用した共用ビームラインの数を掛けた数値となっています。

表 4 SPring-8 1997B-2019B 課題種別実施課題数の推移

課題種	1997B~2011B	2012A	2012B	2013A	2013B	2014A	2014B	2015A	2015B	2016A	2016B	2017A	2017B	2018A	2018B	2019A	2019B	合計
一般課題 (成果非専有)	10636	430	516	440	384	444	611	457	476	489	459	502	570	524	537	507	563	18545
緊急課題	35	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	35
一般課題 (成果専有)	578	38	51	34	55	34	55	36	37	42	47	35	48	41	46	38	52	1267
時期指定課題 (除く測定代行)	181	4	15	6	4	4	2	8	8	6	10	7	16	6	16	8	20	321
測定代行 (時期指定課題の一環)	204	35	48	49	47	41	54	37	46	32	48	29	46	37	60	29	40	882
産業利用準備課題																3	10	13
長期利用課題	211	15	14	14	16	13	13	26	23	28	25	28	25	13	14	15	14	507
被災量子ビーム施設ユーザ ー支援課題	94																	94
大学院生提案型課題 (旧名称：萌芽的研究支 援課題 [~2015B])	265	32	40	27	32	38	58	45	54	65	52	29	53	53	58	41	52	994
成果公開優先利用課題	299	33	33	18	27	24	30	18	28	35	37	39	52	34	43	33	33	816
重点タンパク 500 課題 (タンパク 3000)	489																	489
重点ナノテクノロジー支 援課題	928																	928
重点産業トリアルユース 課題	112																	112
SPring-8 戦略活用プロ グラム課題	332																	332
重点産業利用課題	1000																	1000
重点産業化促進課題		13	19	13	13													58
産業新分野支援課題						10	14	12	14	11	4	6	4					75
放射光施設構新産業利用 課題														5	3	6	4	18
先進技術活用による産業 応用課題																5	4	9
重点メディカルバイオ・ トリアルユース課題	57																	57
重点拡張メディカルバイ オ課題	51																	51
重点グリーン/ライフ・ イノベーション推進課題	21	29	27	24	24													125
スマート放射光活用イノ ベーション戦略推進課題						12	17	18	14									61
社会・文化利用課題								11	16	17	19	19	14	14	13			123
重点戦略課題 (12 条戦略課題)	61	1	1	1	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	65
重点/パワーユーザー課題	97	7	7	7	7	1	1											127
重点パートナーユーザー 課題						3	3	6	6	7	7	8	8	7	7	8	8	78
新分野創成利用課題									4	6	11	16	21	21	25	24	9	137
合計	15651	637	771	633	610	624	858	674	726	738	719	718	857	755	822	717	809	27319

備考 長期利用課題は BL ごとに 1 課題としてカウント。
空白は制度なし。

実施課題の課題名をホームページの以下の URL で公開しています。成果専有課題は「公表用課題名」が表示されています。

<http://www.spring8.or.jp/ja/users/proposals/list/>
 成果非専有課題の利用課題実験報告書 (SPring-8

Experiment Summary Report) は以下の URL で閲覧できます。

<http://user.spring8.or.jp/uisearch/expreport/ja>

成果は、3年以内に、論文または SPring-8/SACLA 利用研究成果集等で公開されます。

表 5 SPring-8 共用施設および専用施設利用実績の推移

利用期間	利用時間	共用施設		専用施設			
		実施課題数	延べ利用者数	実施課題数	延べ利用者数		
第 1 回	1997B	1997 年 10 月-1998 年 03 月	1,286	94	681	-	-
第 2 回	1998A	1998 年 04 月-1998 年 10 月	1,702	234	1,252	7	-
第 3 回	1999A	1998 年 11 月-1999 年 06 月	2,585	274	1,542	33	467
第 4 回	1999B	1999 年 09 月-1999 年 12 月	1,371	242	1,631	65	427
第 5 回	2000A	2000 年 02 月-2000 年 06 月	2,051	365	2,486	100	794
第 6 回	2000B	2000 年 10 月-2001 年 01 月	1,522	383	2,370	88	620
第 7 回	2001A	2001 年 02 月-2001 年 06 月	2,313	474	2,915	102	766
第 8 回	2001B	2001 年 09 月-2002 年 02 月	1,867	488	3,277	114	977
第 9 回	2002A	2002 年 02 月-2002 年 07 月	2,093	545	3,246	110	1,043
第 10 回	2002B	2002 年 09 月-2003 年 02 月	1,867	540	3,508	142	1,046
第 11 回	2003A	2003 年 02 月-2003 年 07 月	2,246	634	3,777	164	1,347
第 12 回	2003B	2003 年 09 月-2004 年 02 月	1,844	549	3,428	154	1,264
第 13 回	2004A	2004 年 02 月-2004 年 07 月	2,095	569	3,756	161	1,269
第 14 回	2004B	2004 年 09 月-2004 年 12 月	1,971	555	3,546	146	1,154
第 15 回	2005A	2005 年 04 月-2005 年 08 月	1,880	560	3,741	146	1,185
第 16 回	2005B	2005 年 09 月-2005 年 12 月	1,818	620	4,032	187	1,379
第 17 回	2006A	2006 年 03 月-2006 年 07 月	2,202	724	4,809	226	1,831
第 18 回	2006B	2006 年 09 月-2006 年 12 月	1,587	550	3,513	199	1,487
第 19 回	2007A	2007 年 03 月-2007 年 07 月	2,448	781	4,999	260	2,282
第 20 回	2007B	2007 年 09 月-2008 年 02 月	2,140	739	4,814	225	1,938
第 21 回	2008A	2008 年 04 月-2008 年 07 月	2,231	769	4,840	232	1,891
第 22 回	2008B	2008 年 10 月-2009 年 03 月	1,879	672	4,325	217	1,630
第 23 回	2009A	2009 年 04 月-2009 年 07 月	1,927	669	4,240	238	1,761
第 24 回	2009B	2009 年 10 月-2010 年 02 月	2,087	722	4,793	275	2,144
第 25 回	2010A	2010 年 04 月-2010 年 07 月	1,977	685	4,329	293	2,483
第 26 回	2010B	2010 年 10 月-2011 年 02 月	2,094	744	4,872	325	2,812
第 27 回	2011A	2011 年 04 月-2011 年 07 月	2,131	740	4,640	309	2,773
第 28 回	2011B	2011 年 10 月-2012 年 02 月	1,927	730	4,576	319	2,769
第 29 回	2012A	2012 年 04 月-2012 年 07 月	1,972	637	4,304	285	2,692
第 30 回	2012B	2012 年 10 月-2013 年 02 月	2,184	771	5,072	314	3,181
第 31 回	2013A	2013 年 04 月-2013 年 07 月	1,837	633	4,053	275	2,835
第 32 回	2013B	2013 年 10 月-2013 年 12 月	1,571	610	3,770	286	2,723
第 33 回	2014A	2014 年 04 月-2014 年 07 月	1,768	624	4,129	292	2,710
第 34 回	2014B	2014 年 10 月-2015 年 02 月	2,290	858	5,766	331	3,573
第 35 回	2015A	2015 年 04 月-2015 年 07 月	2,053	674	4,560	271	2,960
第 36 回	2015B	2015 年 09 月-2015 年 12 月	1,981	726	4,863	281	2,898
第 37 回	2016A	2016 年 04 月-2016 年 07 月	2,150	738	5,174	301	3,130
第 38 回	2016B	2016 年 09 月-2016 年 12 月	1,976	719	4,824	298	2,985
第 39 回	2017A	2017 年 04 月-2017 年 07 月	2,101	718	4,835	326	3,228
第 40 回	2017B	2017 年 10 月-2018 年 02 月	2,377	857	5,885	355	3,659
第 41 回	2018A	2018 年 04 月-2018 年 08 月	2,254	755	5,009	323	3,231
第 42 回	2018B	2018 年 10 月-2019 年 02 月	2,306	822	5,468	361	3,303
第 43 回	2019A	2019 年 04 月-2019 年 07 月	2,204	717	4,579	331	2,911
第 44 回	2019B	2019 年 09 月-2020 年 02 月	2,343	809	5,378	344	3,102
合 計			88,508	27,319	177,607	9,811	88,660

註：長期利用課題をビームラインごとに 1 課題とカウント (2008.7)。
 共用施設には理研ビームライン等からの供出ビームタイムの利用者を含む。

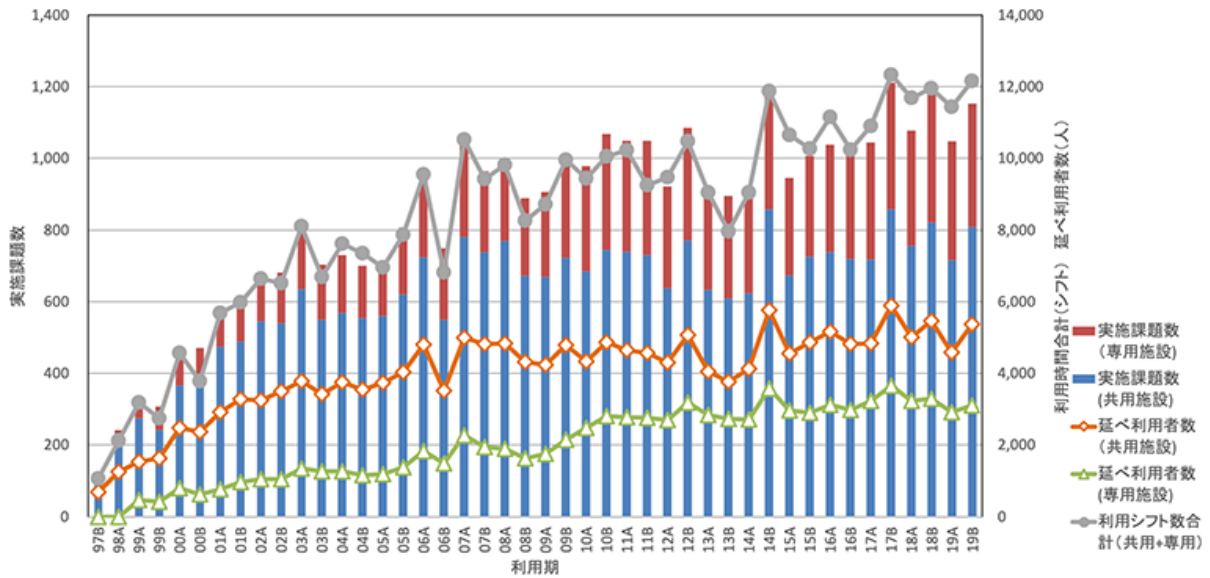


図1 Spring-8 共用施設および専用施設の利用実績の推移

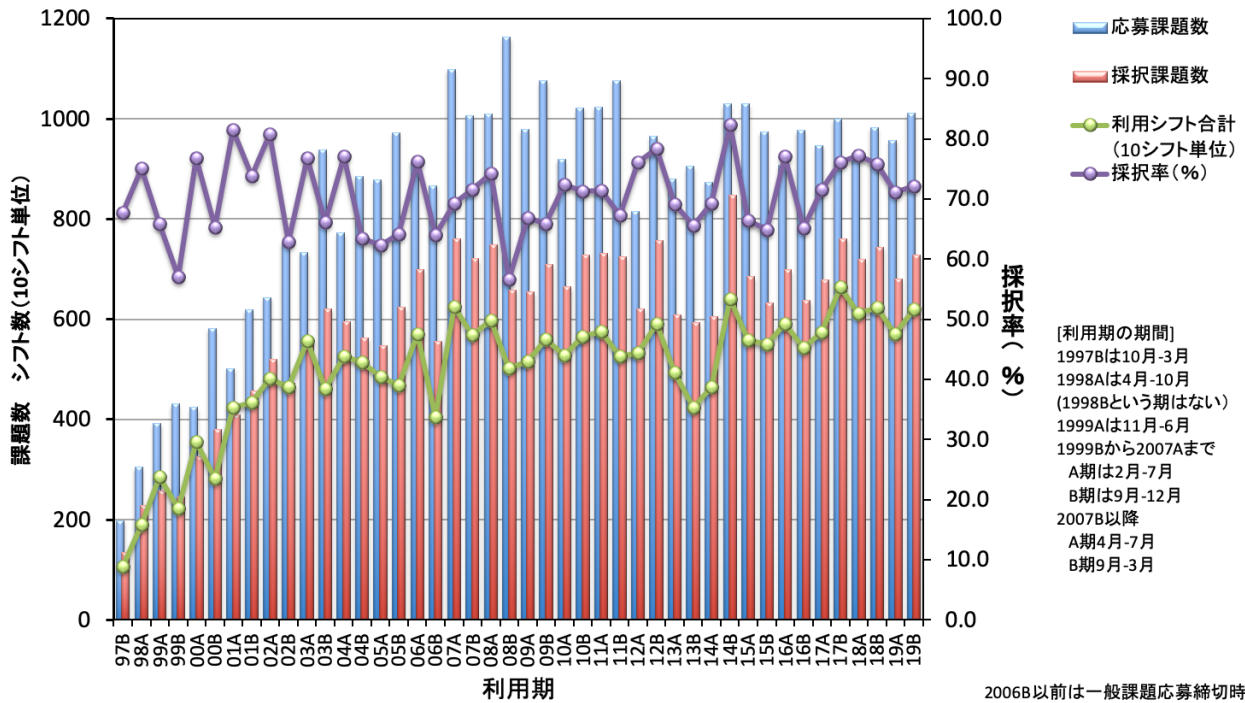


図2 Spring-8 共用施設の応募・採択課題数の推移実績

2006B以前は一般課題応募締切時、
2007A以降は期の終了時の値。

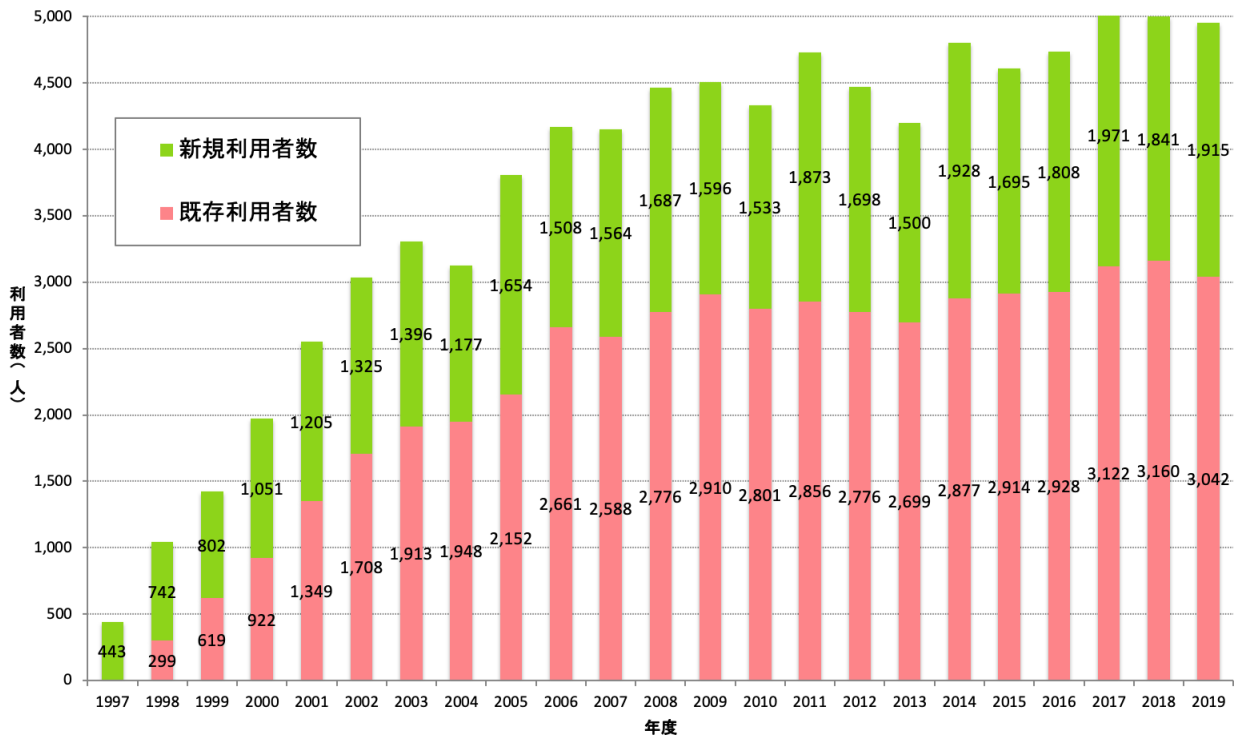


図3 SPring-8の年度ごとのユニーク利用者数

2014年度指定パートナーユーザー事後評価報告 - 3 -

公益財団法人高輝度光科学研究センター
利用推進部

パートナーユーザー制度は、SPRING-8の共同利用ビームラインの更なる高度化および優れた成果の創出を推進するために、2014年度より運用しています。パートナーユーザー（以下「PU」という）は、公募・審査を経て指定されます。

PUの事後評価は、PU審査委員会において、あらかじめ提出されたPU活動終了報告書に基づいたPUによる発表と質疑応答により行われます。事後評価の着目点は、PUとしての(1)目標達成度、(2)活動成果（装置整備・高度化への協力、科学技術的価値および波及効果、ユーザー開拓および支援、情報発信）です。今回は、2014年度指定のPU1名（指定期間：2014年4月1日から2019年3月31日まで）について、事後評価（2019年12月4日開催）を行いました。

以下にPU審査委員会がとりまとめた評価結果等を示します。研究内容については本誌の「最近の研究から」にPUによる紹介記事を掲載しています。

1. Bo Iversen (University of Aarhus)

(1) 実施内容

研究テーマ：Application of synchrotron radiation in materials crystallography

高度化：Structural dynamics infrastructure development and its leading use

利用研究支援：Help and support to the users using upgraded beamline facilities

(2) ビームライン：BL02B1

(3) 評価コメント

This project set three goals. 1) Establishment of BL02B1 (single crystal structure analysis) to deliver high-quality and high-resolution diffraction data of the utmost quality for the purpose of charge density (CD) refinement and its application to novel materials. 2) Development of pico-second time-resolved data collection system for precise structural analysis at

charge density level. 3) Improvement of the usability of the system for users.

As for the Facility Upgrade, this group implemented a photon-counting pixelated CdTe detector Pilatus3 X 1M. They found that the both very strong and very weak data were suffered from systematic errors. They have developed an algorithm to correct the errors and succeeded in charge density refinement by using the detector. The achievement is highly esteemed. This detector system will be useful for collecting diffuse scattering data, for example, because the long reading and erasing time of about 7 minutes of the present imaging plate system prevents from collecting the data with a very thin slicing for omega rotation. They also introduced an x-ray chopper at the upstream side of the slit for the time-resolved data collection. They have succeeded in capturing the change in crystal structure of BaTiO₃ during the polarization reversal by the pump-probe method using the chopped pulse x-rays of 30 keV from the train bunch in the D-mode operation with the temporal resolution of 685 ns and a repetition rate of 1 kHz. The chopped SR pulse x-rays from the single bunch in the H-mode operation with the temporal resolution of 50 ps was also successfully obtained. They also tried to develop low-temperature high-pressure x-ray structure analysis.

The upgraded system was applied to the charge density refinement of many materials like rubrene, SnTe, CsCl, H₃Co(CN)₆, and TiS. The results provide valuable information about the chemical bonding and thermal vibration. The achievements were published in high-impact journals.

This group supported 18 proposals for 5 years. Although the outreach activity was rather limited, some of the proposals including time-resolved diffraction of quartz in 30-MHz electric field were successfully performed to produce a good achievement.

In summary, this PU project is highly evaluated from the viewpoint of beamline upgrade and its application. The committee recommends that the obtained knowledge about the CdTe detector system should be widely shared.

