

SPring-8/SACLA

INFORMATION 利用者情報



ISSN 1341-9668 SPring-8 Document D2022-015

Vol.27 No.4
Autumn 2022

SPring-8/SACLA Information

目次 CONTENTS

理事長室から 心理的安全性-安全・安心な JASRI を目指して-

Message from President Psychological Safety - Aim for safe and secure JASRI -

(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 293

1. 最近の研究から / FROM LATEST RESEARCH

高圧下における SiO₂ ガラスの四面体構造変化のその場測定

In situ Investigation of Tetrahedral Symmetry Breaking in SiO₂ Glass at High Pressures

愛媛大学 地球深部ダイナミクス研究センター
Geodynamics Research Center, Ehime University

河野 義生
KONO Yoshio 294

(SPRUC 2022 Young Scientist Award 受賞 研究報告)

ユニークな XFEL モードの開発と高強度 X 線科学への応用

Development of Unique XFEL Operation Modes and Their Applications to High-intensity X-ray Science

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

井上 伊知郎
INOUE Ichiro 300

(SPRUC 2022 Young Scientist Award 受賞 研究報告)

放射光 X 線で照らす時計タンパク質 KaiC の概日振動メカニズム

Oscillation Mechanism of Clock Protein KaiC Revealed by Synchrotron X-ray Crystallography

自然科学研究機構 分子科学研究所 協奏分子システム研究センター
Research Center of Integrative Molecular Systems, Institute for Molecular Science

古池 美彦
FURUIKE Yoshihiko 306

2015 年度指定パートナーユーザー活動報告

構造用金属材料のマルチスケール高エネルギー4D イメージング・解析技術およびそのマルチモーダル化

Multi-scale High-Energy 4D Imaging / Analysis Techniques for Structural Metals and Their Application to Multimodal Measurements

九州大学 工学研究院 機械工学部門
Faculty of Engineering, Kyushu University

戸田 裕之
TODA Hiroyuki
WANG Yafei

藤原 比呂
FUJIHARA Hiro

SHARMA Bhupendra

京都大学 工学研究科 材料工学専攻
Faculty of Engineering, Kyoto University

XU Yuantao
平山 恭介
HIRAYAMA Kyosuke

(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 散乱・イメージング推進室
Scattering and Imaging Division, Center for Synchrotron Radiation Research, JASRI

竹内 晃久
TAKEUCHI Akihisa
上杉 健太朗
UESUGI Kentaro

上杉 真之
UESUGI Masayuki

岩手大学 理工学部 物理・材料理工学科
Faculty of Science and Engineering, Iwate University

清水 一行
SHIMIZU Kazuyuki 311

2019 年度指定パートナーユーザー活動報告

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

High-energy X-ray Multi-Purpose One-dimensional Diffraction for the Materials Science Research under External Fields

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

大阪公立大学 大学院理学研究科

Department of Physics, Graduate School of Science, Osaka Metropolitan University

筑波大学 数理工系物理学域

Department of Physics, Faculty of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba

森吉 千佳子
MORIYOSHI Chikako
久保田 佳基
KUBOTA Yoshiki

西堀 英治
NISHIBORI Eiji 322

2019 年度指定パートナーユーザー活動報告

精密価電子密度解析による軌道物理の研究

Study of Orbital Physics by Precise Density Analysis of Valence Electrons

名古屋大学 工学研究科

Department of Applied Physics, Nagoya University

澤 博
SAWA Hiroshi 329

長期利用課題報告

テンダーX線タイコグラフィの基盤技術開発とその応用展開

Development and Application of Tender X-ray Ptychography

東北大学 国際放射光イノベーション・スマート研究センター

International Center for Synchrotron Radiation Innovation Smart, Tohoku University

阿部 真樹

ABE Masaki

住友ゴム工業株式会社 研究開発本部 分析センター

Chemical Analysis Center, Research & Development HQ., Sumitomo Rubber Industries, Ltd.

(公財) 高輝度光科学研究センター 情報技術推進室

Information-Technology Promotion Division, JASRI

(公財) 高輝度光科学研究センター ビームライン技術推進室

Beamline Division, JASRI

(国) 理化学研究所 放射光科学研究センター 次世代検出器開発チーム

Advanced Detector Development Team, 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 分光推進室

Spectroscopy Division, Center for Synchrotron Radiation Research, JASRI

高橋 幸生

TAKAHASHI Yukio

石黒 志

ISHIGURO Nozomu

金子 房恵

KANEKO Fusae

岸本 浩通

KISHIMOTO Hiroyuki

松本 崇博

MATSUMOTO Takahiro

工藤 統吾

KUDO Togo

初井 宇記

HATSUI Takaki

為則 雄祐

TAMENORI Yusuke

336

2. ビームライン/BEAMLINES

微小結晶からの高精度/高効率データ収集に最適な測定条件を提案

Guidelines for Highly Accurate and Efficient Data Collection by Small-Wedge Synchrotron Crystallography

(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 構造生物学推進室

Structural Biology Division, Center for Synchrotron Radiation Research, JASRI

馬場 清喜

BABA Seiki

342

BL02B1 における単結晶構造解析測定への自動化に向けた開発の現状

Current Status of Development Toward Automation of Single Crystal Structure Analysis Measurement at BL02B1

(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

近畿大学 理工学部 理学科 化学コース

Department of Science, Faculty of Science and Engineering, Kindai University

中村 唯我

NAKAMURA Yuiga

杉本 邦久

SUGIMOTO Kumihisa

345

高エネルギーX線用多層膜分光器の設計と導入

Design and Installation of Double Multilayer Monochromators for High-Energy X-rays

(公財) 高輝度光科学研究センター ビームライン技術推進室

Beamline Division, JASRI

小山 貴久

KOYAMA Takahisa

大橋 治彦

OHASHI Haruhiko

349

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

第12回X線非弾性散乱国際会議 IXS2022 会議報告

Conference Report: The 12th International Conference on Inelastic X-ray Scattering (IXS2022)

(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 精密分光推進室

Precision Spectroscopy Division, Center for Synchrotron Radiation Research, JASRI

福井 宏之

FUKUI Hiroshi

354

第19回SPring-8産業利用報告会

The 19th Joint Conference on Industrial Applications of SPring-8

(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・産学連携推進室

Industrial Application and Partnership Division, Center for Synchrotron Radiation Research, JASRI

上原 康

UEHARA Yasushi

357

第6回SPring-8秋の学校を終えて

The 6th SPring-8 Autumn School

SPring-8 ユーザー協同体 (SPRUC) 行事幹事 (秋の学校担当) /

(国) 日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター

Materials Sciences Research Center, Japan Atomic Energy Agency

松村 大樹

MATSUMURA Dajū

361

SPring-8 シンポジウム 2022 報告

SPring-8 Symposium 2022 Report

SPring-8 ユーザー協同体 (SPRUC) 行事幹事/近畿大学 理工学部 理学科 化学コース

Department of Science, Faculty of Science and Engineering, Kindai University

杉本 邦久

SUGIMOTO Kumihisa

366

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

SPring-8 利用制度の変更について

The Renewal Points of the Proposal Systems at SPring-8

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

373

2023A 期 SPring-8 利用研究課題募集について

Call for 2023A SPring-8 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

375

第 49 回 (2022B) SPring-8 利用研究課題の採択について

The Proposals Approved for Beamtime in the 49th Research Term 2022B

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	376
--	-----

第 48 回共同利用期間 (2022A) において実施された SPring-8 利用研究課題

2022A 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	381
--	-----

2015 年度指定パートナーユーザー事後評価報告 - 2 -

Post-Project Review of Partner Users Designated in FY2015 -2-

(公財) 高輝度光科学研究センター 利用推進部 User Administration Division, JASRI	386
--	-----

2019 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 FY2019 -1-

(公財) 高輝度光科学研究センター 利用推進部 User Administration Division, JASRI	387
--	-----

2019A 期 採択長期利用課題の事後評価について - 3 -

Post-Project Review of Long-term Proposals Starting in 2019A -3-

(公財) 高輝度光科学研究センター 利用推進部 User Administration Division, JASRI	389
--	-----

2022A 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 2022A 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	390
--	-----

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	391
---	-----

論文発表の現状

Statistics on Publications Resulting from Work at SPring-8/SACLA

(公財) 高輝度光科学研究センター 利用推進部 User Administration Division, JASRI	394
--	-----

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	398
--	-----

2022A 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 2022A

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	423
--	-----

利用系活動報告

放射光利用研究基盤センター 回折・散乱推進室 粉末回折・全散乱チーム

Activity Reports - Powder Diffraction and Total Scattering Team, Diffraction and Scattering 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 回折・散乱推進室 Diffraction and Scattering Division, Center for Synchrotron Radiation Research, JASRI	肥後 祐司 HIGO Yuji	425
	尾原 幸治 OHARA Koji	
	河川 彰吾 KAWAGUCHI Shogo	
	河川 沙織 KAWAGUCHI Saori	

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) 四季報

SPRUC Communications

SPring-8 ユーザー協同体 (SPRUC) 会長/ 筑波大学 数理解物質系 エネルギー物質科学研究センター Faculty of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba	西堀 英治 NISHIBORI Eiji	430
--	-------------------------	-----

心理的安全性

— 安全・安心な JASRI を目指して —

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

我が国で安全・安心な社会を目指す取組みが始まってから久しいですが、安全と安心の違いについて、私は、安全＝客観的安全性＝物理的安全性、安心＝主観的安全性＝心理的安全性、という関係式で理解してきました。物理的安全性は定量的に評価できるのに対して、心理的安全性は定量的には評価できず漠然としていると思っていましたが、必ずしもそうではなく、「心理的安全性 (Psychological Safety)」という用語は、多くの学術記事で取り扱われていて、定義もしっかりしていることを最近知りました。心理的安全性に関して共鳴することが多々あり、JASRI における研究成果創出に資すると感じたので、以下に皆さんからの feedback を期待し、「心理的安全性」に関して紹介します。

心理的安全性を初めて提唱したのは、組織行動学の研究に取り組むハーバード大学のエイミー・エドモンソン教授¹⁾です。彼女は心理的安全性を「このチーム内では、対人関係上のリスクをとったとしても安心できるという共通の思い」と定義しました。分かり易く言えば、メンバー同士の会話でどのような発言をしたとしても、メンバーから嫌われたり、関係が崩れたりすることがなく、安心して自分の意見や考えを言える状態のことを言います。病院において投薬量のミスに気がつきながら黙認する、企業買収に疑問をもちながらも指摘せず失敗におわるなど、様々な事例で心理的安全性の重要性を提唱しました。心理的安全性が低い環境では、無知だと思われる不安、無能だと思われる不安、邪魔をしていると思われる不安、ネガティブだと思われる不安が大きいと言われています。私は、特に研究を行う職場が、このような心理的安全性が低い状態では、価値ある研究成果を創出することや、研究を楽しむことはできないと思います。

では、心理的安全性を高めるにはどうすれば良いのか？「心理的安全性のつくりかた」²⁾では、1. 何を言っても大丈夫だという「話しやすさ」、2. 困ったときはお互い様という「助け合い」、3. とりあえずやってみようという「チャレンジ精神」、4. 複眼的な視点を尊重する「新奇歓迎」、だと提案しています。私は大学時代の恩師である高良先生から、研究における Brain Storming (ブレスト) の大切さを教えられましたが、今から思い返すと上記の項目を満たす心理的安全性が高い環境の中で育てられたと感じます。

心理的安全性のメリットは、責任感や関心が芽生えやすい、パフォーマンスの向上が期待できる、スムーズな情報交換ができるようになる、イノベーションが生まれやすくなる、と言われています。ただし、心理的安全性向上を目指す上で注意すべき事は、何を言っても許される、失敗しても大丈夫といった過度な振る舞いや、馴れ合いに陥らないようにするリーダーシップが求められています。心理的安全性の前提には、相互信頼、相互尊重という各自の心の姿勢が必須だと思います。