2015 年度指定パートナーユーザー事後評価報告 - 1 -

公益財団法人高輝度光科学研究センター
利用推進部

パートナーユーザー制度は、SPring-8 の共同利用ビームラインの更なる高度化および優れた成果の創出を推進するために、2014 年度より運用しています。パートナーユーザー（以下「PU」という）は、公募・審査を経て指定されます。

PU の事後評価は、PU 審査委員会において、あらかじめ提出された PU 活動終了報告書に基づいた PU による発表と質疑応答により行われます。事後評価の着目点は、PU としての (1) 目標達成度、(2) 活動成果（装置整備・高度化への協力、科学技術的価値および波及効果、ユーザー開拓および支援、情報発信）です。今回は、2015 年度指定の PU2 名（指定期間：2015 年 4 月 1 日から 2019 年 3 月 31 日まで）について、事後評価（2019 年 12 月 4 日開催）を行いました。

以下に PU 審査委員会がとりまとめた評価結果等を示します。研究内容については本誌の「最近の研究から」に PU による紹介記事を掲載しています。

1. 森吉 千佳子（広島大学）

(1) 実施内容

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

高度化：迅速オペランド構造計測ステーションの整備
利用研究支援：当該装置を用いた利用実験の支援

(2) ビームライン：BL02B2

(3) 評価コメント

本 PU 課題は、BL02B2（粉末結晶構造解析）に設置されている大型デバイシェラーカメラに一次元半導体検出器 (MYTHEN 検出器) を導入するとともに、迅速オペランド構造計測システムを整備し、ユーザーが使いやすいシステムを構築することを目指したものである。

本課題の高度化に関しては、ビームラインの高度化計画に沿って、大型デバイシェラーカメラへの 6 連装

MYTHEN 検出器システムの導入と整備を進め、角度分解能の向上、計測時間の短縮などを実現した。また、この特徴を活かして、電場下、ガス吸脱着下、材料合成下、などのさまざまな試料環境下でのオペランド構造計測を実現するための整備を行い、一般のユーザーが使い易く、信頼性の高いシステムに整備した点は大変評価できるものである。

利用実験に関しても、整備した構造計測システムを活用し、圧電セラミックスの電場誘起歪み発現機構の解明、多孔性配位高分子のガス吸着状態や合金ナノ粒子の水素吸蔵・放出、触媒特性の研究、などの多くの分野から、成果が論文として出版されており、本課題が果たした役割は大きいと判断できる。

さらに、利用支援に関しても、研修会や学会などを通じた広報活動などを行い、新規ユーザーの開拓に成果をあげている。また、新規ユーザーなどのニーズをきめ細かく引き出した上で、PU メンバー間およびビームライン担当者との連携を積極的に図り、ユーザーニーズに沿ったオペランド構造計測システムをタイムリーに整備することに努め、ユーザーの成果創出に繋げる支援を実施したと評価できる。

以上のように、本 PU 課題は、延長を含め 4 年間の指定期間に、装置の高度化、利用実験、利用者開拓および支援をバランス良く実施し、成果の創出に大きく貢献したと高く評価されるものである。

2. 入船 徹男（愛媛大学）

(1) 実施内容

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

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

利用研究支援：当該装置を用いた利用実験の支援

(2) ビームライン：BL04B1

(3) 評価コメント

本 PU は、多アンビル装置を用いた高温高圧 (BL04B1) ビームラインの建設当時から研究活動、利用者支援、人材育成に貢献してきた。2015A 期から 2018B 期の 6 期 (3 年間) の PU 活動では、地球マントル深部に関する研究を静的な構造・物性研究からダイナミクス研究へと進化させることを主目的として、高温・高圧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を中心に、利用実験、利用者支援を行ってきた。

高度化として、単色 X 線回折・X 線透過像の同時測定を可能にする光学系の導入、試料中での“ミニ地震”を検出するアコースティックエミッション測定システムの導入、ナノ多結晶ダイヤモンド (ヒメダイヤ) を用いた超高压の発生、超音波測定装置や高解像度 CCD カメラなどの高性能化、を行ってきた。特に、ヒメダイヤアンビルの導入により従来の約 1.5 倍の最高圧力を達成し、さらに入射 X 線強度が増大することで X 線回折データや X 線透過像の高精度化が格段に進んだ。

利用実験において、弾性波速度、変形・破壊、融解・元素分配などをテーマとした研究を行い、インパクトの大きな成果を創出している。超音波測定と放射光 X 線計測技術を組み合わせた弾性波速度測定システムを用いて、下部マントルの CaSiO_3 ペロプスカイトの弾性波速度の測定を行い、その成果を *Nature* 誌に発表している。その他、含水鉱物の鉄スピン転移や地球惑星深部における水の大循環に関する研究を行ってきた。また、50~300 km の地球深部で発生する稍深発地震のメカニズムを解明するために、圧力下での岩石破壊実験を行い、カンラン石の圧力誘起相転移と地震メカニズムとの相関を議論し、*Nature Geoscience* に発表している。

利用者支援に関しては、愛媛大学の全国共同利用・共同研究拠点 (PRIUS) と連携し、実験技術指導などを行ってきた。近年は、地球科学に加えて、材料科学分野でのユーザー開拓を進めてきた。その一つの成果として、世界初の透明ナノセラミックスの開発がある。

上記のような成果から、本 PU は所期の目標を達成していると判断できる。さらに、関連プロジェクトとの連携、外部資金の導入や国際連携も積極的に行っており、本 PU は成功した活動の一つであると高く評価できる。

2017A 期 採択長期利用課題の事後評価について - 2 -

公益財団法人高輝度光科学研究センター
利用推進部

2017A 期に採択された長期利用課題について、2018B 期に2年間の実施期間が終了したことを受け、第 66 回 SPring-8 利用研究課題審査委員会長期利用分科会 (2019 年 12 月 17 日開催) による事後評価が行われました。

事後評価は、長期利用分科会が実験責任者に対しヒアリングを行った後、評価を行うという形式で実施し、SPring-8 利用研究課題審査委員会で評価結果を取りまとめました。以下に評価を受けた課題の評価結果を示します。研究内容については本誌の「最近の研究から」に実験責任者による紹介記事を掲載しています。

なお、2017A 期に採択された長期利用課題 4 課題のうち 2 課題の評価結果は「SPring-8/SACLA 利用者情報」Vol.24 No.4 (2019 年 11 月号)に掲載済みです。

— 課題 1 —

課題名	低コストフレキシブル太陽電池の実現に向けた有機無機ハイブリッド材料の構造および電子状態解析*
実験責任者(所属)	宮寺 哲彦 (産業技術総合研究所)
採択時課題番号	2017A0136
ビームライン	BL46XU
利用期間/配分総シフト	2017A~2018B/86 シフト

[評価結果]

本長期利用課題は有機系の新材料や低温プロセスで作成可能なペロブスカイト太陽電池など、低コストで高効率な太陽電池開発を目指した社会的意義が高い課題であり、微小角入射 X 線回折法によるその場観察技術を用いて (1) レーザー真空蒸着法、及び溶液塗布法における薄膜形成過程解明、(2) コンビナトリアル成膜法を用いた高能率材料・プロセス探査を目標に実施された。(1) 薄膜形成過程のその場観察においては、その場観察用成膜装置を開発し、レーザー真空蒸着法、溶液塗布法ともに成膜時のその場観察を実現し、ペロブスカイト膜形成過程の乾燥方法による

違い等が明らかにされた。(2) コンビナトリアル成膜手法による材料・プロセス探査においても巨大な結晶粒塊を形成する PTCDI-C₈ 薄膜条件を見出すなどの結果が得られている。以上のような当該長期利用課題で得られた成果は 5 報の論文が掲載されるとともに 1 報の学位論文も発表されていることから、その場測定技術開発とコンビナトリアル成膜による材料・プロセス探査法開発は、その目標を達成している。

一方、高性能太陽電池を実現する材料とプロセスの開発が本課題の最終的な目的であるが、現段階においては目標達成に向けた有用な知見が得られているようには思えない。本課題の実施によって高能率な材料・プロセス開発に向けた技術を確立したのであるから、今後は一般課題の実施を通じて薄膜の状態把握に加えて膜の構造が発電効率等の物性に与える影響を明らかにし、高効率太陽電池実現に向けて研究を進展させることを期待する。

*申請時には HAXPES による電子状態解析も計画されていたが、GIXD による成膜過程その場観察とコンビナトリアル成膜を中心に実施するとして採択されたため、課題名にある電子状態解析は行われていない。

[成果リスト]

(査読付き論文)

[1] SPring-8 publication ID = 36425

K. Yamamoto: “Research and Development of New Fabrication Methods for High Performance Perovskite Solar Cells” *Doctoral Thesis (Kanazawa University)* (2018).

[2] SPring-8 publication ID = 36693

K. Yamamoto *et al.*: “Molecular Orientation Control of Semiconducting Molecules using a Metal Layer Formed by Wet Processing” *Organic Electronics* **63** (2018) 47-51.

- [3] SPring-8 publication ID = 37111
 S. Maruyama *et al.*: “Ionic Conductivity in Ionic Liquid Nano Thin Films” *ACS Nano* **12** (2018) 10509-10517.
- [4] SPring-8 publication ID = 37300
 Y. Akiyama *et al.*: “Effects of Solvent Vapor Annealing on Organic Photovoltaics with a New Type of Solution-Processable Oligothiophene-Based Electronic Donor Material” *Japanese Journal of Applied Physics* **57** (2018) 08RE09.
- [5] SPring-8 publication ID = 37893
 A. Yoshii *et al.*: “Fabrication of Ionic Liquid Polycrystalline Nano Thin Films and Their Ion Conducting Properties Accompanied by Solid-Liquid Phase Transition” *Thin Solid Films* **677** (2019) 77-82.
- [6] SPring-8 publication ID = 39166
 N. Ohashi *et al.*: “Evaluation of Exciton Diffusion Length in Highly Oriented Fullerene Films of Fullerene/p-Si(100) Hybrid Solar Cells” *Japanese Journal of Applied Physics* **58** (2019) 121004.

HAXPES スペクトル取得に成功したことは評価に値すると思うが、窓の破損による測定中断などもあり、残念ながら反応中の燃料電池触媒の化学状態を明らかにするとした目標を達成できていない。

本長期利用課題が目標とした電気化学反応測定と HAXPES の同時測定は発展性のある技術である上、申請者も今後とも技術開発を継続する意向であることから、本長期利用課題で得られた経験や知見を活用するばかりでなく、当該技術分野の技術開発経験者や JASRI 職員等からの助言や協力を得るなどして、早期に当初目標が達成できるよう努力されることを期待する。また、広い波及効果が期待できる技術であることから、測定装置に関する技術情報や開発した装置を用いて得られる燃料電池触媒の化学状態に関する成果を論文誌等で速やかに公表されるようお願いしたい。

[成果リスト]
 なし

— 課題2 —

課題名	電気化学反応速度と HAXPES の複合同時計測を目指した新規 operando フローセルシステムの開発と燃料電池触媒への応用
実験責任者(所属)	犬飼 潤治 (山梨大学)
採択時課題番号	2017A0138
ビームライン	BL46XU
利用期間/配分総シフト	2017A~2018B/54 シフト

[評価結果]

本課題は電気化学反応測定と同時に HAXPES 測定を行う技術を開発し、反応中の燃料電池触媒の化学状態を明らかにすることを目的としている。完成した装置は燃料電池触媒のみならず、二次電池、腐食、鍍金等の広い分野での利用が期待される上、一般ユーザーによる利用も提案されていることから長期利用課題として採択された。

HAXPES 装置導入前に実験室での X 線照射耐性試験を行うなど、採択時のコメントも十分尊重しながら装置開発に取り組んでいる。最終的に電気化学測定が可能なセルを用い、電流測定をしながら Au からの

2019B 期において実施された SACLA 利用研究課題（共用課題）について

登録施設利用促進機関

公益財団法人高輝度光科学研究センター
利用推進部

2012 年 3 月より供用運転が開始された SACLA では、第 16 回目の利用期である 2019B 期の利用研究課題（共用課題）が、2019 年 10 月 4 日から 2020 年 3 月 1 日にかけて実施されました。この期間において、ビームライン BL1、BL2 または BL3 にて計 56 の利用研究課題が実施され、ビームタイムは計 265.75 シフト（1 シフト＝12 時間）が利用されました。

実施課題は、一般課題（成果非専有利用）として、それぞれ表 1 のとおり国内外機関所属の実験責任者により実施されました。成果専有利用制度である一般課題（成果専有利用）及び時期指定課題（成果専有利用のみ）の利用はありませんでした。

なお、これらのほか、同ビームラインにおいて JASRI スタッフによるインハウス課題が計 4 課題実施され、ビームタイムは計 21 シフトが利用されました。

実施課題の課題名は、以下の Web サイトに掲載しています。

◆ SACLA User Information

- > SACLA 利用案内 > 採択課題/実施課題
- > 実施課題一覧 > 2019B

http://sacla.xfel.jp/wp-content/uploads/sacla_performed_proposal_2019b_j.pdf

※ 2019B 期の実施課題は、2020 年 5 月 14 日に公開。

また、利用課題実験報告書（Experiment Summary Report：成果非専有利用のみ）は、以下の Web サイトに掲載しています。

◆ SACLA User Information

> 成果等検索 > 利用課題実験報告書検索

<https://user.spring8.or.jp/uisearch/expreport/ja>

※ 2019B 期の報告書は、2020 年 5 月 14 日に公開。

成果は、課題実施期終了後 3 年以内に、査読付き原著論文等で公開されます。

公益財団法人

高輝度光科学研究センター 利用推進部

TEL：0791-58-0961

e-mail：sacla.jasri@spring8.or.jp

表 1 2019B 期 SACLA 利用研究実施課題

課題種	産業界		大学等教育機関		国立試験研究機関等		海外機関		合計		
	実施課題数	実施シフト数	実施課題数	実施シフト数	実施課題数	実施シフト数	実施課題数	実施シフト数	実施課題数	実施シフト数	
一般課題	(成果非専有利用)	2	6	20	95	8	40	26	124.75	56	265.75
	(成果専有利用)										
時期指定課題 (成果専有利用)											
合計	2	6	20	95	8	40	26	124.75	56	265.75	

○実施課題を実験責任者の所属（産学官 海外）で区分。

○延べ来所者数は計 650 人。

SPring-8 運転・利用状況

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

◎2020年1～2月の運転実績

SPring-8は1月17日から2月22日までセベラルバンチ運転で第7サイクルの運転を実施した。第7サイクルではSR_C LI系冷却水（真空機器、電磁石等冷却水）流量低下によるビームアボート等があったが、全体としては順調な運転であった。総放射光利用運転時間（ユーザータイム）内での故障等による停止時間（down time）は、第7サイクルは約1.3%であった。

1. 装置運転関係

(1) 運転期間

第7サイクル（1/17（金）～2/22（土））

(2) 運転時間の内訳

第7サイクル

運転時間総計 約865時間

①装置の調整およびマシンスタディ等 約97時間

②放射光利用運転時間 約757時間

③故障等によるdown time 約10時間

④フィリング変更時間 約1時間

総放射光利用運転時間（ユーザータイム）＝②＋③＋④に対するdown timeの割合（*1）約1.3%

(3) 運転スペック等

第7サイクル（セベラルバンチ運転）

- ・1/14 filling + 12 bunches (F)
- ・203 bunches (A)
- ・11/29 filling + 1 bunch (H)
- ・203 bunches (A)
- ・入射は電流値優先モード（2～3分毎（マルチバンチ時）もしくは20～40秒毎（セベラルバンチ時）のTop-Upモードで実施。
- ・蓄積電流 8 GeV、～100 mA

(4) 主なdown timeの原因

- ・SR_C LI系冷却水流量低下によるアボート

2. 利用関係（JASRI利用推進部集計）

(1) 放射光利用実験期間

第7サイクル（1/19（日）～2/21（金））

(2) ビームライン利用状況

稼働ビームライン

共用ビームライン 26本

専用ビームライン 19本

理研ビームライン 12本

第7サイクル（暫定値）

共同利用研究実験数 401件

共同利用研究者数 1,745名

専用施設利用研究実験数 291件

専用施設利用研究者数 1,022名

◎2020年2～3月の運転実績（停止期間）

SPring-8は2月23日から3月26日まで年度末点検調整期間とし、加速器やビームラインに係わる機器の改造・点検作業、電気・冷却設備等の機器の点検作業を行った。

（年度末点検調整期間中の主な作業（計画））

(1) 線型加速器関係

- ・MOD 定期点検
- ・Li-RF エージング
- ・冷却水流量調整
- ・その他作業及び定期点検

(2) シンクロトロン関係

- ・Sy-Pulse 定期点検
- ・SSBT-BP 定期点検
- ・Sy-RF エージング

- ・その他作業及び定期点検
- (3) 蓄積リング関係
 - ・RF エージング
 - ・電磁石、電磁石電源等定期点検及び測定、修理
 - ・SR 四極及び六極電磁石冷却水ホース交換
 - ・SR-QA 電源基盤内寿命部品調査測定
 - ・真空系作業及び冷却水調整
 - ・制御盤 UPS バッテリ、SIP 高圧ケーブル交換
 - ・低電力 RF 系機器の組替
 - ・クライストロン電源保守作業
 - ・モニター、タイミングケーブル更新
 - ・各種信号登録及び動作確認試験
 - ・ID/FE 作業及び点検、FE 改造 (BL05XU)
 - ・ネットワークスイッチ更新、光ファイバー敷設
 - ・BL05XU 改造工事 (各種検査)
 - ・BL 制御系更新
 - ・BL インターロック工事及び検査
 - ・BL_ILK 自主検査 (後期)
- (4) ユーティリティ関係
 - ・電気設備保守点検
 - ・冷却水設備保守定期点検
 - ・空調用設備保守点検
 - ・消防設備等点検
- (5) 安全管理関係
 - ・放射線監視設備定期点検
 - ・特例区域設置
 - ・SPring-8/XSBT_ILK 自主検査 (後期)
 - ・その他作業及び点検
- (6) その他
 - ・特別高圧第 2 変電所関連改修工事
 - ・蓄積リング棟屋根及び外壁塗装改修工事 (III 期)
 - ・蓄積リング棟付属施設 (W 棟) 外壁塗装改修工事
 - ・実験動物維持施設外壁塗装改修工事
 - ・高圧分岐盤更新工事 (A 及び B ブロック)

◎2020 年 3～5 月の運転予定

- (1) SPring-8 は 3 月 27 日から 4 月 27 日までセバラルバンチ運転で第 1 サイクルの運転を予定している。
- (2) 4 月 28 日から 5 月 6 日までは春の点検調整期間とし、加速器やビームラインに係わる機器の

改造・点検作業、電気・冷却設備等の機器の点検作業等を予定している。

- (3) 春の停止期間後の運転再開は 5 月 7 日からの予定で 7 月 10 日まで第 2 サイクルの運転を予定している。第 1～2 サイクルの運転実績については次号にて掲載する。

◎2020 年度 SPring-8 運転計画

SPring-8 では 2020 年度の運転を以下のように計画している。

- (1) 運転計画予定表
SPring-8 の WWW にて公開している。
- (2) 運転計画の内訳
 - ①運転時間 (総計/加速器の運転時間)
約 5,184 時間の運転を予定している。
 - ②運転時間 (総放射光利用運転時間)
4,464 時間の運転を予定している。
 - ③サイクル数
合計 5 サイクルの運転を予定している。
 - ④特記事項
2020 年度は SACLA から蓄積リングへの入射可能期間を設定している。

- (*1) down time の割合に④フィリング変更時間は含まない。

論文発表の現状

公益財団法人高輝度光科学研究センター 利用推進部

年別査読有り論文発表等登録数 (2020年3月31日現在)

SPring-8

Beamline Name		Public Use Since	~2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	2019	2020	Total	
Public Beamlines	BL01B1	XAFS	1997.10	415	76	65	74	92	75	87	93	75	69	19	1140
		Technical Journal				1									1
	BL02B1	Single Crystal Structure Analysis	1997.10	140	12	18	36	42	36	43	39	28	40	8	442
	BL02B2	Powder Diffraction	1999.9	505	82	59	96	71	82	95	79	73	68	14	1224
	BL04B1	High Temperature and High Pressure Research	1997.10	174	22	16	20	19	16	16	15	15	18	2	333
	BL04B2	High Energy X-ray Diffraction	1999.9	194	23	28	28	33	37	43	30	40	36	15	507
		Technical Journal					1								1
	BL08W	High Energy Inelastic Scattering	1997.10	128	20	19	15	13	19	15	16	14	10	6	275
	BL09XU	Nuclear Resonant Scattering	1997.10	110	13	13	15	15	18	16	19	28	14	3	264
	BL10XU	High Pressure Research	1997.10	295	32	28	21	30	29	30	28	22	24	7	546
	BL13XU	Surface and Interface Structure	2001.9	139	27	6	16	21	24	36	27	31	29	12	368
	BL14B2	Engineering Science Research II	2007.9	43	32	36	53	53	61	53	58	65	72	20	546
		Technical Journal				1	1	1					1	2	6
	BL19B2	Engineering Science Research I	2001.11	143	35	53	59	63	65	64	67	59	53	13	674
		Technical Journal				1	1	1	2			2	1	1	9
	BL20B2	Medical and Imaging I	1999.9	182	24	35	28	25	35	26	28	30	23	8	444
	BL20XU	Medical and Imaging II	2001.9	137	27	21	40	44	43	37	32	29	40	7	457
	BL25SU	Soft X-ray Spectroscopy of Solid	1998.4	282	25	22	24	31	20	19	25	20	20	5	493
		Technical Journal				2									2
	BL27SU	Soft X-ray Photochemistry	1998.5	282	31	18	41	35	25	36	27	23	15	12	545
	BL28B2	White Beam X-ray Diffraction	1999.9	95	15	10	21	18	21	19	25	19	11	3	257
	BL35XU	High Resolution Inelastic Scattering	2001.9	75	12	8	14	13	16	15	15	14	8	7	197
	BL37XU	Trace Element Analysis	2002.11	96	23	13	32	28	35	29	29	27	17	7	336
		Technical Journal						1							1
	BL38B1	Structural Biology III	2000.10	329	48	60	59	48	65	60	38	30	31	6	774
	BL39XU	Magnetic Materials	1997.10	173	19	21	20	25	19	24	30	20	17	11	379
	BL40B2	Structural Biology II	1999.9	336	42	43	70	54	55	59	54	55	62	9	839
		Technical Journal					1		1						2
	BL40XU	High Flux	2000.4	89	13	18	37	21	32	42	30	34	40	8	364
	BL41XU	Structural Biology I	1997.10	590	66	53	65	55	60	67	56	48	37	10	1107
BL43IR	Infrared Materials Science	2000.4	69	8	11	10	11	17	15	23	10	18	4	196	
BL46XU	Engineering Science Research III	2000.11	100	22	15	38	28	56	51	49	45	46	7	457	
	Technical Journal								1	1				2	
BL47XU	HXPES・MCT	1997.10	227	31	17	36	36	31	29	37	28	27	8	507	
	Technical Journal									1				1	
Public Use at Other Beamlines	BL05XU	RIKEN Diagnosis Beamline I	2017.4									3	6	2	11
	BL11XU	QST Quantum Dynamics I	1999.3	13											13
	BL14B1	QST Quantum Dynamics II	1998.4	44	2	1		1							48
	BL15XU	WEBRAM	2002.9	32	1	1		1							35
	BL17SU	RIKEN Coherent Soft X-ray Spectroscopy	2005.9	8	7	6	11	12	5	2	3	5	7		66
	BL19LXU	RIKEN SR Physics	2002.9	5				1	1	2	5	6	2		22
	BL22XU	JAEA Actinide Science I	2004.9	5			1								6
	BL23SU	JAEA Actinide Science II	1998.6	46		2	3	2							53
	BL26B1	RIKEN Structural Genomics I	2009.4		3	8	2	9	6	15	15	22	26	3	109
	BL26B2	RIKEN Structural Genomics II	2009.4	1		5	3	5	7	11	8	9	8	1	58
		Technical Journal								1					1
	BL29XU	RIKEN Coherent X-ray Optics	2002.9	13				1	1	2	2	3			22
	BL32XU	RIKEN Targeted Proteins	2010.10		5	5	8	9	16	8	15	15	7		88
	BL44B2	RIKEN Materials Science	1998.5	14						6	5	2	4		31
	BL45XU	RIKEN Structural Biology I	1997.10	84	9	6	7	9	13	20	10	6	15	3	182
Subtotal				5613	807	740	1003	974	1041	1092	1032	953	920	240	14415

Beamline Name		Public Use Since	~2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	2019	2020	Total	
Contract Beamlines	BL03XU	Advanced Softmaterials	2009.11	1	5	8	24	21	14	17	21	9	16	2	138
		Technical Journal				35	42	39	36	33	31	28			244
	BL07LSU	The University-of-Tokyo Outstation Beamline for Materials Science	2009.11	1	5	6	10	13	12	19	19	15	20	2	122
	BL08B2	Hyogo Prefecture BM	2005.9	1	1	3	7	9	5	6	11	5	5	1	54
		Technical Journal				7	1	18	7	4	4	1	1		43
	BL11XU	QST Quantum Dynamics I		76	6	13	16	14	8	20	20	13	15	4	205
	BL12B2	NSRRC BM	2001.9	131	13	25	22	21	29	37	33	35	28	3	377
	BL12XU	NSRRC ID	2003.2	46	10	14	11	18	19	18	25	20	17	4	202
	BL14B1	QST Quantum Dynamics II		111	16	11	10	15	19	17	23	20	18	4	264
	BL15XU	WEBRAM	2001.4	148	51	41	61	57	48	63	57	49	37	7	619
	BL16B2	Sunbeam BM	1999.9	45	6	4	3	6	4	10	9	6	10	5	108
		Technical Journal		2		18	15	14	8	15	21	15	10	4	122
	BL16XU	Sunbeam ID	1999.9	38	2	2	2	3	4	11	9	9	17	5	102
		Technical Journal				20	19	14	14	21	18	12	8	6	132
	BL22XU	JAEA Actinide Science I		61	10	10	14	19	15	14	15	26	20	5	209
	BL23SU	JAEA Actinide Science II		153	22	20	17	28	19	26	16	23	22	5	351
	BL24XU	Hyogo Prefecture ID	1998.10	131	6	7	8	5	4	5	6	8	2		182
		Technical Journal				11	3	10	3	1	4			1	33
	BL28XU	RISING II	2012.4				3	9	5	5	5	4	7	1	39
	BL31LEP	Laser-Electron Photon II	2013.10					1		3	2	1	1	1	9
	BL32B2	Pharmaceutical Industry (2002.9 - 2012.3)		24	3				1						28
	BL33LEP	Laser-Electron Photon	2000.10	43	4	4	4	4	2	2	3	2			68
	BL33XU	Toyota	2009.5		3	5	2	8	4	10	16	6	9	5	68
		Technical Journal			2	5	4	5	3	4	1				24
	BL36XU	Catalytic Reaction Dynamics for Fuel Cell	2013.1				1	7	6	7	12	14	7	3	57
	BL44XU	Macromolecular Assemblies	2000.2	195	49	59	59	50	64	54	61	46	44	12	693
	Subtotal			1205	212	232	274	308	282	344	363	311	295	69	3895
	RIKEN Beamlines	BL17SU	Coherent Soft X-ray Spectroscopy		63	10	14	3	8	5	8	5		1	
BL19LXU		SR Physics		77	9	11	12	13	9	5	6	1	2		145
BL26B1		Structural Genomics I		151	7	8	7	4	5	4	4	1			191
BL26B2		Structural Genomics II		70	18	19	13	4	3	7	10	2	2		148
BL29XU		Coherent X-ray Optics		156	8	16	15	9	10	14	9	8	3	2	250
BL32XU		Targeted Proteins			2	9	8	8	7	13	4	3	1	1	56
BL43LXU		Quantum NanoDynamics					1		1	1					3
BL44B2		Materials Science		202	13	13	19	16	20	16	18	14	4		335
BL45XU		Structural Biology I		181	9	9	11	9	13	13	8	3		1	257
Subtotal			900	76	99	89	71	73	81	64	32	13	4	1502	

SACLA

Public Beamlines	Beamline Name		Public Use Since	~2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	2019	2020	Total
	BL1	SXFEL	2016.3										7	2	1
BL2/BL3	XFEL2/XFEL1	2012.3			1	13	28	37	47	42	33	43	9	253	

Hardware / Software R & D	451	37	56	67	13	33	45	53	44	21	5	825
---------------------------	-----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	---	-----

NET Sum Total	7003	961	930	1202	1101	1193	1284	1253	1086	1037	251	17301
Technical Journal	2	2	89	80	97	67	74	71	54	17	10	563

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 2020 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。

成果発表出版形式別登録数 (2020年3月31日現在)

SPring-8

Beamline Name		Public Use Since	Refereed Papers	Proceedings	Other Publications	Total	
Public Beamlines	BL01B1	XAFS	1997.10	1141	66	88	1295
	BL02B1	Single Crystal Structure Analysis	1997.10	442	14	31	487
	BL02B2	Powder Diffraction	1999.9	1224	41	83	1348
	BL04B1	High Temperature and High Pressure Research	1997.10	333	7	48	388
	BL04B2	High Energy X-ray Diffraction	1999.9	508	13	55	576
	BL08W	High Energy Inelastic Scattering	1997.10	275	10	48	333
	BL09XU	Nuclear Resonant Scattering	1997.10	264	15	34	313
	BL10XU	High Pressure Research	1997.10	546	22	61	629
	BL13XU	Surface and Interface Structure	2001.9	368	19	36	423
	BL14B2	Engineering Science Research II	2007.9	552	11	36	599
	BL19B2	Engineering Science Research I	2001.11	683	47	90	820
	BL20B2	Medical and Imaging I	1999.9	444	88	88	620
	BL20XU	Medical and Imaging II	2001.9	457	106	128	691
	BL25SU	Soft X-ray Spectroscopy of Solid	1998.4	495	15	61	571
	BL27SU	Soft X-ray Photochemistry	1998.5	545	21	38	604
	BL28B2	White Beam X-ray Diffraction	1999.9	257	16	23	296
	BL35XU	High Resolution Inelastic Scattering	2001.9	197	5	13	215
	BL37XU	Trace Element Analysis	2002.11	337	24	48	409
	BL38B1	Structural Biology III	2000.10	774	11	64	849
	BL39XU	Magnetic Materials	1997.10	379	17	79	475
	BL40B2	Structural Biology II	1999.9	841	15	117	973
	BL40XU	High Flux	2000.4	364	24	69	457
	BL41XU	Structural Biology I	1997.10	1107	4	97	1208
	BL43IR	Infrared Materials Science	2000.4	196	15	60	271
	BL46XU	Engineering Science Research III	2000.11	459	20	38	517
	BL47XU	HXPES・MCT	1997.10	508	93	127	728
Public Use at Other Beamlines	BL05XU	RIKEN Diagnosis Beamline I	2017.4	11			11
	BL11XU	QST Quantum Dynamics I	1999.3	13	2	2	17
	BL14B1	QST Quantum Dynamics II	1998.4	48	1	11	60
	BL15XU	WEBRAM	2002.9	35	19	7	61
	BL17SU	RIKEN Coherent Soft X-ray Spectroscopy	2005.9	66	1	29	96
	BL19LXU	RIKEN SR Physics	2002.9	22		3	25
	BL22XU	JAEA Actinide Science I	2004.9	6			6
	BL23SU	JAEA Actinide Science II	1998.6	53	4	15	72
	BL26B1	RIKEN Structural Genomics I	2009.4	109		8	117
	BL26B2	RIKEN Structural Genomics II	2009.4	59		10	69
	BL29XU	RIKEN Coherent X-ray Optics	2002.9	22		1	23
	BL32XU	RIKEN Targeted Proteins	2010.10	88		4	92
	BL44B2	RIKEN Materials Science	1998.5	31		3	34
	BL45XU	RIKEN Structural Biology I	1997.10	182	5	19	206
Subtotal			14441	771	1772	16984	

Beamline Name		Public Use Since	Refereed Papers	Proceedings	Other Publications	Total	
Contract Beamlines	BL03XU	Advanced Softmaterials	2009.11	382		14	396
	BL07LSU	The University-of-Tokyo Outstation Beamline for Materials Science	2009.11	122		11	133
	BL08B2	Hyogo Prefecture BM	2005. 9	97			97
	BL11XU	QST Quantum Dynamics I		205	8	37	250
	BL12B2	NSRRC BM	2001. 9	377	1	2	380
	BL12XU	NSRRC ID	2003. 2	202	7	5	214
	BL14B1	QST Quantum Dynamics II		264	12	69	345
	BL15XU	WEBRAM	2001. 4	619	14	53	686
	BL16B2	Sunbeam BM	1999. 9	230	12	69	311
	BL16XU	Sunbeam ID	1999. 9	234	8	55	297
	BL22XU	JAEA Actinide Science I		209	4	42	255
	BL23SU	JAEA Actinide Science II		351	45	108	504
	BL24XU	Hyogo Prefecture ID	1998.10	215	19	61	295
	BL28XU	RISING II	2012. 4	40			40
	BL31LEP	Laser-Electron Photon II	2013.10	9			9
	BL32B2	Pharmaceutical Industry (2002. 9 - 2012. 3)		28		3	31
	BL33LEP	Laser-Electron Photon	2000.10	68	23	3	94
	BL33XU	Toyota	2009. 5	92	5	27	124
	BL36XU	Catalytic Reaction Dynamics for Fuel Cell	2013. 1	57		3	60
	BL44XU	Macromolecular Assemblies	2000. 2	693		43	736
Subtotal			4494	158	605	5257	
RIKEN Beamlines	BL17SU	Coherent Soft X-ray Spectroscopy		117	4	13	134
	BL19LXU	SR Physics		145	8	27	180
	BL26B1	Structural Genomics I		191	2	19	212
	BL26B2	Structural Genomics II		148	1	13	162
	BL29XU	Coherent X-ray Optics		250	14	37	301
	BL32XU	Targeted Proteins		56		3	59
	BL43LXU	Quantum NanoDynamics		3			3
	BL44B2	Materials Science		335	2	16	353
	BL45XU	Structural Biology I		257	5	45	307
	Subtotal			1502	36	173	1711

SACLA

Public Beamlines	Beamline Name		Public Use Since	Refereed Papers	Proceedings	Other Publications	Total
	BL1	SXFEL	2016. 3	10			10
	BL2/BL3	XFEL2/XFEL1	2012. 3	253	4	14	271

Hardware / Software R & D	825	554	463	1842
---------------------------	-----	-----	-----	------

NET Sum Total	17864	1363	2332	21559
---------------	-------	------	------	-------

Refereed Papers : 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、公開技術報告書

Proceedings : 査読なしのプロシーディング

Other Publications : 発表形式が出版で、上記の二つに当てはまらないもの (総説、単行本、賞、その他として登録されたもの)

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等はそれぞれのビームラインでカウントした。

・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。

最近 SPring-8 もしくは SACLA から発表された成果リスト

公益財団法人高輝度光科学研究センター
利用推進部

SPring-8 もしくは SACLA において実施された研究課題等の成果が公表された場合は JASRI の成果登録データベースに登録していただくことになっており、その内容は以下の URL (SPring-8 論文データベース検索ページ) で検索できます。

http://www.spring8.or.jp/ja/science/publication_database/

このデータベースに登録された原著論文の内、2020 年 1 月～3 月に登録されたものを以下に紹介します。論文の情報 (主著者、巻、発行年、ページ、タイトル) に加え、データベースの登録番号 (研究成果番号) を掲載していますので、詳細は上記検索ページの検索結果画面でご覧いただくことができます。また実施された課題の情報 (課題番号、ビームライン、実験責任者名) も掲載しています。課題番号は最初の 4 文字が「year」、次の 1 文字が「term」、後ろの 4 文字が「proposal no.」となっていますので、この情報から以下の URL で公表している、各課題の英文利用報告書 (SPring-8 User Experiment Report) を探してご覧いただくことができます。

http://www.spring8.or.jp/ja/news_publications/publications/user_exp_report/

今後も利用者情報には発行月の 2 ヶ月前の月末締めで、前号掲載分以降に登録された論文情報を掲載していく予定です。なお、データベースは毎日更新されていますので、最新情報は SPring-8 論文データベース検索ページでご確認ください。なお、実験責任者の方には、成果が公表されましたら速やかに登録いただきますようお願いいたします。

SPring-8 研究成果登録データベースに 2020 年 1 月～3 月に登録された論文が掲載された主な雑誌と掲載論文数

掲載雑誌	登録論文数	掲載雑誌	登録論文数
Japanese Journal of Applied Physics	9	Chemistry of Materials	4
JPS Conference Proceedings	9	Inorganic Chemistry	4
Physical Review B	9	Journal of Alloys and Compounds	4
Nature Communications	7	Journal of Crystal Growth	4
ACS Applied Materials & Interfaces	6	Journal of the American Chemical Society	4
ACS Catalysis	5		

他全 142 誌、計 241 報

(注意) グループ課題として設定されている課題群については、その論文がグループ課題の中の複数の課題の成果である場合でも、代表課題となっている課題番号のみ表示しています。グループ課題に複数のビームラインの課題が含まれる場合、代表課題が複数のビームラインで実施されたように表示されています。

課題の成果として登録された論文

Japanese Journal of Applied Physics

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39312	Daichi Oka	59 (2020) 010601	2018A1220	BL39XU	岡 大地	Analyses on Atomic Arrangement in Dielectric ϵ -Ga ₂ O ₃ Epitaxial Thin Films
39395	Tomohiro Matsushita	59 (2020) 020502	2015A0116	BL25SU	林 好一	Data Processing for Atomic Resolution Holography
39430	Shota Noda	58 (2019) SLLA06	2015A0074	BL02B2	森吉 千佳子	Structural Fluctuation of Pb(Mg _{1/3} Nb _{2/3})O ₃ in the Cubic Phase
39431	Hiroo Tajiri	59 (2020) 020503	2015A1226	BL13XU	田尻 寛男	Progress in Surface X-ray Crystallography and the Phase Problem
			2015A2055	BL13XU	田尻 寛男	
			2015B1106	BL13XU	田尻 寛男	
			2016A1298	BL13XU	田尻 寛男	
			2016A1860	BL13XU	田尻 寛男	
			2016B1199	BL13XU	田尻 寛男	
			2016B1952	BL13XU	田尻 寛男	
2017A1345	BL13XU	田尻 寛男				
39507	Takanori Mimura	59 (2020) SGGB04	2017A4701	BL15XU	清水 荘雄	Thickness- and Orientation- Dependences of Curie Temperature in Ferroelectric Epitaxial Y Doped HfO ₂ Films
			2016B4701	BL15XU	舟窪 浩	
39531	Mina Sakuragi	59 (2020) 035002	2018B1424	BL40B2	櫻木 美菜	Effects of Structures of Microemulsions Containing a Deep Eutectic Solvent on the Entrapment amount and the Skin Permeation of Resveratrol
39551	Isaho Kamata	57 (2018) 090314	2017A3269	BL24XU	鎌田 功穂	X-ray Topographical Analysis of 4H-SiC Epitaxial Layers using a Forward-Transmitted Beam under a Multiple-Beam Diffraction Condition
			2017B3269	BL24XU	鎌田 功穂	
			2016B3321	BL08B2	鎌田 功穂	
			2018B3269	BL24XU	鎌田 功穂	
39606	Takashi Kunimoto	59 (2020) 035004	2016A1505	BL14B2	國本 崇	Joint Extended X-ray Absorption Fine Structure and Luminescence Study of Bulk and Nanocrystalline Eu ³⁺ and Bi ³⁺ Co-Doped YVO ₄ Phosphor
39673	Kazuki Shida	58 (2019) SCCB16	2017B1484	BL13XU	竹内 正太郎	Quantitative Analysis of Lattice Plane Microstructure in the Growth Direction of a Modified Na-Flux GaN Crystal using Nanobeam X-ray Diffraction

JPS Conference Proceedings-1

39498	Fuminori Honda	29 (2020) 013002	2016A1040	BL39XU	河村 直己	Magnetic and Electronic Properties of the Ternary Compound U ₂ T ₃ Si ₅ (T = Rh, Ir)
			2016B1150	BL39XU	河村 直己	
			2016B1188	BL39XU	広瀬 雄介	
39621	Keiichiro Imura	30 (2020) 011131	2015A4259	BL12XU	井村 敬一郎	Pressure and Temperature Evolution of Sm Mean-Valence in Golden SmS
			2015B4257	BL12XU	井村 敬一郎	
			2016B4259	BL12XU	井村 敬一郎	
39622	Shin Imada	30 (2020) 011079	2012B1535	BL25SU	今田 真	Electronic States of LaAuSb ₂ Studied by Soft X-Ray ARPES
39629	Masaaki Kobata	30 (2020) 011192	2018A3732	BL22XU	吉井 賢資	Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy Study of PtY ₃ Fe ₅ O ₁₂
			2018B3732	BL22XU	吉井 賢資	
			2019A3732	BL22XU	吉井 賢資	
39630	Kenshirou Iba	30 (2020) 011164	2018A3786	BL22XU	松村 武	Magnetic Structure of a Chiral Magnet DyNi ₃ Al ₉
39636	Ryohei Shimokasa	30 (2020) 011134	2017B1068	BL39XU	三村 功次郎	Electronic Structure of the Valence Transition System Eu(Rh _{1-x} T _x) ₂ Si ₂ (T = Co, Ir) Studied by High-Energy Resolution Fluorescence Detection X-Ray Absorption Spectroscopy
			2017B1974	BL39XU	河村 直己	
			2018A1053	BL39XU	三村 功次郎	
			2018A2060	BL39XU	河村 直己	
			2018B2091	BL39XU	河村 直己	
			2019A1399	BL39XU	三村 功次郎	
2019A1584	BL39XU	河村 直己				

JPS Conference Proceedings-2

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39662	Kazuhiro Maeda	30 (2020) 011137	2017A0071	BL09XU	三村 功次郎	Yb L ₃ Resonant Hard X-Ray Photoemission Spectroscopy of Valence Transition Compound YbInCu ₄
			2015A1355	BL47XU	水牧 仁一朗	
			2015B1999	BL39XU	水牧 仁一朗	
			2017A1068	BL35XU	水牧 仁一朗	
			2017B1223	BL39XU	佐藤 仁	
			2017B1447	BL09XU	佐藤 仁	
39663	Satoshi Tsutsui	30 (2020) 011115	2015A2036	BL35XU	筒井 智嗣	Rare-Earth Atomic Motion in RBe ₁₃ (R: La, Pr, Sm)
			2016A1840	BL35XU	筒井 智嗣	
			2018B1093	BL35XU	筒井 智嗣	
			2018B2038	BL35XU	筒井 智嗣	
			2018B2039	BL09XU	依田 芳卓	
			2019A1288	BL35XU	筒井 智嗣	
39664	Koji Kaneko	30 (2020) 011032	2013B1095	BL35XU	Goh Swee	Nature of Structural Instabilities in Superconducting Sr ₃ Ir ₄ Sn ₁₃
			2015B1294	BL35XU	Goh Swee	
			2016A1160	BL35XU	Goh Swee	
			2017A1130	BL35XU	Goh Swee	
			2017B1228	BL35XU	Goh Swee	
			2018A1399	BL35XU	Goh Swee	

Physical Review B

39284	Koji Kimura	101 (2020) 024302	2017B1531	BL35XU	木村 耕治	Local Structure and Atomic Dynamics in Fe ₂ VAl Heusler-Type Thermoelectric Material: The Effect of Heavy Element Doping
			2016A1097	BL35XU	木村 耕治	
			2016A1348	BL13XU	木村 耕治	
			2018A1400	BL35XU	木村 耕治	
			2018A1461	BL13XU	木村 耕治	
			2018A1763	BL35XU	木村 耕治	
			2018B1540	BL13XU	木村 耕治	
			2016B0908	BL01B1	若林 裕助	
39324	Yoichi Ishiwata	101 (2020) 035145	2017A1492	BL01B1	山添 誠司	Corundum Insulating Phases in Highly Ti-doped V ₂ O ₃ Nanocrystals
			2014B4135	BL12B2	石渡 洋一	
			2013B4253	BL12XU	石渡 洋一	
			2014A4259	BL12XU	石渡 洋一	
			2014B4144	BL12B2	石渡 洋一	
			2014B4255	BL12XU	石渡 洋一	
			2015A4142	BL12B2	石渡 洋一	
			2015A4250	BL12XU	石渡 洋一	
			2015A4261	BL12XU	石渡 洋一	
			2015B4136	BL12B2	石渡 洋一	
			2015B4254	BL12XU	石渡 洋一	
			2016A4138	BL12B2	石渡 洋一	
			2016A4250	BL12XU	石渡 洋一	
2016A4260	BL12XU	石渡 洋一				
2016B4257	BL12XU	石渡 洋一				
39393	Blair Lebert	101 (2020) 020506(R)	2015B1720	BL35XU	Lebert Blair	Doping-Induced In-Plane Anisotropy of Bond-Stretching Phonon Softening in Oxychloride Ca _{2-x} CuO ₂ Cl ₂ Compounds
39487	Amol Singh	98 (2018) 235136	2017A4258	BL12XU	Chainani Ashish	Electronic Structure Investigation of a Charge Density Wave Coupled to a Metal-to-Metal Transition in Ce ₃ Co ₄ Sn ₁₃
39490	Shinobu Aoyagi	101 (2020) 064104	2013A0100	BL02B1	青柳 忍	Rotational Intersite Displacement of Disordered Lead Atoms in a Relaxor Ferroelectric during Piezoelectric Lattice Straining and Ferroelectric Domain Switching
			2016A1328	BL02B1	青柳 忍	
			2017B1976	BL02B1	大沢 仁志	
			2019B1470	BL02B1	青柳 忍	
39506	Yujun Zhang	101 (2020) 085134	2018B1449	BL47XU	Zhang Yujun	Photoemission and Dynamical Mean Field Theory Study of Electronic Correlations in a f _{5g} Metal SrRhO ₃ Thin Film
39528	Keita Ito	101 (2020) 104401	2013B3880	BL23SU	木村 昭夫	Manipulation of Saturation Magnetization and Perpendicular Magnetic Anisotropy in Epitaxial Co _x Mn _{4-x} N Films with Ferrimagnetic Compensation
39530	Aleksandra Krajewska	101 (2020) 121101(R)	2016B3552	BL11XU	石井 賢司	Almost Pure J _{eff} = 1/2 Mott State of In ₂ Ir ₂ O ₇ in the Limit of Reduced Intersite Hopping
39665	Junichi Shiogai	101 (2020) 125125	2016A0073	BL43IR	佐々木 孝彦	Signature of Band Inversion in the Perovskite Thin-Film Alloys BaSn _{1-x} Pb _x O ₃