心理的安全性を高めるにはどうすれば良いのか？という問いには正解はないと思いますが、是非、皆さんからのご意見・ご提案をお聞きしたいと思っています。

1) https://en.wikipedia.org/wiki/Amy_Edmondson

2) 石井遼介著 (2020)、日本能率協会マネジメントセンター

高圧下における SiO₂ ガラスの四面体構造変化のその場測定

愛媛大学 地球深部ダイナミクス研究センター

河野 義生

Abstract

SiO₂は地球に最もありふれた物質の一つであり、その液体・ガラスの構造と特性の理解は、地球内部におけるマグマの理解から、我々の日常で利用するガラス材料の理解など、様々な科学・技術分野において重要視されている。特に、SiO₂液体・ガラスは圧力下において異常な密度変化や圧縮率変化をすることが知られており、そのような SiO₂の特異な物性のメカニズムを理解することは、物理学、地球科学、材料科学などの幅広い学術分野における重要課題である。本研究では、SPring-8のBL05XU、BL37XU ビームラインにおける高強度の高エネルギーX線を活用することにより、高圧その場環境下において精確に SiO₂ガラスの構造を測定する手法を開発した。そして、得られた実験結果と逆モンテカルロ解析、分子動力学シミュレーションを組み合わせることにより、SiO₂ガラスにおける四面体構造の存在とその高圧下における崩壊を実験的に捉えることに成功した。

1. はじめに

四面体構造を持つ液体・非晶質物質は、高温もしくは高圧環境下において異常な特性を持つことが知られており、その構造的起源の理解は、物理学、化学、地球科学、材料科学などの多くの科学分野において重要な課題である。その最も有名な例が水の特異な性質であり、4°Cにおける密度の最大化や加圧時の粘性低下などの特異な性質が広く知られている。水と同様に、SiO₂液体においても、高温下での密度の最大化などの特異な性質の存在が知られており、さらに、SiO₂ガラスにおいても、高圧下における異常な圧縮率極大（体積弾性率極小）が圧力 2-3 GPa に存在することが知られている。このような SiO₂における異常特性のメカニズムの理解は、物理学のみならず、地球・惑星内部におけるケイ酸塩マグマの理解や、材料科学における酸化ガラス材料の特性の理解など、幅広い科学分野に関連する重要な未解明問題である。

SiO₂液体の理論研究において、Si 原子の第二層構造が SiO₂液体の異常特性を理解する上で重要であることが提案されている^[1,2]。SiO₂液体中の第二層構造における並進秩序を調べるためのパラメータとして、構造パラメータ z （ある Si 原子から 5 つ目に近い Si 原子までの距離と 4 つ目に近い O 原子までの距離の差を表すパラメータ）が提案されている^[2]。理論研究により、高温もしくは高圧下において、この構造パラ

メータ z が二峰性分布を示すことが明らかになり、SiO₂液体は二状態の構造変化をすることが提案されている。構造パラメータ z の二峰性分布は、それぞれ S 状態、 ρ 状態と名付けられ、低密度の S 状態は、近接の 4 つの Si 原子が四面体構造を成す構造を示しており、5 つ目に近い Si 原子は第一層の 4 つの Si 原子とは大きく離れた第二層に位置している。一方、高密度の ρ 状態では、Si 原子の第一層構造と第二層構造の分離が崩れ、第一層に 4 つ以上の Si 原子が存在することにより、四面体性が乱れた構造となっている。理論研究により、この高い四面体性を持つ S 状態の割合の変化が、SiO₂液体における高温高圧下での異常特性の要因であることが提案されている^[2]。しかしながら、このような Si 原子の第二層構造の変化は、SiO₂液体、SiO₂ガラスともに高温高圧下では実験的に捉えられていない問題があった。

近年、1 気圧下における非晶質物質の構造研究では、実験により得られた動径分布関数測定データを基に、分子動力学 (MD) シミュレーションと組み合わせた逆モンテカルロ (RMC) 解析による非晶質構造のモデリングにより、非晶質物質の構造の詳細な理解が進んできている。SiO₂ガラスにおいても、高圧高温処理後回収試料について、1 気圧下における動径分布関数測定による詳細な構造解析が報告されている^[3]。しかしながら、高圧高温処理後に回収した SiO₂ガラス試料

についての1気圧下での構造解析では、Siの第二層構造の並進秩序には顕著な変化は見られておらず³⁾、理論研究で示されたような構造パラメーター z の二峰性分布は得られていない。

我々は、高圧その場環境下におけるSiO₂ガラスの構造変化の詳細を理解することを目的とし、SPring-8のBL37XUビームライン、並びに高エネルギーX線利用のテストベンチとして整備されたBL05XUビームラインにおいて、高強度の高エネルギーX線を活用することにより、高圧下において精確にSiO₂ガラスの構造を測定する手法を開発した。そして、得られた実験結果について、MDシミュレーションと組み合わせたRMC解析(MD-RMC解析)を行うことにより、高圧下におけるSiO₂ガラスの構造情報を得ることに成功した⁴⁾。

2. 実験

高圧下その場におけるSiO₂ガラスの動径分布関数測定は、SPring-8のBL05XU、BL37XUビームラインにおいて、ポイント型検出器を用いたスキャン式のX線回折測定により行った(図1(a))。高圧実験装置には、パリ-エジンバラ型(PE)プレスを用いた。高圧下におけるガラスの構造測定のためにPEプレスを用いる理由として、(1)高圧実験で良く用いられているダイヤモンドアンビルセルよりも遥かに大きい試料を用いた高圧実験が可能である点、(2)高圧下での大容量試料合成や物性測定などに良く用いられる大型

のプレス装置(マルチアンビル装置、キュービックアンビル装置、など)と比べて、PEプレスは水平方向に幅広い開口角度を持つ点、が挙げられる。図1(b)に示すように、PEプレスは両側に水平方向120°の開口角度があるため、幅広い 2θ 角度でのX線回折測定が可能であり、高 Q 領域までの構造因子 $[S(Q)]$ の測定に適している。

PEプレスは、円盤型のPEセルを上下方向に1軸圧縮することにより圧力を発生させる装置である。図1(c)に本研究で使用した直径12mmのカップ型超硬アンビル用のPEセルの図を示す。超硬アンビル内部に位置するカップ部分はZrO₂からなる。一方、ガスケット部分については、水平方向からX線を入射してX線回折測定を行うために、X線の高い透過度が必要である。本研究では、X線吸収の少ない非晶質ボロンをエポキシ樹脂で固めたボロンエポキシ材と、MgOのリングをガスケットとして使用した。本研究で使用したSiO₂ガラス試料のサイズは直径2.5mm、高さ1.5mmであり、室温下において圧力6.0GPaまでの高圧実験を行った。