Scientific Reports

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39407	Nobuyuki Tatemizo	10 (2020) 1819	2019A1266	BL27SU	今田 早紀	Electronic Structure of AlFeN Films Exhibiting Crystallographic Orientation Change from <i>c</i> - to <i>a</i> -axis with Fe Concentrations and Annealing Effect
			2019B1175	BL27SU	今田 早紀	
			2018A1103	BL27SU	今田 早紀	
			2019A1669	BL01B1	立溝 信之	
			2017B1704	BL27SU	立溝 信之	
			2018A1648	BL27SU	立溝 信之	
39424	Shigeaki Ono	10 (2020) 1393	2019A1099	BL10XU	小野 重明	Fate of Subducted Argon in the Deep Mantle
39426	Masayoshi Imanishi	7 (2017) 5141	2013B1588	BL19B2	齋藤 健一	Uniaxial Orientation of P3HT Film Prepared by Soft Friction Transfer Method
			2014B1629	BL19B2	齋藤 健一	
39433	Michihiro Sugahara	10 (2020) 1371	2017A8042	BL3	菅原 道泰	Viscosity-Adjustable Grease Matrices for Serial Nanocrystallography
			2017B8079	BL2	菅原 道泰	
39435	Edgar Ferrer-González	9 (2019) 20092	2017A6748	BL44XU	松村 浩由	Structure-Guided Design of a Fluorescent Probe for the Visualization of FtsZ in Clinically Important Gram-Positive and Gram-Negative Bacterial Pathogens
			2017A2570	BL38B1	松村 浩由	
			2017B6748	BL44XU	松村 浩由	
			2018A2719	BL32XU	吉澤 拓也	
39457	Masanori Miyagi	8 (2018) 12944	2014A3782	BL22XU	川人 洋介	Effect of Alloy Element on Weld Pool Dynamics in Laser Welding of Aluminum Alloys
			2014B3781	BL22XU	川人 洋介	
39462	Daiki Otsuki	10 (2020) 1541	2017A1406	BL47XU	吉田 鉄平	Thickness-Induced Metal to Insulator Transition in Ru Nanosheets Probed by Photoemission Spectroscopy: Effects of Disorder and Coulomb Interaction
			2015B1462	BL47XU	吉田 鉄平	
39617	Teruya Nakamura	10 (2020) 5152	2012A6751	BL44XU	山縣 ゆり子	Structural Analysis of TIFA: Insight into TIFA-Dependent Signal Transduction in Innate Immunity
			2012B6751	BL44XU	山縣 ゆり子	
			2012B6735	BL44XU	中村 照也	
			2014A6957	BL44XU	山縣 ゆり子	
			2017B6762	BL44XU	山縣 ゆり子	
39632	Kengo Kitadokoro	10 (2020) 5469	2016A6615	BL44XU	北所 健悟	Crystal Structure of Pathogenic <i>Staphylococcus aureus</i> Lipase Complex with the Anti-Obesity Drug Orlistat
			2016B6615	BL44XU	北所 健悟	
			2017A6716	BL44XU	北所 健悟	
			2017B6716	BL44XU	北所 健悟	
			2018A6813	BL44XU	北所 健悟	
			2018B6813	BL44XU	北所 健悟	
2019A6912	BL44XU	北所 健悟				

Nature Communications

39262	Masahiko Furutani	11 (2020) 76	2016A2519	BL41XU	平野 良憲	Polar Recruitment of RLD by LAZY1-like Protein during Gravity Signaling in Root Branch Angle Control
			2017A2552	BL41XU	平野 良憲	
			2018A2503	BL41XU	森 智行	
			2018A2540	BL41XU	平野 良憲	
39397	Longjian Xie	11 (2020) 548	2015A1771	BL04B1	Xie Longjian	Formation of Bridgmanite-Enriched Layer at the Top Lower-Mantle during Magma Ocean Solidification
			2016A1651	BL04B1	Xie Longjian	
			2016B1686	BL04B1	Xie Longjian	
			2017B1686	BL04B1	Xie Longjian	
			2018A1637	BL04B1	Xie Longjian	
39415	Maiko Wakita	11 (2020) 649	2019A2545	BL41XU	山形 敦史	Structural Insights into Selective Interaction between Type IIa Receptor Protein Tyrosine Phosphatases and Liprin- α
39492	Kohsuke Mori	10 (2019) 4094	2018B1082	BL01B1	森 浩亮	Controlled Release of Hydrogen Isotope Compounds and Tunneling Effect in the Heterogeneously-Catalyzed Formic Acid Dehydrogenation
			2018A1144	BL01B1	森 浩亮	
39587	Tomohisa Sawada	10 (2019) 5687	2015A0120	BL38B1	藤田 誠	A Metal-Peptide Capsule by Multiple Ring Threading
39601	Ken-ichi Otake	11 (2020) 843	2016A1343	BL02B2	大坪 主弥	Confined Water-Mediated High Proton Conduction in Hydrophobic Channel of a Synthetic Nanotube
			2016A1361	BL02B1	北川 宏	
			2016B1438	BL02B1	北川 宏	
			2017A1349	BL02B2	大坪 主弥	
			2017A1366	BL02B1	北川 宏	
			2017B1483	BL02B1	北川 宏	
39650	Luyu Fan	11 (2020) 1074	2019B2715	BL41XU	Wang Sheng	Haloperidol Bound D ₂ Dopamine Receptor Structure Inspired the Discovery of Subtype Selective Ligands

ACS Applied Materials & Interfaces

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39313	Takushin Cyou	12 (2020) 6056-6063	2018B3634	BL14B1	吉川 浩史	Zeolitic Vanadomolybdates as High-Performance Cathode-Active Materials for Sodium-Ion Batteries
			2019A3634	BL14B1	吉川 浩史	
			2018A3634	BL14B1	吉川 浩史	
39402	Zuocheng Cai	12 (2020) 5847-5856	2019B1830	BL14B2	八木 俊介	ZIF-Derived Co _{9.5} Ni _{0.5} S ₈ Nanoparticles Immobilized on N-Doped Carbons as Efficient Catalysts for High-Performance Zinc-Air Batteries
39443	Shinobu Takao	12 (2020) 2299-2312	2016A7804	BL36XU	岩澤 康裕	Visualization Analysis of Pt and Co Species in Degraded Pt ₃ Co/C Electrocatalyst Layers of a Polymer Electrolyte Fuel Cell Using a Same-View Nano-XAFS/STEM-EDS Combination Technique
			2016B7804	BL36XU	岩澤 康裕	
			2017A7804	BL36XU	岩澤 康裕	
			2017A7807	BL36XU	岩澤 康裕	
			2018A7804	BL36XU	岩澤 康裕	
			2018B7804	BL36XU	岩澤 康裕	
			2019A7804	BL36XU	岩澤 康裕	
2017B7804	BL36XU	岩澤 康裕				
39471	Shogo Hatayama	11 (2019) 43320-43329	2018A1243	BL47XU	須藤 祐司	Cr-Triggered Local Structural Change in Cr ₂ Ge ₂ Te ₆ Phase Change Material
39494	Takeharu Yoshii	11 (2019) 37708-37719	2018B1185	BL01B1	桑原 泰隆	Engineering of Surface Environment of Pd Nanoparticle Catalysts on Carbon Support with Pyrene-Thiol Ligands for Semihydrogenation of Alkynes
			2018B1082	BL01B1	森 浩亮	
39514	Keitaro Yamada	12 (2020) 9489-9497	2019A1823	BL19B2	山田 啓太郎	High Vertical Carrier Mobilities of Organic Semiconductors Due to a Deposited Laid-Down Herringbone Structure Induced by a Reduced Graphene Oxide Template

ACS Catalysis

39447	Takashi Toyao	9 (2019) 8187-8196	2018B1126	BL01B1	鳥屋尾 隆	Heterogeneous Pt and MoO _x Co-Loaded TiO ₂ Catalysts for Low-Temperature CO ₂ Hydrogenation To Form CH ₃ OH
39449	Yuan Jing	10 (2020) 1010-1023	2018A1757	BL14B2	鳥屋尾 隆	Promotional Effect of La in the Three-Way Catalysis of La-Loaded Al ₂ O ₃ -Supported Pd Catalysts (Pd/La/Al ₂ O ₃)
			2018B1768	BL14B2	鳥屋尾 隆	
39452	Yusuke Inomata	9 (2019) 9327-9331	2018B1768	BL14B2	鳥屋尾 隆	Bulk Vanadium Oxide versus Conventional V ₂ O ₅ /TiO ₂ : NH ₃ -SCR Catalysts Working at a Low Temperature Below 150 °C
39453	Fei Han	9 (2019) 10398-10408	2019A1614	BL14B2	鳥屋尾 隆	Formation of Highly Active Superoxide Sites on CuO Nanoclusters Encapsulated in SAPO-34 for Catalytic Ammonia Oxidation
39508	Kazuki Tamai	10 (2020) 2528-2537	2018A1683	BL28B2	玉井 和樹	Dynamics of the lattice Oxygen in a Ruddlesden-Popper-Type Sr ₃ Fe ₁ O _{7-δ} Catalyst during NO Oxidation
			2018A1363	BL28B2	加藤 和男	
			2017B1989	BL28B2	加藤 和男	
			2017A1876	BL28B2	加藤 和男	
			2018B1709	BL28B2	玉井 和樹	

Chemistry of Materials

39325	Kentaro Yamamoto	32 (2020) 139-147	2018A1274	BL01B1	山本 健太郎	Charge Compensation Mechanism of Lithium-Excess Metal Oxides with Different Covalent and Ionic Characters Revealed by <i>Operando</i> Soft and Hard X-ray Absorption Spectroscopy
			2018A1276	BL27SU	山本 健太郎	
			2018A1776	BL14B2	山本 健太郎	
			2017A1024	BL27SU	内本 喜晴	
			2017A1026	BL02B2	内本 喜晴	
			2017A1032	BL01B1	内本 喜晴	
			2016B1023	BL27SU	内本 喜晴	
			2016B1835	BL19B2	内本 喜晴	
39432	Hiroki Ubukata	31 (2019) 7360-7366	2017A1118	BL02B2	Kageyama Hiroshi	Hydride Conductivity in an Anion-Ordered Fluorite Structure LnHO with an Enlarged Bottleneck
39519	Yuki Orikasa	32 (2020) 1011-1021	2015B1809	BL01B1	折笠 有基	Noncrystalline Nanocomposites as a Remedy for the Low Diffusivity of Multivalent Ions in Battery Cathodes
			2016A1769	BL14B2	折笠 有基	
			2016B1515	BL01B1	折笠 有基	
			2016B1522	BL02B2	折笠 有基	
			2017B1493	BL01B1	折笠 有基	
			2018A1355	BL01B1	折笠 有基	
			2018B1429	BL01B1	折笠 有基	
			2019A1264	BL01B1	折笠 有基	
			2019A1274	BL04B2	折笠 有基	
			2019B1401	BL04B2	折笠 有基	
39638	Tomoya Fujiwara	32 (2020) 1439-1447	2015A0116	BL13XU	林 好一	Single-Crystal Model of Highly Efficient Water-Splitting Photocatalysts: A KYaO ₃ Wafer Doped with Calcium Cations
			2016B1107	BL13XU	大西 洋	
			2017A1079	BL13XU	大西 洋	

Inorganic Chemistry

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39406	Hayato Ishizaki	58 (2019) 16059-16064	2017B1697	BL02B2	山本 孟	Robust Giant Tetragonal Distortion Coupled with High-Spin Co^{3+} in Electron-Doped BiCoO_3
			2018A1630	BL02B2	駒場 慎一	
			2018A1642	BL02B2	尾形 昂洋	
			2018B2098	BL02B2	河口 彰吾	
			2019A1688	BL02B2	西久保 匠	
39421	Masato Goto	59 (2020) 2024-2029	2019A1265	BL02B2	後藤 真人	Successive and Site-Selective Oxygen Release from B-Site-Layer-Ordered Double Perovskite $\text{Ca}_2\text{FeMnO}_6$ with Unusually High Valence Fe^{4+}
			2018B1313	BL02B2	後藤 真人	
39533	Kohta Asano	59 (2020) 2758-2764	2015A3703	BL22XU	町田 晃彦	Metallurgical Synthesis of $\text{Mg}_2\text{Fe}_{1-x}\text{Si}_x$ Hydride: Destabilization of Mg_2FeH_6 Nanostructured in Templated Mg_2Si
			2015A3784	BL22XU	Kim Hyunjeong	
			2017A3751	BL22XU	町田 晃彦	
			2017A3784	BL22XU	Kim Hyunjeong	
39577	Tomohito Sudare	58 (2019) 15710-15719	2019A1606	BL02B2	田中 秀樹	Highly Crystalline Ni-Co Layered Double Hydroxide Fabricated via Topochemical Transformation with a High Adsorption Capacity for Nitrate Ions

Journal of Alloys and Compounds

39394	Farid Labib	822 (2020) 153541	2018A4907	BL15XU	藤田 伸尚	Icosahedral Quasicrystals and Their Cubic Approximants in the Cd-Mg-RE (RE = Y, Sm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm) Systems
39607	Naoki Fukumoto	825 (2020) 153830	2017B3651	BL14B1	齋藤 寛之	Superstoichiometric Hydride $\text{PdH}_{x \leq 2}$ Formed by Electrochemical Synthesis: Dissolution as Molecular H_2 Proposed
39610	Yasutaka Shiota	829 (2020) 154478	2019B5400	BL16B2	米山 明男	Improvement of Thermoelectric Property in Ce Filled $\text{Fe}_3\text{Co}_1\text{Sb}_{12}$ by Sn Addition
39661	Alpa Dashora	824 (2020) 153883	2017B0921	BL08W	壬生 攻	Study of Magnetism in Fe Doped CoCr_2O_4 using Magnetic Compton Scattering and First-Principles Computations
			2015B0901	BL08W	千葉 大地	

Journal of Crystal Growth

39391	Jumpei Yamada	534 (2020) 125493	2016A1003	BL13XU	若林 裕助	Precipitation of Multilayer Graphene Directly on Gallium Nitride Template using Tungsten Capping Layer
			2017B3584	BL11XU	成塚 重弥	
			2018A3588	BL11XU	成塚 重弥	
			2018B3588	BL11XU	成塚 重弥	
			2019A3589	BL11XU	成塚 重弥	
39434	Hironobu Machida	533 (2020) 125476	2017B1027	BL40B2	町田 博宣	Calorimetric and Small-Angle X-ray Scattering Studies on the Memory Effect in the Tetra- <i>n</i> -butylammonium Bromide Semiclathrate Hydrate System
39554	Yuichiro Tokuda	468 (2017) 889-893	2016B3321	BL08B2	鎌田 功穂	Observation of Double Shockley Stacking Fault Expansion in Heavily-Nitrogen-Doped 4H-SiC using PL Technique
			2016A3321	BL08B2	鎌田 功穂	
			2015B3321	BL08B2	鎌田 功穂	
			2015A3321	BL08B2	鎌田 功穂	
39555	Norihiro Hoshino	478 (2017) 9-16	2016B3321	BL08B2	鎌田 功穂	Fast Growth of n-type 4H-SiC Bulk Crystal by Gas-Source Method
			2016A3321	BL08B2	鎌田 功穂	
			2015B3321	BL08B2	鎌田 功穂	

Journal of the American Chemical Society

39318	Yoshinobu Kamakura	142 (2020) 27-32	2019A1668	BL02B1	鎌倉 吉伸	Semiconductive Nature of Lead-Based Metal-Organic Frameworks with Three-Dimensionally Extended Sulfur Secondary Building Units
39489	Tomohiro Sugahara	141 (2019) 2263-2267	2018B1668	BL02B1	菅原 知紘	Reversible Isomerizations between 1,4-Digermabenzene and 1,4-Digermadewar-benzenes: Air-Stable Activators for Small Molecules
39570	Yumi Yakiyama	141 (2019) 18099-18103	2016B1479	BL02B1	焼山 佑美	Formation of a Large Confined Spherical Space with a Small Aperture Using Flexible Hexasubstituted Sumanene
			2018A1510	BL02B1	焼山 佑美	
			2018A1405	BL40XU	箕浦 真生	
39602	Marvin K. Sarango-Ramirez	142 (2020) 6861-6865	2018B1138	BL02B2	大坪 主弥	Superprotonic Conductivity in Metal-Organic Framework via Solvent-Free Coordinative Urea Insertion

ACS Applied Energy Materials

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39414	Junya Ohyama	3 (2020) 1854-1859	2018B1547	BL01B1	大山 順也	Removal of Surface Poisoning Improves Hydrogen Oxidation Performance of Pt Catalysts under Basic Conditions
39425	Ken-ichi Saitow	1 (2018) 6881-6889	2016B1575	BL19B2	齋藤 健一	Ultrapure Films of Polythiophene Derivatives are Born on a Substrate by Liquid Flow
			2015B1630	BL19B2	齋藤 健一	
			2014B1629	BL19B2	齋藤 健一	
			2013B1588	BL19B2	齋藤 健一	
39455	Eun Jeong Kim	3 (2020) 184-191	2019B1604	BL27SU	Duda Laurent	Oxygen Redox Activity through a Reductive Coupling Mechanism in the P3-Type Nickel-Doped Sodium Manganese Oxide
			2019A1459	BL27SU	Duda Laurent	

Analytical Sciences

39390	Jens Rüdiger Stellhorn	36 (2020) 5-16	2014A1624	BL13XU	Stellhorn Jens	Local- and Intermediate-Range Structures on Ordinary and Exotic Phase-Change Materials by Anomalous X-ray Scattering
			2014B1733	BL13XU	Stellhorn Jens	
39419	Kehsuan Wang	36 (2020) 27-34	2019A1386	BL01B1	吉田 真明	Iron Oxyhydroxide Hierarchical Micro/Nanostructured Film as Catalyst for Electrochemical Oxygen Evolution Reaction
			2017B1082	BL01B1	吉田 真明	
39420	Kanta Yamada	36 (2020) 35-40	2019A1386	BL01B1	吉田 真明	Improvement in Cobalt Phosphate Electrocatalyst Activity toward Oxygen Evolution from Water by Glycine Molecule Addition and Functional Details
			2017B1082	BL01B1	吉田 真明	

Dalton Transactions

39417	Christian A. Juillierat	49 (2020) 1997-2003	2019A4501	BL15XU	辻本 吉廣	Fluorination and Reduction of CaCrO ₃ by Topochemical Methods
39422	Satoshi Abe	48 (2019) 9759-9764	2016B2718	BL26B1	安部 聡	Coordination Design of Cadmium Ions at the 4-fold Axis Channel of the Apo-Ferritin Cage
			2018A2525	BL41XU	安部 聡	
39611	Sasikam Hanprasit	49 (2020) 3503-3509	2018A1502	BL02B1	小島 達弘	Homoleptic <i>versus</i> Heteroleptic Trinuclear Systems with Mixed L-cysteinate and D-penicillamate Regulated by a Diphosphine Linker
			2018B1296	BL02B2	吉成 信人	
			2019A1279	BL02B2	吉成 信人	
			2019B1107	BL02B2	吉成 信人	

Materials Science Forum

39552	Naohiro Sugiyama	924 (2018) 160	2017A3321	BL08B2	鎌田 功穂	Immobilization Phenomenon of Partials Surrounding Double Shockley Stacking Faults in Heavily Nitrogen Doped 4H-SiC Crystal with Thermal Anneal
			2016B3321	BL08B2	鎌田 功穂	
			2017B3321	BL08B2	鎌田 功穂	
39553	Isaho Kamata	924 (2018) 180	2016B3321	BL08B2	鎌田 功穂	X-Ray Topography Analysis of 4H-SiC Crystals Grown by the High-Temperature Gas Source Method
			2017A3321	BL08B2	鎌田 功穂	
			2017B3321	BL08B2	鎌田 功穂	
39556	Isaho Kamata	858 (2016) 61	2018A3321	BL08B2	鎌田 功穂	Doping Fluctuation and Defect Formation in Fast 4H-SiC Crystal Growth Using a High-Temperature Gas Source Method
			2015B3321	BL08B2	鎌田 功穂	
			2015A3321	BL08B2	鎌田 功穂	
			2014B3321	BL08B2	鎌田 功穂	
			2014A3321	BL08B2	土田 秀一	

Acta Crystallographica Section D-1

39460	Masato Yoshimura	76 (2020) 147-154	2015A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	Noncrystallographic Symmetry-Constrained Map Obtained by Direct Density Optimization
			2015A4000	BL12B2	Chen Chun Jung	
			2015B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2015B4004	BL12B2	Chen Chun Jung	
			2015B4010	BL12B2	Chen Chun Jung	
			2016A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2016A6659	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2016A4012	BL12B2	Chen Chun Jung	
			2016B4000	BL12B2	Chen Chun Jung	
			2017A4000	BL12B2	Chen Chun Jung	
			2017A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2017B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2018A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2018A6864	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2018B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2018B6864	BL44XU	Chen Chun Jung	

Acta Crystallographica Section D-2

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39476	Hironori Murakami	76 (2020) 155-165	2017A1871	BL41XU	水野 伸宏	Development of SPACE-II for Rapid Sample Exchange at SPring-8 Macromolecular Crystallography Beamlines
			2017A2522	BL41XU	長谷川 和也	
			2017B1012	BL41XU	山本 雅貴	
			2017B1990	BL41XU	水野 伸宏	
			2018A1003	BL41XU	山本 雅貴	
			2018A2075	BL41XU	水野 伸宏	
			2018A2554	BL41XU	長谷川 和也	
			2018B1011	BL41XU	山本 雅貴	
			2018B2089	BL41XU	長谷川 和也	
			2018B2090	BL41XU	水野 伸宏	
			2019A1005	BL41XU	山本 雅貴	
2019A2055	BL41XU	長谷川 和也				
2019A2072	BL41XU	水野 伸宏				

Acta Crystallographica Section F

39548	Kazuya Nishio	76 (2020) 109-115	2018A6849	BL44XU	水島 恒裕	Structural and Biochemical Characterization of Mitochondrial Citrate Synthase 4 from <i>Arabidopsis thaliana</i>
			2018B6849	BL44XU	水島 恒裕	
			2019A6949	BL44XU	水島 恒裕	
39584	Kosuke Oshima	74 (2018) 57-64	2016A2549	BL26B1	中島 崇	Crystal Structures of the Archaeal RNase P Protein Rpp38 in Complex with RNA Fragments Containing a K-turn Motif