高圧下その場における非晶質物質の動径分布関数測定では、1気圧下の測定と異なり、試料周り的高圧実験セルや周辺環境からのバックグラウンドが大きな問題となる。そのため、そのようなバックグラウンドを遮蔽し、非晶質物質からの弱い散乱のみに焦点を当てた測定を行うことが重要である。本実験において、PEプレス装置内部に設置した試料は直径2.5mmの小さいサイズである一方、試料周りのPEセル構成物質は高圧下では約20mmもの直径になり、試料と比べて一桁近く大きいサイズになる。さらに、SiO₂ガラス試料からのX線散乱強度は、MgOなどの試料周りのPEセル構成物質からの散乱強度よりも弱いため、試料周りのPEセル構成物質からの散乱の影響を避けるためのコリメーションスリットが必要不可欠となる。我々は、スリット幅40 μ mのコリメーションスリットを、可能な限り試料直近位置となるように高圧プレスの開口部まで挿入することにより、 2θ 角度 = 2°の低角においても、入射X線サイズ50 μ m条件下でコリメーション長1.4mmの非常に限定された領域からの散乱のみを測定する高精度のコリメーションスリットシステムを開発した。そして、このコリメ

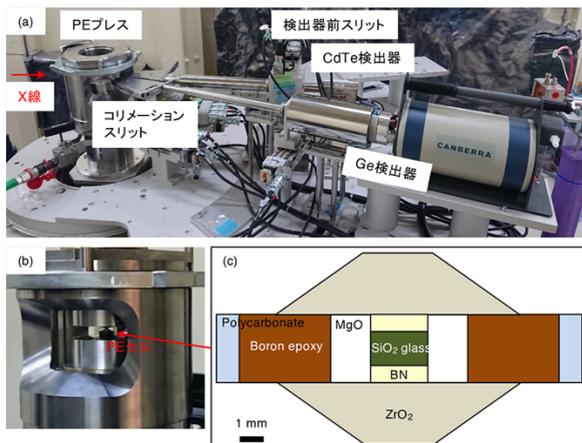


図1 (a)BL05XUビームラインにおける高圧下でのガラスの動径分布関数測定セットアップ。(b)高圧実験用のパリ-エジンバラ型(PE)プレス装置の水平方向からの写真。(c)SiO₂ガラスの高圧下動径分布関数測定に使用したPEセル。

ーションスリットシステムを用いることにより、PEセルや周囲からのバックグラウンドの影響を避け、SiO₂ ガラス試料のみからの散乱を正確に測定することに成功した。

実験は SPring-8 の BL37XU、BL05XU ビームラインで行った。BL37XU ビームラインでは、Si511-Si333 モノクロメーターによるエネルギー40.0 keV の単色 X 線 ($\Delta E/E = 1.8 \times 10^{-5}$) を用いた。試料に照射される光子数を増加させるために、水平方向についてはミラーを用いて 1 mm のビームを 0.2 mm に集光した。さらに、 $2\theta = 17^\circ$ 以下の低角領域においては、コリメーション長を試料直径以下にするために、プレス直前に設置したスリットにより入射 X 線幅を 0.1 mm に制限した。一方、BL05XU ビームラインでは、エネルギー40.3 keV のピンクビーム ($\Delta E/E = 1.7 \times 10^{-2}$) を使用した。BL05XU ビームラインの多層膜ミラーによる 1.7% の幅広いエネルギーバンド幅のピンクビームは、Si511-Si333 モノクロメーターによる単色 X 線よりも約 3 桁近く高い X 線フラックスである。BL05XU ビームラインの実験においても、プレス直前に設置したスリットでビームを制限することにより、BL37XU ビームラインでの実験と同じ 0.1-0.2 mm 幅の入射 X 線を使用した。

SiO₂ ガラスの動径分布関数測定は、ポイント型検出器を用いたスキャン式の X 線回折測定により行った。BL37XU ビームラインでは、 2θ 角度 1° - 60° 範囲、BL05XU ビームラインでは 2θ 角度 1° - 70° 範囲での測定を行うことにより、それぞれ Q 範囲 19 \AA^{-1} 、 20 \AA^{-1} までの高 Q 範囲にわたる $S(Q)$ を高圧下その場で測定することに成功した。

本稿で紹介する SiO₂ ガラスの実験は、高圧下におけるガラスの動径分布関数測定システムの開発初期段階で行ったため、測定条件の最適化には至っておらず、BL37XU ビームラインにおける単色 X 線と、BL05XU ビームラインにおけるピンクビームの違いによるガラスの動径分布関数測定への影響を考察することはできていない。一方、少なくともピンクビームを用いた BL05XU ビームラインの実験では、約 1/3 の短い測定時間 (BL05XU ビームラインでの測定時間: 55 分、BL37XU ビームラインでの測定時間: 168 分) で、より高 Q までの $S(Q)$ データを測定することが可能であった。

3. 高圧下における SiO₂ ガラスの構造変化

SiO₂ ガラスの $S(Q)$ 測定は、1 気圧から圧力 6.0 GPa までの高圧下において行った¹⁴⁾。図 2(a) に、代表例として、圧力 0 GPa、5.2 GPa で測定した SiO₂ ガラスの $S(Q)$ 結果を示す。SiO₂ ガラスの $S(Q)$ の高圧下における最も顕著な変化として、約 2.9 \AA^{-1} に新しいピークが出現する (図 2(a))。さらに、約 5 \AA^{-1} の第三ピークは、0 GPa では低 Q 側に肩を持つような形状をしているが、高圧下では一つの幅広いピークに変化する。

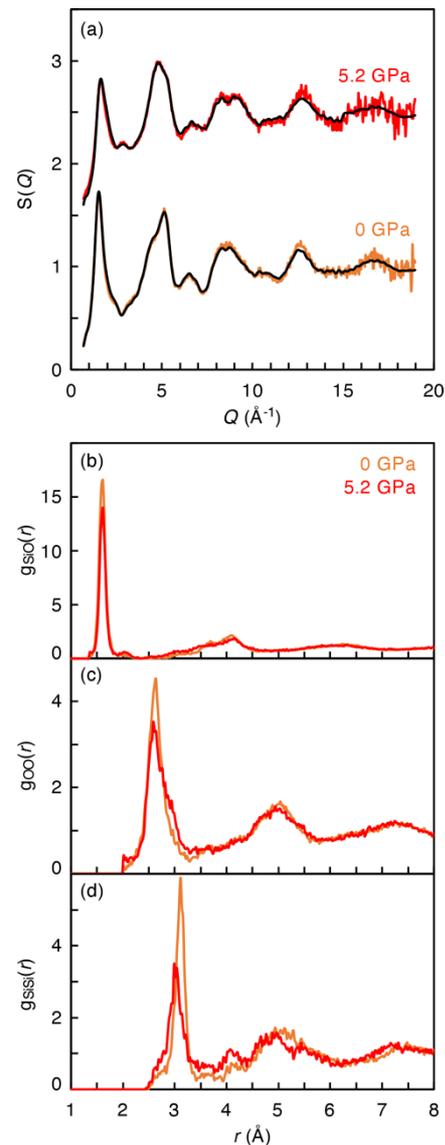


図 2 (a) 圧力 0 GPa (オレンジ線)、5.2 GPa (赤線) において測定した SiO₂ ガラスの構造因子 $S(Q)$ と、実験結果を基に MD-RMC 解析により構築した構造モデルの $S(Q)$ (黒線)。 (b, c, d) MD-RMC 解析により構築した構造モデルにおける Si-O [$g_{so}(r)$]、O-O [$g_{oo}(r)$]、Si-Si [$g_{ssi}(r)$] の部分動径分布関数。

高压下その場における実験により得られた $S(Q)$ 結果を基に、MD-RMC 解析により高压下における SiO_2 ガラスの構造モデルを構築した。図 2(a)の黒線は、それぞれの圧力条件下において、MD-RMC 解析により得られた構造モデルから計算した $S(Q)$ を示しており、実験により得られた $S(Q)$ 結果をよく再現する構造モデルを構築することに成功した。図 2(b)-2(d)には、圧力 0 GPa、5.2 GPa の構造モデルにおける Si-O [$g_{\text{SiO}}(r)$, 図 2(b)], O-O [$g_{\text{OO}}(r)$, 図 2(c)], Si-Si [$g_{\text{SiSi}}(r)$, 図 2(d)] の部分動径分布関数を示している。 $g_{\text{SiO}}(r)$ 、 $g_{\text{OO}}(r)$ については、圧力 0 GPa、5.2 GPa の間で大きな変化はなく、近接の Si-O、O-O 構造は変化していないことを示している。一方、 $g_{\text{SiSi}}(r)$ では圧力 0 GPa、5.2 GPa の間で明らかな違いが見られた。第一近接の Si-Si 距離は高压下において短くなっており、これは高压下における Si-O-Si 角度の減少を示していると考えられる。さらに、 $g_{\text{SiSi}}(r)$ において、約 3.5-6 Å の第二層構造に明らかな変化が見られた。理論研究^[2]において、 SiO_2 液体の高温高压下における構造変化の理解に、Si の第二層構造が重要であることが提案されており、 SiO_2 ガラスの高压下における構造変化においてもこの第二層構造の理解が重要であることが考えられる。

Shi and Tanaka (2018)^[2]において、Si の第二層構造における並進秩序を表すパラメータとして、構造パラメータ z が提案されている。構造パラメータ z は、ある Si 原子から 5 つ目に近い Si 原子までの距離と 4 つ目に近い O 原子までの距離の差を表すパラメータである。本研究では、この構造パラメータ z を用いた解析により、高压下における SiO_2 ガラス中の Si の第二層構造の並進秩序を調べた。図 3(c)に、圧力 0 GPa、5.2 GPa の実験結果を基に構築した構造モデルから得られた SiO_2 ガラス中の構造パラメータ z の分布を示す (実験+MD-RMC 解析)。さらに比較のため、圧力 0 GPa、5.2 GPa 条件下において、BKS ポテンシャルモデル^[6]を用いた MD シミュレーションから得られた構造についての解析結果も図 3(c)に示している。実験+MD-RMC 解析結果、BKS モデルによる MD シミュレーション結果とともに、圧力 0 GPa では $z = 2.4$ Å に単独のピークを持つ分布を示している。これは SiO_2 液体の理論研究により報告されている S 状態と同じ構造であり、近接の 4 つの Si 原子が

四面体構造を成し、5 つ目に近い Si 原子は第一層の 4 つの Si 原子とは大きく離れた位置に存在していることを表している (図 3(b))。

一方、圧力 5.2 GPa の高压下においては、 $z = 1.6$ - 1.7 Å の分布が増加し、二峰性分布を示すことが明らかになった (図 3(c))。実験+MD-RMC 解析により得られた圧力 5.2 GPa の結果は、圧力 0 GPa の結果と比べて、 $z = 1.6$ - 1.7 Å の分布が大きく増加し、それに伴い $z = 2.4$ Å の分布は低下する。同様の特徴は、MD シミュレーション結果でも得られており、 $z = 1.7$ Å に大きな分布を持つとともに、 $z = 2.4$ Å の分布は大きく低下し、二峰性分布を示している。この高压下において出現する $z = 1.6$ - 1.7 Å の構造は、Si 原子の第一層構造と第二層構造の分離が崩れ、5 つ目の Si 原子が第一層の 4 つの Si 原子と同じ位置まで接近することにより、四面体性が失われた乱れた構造となっている (図 3(a))。

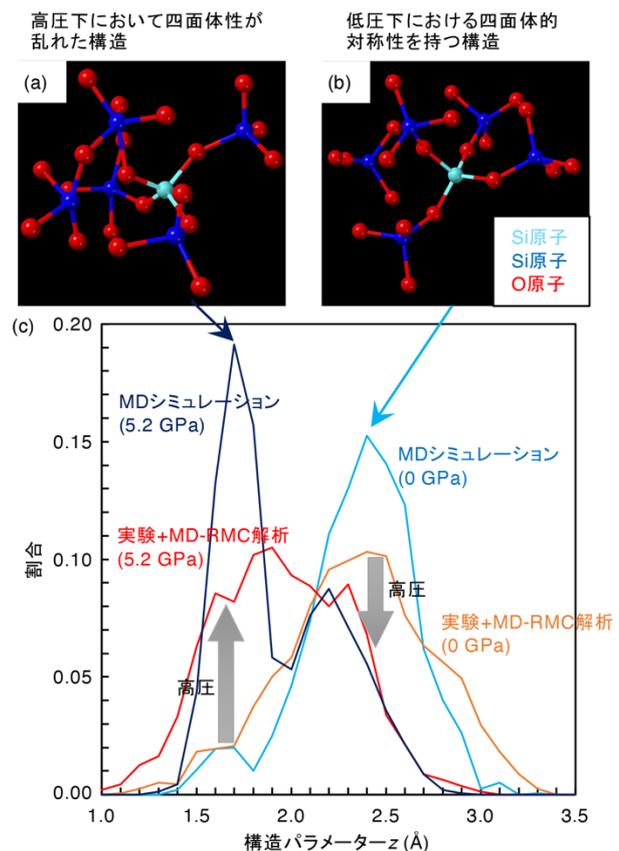


図 3 構造パラメータ z による SiO_2 ガラスの圧力 0 GPa、5.2 GPa における並進秩序の変化(c)と、 $z = 1.7$ Å (a)、 $z = 2.4$ Å (b)での構造的特徴。(a)、(b)では、水色で示した Si 原子から近接の 5 つの Si 原子を青色で示している。