Applied Surface Science

39456	Yuji Sato	480 (2019) 861-867	2016B3721	BL22XU	菅浦 敬久	In situ X-ray Observations of Pure-Copper Layer Formation with Blue Direct Diode Lasers
			2017A3721	BL22XU	菅浦 敬久	
39463	Yugo Kubo	513 (2020) 145708	2016B1845	BL46XU	久保 優吾	Process-Dependent Effects of Water on the Chemistry of Aluminum Oxide and Aromatic Polyimide Interface in Composite Materials
			2016B5030	BL16XU	久保 優吾	

Bulletin of the Chemical Society of Japan

39409	Fumiaki Suzuki	93 (2020) 249-251	2019B1774	BL02B1	鈴木 文陽	Synthesis, Structure, and Reactivity of a Thermally Stable Dialkylgermylene
			2019B1578	BL02B1	行本 万里子	
			2019A1677	BL02B1	鈴木 文陽	
			2019A1057	BL02B1	笹森 貴裕	
			2018B1275	BL40XU	箕浦 真生	
			2018B1084	BL40XU	笹森 貴裕	
			2018A1405	BL40XU	箕浦 真生	
			2018A1167	BL40XU	笹森 貴裕	
			2017B1726	BL40XU	行本 万里子	
			2017B1709	BL02B1	鈴木 文陽	
			2017A1668	BL40XU	行本 万里子	
39516	Masakuni Takahashi	93 (2020) 37-42	2016A1021	BL37XU	今井 英人	Observation of Subsurface Structure of Pt/C Catalyst Using Pair Distribution Function and Simple Modeling Techniques
			2016A1022	BL04B2	今井 英人	
			2016A1024	BL01B1	今井 英人	
			2016B1010	BL04B2	今井 英人	
			2016B1835	BL19B2	内本 喜晴	
			2017A1017	BL04B2	今井 英人	
			2017B1041	BL08W	今井 英人	
			2018A1018	BL04B2	今井 英人	
2018B1027	BL04B2	内本 喜晴				

Chemical Communications

39341	Takuo Wakisaka	56 (2020) 372-374	2017B1257	BL02B2	北川 宏	Discovery of Face-Centred Cubic Os Nanoparticles
			2018A1215	BL02B2	北川 宏	
			2019A4907	BL15XU	草田 康平	
39479	Kazuhiko Mukai	56 (2020) 1701-1704	2019A7037	BL33XU	宇山 健	In situ X-ray Raman Spectroscopy and Magnetic Susceptibility Study on the Li[L _{0.15} Mn _{1.85}]O ₄ Oxygen Anion Redox Reaction

Chemical Science

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39450	Feilong Xing	10 (2019) 8292-8298	2018A1757	BL14B2	鳥屋尾 隆	A Cu-Pd Single-Atom Alloy Catalyst for Highly Efficient NO Reduction
39560	Tomokazu Umeyama	11 (2020) 3250-3257	2019A1824	BL46XU	石田 圭一	Efficient Light-Harvesting, Energy Migration, and Charge Transfer by Nanographene-Based Nonfullerene Small-Molecule Acceptors Exhibiting Unusually Long Excited-State Lifetime in the Film State

Chemistry - A European Journal

39306	Dirk Schlüter	26 (2020) 1335-1343	2017A1233	BL02B1	Grabowsky Simon	Non-Oxido-Vanadium(IV) Metalloradical Complexes with Bidentate 1,2-Dithienylethene Ligands: Observation of Reversible Cyclization of the Ligand Scaffold in Solution
39534	Kento Imanishi	26 (2020) 1827-1833	2017A1037	BL02B1	今野 巧	A 116-Nuclear Metallosupramolecular Cage-of-Cage Showing Multistep Single-Crystal-to-Single-Crystal Transformation
			2018A1502	BL02B1	小島 達弘	
			2018B1296	BL02B2	吉成 信人	

Communications Chemistry

39454	Charifa Hakim	3 (2020) 9	2019A1459	BL27SU	Duda Laurent	Understanding the Redox Process upon Electrochemical Cycling of the P2-Na _{0.78} Co _{1/2} Mn _{1/3} Ni _{1/6} O ₂ Electrode Material for Sodium-Ion Batteries
39604	Izumi Iwakura	3 (2020) 35	2014B1284	BL41XU	岩倉 いずみ	Formation of Thioglucoside Single Crystals by Coherent Molecular Vibrational Excitation using a 10-fs Laser Pulse
			2015A1342	BL41XU	岩倉 いずみ	
			2017A1139	BL41XU	岩倉 いずみ	

The FEBS Journal

39445	Yasuyuki Matoba	(2019) Online published 3 Dec. 2019	2014B1081	BL38B1	的場 康幸	Cyclization Mechanism Catalyzed by an ATP-grasp Enzyme Essential for d-cycloserine Biosynthesis
			2014A1077	BL38B1	的場 康幸	
39599	Ryosuke Nakamura	287 (2020) 1138-1154	2015B1027	BL26B2	藤城 貴史	Snapshots of PLP-substrate and PLP-product External Aldimines as Intermediates in Two Types of Cysteine Desulfurase Enzymes
			2015B1027	BL26B1	藤城 貴史	
			2015B1027	BL38B1	藤城 貴史	
			2016B2704	BL26B1	藤城 貴史	
			2017B2705	BL26B1	藤城 貴史	

ISIJ International

39439	Masanori Suzuki	60 (2020) Online publication Feb. 7, 2020	2017B1299	BL04B2	鈴木 賢紀	In-situ Phase Identification of Crystallized Compound from 2CaO-SiO ₂ -3CaO-P ₂ O ₅ Liquid
			2018B1140	BL08W	鈴木 賢紀	
			2019A1444	BL08W	鈴木 賢紀	
39484	Yusuke Kobayashi	60 (2020) 276-285	2017B1581	BL20B2	小林 祐介	In-situ Measurements of Solute Partition Coefficients between Solid and Liquid Phases in Fe-Cr-Ni-Mo-Cu Alloys during Solidification
			2018A1586	BL20B2	小林 祐介	

IUCrJ

39537	Andrii Ishchenko	6 (2019) 1106-1119	2015A8025	BL3	Coulton James	Toward G Protein-Coupled Receptor Structure-Based Drug Design using X-ray Lasers
39653	Alexander M. Wolff	7 (2020) 306-323	2017B8055	BL2	Thompson Michael	Comparing Serial X-ray Crystallography and Microcrystal Electron Diffraction (MicroED) as Methods for Routine Structure Determination from Small Macromolecular Crystals

Journal of Materials Chemistry A

39444	Xiao Zhao	8 (2020) 1368-1377	2019B7800	BL36XU	岩澤 康裕	Evidence for Interfacial Geometric Interactions at Metal-Support Interfaces and Their Influence on the Electroactivity and Stability of Pt Nanoparticles
			2019A7800	BL36XU	岩澤 康裕	
			2018B7800	BL36XU	岩澤 康裕	
			2018A7806	BL36XU	岩澤 康裕	
39603	Guoxiang Yang	8 (2020) 4437-4446	2018A1089	BL01B1	桑原 泰隆	PdAg Nanoparticles and Aminopolymer Confined within Mesoporous Hollow Carbon Spheres as an Efficient Catalyst for Hydrogenation of CO ₂ to Formate
			2019A1050	BL01B1	桑原 泰隆	

The Journal of Physical Chemistry C

39316	Kazushige Ueda	124 (2020) 854-860	2018B1573	BL14B2	植田 和茂	Site Dependence of Tb ³⁺ Luminescence in Double Perovskite-Type Alkaline Earth Lanthanum Tantalates
			2017B1576	BL14B2	植田 和茂	
39427	Toshiki Sakata	123 (2019) 20130-20135	2016B1575	BL19B2	齋藤 健一	Performance of Si/PEDOT:PSS Solar Cell Controlled by Dipole Moment of Additives
			2015B1630	BL19B2	齋藤 健一	

Journal of Synchrotron Radiation

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39260	Yoshimitsu Fukuyama	27 (2020) 67-74	2016A1364	BL40XU	福山 祥光	X-ray Diffraction Measurement of a Single Nanometre-Sized Particle Levitated in Air by an Optical-Trap Sample Holder
			2017A1397	BL40XU	福山 祥光	
			2017B1480	BL40XU	福山 祥光	
			2018B1316	BL40XU	福山 祥光	
			2014B1373	BL40XU	福山 祥光	
2015B1381	BL40XU	福山 祥光				
39416	Kaye Susannah Morgan	27 (2020) 164-175	2014A1376	BL20XU	Donnelley Martin	Methods for Dynamic Synchrotron X-ray Respiratory Imaging in Live Animals
			2014A1404	BL20XU	Morgan Kaye	
			2014B1217	BL20XU	Donnelley Martin	
			2014B1414	BL20XU	Morgan Kaye	
			2015A1325	BL20XU	Donnelley Martin	
			2015B1109	BL20XU	Donnelley Martin	
			2015B1515	BL20XU	Morgan Kaye	
			2016A1472	BL20XU	Donnelley Martin	
			2016A1374	BL20XU	Morgan Kaye	
			2016B1345	BL20XU	Donnelley Martin	
			2016B1502	BL20XU	Morgan Kaye	
			2017A1301	BL20XU	Donnelley Martin	
2017B1386	BL20XU	Donnelley Martin				
2018A1511	BL20XU	Donnelley Martin				

Journal of the Ceramic Society of Japan

39557	Hirokazu Masai	127 (2019) 924-930	2018A1557	BL14B2	正井 博和	X-ray Absorption Near-Edge Structure of Ag Cations in Phosphate Glasses for Radiophotoluminescence Applications
			2018A1309	BL04B2	正井 博和	
39676	Kohei Makisumi	125 (2017) 463-467	2016B1426	BL02B1	北中 佑樹	Enhanced Polarization Properties of Ferroelectric (Bi _{1/2} Na _{1/2})TiO ₃ -Ba(Mg _{1/3} Nb _{2/3})O ₃ Single Crystals Grown under High-Pressure Oxygen Atmosphere

Journal of the Electrochemical Society

39526	Naoya Aoki	167 (2020) 044513	2015B1849	BL14B2	今井 英人	Electrochemical Properties and Single Cell Performance of Pd Core-Pt Shell Structured Catalyst Synthesized by a Simple Direct Displacement Reaction
			2015B1850	BL14B2	今井 英人	
			2016B7906	BL36XU	大門 英夫	
			2017A7906	BL36XU	大門 英夫	
2017B7906	BL36XU	大門 英夫				
39618	Jun Maruyama	167 (2020) 060504	2017A1551	BL14B2	丸山 純	Bifunctional Oxygen Electrodes with Highly Step-Enriched Surface of Fe-N _x Containing Carbonaceous Thin Film

Materials Transactions

39259	Koji Sasaki	61 (2020) 136-141	2017A5020	BL16XU	北原 周	Effect of Argon-Purged Cooling on Generating Residual Stress in Oxide Scale Formed on Si-Containing Steels Examined by <i>In Situ</i> X-ray Diffraction and Finite Element Analysis
			2017B5020	BL16XU	北原 周	
39388	Shan Lin	61 (2020) 300-304	2016A1168	BL40XU	奥田 浩司	Microstructure Analysis of Graded Interface Layers in a Model Multilayer Al/Al-Zn/Al Sample by Scanning Microbeam Small-Angle X-ray Scattering Measurements
			2016B1275	BL40XU	奥田 浩司	
			2016B1282	BL45XU	奥田 浩司	
			2017B1570	BL40XU	奥田 浩司	
2017B1611	BL40XU	松本 克史				

Nano Letters

39305	Linxing Zhang	20 (2020) 881-886	2018B1492	BL25SU	Xing Xianran	Controllable Ferromagnetism in Super-Tetragonal PbTiO ₃ through Strain Engineering
39586	Naoto Shirahata	20 (2020) 1491-1498	2014B4504	BL15XU	白幡 直人	Emerging Atomic Energy Levels in Zero-Dimensional Silicon Quantum Dots

Nanoscale

39493	Kohsuke Mori	12 (2020) 1779-1789	2017B1084	BL01B1	森 浩亮	CoO _x -decorated CeO ₂ Heterostructures: Effects of Morphology on Their Catalytic Properties in Diesel Soot Combustion
			2018A1144	BL01B1	森 浩亮	
39598	Lan Anh Nguyen	11 (2019) 5868-5873	2017B1059	BL10XU	Wang Lin	Pressure-induced Fluorescence Enhancement of FA _n PbBr _{2-n} Composite Perovskites

Nature Chemical Biology

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39499	Masaki Okumura	15 (2019) 499-509	2016A1214	BL45XU	稲葉 謙次	Dynamic Assembly of Protein Disulfide Isomerase in Catalysis of Oxidative Folding
			2016B1170	BL45XU	稲葉 謙次	
			2014A1345	BL45XU	稲葉 謙次	
39509	Fei He	15 (2019) 1206-1213	2016B2730	BL41XU	阿部 郁朗	Molecular Basis for the P450-Catalyzed C-N Bond Formation in Indolactam Biosynthesis

Physical Review Letters

39404	Hannah C. Robarts	124 (2020) 046402	2016A1323	BL08W	Dugdale Stephen	Extreme Fermi Surface Smearing in a Maximally Disordered Concentrated Solid Solution
39660	Daniel Gabriel Mazzone	124 (2020) 125701	2014B4270	BL12XU	Jarrige Ignace	Kondo-Induced Giant Isotropic Negative Thermal Expansion

Proceedings of SPIE

39412	Keiji Umetani	10816 (2018) 108160A	2016B1906	BL20B2	梅谷 啓二	High-Resolution Wide-Field Synchrotron Radiation Micro-CT for Large Human Lung Specimen Imaging
			2016B1907	BL28B2	梅谷 啓二	
			2017A1355	BL20B2	梅谷 啓二	
			2017A1359	BL28B2	梅谷 啓二	
39524	Kurumi Saitou	11317 (2020) 113170H	2019B1749	BL20B2	斉藤 くるみ	3D Microstructure Analysis of Human Pulmonary Emphysema using a Synchrotron Radiation CT
			2019B1164	BL20B2	仁木 登	
			2019A1674	BL20B2	斉藤 くるみ	
			2019A1272	BL20B2	仁木 登	
			2018B1662	BL20B2	斉藤 くるみ	
			2018B1005	BL20B2	仁木 登	
			2018A1002	BL20B2	仁木 登	

Quantum Beam Science

39466	Yasuaki Takeda	4 (2020) 10	2013B3810	BL23SU	横谷 明徳	Hydration of Nucleobase as Probed by Electron Emission of Uridine-5'-Mono-Phosphate (UMP) in Aqueous Solution Induced by Nitrogen K-Shell Ionization
			2014A3810	BL23SU	横谷 明徳	
			2014B3810	BL23SU	横谷 明徳	
			2015A3810	BL23SU	横谷 明徳	
			2015B3810	BL23SU	横谷 明徳	
39511	Atsushi Momose	4 (2020) 9	2016B1147	BL20XU	高野 秀和	Recent Progress in X-ray and Neutron Phase Imaging with Gratings
			2017A1041	BL28B2	百生 敦	
			2017A1288	BL37XU	高野 秀和	
			2017B1361	BL37XU	高野 秀和	
			2017B1445	BL28B2	Vegso Karol	

Review of Scientific Instruments

39585	Masayuki Uesugi	91 (2020) 035107	2014B1359	BL20B2	上梶 真之	Development of a Sample Holder for Synchrotron Radiation-based Computed Tomography and Diffraction Analysis of Extraterrestrial Materials
			2014A1387	BL20XU	上梶 真之	
			2014A1498	BL47XU	上梶 真之	
			2014B1418	BL20XU	上梶 真之	
			2014B1535	BL47XU	上梶 真之	
			2015A1445	BL20XU	上梶 真之	
			2015B1460	BL20XU	上梶 真之	
			2016A1208	BL20XU	上梶 真之	
			2016B1361	BL20XU	上梶 真之	
			2017A1254	BL20XU	上梶 真之	
			2017B1227	BL20XU	上梶 真之	
			2017B1234	BL47XU	上梶 真之	
			2018A1216	BL47XU	上梶 真之	
			2018A1219	BL20XU	上梶 真之	
			2018B1271	BL20XU	上梶 真之	
39670	Koji Kimura	91 (2020) 033907	2016A7602	BL28XU	小久見 善八	Development of a Half-Cell for X-ray Structural Analysis of Liquid Electrolytes in Rechargeable Batteries
			2016B7611	BL28XU	松原 英一郎	
			2019A7616	BL28XU	安部 武志	

ACS Applied Bio Materials

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39539	Kotaro Koikai	2 (2019) 4941-4952	2015B8048	BL3	湯本 史明	Improvement of Production and Isolation of Human Neuraminidase-1 in Cellulo Crystals

ACS Applied Electronic Materials

39323	Kei Shigematsu	1 (2019) 2514-2521	2017B1721	BL47XU	西久保 匠	Strain Manipulation of Magnetic Anisotropy in Room-Temperature Ferrimagnetic Quadruple Perovskite CeCu ₃ Mn ₄ O ₁₂
-------	----------------	-----------------------	-----------	--------	-------	---

ACS Macro Letters

39481	Yuta Miyamori	9 (2020) 32-37	2019B1135	BL40XU	松下 裕秀	Periodic and Aperiodic Tiling Patterns from a Tetrablock Terpolymer System of the A ₁ BA ₂ C Type
			2019A1392	BL40B2	高野 敦志	
			2018B1546	BL40XU	高野 敦志	

ACS Omega

39473	Dinesh Bhalothia	4 (2019) 971-982	2018A4135	BL12B2	Chen Tsan Yao	H ₂ Reduction Annealing Induced Phase Transition and Improvements on Redox Durability of Pt Cluster-Decorated Cu@Pd Electrocatalysts in Oxygen Reduction Reaction
-------	------------------	---------------------	-----------	--------	---------------	--

Acta Physica Polonica B

39503	Norihiro Muramatsu	51 (2020) 231-238	2017B6101	BL31LEP	村松 憲仁	Recent Progress and Prospects of the LEPS2/BGOegg Experiment at SPRING-8
			2017A6101	BL31LEP	村松 憲仁	
			2016B6101	BL31LEP	村松 憲仁	
			2016A6101	BL31LEP	村松 憲仁	
			2015B6101	BL31LEP	村松 憲仁	

Advanced Functional Materials

39477	Qian Liu	30 (2020) 1907452	2019A1004	BL40B2	松本 英俊	Tuning the Charge Carrier Polarity of Organic Transistors by Varying the Electron Affinity of the Flanked Units in Diketopyrrolopyrrole-Based Copolymers
-------	----------	----------------------	-----------	--------	-------	--

AIP Advances

39261	Shintaro Kobayashi	9 (2019) 125154	2018A1009	BL02B2	廣澤 哲	Influence of Magnetostriction on the Lattice Constants of the Secondary Phases in Nd-Fe-B Sintered Magnets Studied by Synchrotron X-ray Diffraction
			2018B1016	BL02B2	廣澤 哲	
			2018B1333	BL02B2	豊木 研太郎	
			2019A1007	BL02B2	廣澤 哲	

American Mineralogist

39512	Itaru Ohira	104 (2019) 1273-1284	2017A1251	BL10XU	鎌田 誠司	Compressional Behavior and Spin State of δ-(Al,Fe)OOH at High Pressures
			2017A1650	BL10XU	大平 格	
			2017A1673	BL10XU	前田 郁也	
			2013B0104	BL10XU	大谷 栄治	
			2017B1514	BL10XU	大谷 栄治	

Angewandte Chemie International Edition

39588	Yuya Domoto	59 (2019) 3450-3454	2018A0154	BL38B1	藤田 誠	Self-Assembly of Coordination Polyhedra with Highly Entangled Faces Induced by Metal-Acetylene Interactions
-------	-------------	------------------------	-----------	--------	------	---

Applied Sciences

39513	Claudiu Andrei Stan	10 (2020) 1497	2016B8016	BL3	Stan Claudiu	The Magnitude and Waveform of Shock Waves Induced by X-ray Lasers in Water
-------	---------------------	-------------------	-----------	-----	--------------	--

Biochimica et Biophysica Acta - General Subjects

39472	Michihiro Suga	1864 (2020) 129466	2017A6724	BL44XU	菅 倫寛	Time-resolved Studies of Metalloproteins using X-ray Free Electron Laser Radiation at SACLA
			2017B8015	BL2	菅 倫寛	
			2017B6724	BL44XU	菅 倫寛	
			2018A8010	BL2	菅 倫寛	
			2018B6822	BL44XU	菅 倫寛	

Biomacromolecules

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39257	Yuma Morimitsu	21 (2020) 464-471	2016A1113	BL40B2	松野 寿生	Mechanical Stabilization of Deoxyribonucleic Acid Solid Films Based on Hydrated Ionic Liquid
			2017A1522	BL40B2	松野 寿生	
			2017B1090	BL40B2	松野 寿生	

The Canadian Mineralogist

39474	Norikatsu Akizawa	58 (2020) 99-114	2016A1048	BL20XU	小木曾 哲	Formation Process of Sub-Micrometer-Sized Metasomatic Platinum-Group Element-Bearing Sulfides in a Tahitian Harzburgite Xenolith
-------	-------------------	---------------------	-----------	--------	-------	--

Catalysis Science & Technology

39448	Takashi Toyao	9 (2019) 5413-5424	2018B1126	BL01B1	鳥屋尾 隆	Mechanistic Study of the Selective Hydrogenation of Carboxylic Acid Derivatives over Supported Rhenium Catalysts
-------	---------------	-----------------------	-----------	--------	-------	--

Catalysis Today

39451	Shunsaku Yasumura	(2019) Online published 8 Nov. 2019	2018B1768	BL14B2	鳥屋尾 隆	A CHA Zeolite Supported Ga-oxo Cluster for Partial Oxidation of CH ₄ at Room Temperature
-------	-------------------	---	-----------	--------	-------	---

Cell Research

39315	Yang Lu	30 (2020) 88-90	2019B2712	BL41XU	He Yuanzheng	Crystal Structure of Heliorhodopsin 48C12
-------	---------	--------------------	-----------	--------	--------------	---

Chem

39475	Yuuki Inomata	6 (2020) 294-303	2018A0154	BL38B1	藤田 誠	Metal-Peptide Torus Knots from Flexible Short Peptides
-------	---------------	---------------------	-----------	--------	------	--

ChemCatChem

39658	Chandan Chaudhari	(2020) Online published 26 Jan. 2020	2017B1349	BL01B1	佐藤 勝俊	Pr ₂ O ₃ Supported Nano-layered Ruthenium Catalyzed Acceptorless Dehydrogenative Synthesis of 2-Substituted Quinolines and 1,8-Naphthyridines from 2-Aminoaryl Alcohols and Ketones
			2016A1358	BL01B1	永岡 勝俊	

Chemistry - An Asian Journal

39384	Taisuke Matsuno	15 (2020) 273-278	2018B1392	BL38B1	佐藤 宗太	Regulated Single-Axis Rotations of a Carbonaceous Guest in a van der Waals Complex with an Entropy Cost
-------	-----------------	----------------------	-----------	--------	-------	---

Chemistry Letters

39613	Hirotomo Nishihara	(2020) Online Publication Mar. 19, 2020	2016B1874	BL19B2	丸山 純	Synthesis of Ordered Carbonaceous Framework with Microporosity from Porphyrin with Ethynyl Groups
			2019A1617	BL14B2	丸山 純	

ChemSusChem

39401	Hirofumi Yoshikawa	(2020) Online published 29 Jan. 2020	2019B1313	BL01B1	吉川 浩史	Porous Metal-Organic Frameworks Containing Reversible Disulfide Linkages as Cathode Materials for Lithium-Ion Batteries
-------	--------------------	--	-----------	--------	-------	---

Communications Materials

39538	Masato Matsubara	1 (2020) 5	2017A7030	BL33XU	田島 伸	Identifying Superionic Conductors by Materials Informatics and High-Throughput Synthesis
			2017B7030	BL33XU	田島 伸	
			2018A7030	BL33XU	田島 伸	
			2018B7030	BL33XU	田島 伸	

Condensed Matter

39666	Katariina Pussi	5 (2020) 19	2016B1247	BL04B2	Kamali-Moghaddam Saeed	Structure of Manganese Oxide Nanoparticles Extracted via Pair Distribution Functions
-------	-----------------	----------------	-----------	--------	------------------------	--

Condensed Matter Physics

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39389	Shinya Hosokawa	22 (2019) 43602	2009A1054	BL35XU	細川 伸也	Detection of Collective Optic Excitations in Molten NaI

Earth and Planetary Science Letters

39371	Samuel Thompson	534 (2020) 116080	2017B1338	BL10XU	駒林 鉄也	Compression Experiments to 126 GPa and 2500 K and Thermal Equation of State of Fe ₃ S: Implications for Sulphur in the Earth's Core
-------	-----------------	----------------------	-----------	--------	-------	--

Ecotoxicology and Environmental Safety

39459	Tuanhui Xie	173 (2019) 266-272	2017A4137	BL12B2	Liu Yu-Ting	Effects and Mechanisms on the Reduction of Lead Accumulation in Rice Grains through Lime Amendment
-------	-------------	-----------------------	-----------	--------	-------------	--

ECS Journal of Solid State Science and Technology

39582	Tappei Nishihara	8 (2019) Q101	2017A1782	BL46XU	小島 拓人	Evaluation of Sn-Doped Indium Oxide Film and Interface Properties on a-Si Formed by Reactive Plasma Deposition
			2017B1909	BL46XU	神岡 武文	
			2016A1746	BL46XU	小椋 厚志	
			2014B1938	BL46XU	小椋 厚志	
			2014B1892	BL46XU	小椋 厚志	
			2018B1803	BL46XU	神岡 武文	

Electrochemistry

39583	Teruhisa Baba	88 (2020) 63-68	2015B5090	BL16XU	今井 英人	A Spatially-Resolved <i>operando</i> High-Energy Confocal X-ray Diffraction Method for Observing Non-Uniform Degradation Phenomena in a Practical Cylindrical Lithium-ion Battery
			2016A5092	BL16XU	今井 英人	
			2016A5093	BL16XU	高橋 伊久磨	
			2016B5090	BL16XU	今井 英人	
			2017A5090	BL16XU	今井 英人	
			2017A5091	BL16XU	今井 英人	
			2017B5090	BL16XU	今井 英人	
			2017B5091	BL16XU	今井 英人	
			2018A5090	BL16XU	今井 英人	
			2018B5092	BL16XU	今井 英人	
			2018A5091	BL16XU	今井 英人	
			2018B5091	BL16XU	今井 英人	

Electrochemistry Communications

39303	Satoru Katoh	111 (2020) 106644	2017A7032	BL33XU	長井 康貴	Ex-situ Visualization of the Wet Domain in the Microporous Layer in a Polymer Electrolyte Fuel Cell by X-ray Computed Tomography under Water Vapor Supply
			2017B7032	BL33XU	長井 康貴	
			2018A7032	BL33XU	長井 康貴	
			2018B7032	BL33XU	長井 康貴	
			2019A7032	BL33XU	山口 聡	

eLife

39672	Juan Estevez-Gallego	9 (2020) e50155	2016B1182	BL40XU	上村 慎治	Structural Model for Differential Cap Maturation at Growing Microtubule Ends
			2019B1365	BL05XU	上村 慎治	
			2019A1610	BL40XU	八木 俊樹	

Environmental Science & Technology

39268	Tomohiko Itabashi	53 (2019) 14186-14193	2017B1083	BL37XU	橋本 洋平	Speciation and Fractionation of Soil Arsenic from Natural and Anthropogenic Sources: Chemical Extraction, Scanning Electron Microscopy, and Micro-XRF/XAFS Investigation
			2018A1113	BL05XU	橋本 洋平	
			2018B1191	BL37XU	橋本 洋平	
			2019A1621	BL14B2	橋本 洋平	

The FASEB Journal

39469	DongWon Park	34 (2020) 3051-3068	2018A6866	BL44XU	Lee Bong Jin	Crystal Structure of Proteolyzed VapBC and DNA-bound VapBC from <i>Salmonella enterica</i> Typhimurium LT2 and VapC as a Putative Ca ²⁺ -dependent Ribonuclease
-------	--------------	------------------------	-----------	--------	--------------	--

Fatigue and Fracture of Engineering Materials and Structures

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39652	Fumiyoshi Yoshinaka	42 (2019) 2093-2105	2014A1020	BL20XU	中村 孝	Initiation and Growth Behaviour of Small Internal Fatigue Cracks in Ti-6Al-4V via Synchrotron Radiation Microcomputed Tomography
			2014A1459	BL20XU	中村 孝	

FEBS Open Bio

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39470	Sung-Min Kang	9 (2019) 1713-1725	2018B6866	BL44XU	Lee Bong Jin	The Crystal Structure of AcrR from <i>Mycobacterium tuberculosis</i> Reveals a One-component Transcriptional Regulation Mechanism

High Pressure Research

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39562	Takeshi Sakai	40 (2020) 12-21	2017B1563	BL10XU	境 毅	Conical Support for Double-Stage Diamond Anvil Apparatus
			2016B1540	BL10XU	境 毅	
			2017B1986	BL10XU	平尾 直久	
			2018B1380	BL10XU	境 毅	

Hyperfine Interactions

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39367	Yoshitaka Yoda	240 (2019) 72	2011B2107	BL09XU	依田 芳卓	X-ray Beam Properties Available at the Nuclear Resonant Scattering Beamline at SPring-8
			2013A1898	BL09XU	依田 芳卓	
			2016B1971	BL09XU	依田 芳卓	
			2017B1985	BL09XU	依田 芳卓	

International Journal of Heat and Mass Transfer

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39510	Wataru Yoshimune	152 (2020) 119537	2017A7032	BL33XU	長井 康貴	Multi-Scale Pore Morphologies of a Compressed Gas Diffusion Layer for Polymer Electrolyte Fuel Cells
			2017B7032	BL33XU	長井 康貴	
			2018A7032	BL33XU	長井 康貴	
			2018B7032	BL33XU	長井 康貴	
			2019A7032	BL33XU	山口 聡	

International Journal of Molecular Sciences

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39535	Shouhei Mine	20 (2019) 2460	2017A6755	BL44XU	峯 昇平	Structural Insights into the Molecular Evolution of the Archaeal Exo-β-D-Glucosaminidase
			2017B6755	BL44XU	峯 昇平	
			2016A6645	BL44XU	峯 昇平	
			2016B6645	BL44XU	峯 昇平	
			2017B6767	BL44XU	渡邊 真宏	
			2017A6767	BL44XU	渡邊 真宏	
			2016B6657	BL44XU	渡邊 真宏	
			2016A6657	BL44XU	渡邊 真宏	
			2015B6546	BL44XU	峯 昇平	
			2015B6559	BL44XU	渡邊 真宏	
			2015A6559	BL44XU	渡邊 真宏	
			2015A6546	BL44XU	峯 昇平	
			2014B6903	BL44XU	渡邊 真宏	
			2014B6953	BL44XU	峯 昇平	

Island Arc

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39467	Motoko Igisu	28 (2019) e12310	2018A1699	BL43IR	伊規須 素子	Fourier Transform Infrared Microspectroscopic Characterization of Neoproterozoic Organic Microfossils from the Fifteenmile Group in Yukon, Canada
			2016A1699	BL43IR	伊規須 素子	

Journal of Applied Crystallography

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39497	Hiroki Ogawa	53 (2020) 140-147	2018A2025	BL03XU	小川 紘樹	Improving Grazing-Incidence Small-Angle X-ray Scattering-Computed Tomography Images by Total Variation Minimization
			2018B2057	BL03XU	加部 泰三	

Journal of Applied Physics

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39478	Jinwang Li	127 (2020) 064504	2013B1766	BL43IR	李 金望	High-transconductance Indium Oxide Transistors with a Lanthanum-Zirconium Gate Oxide Characteristic of an Electrolyte
			2013A1677	BL13XU	李 金望	

The Journal of Biochemistry

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39385	Asami Hishiki	(2020) Online published 21 Jan. 2020	2014B1322	BL41XU	橋本 博	Structure of HIRAN Domain of Human HLTf Bound to Duplex DNA Provides Structural Basis for DNA Unwinding to Initiate Replication Fork Regression

The Journal of Biological Chemistry

39518	Leehyeon Kim	295 (2020) 2590-2600	2019A6973	BL44XU	Song HyunKyu	Use of the LC3B-Fusion Technique for Biochemical and Structural Studies of Proteins Involved in the N-degron Pathway
-------	--------------	-------------------------	-----------	--------	--------------	--

Journal of Cell Biology

39674	Tomohiro Shima	217 (2018) 4164-4183	理研	BL45XU		Kinesin-Binding-Triggered Conformation Switching of Microtubules Contributes to Polarized Transport
			2014A1072	BL45XU	上村 慎治	

The Journal of Chemical Physics

39330	Ya Wei Liu	152 (2020) 034304	2013A4260	BL12XU	Zhu LinFan	An Investigation of the Anomalous Asymptotic Behavior of Elastic Electron Scattering of Helium
			2014B4251	BL12XU	Zhu LinFan	

Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena

39405	Hiroshi Shinotsuka	239 (2020) 146903	2012B4604	BL15XU	吉川 英樹	Automated Information Compression of XPS Spectrum using Information Criteria
-------	--------------------	----------------------	-----------	--------	-------	--

Journal of Environmental Quality

39270	Masato Ueshima	48 (2019) 1907-1912	2017B1083	BL37XU	橋本 洋平	Chemical Stability of Framboidal Pyrite Containing Geogenic Arsenic in Alluvial Sediments
			2018A1113	BL05XU	橋本 洋平	
			2018B1191	BL37XU	橋本 洋平	

Journal of Hazardous Materials

39398	Mengmei Zhang	388 (2020) 122064	2018A1346	BL01B1	藤森 崇	Thermochemical Formation of Dioxins Promoted by Chromium Chloride: In situ Cr- and Cl-XAFS Analysis
-------	---------------	----------------------	-----------	--------	------	---

Journal of Molecular Liquids

39619	Tatsuya Tsurumura	305 (2020) 112867	2019B1743	BL04B2	鶴村 達也	Structural Study on Ti-ion Complexes in Concentrated Aqueous Electrolytes: Raman Spectroscopy and High-Energy X-ray Total Scattering
			2018B1658	BL04B2	鶴村 達也	
			2018B1729	BL19B2	鶴村 達也	

The Journal of Organic Chemistry

39258	Koki Ikemoto	85 (2020) 150-157	2017B1301	BL38B1	佐藤 宗太	Fluorescence Enhancement of Aromatic Macrocycles by Lowering Excited Singlet State Energies
-------	--------------	----------------------	-----------	--------	-------	---

Journal of Power Sources

39549	Yasushi Idemoto	455 (2020) 227962	2016B1859	BL19B2	井手本 康	Synthesis, Electrochemical Properties, and Changes in Crystal and Electronic Structures during Charge/Discharge Process of Spinel-Type Cathode Materials Mg ₄ V _{5-x} Ni _x O ₁₂ (x = 0, 0.3, 0.6, 1.0) for Magnesium Secondary Batteries
			2017A1578	BL19B2	井手本 康	
			2017B1807	BL19B2	井手本 康	
			2018A1555	BL19B2	井手本 康	
			2016A1510	BL14B2	井手本 康	
			2016B1852	BL14B2	井手本 康	
			2017B1590	BL14B2	井手本 康	
			2018A1577	BL14B2	井手本 康	
2018A1040	BL04B2	井手本 康				

Journal of Solid State Chemistry

39400	Daisuke Urushihara	282 (2020) 121069	2016A1663	BL02B2	漆原 大典	Charge Ordering and Successive Phase Transitions of Mixed-Valence Iron Oxide GdBaFe ₂ O ₅
-------	--------------------	----------------------	-----------	--------	-------	---

Journal of the American Ceramics Society

39496	Seiji Inaba	103 (2020) 3631-3641	2014B1141	BL04B2	稲葉 誠二	Anisotropic Structure of Alkali Metaphosphate Glasses
			2015A1281	BL04B2	稲葉 誠二	
			2015B1318	BL04B2	稲葉 誠二	

Journal of the Physical Society of Japan

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39520	Shinya Hosokawa	89 (2020) 034603	2015B1005	BL13XU	細川 伸也	Valence-Selective Local Atomic Structures on an YbInCu ₄ Valence Transition Material by X-Ray Fluorescence Holography
			2018A1214	BL39XU	細川 伸也	

Journal of Vacuum Science & Technology B

39392	Junichi Nomoto	38 (2020) 022202	2019A1813	BL46XU	野本 淳一	Influence of Unintentionally Incorporated Ar Atoms on the Crystalline Polarity of Magnetron-Sputtered Al-Doped ZnO Polycrystalline Films on Glass and Sapphire Substrates
-------	----------------	---------------------	-----------	--------	-------	---

Langmuir

39495	Yuxiao Zhang	36 (2020) 1174-1182	2018B1082	BL01B1	森 浩亮	Construction of Hybrid MoS ₂ Phase Coupled with SiC Heterojunctions with Promoted Photocatalytic Activity for 4-Nitrophenol Degradation
			2018B1185	BL01B1	桑原 泰隆	

Lunar and Planetary Science Conference

39436	Iori Kajitani	51 (2020) 1703	2018A1348	BL27SU	白井 寛裕	Sulfur Species in ALH 84001 Carbonates Constraining Conditions of Water on Ancient Mars
			2018B1559	BL27SU	白井 寛裕	
			2019A1583	BL27SU	白井 寛裕	

Materials & Design

39317	Mohd Ramli	186 (2020) 108281	2017B1519	BL20XU	Salleh Arif	The Effect of Bi on the Microstructure, Electrical, Wettability and Mechanical Properties of Sn-0.7Cu-0.05Ni Alloys for High Strength Soldering
			2016B1319	BL20B2	野北 和宏	

Materials Chemistry Frontiers

39626	Hiroataka Kojima	2 (2018) 1276-1283	2017B1745	BL19B2	阿部 竜	Universality of the Giant Seebeck Effect in Organic Small Molecules
			2016B1903	BL19B2	小金澤 智之	
			2016B1769	BL19B2	阿部 竜	
			2015B1778	BL19B2	阿部 竜	
			2015A1843	BL19B2	阿部 竜	

Materials Research Express

39600	Ritsuko Eguchi	7 (2020) 036001	2015B1206	BL13XU	江口 律子	Inhomogeneous Superconductivity in Thin Crystals of FeSe _{1-x} Te _x (x = 1.0, 0.95, and 0.9)
-------	----------------	--------------------	-----------	--------	-------	--

Matter and Radiation at Extremes

39369	Naohisa Hirao	5 (2020) 018403	2009A2021	BL10XU	平尾 直久	New Developments in High-Pressure X-ray Diffraction Beamline for Diamond Anvil Cell at SPring-8
			2009B2131	BL10XU	平尾 直久	
			2010A1232	BL10XU	平尾 直久	
			2010A1966	BL10XU	平尾 直久	
			2014A1910	BL10XU	平尾 直久	
			2014A1911	BL10XU	大石 泰生	
			2014B2059	BL10XU	平尾 直久	
			2015A2066	BL10XU	平尾 直久	
			2015B2001	BL10XU	平尾 直久	
			2016A1853	BL10XU	平尾 直久	
			2016A1854	BL10XU	平尾 直久	
			2017A1870	BL10XU	平尾 直久	
			2017B1986	BL10XU	平尾 直久	
			2017B1987	BL10XU	平尾 直久	
			2018A2073	BL10XU	平尾 直久	
			2016A1846	BL10XU	河口 沙織	
2016B1960	BL10XU	平尾 直久				

Methods in Enzymology

39542	Norimichi Nomura	629 (2019) 383-399	2017A2579	BL41XU	野村 紀通	Chapter Nineteen - Crystallographic Approaches to Study the Interaction Modes of PD-1- and CTLA-4-blocking Antibodies
			2018A2541	BL41XU	野村 紀通	

Microporous and Mesoporous Materials

39558	Kazu Okumura	288 (2019) 109571	2018B1146	BL01B1	奥村 和	Direct Immobilization of Triphenylphosphine Palladium Complexes on the External Surface of Zeolite β
			2019A1376	BL01B1	奥村 和	

Minerals

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39386	Satoru Urakawa	10 (2020) 84	2014B1480	BL04B2	井上 徹	X-ray and Neutron Study on the Structure of Hydrated SiO ₂ Glass up to 10 GPa

Molecular Mechanism of Congenital Heart Disease and Pulmonary Hypertension

39625	Tadakatsu Inagaki	(2020) 193-195	2014B1801	BL28B2	稲垣 薫克	Impaired Right Coronary Vasodilator Function in Pulmonary Hypertensive Rats Assessed by In Vivo Synchrotron Microangiography
			2015A1868	BL28B2	稲垣 薫克	
			2015B1797	BL28B2	稲垣 薫克	
			2016B1280	BL28B2	稲垣 薫克	

Nucleic Acids Research

39468	Do-Hee Kim	46 (2018) 6371-6386	2016B6662	BL44XU	Lee Bong Jin	Functional Insights into the <i>Streptococcus pneumoniae</i> HicBA Toxin-Antitoxin System Based on a Structural Study
			2017A6773	BL44XU	Lee Bong Jin	

PEPTIDE SCIENCE 2019

39631	Kazuyuki Suzuta	(2020) 171-172	2016B1625	BL27SU	鈴木 和之	Evaluation of Cysteic Acid in Bleached Hair using Soft X-ray Spectroscopy
			2016A1533	BL27SU	鈴木 和之	
			2015B1573	BL27SU	鈴木 和之	

Physical Chemistry Chemical Physics

39605	Yuji Kamiyama	22 (2020) 5561-5567	2019B1227	BL04B2	関 志朗	Lithium-ion Coordination-Induced Conformational Change of PEG Chains in Ionic-Liquid-Based Electrolytes
			2017B1547	BL04B2	藤井 健太	

Physical Review Materials

39596	Hiromasa Fujii	4 (2020) 033401	2016B0908	BL13XU	若林 裕助	Early Stages of Iron Anodic Oxidation: Defective Growth and Density Increase of Oxide Layer
			2018B0938	BL13XU	若林 裕助	
			2018A1135	BL13XU	若林 裕助	

Polymer Crystallization

39532	Takayuki Hirai	2 (2019) e10069	2016A7003	BL33XU	原田 雅史	High-Temperature Crystallization of Immiscible Polymer Blends Induced by the Shear Flow in Injection Molding
			2016B7003	BL33XU	原田 雅史	

Polymer Journal

39403	Shotaro Nishitsuji	52 (2020) 279-287	2016A1441	BL40B2	西辻 祥太郎	X-ray Scattering Study on the Changes in the Morphology of Low-Modulus Polypropylene under Cyclic Uniaxial Elongation
-------	--------------------	----------------------	-----------	--------	--------	---

Procedia Structural Integrity

39540	Yoshikazu Nakai	23 (2019) 83-88	2017A1603	BL46XU	中井 善一	Observations of Twinning and Detwinning in Magnesium Alloy by Synchrotron Radiation DCT and EBSD
			2017A1604	BL46XU	塩澤 大輝	
			2016B1627	BL19B2	中井 善一	
			2015A1682	BL46XU	梶原 堅太郎	
			2014A1782	BL46XU	梶原 堅太郎	
			2018A1593	BL14B2	中井 善一	

Proceedings

39440	Yoshikazu Hirai	2 (2018) 972	2016B1058	BL28B2	清水 啓史	Microchannel Fabrication Using A Photo-Patternable Adhesive Material for Recording Conformational Changes of KcsA Channel with the Diffracted X-ray Tracking Method
			2017A1148	BL28B2	清水 啓史	
			2017B1153	BL28B2	清水 啓史	
			2018A1157	BL28B2	清水 啓史	

Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America

39505	Dmytro Soloviov	117 (2020) 4749-4757	2017A1294	BL35XU	Zhemenkov Mikhail	Functional Lipid Pairs as Building Blocks of Phase-Separated Membranes
-------	-----------------	-------------------------	-----------	--------	-------------------	--

Proceedings of 2019 IEEE 46th Photovoltaic Specialists Conference (PVSC)