本研究において、実験+MD-RMC 解析により得られた SiO₂ ガラスの高圧下における構造パラメーター z の二峰性分布は、SiO₂ 液体の理論研究による結果と調和的であり、SiO₂ ガラスで得られた $z=2.4 \text{ \AA}$ 、 $z=1.7 \text{ \AA}$ の構造は、SiO₂ 液体の理論研究^[2]で提案されている S 状態、 ρ 状態の構造と一致する。SiO₂ ガラスは、1 気圧から低圧下では主に四面体性の高い S 状態構造からなる一方、高圧下では四面体性が崩れ、S 状態構造の割合が大きく低下することが高圧下における SiO₂ ガラスの異常特性の構造的起源となっていると考えられる。

4. おわりに

本研究では、SPring-8 の BL05XU、BL37XU ビームラインにおいて、高強度の高エネルギー X 線を活用することにより、高圧その場環境下において精確に SiO₂ ガラスの構造を測定する手法を開発した。そして、高圧下で測定した $S(Q)$ 結果を、逆モンテカルロ解析、分子動力学シミュレーションと組み合わせることで、高圧その場環境下における SiO₂ ガラスの構造情報を得ることに成功し、SiO₂ ガラスに潜む四面体構造の存在とその高圧下における崩壊を実験的に捉えることに成功した。

SiO₂ ガラスの高圧下における異常特性のメカニズムの理解は、ガラス材料としての圧力下における構造と物性変化の理解のみならず、地球・惑星科学におけるケイ酸塩マグマのアナログ物質としての理解においても重要な問題である。本研究において、高圧その場環境下での SiO₂ ガラス中の四面体構造の変化を実験的に捉えることに成功したことは、これら問題の解明に向けた大きな一歩であると考えている。さらに今後、室温高圧下のみでなく、高圧かつ高温下における SiO₂ 液体やケイ酸塩液体においても同様の構造測定を行うことにより、SiO₂ 液体、ケイ酸塩液体の高圧高温下における異常特性（例えば、高圧下における圧縮の最大化、加圧時の異常粘性率低下^[6,7]、など）のメカニズムを理解し、地球・惑星内部のマグマの状態・挙動の理解に向けた研究への発展を考えている。

また、本研究で開発した実験手法は、幅広い科学・技術分野における液体・非晶質物質の構造研究に活用できると考えている。本研究では室温下での高圧実験

を目的としているため、PE セル内部にヒーターなどは設置しなかったが、グラファイトヒーターを PE セル内部に設置することにより、高圧かつ高温下での実験を行うことも可能である。我々のこれまでの研究において、直径 12 mm のカップ型超硬アンビルを用いた PE セル実験では、圧力最大約 7 GPa 条件下において、温度約 2000°C の範囲での高圧高温実験を確立しており^[8]、高圧高温下での液体の実験も数多く行っている。このような高圧高温実験技術と液体・非晶質物質の構造測定を組み合わせることにより、高圧高温下その場におけるガラスや液体の構造研究が大きく発展すると期待している。

謝辞

本研究は、尾原幸治博士、近藤望博士、山田大貴博士、廣井慧博士、則竹史哉博士、新田清文博士、関澤央輝博士、肥後祐司博士、丹下慶範博士、湯本博勝博士、小山貴久博士、山崎裕史博士、仙波泰徳博士、大橋治彦博士、後藤俊治博士、井上伊知郎博士、林雄二郎博士、玉作賢治博士、大坂泰斗博士、山田純平博士、矢橋牧名博士との共同研究です。本実験は、SPring-8 の BL05XU、BL37XU ビームラインにおいて行われました（課題番号：2019B1111、2020A0600）。本研究は、科研費（19KK0093、20H00201）と、SACLA/SPring-8 基盤開発の支援を受けて行われました。

参考文献

- [1] I. Saika-Voivod, F. Sciortino and P. H. Poole: *Phys. Rev. E* **63** (2000) 011202.
- [2] R. Shi and H. Tanaka: *Proc. Natl. Acad. Sci.* **115** (2018) 1980-1985.
- [3] Y. Onodera, S. Kohara, P. S. Salmon, A. Hirata, N. Nishiyama, *et al.*: *NPG Asia Materials* **12** (2020) 85.
- [4] Y. Kono, K. Ohara, N. M. Kondo, H. Yamada, S. Hiroi, *et al.*: *Nature Comm.* **13** (2022) 2292.
- [5] B. W. H. van Beest, G. J. Kramer and R. A. van Santen: *Phys. Rev. Lett.* **64** (1990) 1955.
- [6] T. Sakamaki, A. Suzuki, E. Ohtani, H. Terasaki, S. Urakawa, *et al.*: *Nature Geo.* **6** (2013) 1041-1044.

- [7] Y. Wang, T. Sakamaki, L. B. Skinner, Z. Jing, T. Yu, *et al.*:
Nature Comm. **5** (2014) 3241.
- [8] Y. Kono, C. Park, C. Kenney-Benson, G. Shen and Y.
Wang: *Phys. Earth Planet. Inter.* **228** (2014) 269-280.