39594	Ryo Kozono	(2020) 1018-1020	2017B1311	BL47XU	重川 直輝	GaAs/Si Double-Junction Cells Fabricated by Sacrificial Layer Etching of Directly-Bonded III-V/Si Junctions
			2016A1219	BL47XU	重川 直輝	

RSC Advances

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39378	Jaemyung Kim	10 (2020) 1878-1882	2017B1029	BL20B2	坂田 修身	Surface Morphology Smoothing of a 2 Inch-Diameter GaN Homoeptaxial Layer Observed by X-ray Diffraction Topography
			2018B1010	BL20B2	坂田 修身	

SAE International Journal of Materials and Manufacturing

39377	Hirokazu Noda	13 (2020) 27-43	2017B1819	BL19B2	野田 寛和	Analysis of Metal Pick-Up Formation Process within Automotive Brake Pad
-------	---------------	--------------------	-----------	--------	-------	---

Science Advances

39568	Megumi Matsumoto	5 (2019) eaax5078	2016A1245	BL47XU	土山 明	Discovery of Fossil Asteroidal Ice in Primitive Meteorite Acfer 094
			2016A1253	BL47XU	土山 明	
			2016B1350	BL47XU	土山 明	
			2016B1351	BL47XU	土山 明	
			2017A1442	BL47XU	土山 明	
			2017A1496	BL47XU	土山 明	
			2017B1517	BL47XU	土山 明	

Soft Matter

39550	Tomoki Yasui	16 (2020) 2363-2370	2018A1659	BL45XU	安井 知己	Energy Dissipation via the Internal Fracture of the Silica Particle Network in Inorganic/Organic Double Network Ion Gels
			2018B1690	BL45XU	安井 知己	

Solid State Ionics

39413	Xue Liua	347 (2020) 115213	2017A5380	BL16B2	榊 篤史	Local Structural Changes in Ce _{1-x} Ln _x O _{2-δ} (Ln = La, Gd) Solid Electrolytes
			2018B5380	BL16B2	榊 篤史	

Surface Science

39517	Hiroaki Hanafusa	696 (2020) 121592	2017A1762	BL46XU	花房 宏明	Band-Energy Estimation on Silicon Cap Annealed 4H-SiC Surface using Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy
			2017B1825	BL46XU	花房 宏明	

Structural Dynamics

39529	Juan Sanchez	6 (2019) 054701	2019A8007	BL2	Schmidt Marius	High-Resolution Crystal Structures of a Myxobacterial Phytochrome at Cryo and Room Temperatures
			2018A8055	BL3	Westerhoff Sebastian	

X線分析の進歩 (Advances in X-ray Chemical Analysis, Japan)

39669	Kentaro Fujii	51 (2020) 251-259	2016A3852	BL23SU	藤井 健太郎	Biological Effect by Altered ATP Induced with Ionizing Irradiations
			2017A3852	BL23SU	藤井 健太郎	
			2017B3852	BL23SU	藤井 健太郎	
			2018A3852	BL23SU	藤井 健太郎	

材料 (Journal of the Society of Materials Science, Japan)

39458	Shigetaka Okano	68 (2019) 325-331	2012B3722	BL22XU	張 朔源	Accuracy Validation of Measurement of Transient Thermal Stress at Steel Welds by Synchrotron X-ray Diffraction Techniques
			2013A3721	BL22XU	葛蒲 敬久	
			2013A3722	BL22XU	葛蒲 敬久	
			2013A3723	BL22XU	張 朔源	
			2013B3722	BL22XU	張 朔源	

材料表面 (Accounts of Materials & Surface Research)

39461	Kaname Hashizaki	3 (2018) 190-198	2018A1200	BL40B2	橋崎 要	Possibility of Highly Viscoelastic Lecithin Reverse Wormlike Micelle as the Vehicle for Transdermal Therapeutic Application
			2016A1054	BL40B2	橋崎 要	

低温科学 (Low Temperature Science)

39651	Yusuke Tamenori	78 (2020) 91-100	2019A1328	BL27SU	為則 雄祐	Development of Soft X-ray Microscope to Elucidate the Evolution of Organic Molecules in Space
			2018B2085	BL27SU	為則 雄祐	
			2018A1119	BL27SU	為則 雄祐	
			2017B1140	BL27SU	為則 雄祐	
			2016B1133	BL27SU	為則 雄祐	
			2016A1835	BL27SU	為則 雄祐	
			2015B1984	BL27SU	為則 雄祐	
			2015A2039	BL27SU	為則 雄祐	
			2014B2055	BL27SU	為則 雄祐	

日本金属学会誌 (The Journal of the Japan Institute of Metals and Materials)

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39428	Shota Yamamoto	83 (2019) 465-473	2016A1501	BL46XU	宮嶋 陽司	Dependences of Grain Size and Strain-Rate on Deformation Behavior of Commercial Purity Titanium Processed by Multi-Directional Forging
			2018B1574	BL46XU	渡邊 千尋	
			2016A1674	BL46XU	小ヶ倉 勇樹	

薬学雑誌 (Journal of the Pharmaceutical Society of Japan)

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39521	Kaname Hashizaki	140 (2020) 435-441	2018A1200	BL40B2	橋崎 要	Preparation and Rheological Properties of Cross-linked Liposomes Using Hydroxypropylmethylcellulose Bearing a Hydrophobic Anchor

博士論文 (東北大学)

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39486	Shun Asano	(2020)	2016B1196	BL35XU	藤田 全基	Study of Annealing Effects on Electronic States in 214-type Cuprate Superconductors by Quantum Beam Spectroscopy
			2017A1381	BL35XU	藤田 全基	
			2016A1603	BL01B1	浅野 駿	
			2018B3657	BL14B1	石井 賢司	
			2019A7593	BL07LSU	石井 賢司	
39491	Motonobu Sato	(2020) 1-139	2019A1701	BL08W	浅野 駿	Study of Synthesis Processes of Nanocarbon Materials for LSI Interconnects
			2014B1370	BL27SU	小川 修一	
			2011B1909	BL47XU	室 隆桂之	
39501	Takuya Aoyagi	(2020)	2019A3836	BL23SU	小川 修一	Study on Structure Model and Thermal / Chemical Stability of Vanadate Glass
			2012B1761	BL04B2	青柳 拓也	
			2012B1720	BL14B2	青柳 拓也	
			2013A1801	BL14B2	青柳 拓也	
			2018B2083	BL14B2	青柳 拓也	
			2017A5400	BL16B2	米山 明男	
			2017B5400	BL16B2	米山 明男	
			2018A5400	BL16B2	米山 明男	
			2018B5400	BL16B2	米山 明男	
2019A5400	BL16B2	米山 明男				

Doctoral Thesis (University of Science and Technology of China)

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39488	Mingze Li	(2019)	2017A4903	BL15XU	Wang Zhenhua	Topological Surface State Regulation and Photoelectric Properties of Topological Insulator Bi ₂ Se ₃

博士論文 (愛媛大学)

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39411	Chaowen Xu	(2019)	2018B1708	BL04B1	Xu Chaowen	Phase Relations of Al-bearing Dense Hydrous Phases up to the Uppermost Lower Mantle and Sound Velocities of Al-bearing Phase D

博士論文 (大阪大学)

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39504	Nam Tran	(2018)	2017B6101	BL31LEP	村松 憲仁	η Photo-Production from Proton Target at LEPS2/BGOegg Experiment
			2017A6101	BL31LEP	村松 憲仁	
			2016B6101	BL31LEP	村松 憲仁	
			2016A6101	BL31LEP	村松 憲仁	
			2015B6101	BL31LEP	村松 憲仁	
			2015A6101	BL31LEP	村松 憲仁	

博士論文 (大阪府立大学)

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39671	Masato Tsuyuguchi	(2020)	2015A6518	BL44XU	木下 誉富	Crystal Analyses Provide Structural Basis for Producing Highly-Selective CK2α1 Inhibitors
			2015B6518	BL44XU	木下 誉富	
			2017B6717	BL44XU	木下 誉富	
			2018A6814	BL44XU	木下 誉富	
			2018B6814	BL44XU	木下 誉富	

博士論文 (京都大学)

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39581	Shotaro Hiraide	(2018)	2017A1167	BL02B2	田中 秀樹	Understanding Gate Adsorption Behavior on Flexible Metal-Organic Frameworks with the Aid of X-Ray Structural Analysis Toward Their Potential Applications

博士論文 (群馬大学)

研究成果番号	主著者	雑誌情報	課題番号	ビームライン	実験責任者	タイトル
39561	Takahiro Saito	(2020)	2014A5030	BL16XU	飯原 順次	Study on Nanostructure Evaluation of Silicon Carbide Derived Porous Carbon and its Application for Capacitor Electrode

博士論文 (東京大学)

39515	Shoh Tagawa	(2020)	2016B1460	BL09XU	廣瀬 敬	Hydrogen in the Core
			2017A1394	BL09XU	中島 陽一	

博士論文 (同志社大学)

39597	Satoshi Hashigami	(2019)	2017B5050	BL16XU	立松 正幹	Studies on Degradation Factors and Their Mitigation Methods of Cathode Materials for Advanced Lithium-Ion Batteries
			2018A5050	BL16XU	立松 正幹	
			2018B5050	BL16XU	出口 博史	

博士論文 (早稲田大学)

39410	Tatsuya Kato	(2020)	2019A1777	BL14B2	加藤 達也	Enhancement and Mechanism Investigation of Rare Earth Dissolution from Refractory Ores by Mechanochemical Reaction
			2017A1781	BL14B2	渡辺 剛	
			2017B1920	BL14B2	渡辺 剛	
			2018A1696	BL14B2	所 千晴	
			2018A1798	BL14B2	加藤 達也	
			2019B1723	BL14B2	渡辺 剛	
			2019A1815	BL14B2	渡辺 剛	
			2019B1867	BL14B2	加藤 達也	

課題以外の成果として登録された論文

Analytical Methods

研究成果番号	主著者	雑誌情報		ビームライン	タイトル
39387	Surachada Chuaychob	12 (2020) 230-238		BL45XU	A Nanobiosensor for the Simple Detection of Small Molecules Using Non-crosslinking Aggregation of Gold Nanoparticles with G-quadruplexes

The Journal of Biological Chemistry

39370	Masakazu Sugishima	295 (2020) 771-782	理研	BL32XU	Crystal Structure of Phytochromobilin Synthase in Complex with Biliverdin IX α , a Key Enzyme in the Biosynthesis of Phytochrome
-------	--------------------	-----------------------	----	--------	---

Journal of Synchrotron Radiation

39559	Makoto Hirose	27 (2020) 455-461	装置&技術	BL29XU	Nanoscale Determination of Interatomic Distance by Ptychography-EXAFS Method using Advanced Kirkpatrick-Baez Mirror Focusing Optics
-------	---------------	----------------------	-------	--------	---

Optics Express

39304	Makoto Hirose	28 (2020) 1216-1224	光学系	BL29XU	Multibeam Ptychography with Synchrotron Hard X-rays
-------	---------------	------------------------	-----	--------	---

Physical Review Accelerators and Beams

39265	Tsutomu Taniuchi	23 (2020) 012401	加速器		dc Septum Magnet Based on Permanent Magnet for Next-Generation Light Sources
-------	------------------	---------------------	-----	--	--

Review of Scientific Instruments

39565	Togo Kudo	91 (2020) 033103	フロントエンド	BL13XU	Energy-Resolved Beam-Monitoring System for Undulator Radiation using Scattering from a Chemical-Vapor-Deposition Diamond Film
-------	-----------	---------------------	---------	--------	---

情報処理学会デジタルプラクティス (Journal of Digital Practices)

39320	Keiichi Shinbe	11 (2020) 191-204	その他		Practice of System Solutions for Promoting Dissemination of Research Results in a Shared Facility
-------	----------------	----------------------	-----	--	---

2019B 期における SPring-8/SACLA ユーザー要望等について

登録施設利用促進機関

公益財団法人高輝度光科学研究センター
利用推進部

SPring-8 および SACLA では、各ビームタイム終了後に実験グループごとに「ビームタイム利用報告書」を提出いただいております。この報告書には、その実験の概要、次回の利用者へのアドバイスや施設に対する要望、提案等を記入いただいております。

2019B 期における要望等の状況は下記のとおりです。これら要望等と、それに対する施設側の回答（内容により、必ずしも全てではありません）につきましては、User Information で公開されています。

1. 2019B 期 要望等全体概要

2019B 期	実施課題数	利用実験数 (報告書数)	うち、要望等コメントがある*1 報告書数		
			技術的 要望等	施設他 要望等	その他 (お礼)
SPring-8 共用 BL	809	1319	51	54	137
SACLA 共用 BL	56	62	16		

*1 「なし」「None」等のコメントを除く。

<SPring-8 共用 BL 技術的要望等 (計 51 件) の研究分野/手法*2 別内訳>

分野 手法	生命科学 医学応用	物質科学 材料科学	化学	地球・ 惑星科学	環境科学	産業利用
X線回折	9	7	6			1
X線散乱		3	3			1
X線非弾性散乱		2				1
X線・軟 X線吸 収分光		3	1	2		2
光電子分光		4				1
X 線イメージ ング	3	1				
その他						1

*2 課題申請時の利用者申告ベース。

2. 2019B 期 要望等の内容 (一部抜粋)

(1) 技術的要望等

○hn 依存性を測定するときに、ID1、ID2、S1/S2、Grating をすべて手で入力する必要がありました。このやり方は、ヒューマンエラーによってトラブルのもとになるので、可能な限りで測定の自動化が必要かと思いました。

【物質科学・材料科学/光電子分光】

○Pt に放射光を照射する際に、酸化を防ぐために Ar を試料に当てながら実験を行った。しかし、比較的短時間で酸化が生じたため、試料を移動しながら放射光の照射位置を変化させて測定を行った。現状のような Ar ガスの照射方法が適切であるのか考慮の余地があるように思われる。担当者には予備実験を行い、Pt の酸化が生じないことを調べて頂いていたが、酸素分圧がもっと低い状況での測定が必要であるのかもしれない。この辺りを検討いただけるとありがたい。

【物質科学・材料科学/X 線・軟 X 線吸収分光】

○モノクロの入射強度の時間変動が大きい (ピーク強度から 10 分の 1 程度まで) ので、変動が出来るだけ小さくなるとありがたい。

【地球・惑星科学/X 線・軟 X 線吸収分光】

○今回の実験でも利用した試料冷凍機は、他の実験でも利用可能であると考えられるので、低温実験を計画しているユーザーに広く利用を呼び掛けると良いのではないかと。実験によっては、シュラウドからのバックグラウンド散乱が問題となるので、大きなサイズのシュラウドも用意していただくと利用しやすいだろう。

【物質科学・材料科学/X 線非弾性散乱】

(2) 施設その他要望等

○試料準備室にあったソファが無くなり、同室での深夜実験時の仮眠ができなくなっていました。可能でしたらソファの設置を検討いただけましたら幸いです。

○暗くなってから A2 扉を出た際に足元が暗くて少し危険を感じました。照明があると良いのかもしれない。

○宿舎のチェックアウトですが、24 時間体制にできないでしょうか？具体的には、事前清算とカードキーの返却の無人化 (ポストインでいいと思いま

利用系グループ活動報告

放射光利用研究基盤センター
分光・イメージング推進室 分光解析Iグループ

公益財団法人高輝度光科学研究センター

放射光利用研究基盤センター 分光・イメージング推進室

為則 雄祐

1. はじめに

分光解析Iグループは、2018年4月に旧利用研究促進部門の分光物性Iグループ XAFS分析チームと、分光物性IIグループ 軟X線・赤外チームが1つのグループとなって発足した。その際、チーム構成も現在のコヒーレント X線分光チームと複合分光チームに再編された。2019年4月からは、旧利用研究促進部門を再編して新設された分光・イメージング推進室に所属して、活動を行っている。

分光解析Iグループでは、所掌するビームライン全体で、赤外線から100 keV以上の硬X線に至る広いエネルギー範囲の高輝度放射光を提供している。ここでは、SPring-8の高輝度性や高エネルギー特性を活用し、XAFSや赤外分光などの分光計測と、それらに顕微法を組み合わせた分光イメージング計測を中心に利用支援を行っている。また、ビームラインを汎用性・利便性の高い先端計測装置として提供するための改良・高性能化や、分光計測を基盤とした新たな先端計測法の開発も進めている。図1に、各ビームラインで利用可能な計測手法を整理して示した。

これらのビームラインは主として、触媒化学・電気化学・高分子化学などの化学分野や、地球化学・環境科学・生物などの分野を対象に、試料の元素組成や化学組成・微量元素の化学状態・化学反応解析といった測定を得意としている。多様な試料系を扱うことから、様々な環境下でのその場計測法の開発を進めているほか、このような測定対象が持つ空間的な不均一性、時間的な状態変化を理解することを目的として、2D/3D顕微分光計測、複合同時計測、時間分解計測環境の整備も進めている。また、空間分解能や測定精度

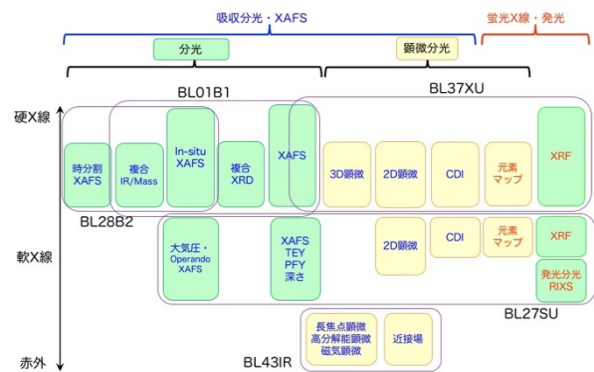


図1 分光解析Iグループに所属するビームラインで利用可能な計測手法

のさらなる向上を目指して、コヒーレンスを利用した新しい計測法の開発などにも力を入れて取り組んでいる。

分光解析Iグループでは、現在は相乗ビームラインを含めて5本のビームラインを所掌している。コヒーレント X線分光チームが主として軟 X線光化学 (BL27SU) と分光分析 (BL37XU) を、複合分光チームが XAFS (BL01B1)、時分割エネルギー分散型 XAFS (白色 X線回折: BL28B2の一部を担当) ならびに赤外物性 (BL43IR) ビームラインを担当している。本稿では、各ビームラインの概要と、最近の整備状況について紹介する。

2. コヒーレント X線分光チーム

コヒーレント X線分光チームは、BL27SU と BL37XU において、X線吸収分光・蛍光 X線分析などの分光計測と、それらにイメージング法を組み合わせた分光イメージング計測に関わる機器の整備・高性

能化と利用支援を行っている。特に、近年ではコヒーレント X 線回折・タイコグラフィーなど、SPring-8 の高コヒーレンス性を取り入れた、新しい分光計測技術の開発と導入も進めている。

分光分析/BL37XU

BL37XU は、蛍光 X 線分析や XAFS などの分光計測と、X 線顕微鏡を組み合わせた分光イメージング計測が中心であり、物質の形態・元素分布・化学状態・局所構造の解析を通じた物質の特性や機能解明に向けた研究が行われている。光学系には、100 nm 集光光学系を配備するとともに^[1]、二結晶分光器の結晶を切り替えることによって 4.5~113 keV の広いエネルギー範囲が利用可能である。特に、50 keV 以上の高エネルギー領域をカバーしていることが、BL37XU の特徴である。

本ビームラインでは、全視野投影/結像型ならびに走査型の各種イメージング法がユーザー利用可能であり、中でも走査型顕微分光イメージング法は全ユーザータイムの 4~5 割を占める主力の計測手法となっている。分光イメージング法の高性能化においては、on the fly 計測の導入による走査型イメージング計測時間の短縮^[2]、三次元投影型 CT-XAFS 法の導入^[3]などを進めてきた。近年、SPring-8 の高エネルギー特性をさらに活用することを目指して、新たに高エネルギー対応の 100 nm 集光光学系を導入したので、以下に紹介する^[4]。

図 2 に、導入した集光光学系の配置を示した。光学系には、Kirkpatrick-Baez (KB) 配置を採用し、縦方向は挿入光源 (距離: 77 m、サイズ: 14.9 μm) を、横方向は二結晶分光器下流フランジ直付けの仮想光源スリット (距離: 33.9 m、サイズ: 9.4 μm) を発光点として集光している。ミラー表面は、Rh/Pt のス

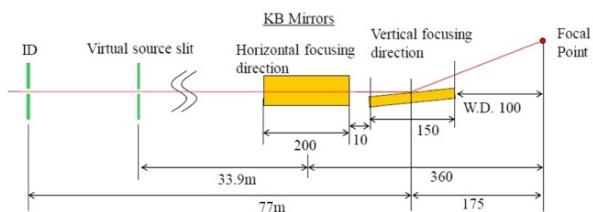


図2 BL37XU に導入された、高エネルギー用ナノ集光光学系の光学レイアウト

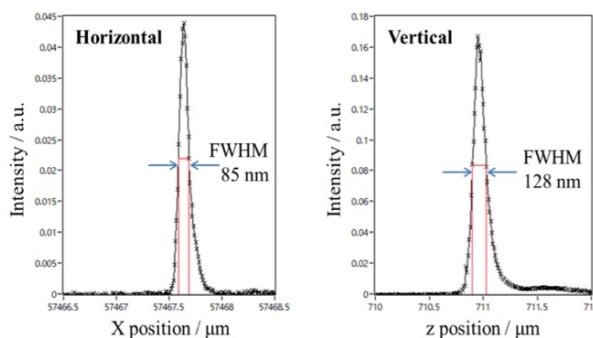


図3 50 keV における集光性能評価

トライコートとし、測定対象に合わせてコート面を切り替えることで、広いエネルギー範囲での利用を可能とした。Pt コート面の利用により 50 keV においても 40% 程度の反射率が得られるため、55 keV 程度のエネルギー領域まで 100 nm の集光ビームが利用可能である。

図 3 に knife-edge スキャンによる 50 keV における集光ビームプロファイルを示した。分光結晶として Si(111) を利用する 15~37.5 keV の領域では、最大 3×10^{10} photons/s 程度の光子数で 100 nm 集光ビームの利用が可能である。また、Si(511)-(333) を利用する高エネルギー領域においても、50 keV において 4.5×10^7 photons/s 程度の光子数で、100 nm 集光を達成していることを確認し、2019A 期より供用利用を開始している。本集光システムの導入により、希土類元素、材料分野で重要な In, Sn, Te、触媒反応などで重要な役割を担う Pd, Ru, Rh などの 4d 遷移金属といった元素の吸収端を、あらたに守備範囲に収めることが可能となった。これら元素を対象とした 100 nm 顕微分光イメージングが可能となったことにより、BL37XU を利用する研究分野のさらなる拡大が期待される。