河野 義生 *Yoshio Kono*

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 : 089-927-9658
e-mail : kono.yoshio.rj@ehime-u.ac.jp

(SPRUC 2022 Young Scientist Award 受賞 研究報告)

ユニークな XFEL モードの開発と高強度 X 線科学への応用

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
井上 伊知郎

Abstract

X 線自由電子レーザー (XFEL) の可能性を広げるために、我々は SACLA においてセルフシード XFEL や 2 色ダブルパルス XFEL などの新しい運転モードの開発やその応用研究に取り組んできた。本稿では、これらのユニークな運転モードの原理や光特性、および高強度 X 線科学への応用について紹介する。

1. 序論

Self-Amplified Spontaneous Emission (SASE) 方式に基づく X 線自由電子レーザー (X-ray free-electron laser; XFEL) の登場によって、超高速化学、物質科学、生命科学、非線形光学などの幅広い分野において顕著な成果が創出されている。一方で、可視光領域のレーザー光源の歴史を振り返ってみると、約 60 年前のレーザーの発明直後から短パルス・ブロードバンド・マルチパルス・高出力などの特性を持つレーザー光源が次々に開発され、その応用によって多くの新しい研究領域が開拓されてきたことは周知の事実である。X 線領域においても、高度なレーザー光源の実現は未踏のサイエンスへの駆動力となることが期待できる。

我々は時間間隔を制御できるダブルパルス XFEL^[1] や狭帯域 XFEL^[2]、ピンクビームとモノクロビームからなる 2 色発振 XFEL^[3] といったユニークな運転モードを考案し、SACLA において実現してきた。これらの XFEL モードは数多くの実験に供与され、非線形分光や量子光学効果の探索、特殊な X 線構造解析法などの特色ある実験を可能にしている。

本稿では、これらの運転モードを紹介すると共に著者らが行っている高強度 X 線科学への応用研究を紹介する。

2. セルフシード XFEL

SASE 型の XFEL では、自発放射光を種としてレーザー発振が起こるため、得られる XFEL の光子エネルギーの幅 ($\Delta E/E$) は 0.1%-1% 程度と比較的大きな値

になる。そのため、 $\Delta E/E$ が 0.01% 程度以下であることが望ましい実験手法 (広角散乱や各種の分光測定など) を行う場合には、XFEL を分光器によって単色化しなければならない。当然ながら、この単色化によって XFEL は強度の大部分を失ってしまう。

パルスあたりの光子数をできる限り保ったまま XFEL を狭帯域化する方法として、ダイヤモンド結晶を使ったセルフシード技術が約 10 年前に提案され^[4]、LCLS において実証実験が行われた^[5]。この方法ではアンジュレータを前半・後半 2 つのセクションに分け、その間に厚さ数 100 μm のダイヤモンドの薄結晶を設置して前半のアンジュレータから放射された XFEL を透過させる。このときダイヤモンドの方位を適切に調整すると、前方ブラッグ回折と呼ばれる現象によって、透過した XFEL から数 10 fs 程度遅れて $\Delta E/E$ が小さな wake pulse が生じる。磁場シケインを用いて電子ビームを迂回させ、後半部分のアンジュレータ中で wake pulse と電子ビームを時空間で重ね合わせることで SASE 方式の XFEL よりも光子エネルギー広がり小さな XFEL を発振させることができる。これは、後半のアンジュレータにおいて、光子エネルギー広がり小さな wake pulse からレーザー発振がスタートするためである。

著者らはよりシンプルなアプローチとして、Si のチャンネルカット結晶を用いた「反射型セルフシード法」を SACLA の BL3 において開発した (図 1)^[2]。この方法では、ダイヤモンドの薄結晶の代わりにチャンネルカット結晶におけるブラッグ反射によって前半のアンジュレータから放射された XFEL を単色化する。

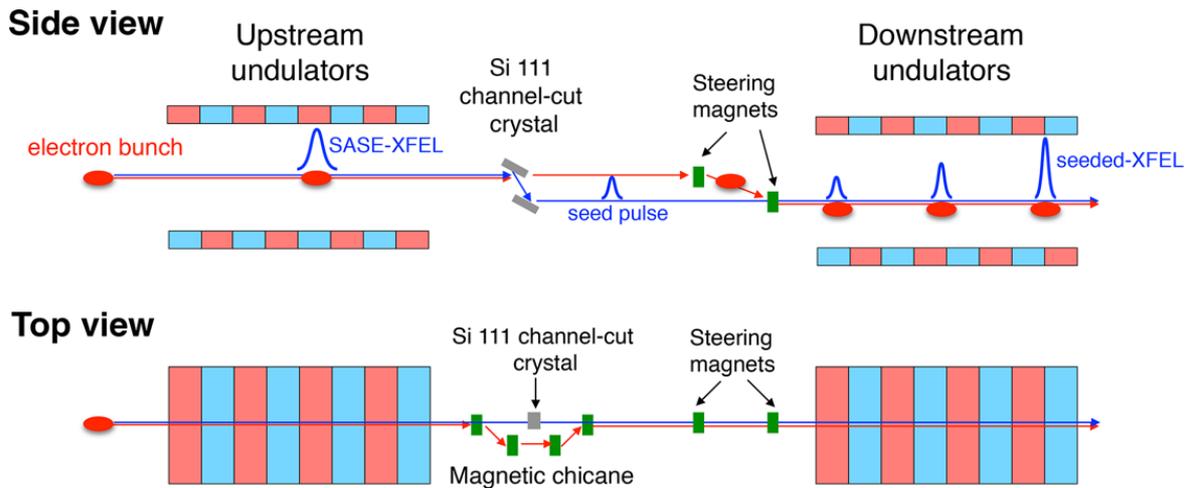


図1 SACLA BL3におけるセルフシード XFEL の発振方法の概略図。

そして、生成された単色光（シード光）から後半のアンジュレータでのレーザー増幅を開始させる。反射型セルフシード法は、透過型セルフシード法と比較して高効率にシード光を作り出すことができるという特徴があり、前半のアンジュレータ部で大強度の XFEL を放射させずとも十分な強度のシード光が生成できる（入射した XFEL の強度に対する生成されるシード光の強度の比は、透過型セルフシード法と比較して数倍から数 10 倍）。これによって、前半のアンジュレータ部で XFEL 放射に伴って起こる電子ビームの質の劣化（電子エネルギーの広がり）を抑制できるようになり、高強度な狭帯域 XFEL を発振させることが可能になる。

反射型セルフシード法を実現するためには、チャンネルカット結晶による光学的な遅延時間と磁場シケインを使って実現できる電子ビームの遅延時間とを同じにする必要がある。SACLA の場合、磁場シケインで実現できる電子ビームの遅延時間は最大 300 fs