軟 X 線光化学/BL27SU

BL27SU は、8 の字アンジュレータを光源とする軟 X 線ビームラインである。直線偏光の高輝度軟 X 線を利用することができ、主として、大気圧から低真空領域での軟 X 線顕微分光計測に利用されている。ビームラインは異なるエネルギー領域を使用できる二つのブランチを持っており、Si(111) 結晶分光器を利用して 2.1 keV よりも高エネルギー領域の軟 X 線を利用可

能な B ブランチと、回折格子型分光器を利用して 2.2 keV 以下の軟 X 線を利用可能な C ブランチから構成されている。軟 X 線吸収分光、軟 X 線発光分光などの分光解析や、軟 X 線 μ 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、あるいは吸収分光測定と顕微観察を組み合わせた化学状態マッピング測定などの利用が可能である。

試料環境は、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）～高真空まで、試料特性に合わせて幅広い圧力領域下での測定が可能である。一般的な軟 X 線ビームラインとは異なり、実験ステーションにおいて超高真空環境を用いないことが BL27SU の大きな特徴となっており、実環境・実材料中の軽元素の化学状態・電子状態分析を中心として、地球化学・環境分析・有機化学・材料科学・触媒化学・電気化学など、幅広い分野での利用が行われている。

B ブランチでは、Si(111)チャンネルカット結晶分光器によって、2.1～3.3 keV の単色化された軟 X 線が利用可能である。実験ステーションには、蛍光収量法・電子収量法が利用可能な、汎用型の軟 X 線吸収分光装置が配備されている。軟 X 線吸収分光測定では、部分蛍光収量法を用いることにより、低濃度 (<10 ppm) 試料の吸収分光測定も可能であり、材料化学・触媒化学・地球化学等多様な試料の化学状態研究が行われている。また、試料位置におけるビームサイズは $\sim \phi 10 \mu\text{m}$ 程度であり、軽元素の元素マッピングや吸収分光測定と蛍光 X 線分析を組み合わせた、化学状態マッピング測定も可能となっている。

C ブランチでは不等間隔刻線回折格子を用いた回折格子型分光器を設置し、0.17～2.2 keV の軟 X 線を供給してきた。しかしながら、分光器の導入から約 20 年が経過し、駆動部の機械的摩耗により動作が不安定となる兆候が見られたため、2018 年に分光器の更新作業を行った。今回の更新作業では、光学パラメータには変更を加えず、光学素子は既存のものを使用した（数年前に先行して更新済み）。また、立ち上げ時の真空管理を徹底し、炭素汚染を低減する措置を講じた。すでに BL25SU の立ち上げで実績がある手法を導入した結果、旧分光器では顕著であった炭素領域での光量の低下が、ほぼ見られなくなっている。

3. 複合分光チーム

複合分光チームは、主に BL01B1、BL28B2、BL43IR を担当し、X 線吸収分光や赤外分光などの分光計測に関わる利用支援を行っている。また、分光解析 I グループが所掌するビームラインを横断的に利用することで、赤外線から硬 X 線までの幅広い波長域の光を使用した複合計測が可能である。他にも、低温・強磁場・高圧といった複合試料環境下での計測、XAFS に赤外分光・質量分析などを組み合わせた複合分光計測など、様々な形態での複合計測利用法の開発に取り組んでいる。

XAFS/BL01B1、BL28B2

BL01B1 は、3.8-113 keV の広いエネルギー領域の X 線が利用可能な XAFS ビームラインであり、測定対象に合わせて、多様な XAFS 計測装置が整備されている。透過法 XAFS 用に種々のイオンチェンバー及びガスが用意されている他、微量元素を対象とした蛍光法 XAFS にはライト検出器と 19 素子 Ge 検出器が、また、高濃度の薄膜やバルク試料の測定には、転換電子収量 (CEY) 検出器も利用可能である。深さ分解 XAFS 計測用に PILATUS 100 K 検出器も整備されている。

近年では、触媒や電池等のガス反応を対象とした in-situ/operando XAFS 計測システムの整備に力を入れている。ここでは、各種反応セルの開発や、安全に反応性ガスを利用できる流量制御装置や処理設備といった試料制御環境の高性能化を進めると同時に、計測装置の複合利用環境の整備を進めている。触媒や電池材料は不均一な試料が多く、複数の分析手法を用いて個別に測定した場合は、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が問題となることが多い。そこで、複数の分析手法を同時に適用する複合計測によって、同一条件下で多様なデータを得ることにより、より信頼性の高い情報を得ることができるよう。これまでに、複合計測環境整備として、赤外-XAFS 同時計測システム^[6]、質量分析装置-XAFS 同時計測システム^[6,7]、XAFS-XRD 同時計測システム^[6]などの整備を進めてきた。ここでは、赤外-XAFS 同時計測システムならびに XAFS-XRD 同時計測システムについて紹介する。

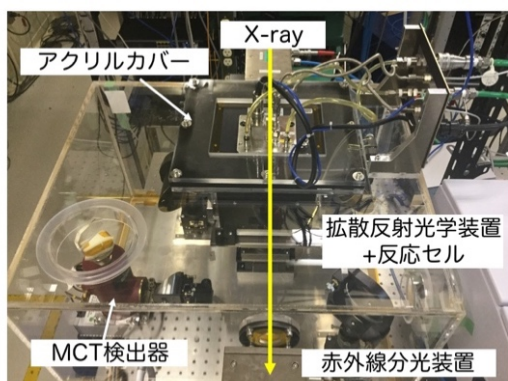


図4 operando 赤外-XAFS 同時計測システムの概観

複合計測環境整備の一つとして、2017年に operando 赤外-XAFS 同時計測システムを導入し、その後も段階的に高性能化を進めている⁶⁾。本システムは、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築され、触媒金属表面の変化をXAFS計測によって観察すると同時に、拡散反射IR計測システムによって表面上で生じた吸着種や反応生成物を観察することが可能である。図4に本システムの概観を示した。同一条件下で触媒表面の状態や、吸着種の電子状態および構造の動的変化を測定することが可能であり、これまでに、Cu/ゼオライト (MFI) におけるNH₃を用いたNOの選択還元反応などに利用されている。

X線分析の複合利用として、In-situ XAFS/XRD同時計測システムの開発を、2014年度から進めている⁶⁾。XAFSと同時にXRD情報を得ることで、試料の結晶子部位の結晶構造に関する情報が同時に得られる。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て、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できる。本システムでは、専用の試料セルを自動XZステージ上に設置し、試料下流にイオンチェンバーおよび2次元ピクセル検出器PILATUS 100Kを配置することで、透過法XAFSスペクトルおよびXRD像を同時に計測する。これまでにテスト試料を用いた計測に成功しており、同システムのユーザー利用に向けた整備を進めている。

また、反応環境下にある試料の過渡変化を観察することを目的として、時分割XAFS計測環境の整備も進めている。BL01B1では、Quick-XAFS (Q-XAFS) 法により、10 s以上の時間分解能で時分割XAFS測定

が行われている。一方、白色ビームラインであるBL28B2において、Dispersive XAFS (D-XAFS) の計測環境を整備している。D-XAFS計測を利用することで、10 msの時間分解能でXAFS計測が可能であり、触媒反応の追跡などの研究が行われている⁸⁾。

赤外分光/BL43IR

BL43IRは、39.3 mの大きな軌道半径を持つ偏向電磁石から放射される赤外光を光源としたビームラインである。市販の赤外分光装置に搭載されているグローバルランプなどの熱輻射光源と比較して、赤外放射光は高い輝度と低波数に帯域が広いことが特徴である。BL43IRでは1.1~0.012 eV (波数では9000~100 cm⁻¹)の範囲で赤外光が利用可能である。X線と同様に、赤外放射光の特徴もまた高輝度性であることから、BL43IRにおいても、赤外の分光イメージングを中心とした利用が行われている。

現在、高空間分解顕微鏡、長作動距離顕微鏡、磁気光学顕微鏡、近接場分光の4つの実験ステーションが稼働しており、各ステーションは高エネルギー分解能計測用のIFS120HT (Bruker) と、高空間分解能計測用のVertex70 (Bruker) の2台の赤外分光光度計のいずれかに接続されている。IFS120HTには、長作動距離顕微鏡、磁気光学顕微鏡が接続されている。長作動距離顕微鏡ステーションは、対物鏡とコンデンサの間に広い試料設置空間(100 mm)が設けられており、高圧ダイヤモンドアンビルセル、低温クライオスタットなどの大きな装置と組み合わせて利用されている。磁気光学顕微分光ステーションには、最大印加磁場が14 Tの超伝導磁石が設置され、磁気赤外分光実験に利用されている。一方、Vertex70は高空間分解能顕微鏡に接続されており、低温・高温・湿度・紫外線照射といった様々な測定環境下における高空間分解能赤外顕微分光や顕微ATR測定に利用されている。

近接場分光は回折限界以下の空間分解能を達成してスペクトル測定を行う手法であり、高輝度・広帯域赤外放射光の利点を活かした測定である。BL43IRでは、AFM装置とFTIR (フーリエ変換分光光度計) を組み合わせた装置を開発し、これまでに中赤外領域で波長よりも短い200 nmの空間分解能を達成している⁹⁾。

4. 今後の課題など

最近の研究動向は、触媒や電池材料に代表されるように、観察対象が不均一であるとともに、時間変化するものが増加している。これらの要望に応じて行くためには、多様な分光計測においてイメージング法を汎用的に利用可能とするとともに、それらの計測を高速化することで時分割計測に発展させるといった高性能化が必要である。また、in-situ/operando 計測も特別な計測ではなくなりつつあり、さらに試料環境の多様化を進めるとともに、それらを複合計測で利用するために、反応セルなどの規格をビームライン間で統一するといった高性能化も進めて行く予定である。

参考文献

- [1] H. Ohashi *et al.*: *J. Phys. : Conf. Ser.* **425** (2013) 052018.
- [2] K. Nitta, Y. Terada: *SPring-8/SACLA Annual Report FY2016* (2017) 70. [in Japanese]
- [3] K. Nitta, O. Sekizawa: *SPring-8/SACLA Annual Report FY2017* (2018) 68. [in Japanese]
- [4] K. Nitta, O. Sekizawa: *SPring-8/SACLA Annual Report FY2018* (in press). [in Japanese]
- [5] T. Uruga *et al.*: *SPring-8/SACLA Annual Report FY2017* (2018) 27. [in Japanese]
- [6] K. Kato *et al.*: *SPring-8/SACLA Annual Report FY2016* (2016) 32. [in Japanese]
- [7] H. Asakura *et al.*: *J. Am. Chem. Soc.* **140** (2018) 176.
- [8] K. Kato *et al.*: *J. Phys.: Conf. Ser.* **712** (2016) 012025.
- [9] Y. Ikemoto *et al.*: *Jpn. J. Appl. Phys.* **54** (2015) 082402.

為則 雄祐 TAMENORI Yusuke

(公財) 高輝度光科学研究センター
放射光利用研究基盤センター 分光・イメージング推進室
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0833
e-mail : tamenori@spring8.or.jp

SPring-8 ユーザー協同体 (SPRUC) 会長に就任して

SPring-8 ユーザー協同体 (SPRUC) 会長
 広島大学 大学院先進理工系科学研究科

木村 昭夫

今年度より第5期の SPRUC 会長に選出されました。SPRUC は 2012 年 4 月に設置され、現在の会員数は 13,000 人を超えております。SPring-8 を利用する全てのユーザーが会員として登録され、研究会の数も 50 を超えることからわかりますように学術会や産業界の多様な分野の研究者の方々から構成されています。私自身は SPRUC の活動に第3期から幹事として関わってきましたが、その期間、SPring-8 の将来に向けた取り組みが 1 つの重要な活動となってきました。2016 年 12 月に藤原明比古氏を責任者として、「SPRUC ビームライン (BL) 高性能化検討作業部会」が立ち上がり、2017 年夏に行われた SPring-8 シンポジウム (広島大学) で初めてパネルディスカッションが設けられ、ユーザーと施設側との意見交換がより活性化されました。昨年度のシンポジウム (岡山大学) ではパネルディスカッションが3回目を数え、施設とユーザー間で BL 再編、次期計画の進捗状況を共有しつつ議論を深めることを目的として盛大に議論が繰り広げられました。また、2019 年 3 月に上述の BL 高性能化検討作業部会での議論に基づいて、第1回 BLs アップグレード検討ワークショップが開催されました。2020 年 2 月には第2回のワークショップが開催され、かなり具体的な形で BL 再編について検討や議論が活発に行われました。そこではユーザーの生の意見が飛び交い、SPRUC の重要性を再認識した次第です。このように、ユーザーと施設の間での意見交換を行う場を設け、今後もより有効に機能していくように導く努力をすることが我々 SPRUC 幹事に与えられた 1 つの仕事と認識しております。ここで新体制での各幹事を紹介させていただきます。

庶務幹事 松下 智裕 (奈良先端科学技術大学院大学)
 広報・渉外幹事 竹中 幹人 (京都大学)
 編集幹事 竹田 幸治 (日本原子力研究開発機構)
 利用幹事 三村功次郎 (大阪府立大学)

利用幹事 兒玉 了祐 (大阪大学)
 会計幹事 久保田佳基 (大阪府立大学)
 行事幹事 西堀 英治 (筑波大学)
 行事幹事 横谷 尚睦 (岡山大学)
 行事幹事 大和田謙二 (量子科学技術研究開発機構)
 行事幹事 松村 大樹 (日本原子力研究開発機構)
 企画幹事 藤原 秀紀 (大阪大学)

上記各幹事の他に、産業界から本間穂高氏 (新日鉄住金) に、学術界からは足立伸一氏 (高エネルギー加速器研究機構) に副会長として SPRUC をご支援いただくことになりました。また、各研究会の全体を取りまとめる利用委員会の委員長は田中義人氏 (兵庫県立大学) に、副委員長は第4期に引き続き今泉公夫氏 (旭化成) にお引き受けいただきました。企画委員会の委員長は、若林裕助氏 (東北大学) にお引き受けいただきました。また、これまで会長を歴任されました高原淳氏 (九州大学)、中川敦史氏 (大阪大学)、水木純一郎氏 (関西学院大学) には監事としてご支援いただくことになっております。

このように、年に4回掲載の本誌「四季報」などを通じて積極的に情報発信をしていきたいと思っております。両宮慶幸第1期会長にはじまり、高原淳第2期会長、中川敦史第3期会長、水木純一郎第4期会長といった方々が築かれたことを継承し、微力ながらさらなる SPring-8 の発展を通して人材育成や社会の発展に貢献できるように活動していきたいと考えていますので会員の皆様にはご支援のほどよろしくお願いいたします。



木村 昭夫 KIMURA Akio

広島大学 先進理工系科学研究科
 〒739-8526 広島県東広島市鏡山 1-3-1
 TEL : 082-424-7400
 e-mail : akiok@hiroshima-u.ac.jp

「SPRUC 2020 Young Scientist Award」の実施について

SPring-8 ユーザー協同体 (SPRUC) では今年度で9回目となる「SPRUC 2020 Young Scientist Award」を実施いたします。

つきましては、以下の募集要項にてご推薦いただきますようよろしくお願いいたします。

記

SPRUC 2020 Young Scientist Award 募集要項

1. 目的：将来の放射光科学を担う優秀な若手会員の研究を奨励し、SPring-8 ユーザー協同体をより活性化するために本賞を設ける。
※募集にあたっての選考委員会からのコメント
本賞は、SPring-8/SACLA の利用法や解析手法の開発に顕著な成果を創出した若手研究者、あるいは測定手法や解析手法は確立された方法であったとしても、SPring-8/SACLA の特徴を活用し測定対象の分野にとって顕著な成果を創出した若手研究者に与えられる賞である。なお、学術以外に、事業化や製品化につながる成果や産業応用に資する成果も対象とする。
2. 人数：2名以内
3. 対象：SPring-8/SACLA を利活用し、2020年3月31日までの間に優れた研究成果をあげた原則35歳以下（2020年4月1日現在）の個人会員（グループでの応募は不可）。
産業界からの積極的なご推薦もお待ちしております。
4. 募集期間：2020年4月1日（水）から5月20日（水）まで
5. 推薦要領：推薦（自薦）理由書と業績（以下HP別紙記載事項参照）をe-mailで送付してください。
6. 書類送付先：SPring-8 ユーザー協同体事務局（users@spring8.or.jp）
7. 選考方法：SPring-8 ユーザー協同体に選考委員会を設け、厳正な審査と選考を行います。
8. 発表等：7月中旬頃に受賞者の公表及び通知を行い、SPring-8 シンポジウム2020（2020年9月18日～19日、つくば国際会議場）において本賞の表彰式および受賞講演を行います。
9. 担当幹事：行事幹事 西堀英治
応募に際してご質問等あれば事務局までお願いします。

詳細（過去の受賞者情報含む）は以下のSPRUCのHPをご覧ください。

http://www.spring8.or.jp/ext/ja/spruc/YSA_SPRUC_2020.html

[問い合わせ先] SPring-8 ユーザー協同体事務局
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1
TEL: 0791-58-0970 FAX: 0791-58-0928
e-mail: users@spring8.or.jp
<http://www.spring8.or.jp/ext/ja/spruc/>

SPring-8 シンポジウム 2020

【趣旨抜粋】

第9回目となった本年のシンポジウムは、物質・材料研究機構および筑波大学との共同主催となり、つくば国際会議場 EPOCHAL TSUKUBA にて開催されます。昨年は、SPring-8 が次の 20 年で利用者にとってさらに魅力的な放射光施設となるための具体的な取り組みや仕組みについて複数示されました。この後も SPring-8 では SPring-8-II に向けたビームライン (BL) の再編やアップグレード (UG) に関する議論が急速に進んでいます。また、世界各国で放射光施設の建設とアップグレードが実施、あるいは計画されています。こうした状況のもと、学术界および産業界の研究者や技術者に参加いただき、SPring-8 の現在と将来について最新の施設や国内外の状況を踏まえた議論ができることを期待しています。

【主 催】 SPring-8 ユーザー協同体

(公財) 高輝度光科学研究センター
理化学研究所 放射光科学研究センター
物質・材料研究機構
筑波大学

【開催期間】 2020 年 9 月 18 日 (金) ~ 19 日 (土)

【会 場】 シンポジウム会場：つくば国際会議場 EPOCHAL TSUKUBA

〒305-0032 茨城県つくば市竹園 2-20-3
<https://epochal.or.jp/>

懇親会場：未定

【詳細情報】 <http://www.spring8.or.jp/ja/ja/science/meetings/2020/sp8sympo2020/>

プログラム等随時更新します。参加申込は 6 月頃開始予定。

【問い合わせ先】 SPring-8 シンポジウム 2020 事務局

(公財) 高輝度光科学研究センター 利用推進部
TEL : 0791-58-2785 FAX : 0791-58-2786
e-mail : sp8sympo2020@spring8.or.jp



第4回 SPring-8 秋の学校 開催のご案内

実施する方向で検討しておりますが、開催時期等につきましては今後の状況を見て判断してまいります。詳細が決まり次第、以下の SPring-8 ウェブサイトでご案内いたします。よろしくご願ひ申し上げます。

http://www.spring8.or.jp/ja/science/meetings/seminar/sp8autumn_school/as2020/

SPring-8 秋の学校 趣意

SPring-8 秋の学校は、次世代の放射光科学に貢献する人材の発掘と育成を目的として、SPring-8 ユーザー協同体 (SPRUC) と高輝度光科学研究センター (JASRI) が中心となり、大学や関係諸機関と協力して開催するものです。夏の学校とは異なり、SPring-8 で活躍する最前線の研究者による講義と、個別テーマについての見学・原理説明・模擬実習からなる少人数グループ講習を組み合わせる行うことにより、放射光の原理と利用研究の基礎を学ぶと共に、実験法やデータ解析を体験できるようにカリキュラムが準備されます。また、SPring-8 のキャンパス内に設置されている X 線自由電子レーザー施設 SACLA についても学ぶことができます。講義とグループ講習は、大学3年生が十分に理解できる水準に設定され、卒業研究や大学院進学を控えた方々が進路を考える最適な機会になります。また、放射光に興味があり、これから利用を考えている大学院生や企業研究者の方々にも適しています。すでに利用経験がある大学院生等の参加も可能です。

SPring-8/SACLA 利用者情報 編集委員会

委員長	木下 豊彦	利用推進部
委員	吾郷日出夫	SPring-8 ユーザー協同体 (SPRUC)
		編集幹事 (理化学研究所)
	大河内拓雄	分光・イメージング推進室
	大和田成起	XFEL 利用研究推進室
	奥村 英夫	タンパク質結晶解析推進室
	平山 明香	利用推進部
	関口 博史	回折・散乱推進室
	西川 健一	利用推進部
	本間 徹生	産業利用推進室
	松本 崇博	情報処理推進室
	松本 悠史	安全管理室
	山鹿 光裕	光源基盤部門
	山口 由紀	企画室
	渡部 貴宏	光源基盤部門

(以上、敬称略五十音順)

事務局	富松 亮介	利用推進部
	坂尻佐和子	利用推進部
	山本 律	利用推進部

SPring-8/SACLA 利用者情報

Vol.25 No.2 Spring 2020

SPring-8/SACLA Information

発行日 2020年5月15日

編集 SPring-8/SACLA 利用者情報編集委員会

発行所 公益財団法人高輝度光科学研究センター
TEL 0791-58-0961 FAX 0791-58-0965

(禁無断転載)



いくつもの終わりとはじまりとを結ぶ、春來たる
～ We wish you luck! ～

JASRI

公益財団法人 高輝度光科学研究センター
Japan Synchrotron Radiation Research Institute

〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都^{こうと}1-1-1
[研究支援部] TEL 0791-58-0950 FAX 0791-58-0955
[利用推進部] TEL 0791-58-0961 FAX 0791-58-0965
e-mail : sp8jasri@spring8.or.jp
SPring-8 Web Site : <http://www.spring8.or.jp/>