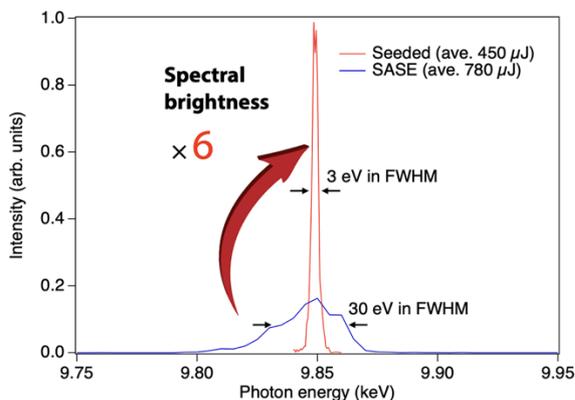


図2 通常の XFEL とセルフシード XFEL のスペクトルの比較。

程度である。一方で、ギャップが 10 mm 程度の通常のチャンネルカット結晶を用いると光学的な遅延時間は 10 ps 程度になり、電子ビームの遅延時間の最大量を大きく超えてしまう。この課題を解決するために、理研の大坂らを中心とした SACLA のチームは、ギャップがわずか 90 μm の Si(111) チャンネルカット分光器を制作し、光学遅延を 100 fs 程度に抑えることを実現した⁶⁾。

このマイクロチャンネルカット結晶と名付けたユニークな分光器を SACLA の磁場シケイン部分に設置し、2018 年の 1 月からコミッショニングを開始した。セルフシードの調整は非常に簡単で一回目のコミッショニングであっさり狭帯域 XFEL の発振に成功した。図 2 は、通常の XFEL とセルフシード XFEL の平均スペクトルを比較したものである。セルフシードによって通常の XFEL と比較して $\Delta E/E$ を約 10 分の 1 にすることに成功した。スペクトルのピーク値を比較するとセルフシード XFEL の値は SASE 型 XFEL の約 6 倍になっているが、これは反射型セルフシード法によって XFEL の輝度やスペクトル密度が約 6 倍になっていることを意味している。

3. 非線形な吸収現象を利用したセルフシード XFEL の短パルス化

SACLA におけるセルフシード XFEL は、既に多くの実験に用いられている。ここでは、応用研究の例として、非線形光学効果を利用したセルフシード XFEL の短パルス化について紹介する。

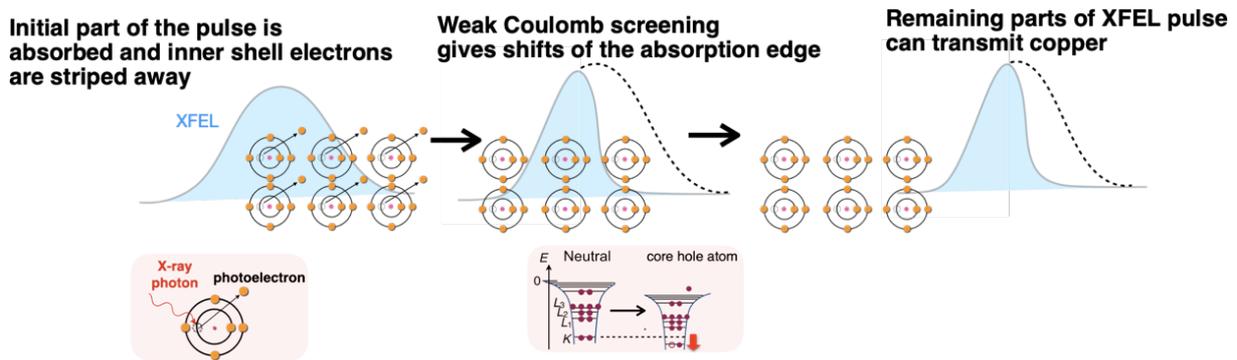


図3 ホロー原子を利用した XFEL の短パルス化のアイデア。

内殻電子の束縛エネルギー（吸収端）よりも光子エネルギーが大きな X 線が原子に照射されると、電離によって内殻に穴をもつホロー原子が生成される。このホロー原子では電気的な中性が取れておらず、原子核と電子が強くひきつけ合って吸収端がより高いエネルギーへシフトする。通常、内殻ホールはサブフェムト秒の時間スケールで埋まってしまう。しかし、 10^{19} W/cm² を超えるような非常に強い X 線強度のもとでは、物質中の大半の原子が X 線の照射中にホロー原子になる。

通常の原子とホロー原子の吸収端の違いを利用すれば、セルフシード XFEL を短パルス化することができる（図3）。そのためにはまず、XFEL の光子エネルギーが通常の状態とホロー原子の吸収端の間になるような原子を選ぶ。そして選んだ原子を含んだ物質に XFEL を入射する。するとパルスの前半部分は物質に吸収されてホロー原子が生成される一方で、後半部分はホロー原子が多く含まれるために X 線の吸収が減少する。これによってパルスの後半部分だけが選択的に物質を透過できるようになり、XFEL の時間幅が短くなる。

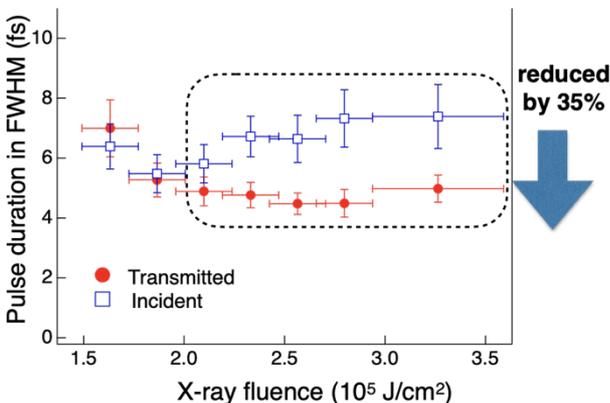


図4 銅の薄膜を透過前・透過後のセルフシード XFEL のパルス幅。

このアイデアをもとに、SACLA から出射された 9,000 keV の光子エネルギーのセルフシード XFEL の時間幅を短くすることを試みた⁷⁾。約 100 ナノメートルに集光した X 線パルスを厚さ 10 マイクロメートルの銅の薄膜に照射し、その透過光の時間幅を蛍光 X 線の強度相関計測⁸⁾によって測定した。その結果、フラックスが 2×10^5 J/cm² を超えるとパルス幅が 35% 程度短くなることが明らかになった（図4）。また、銅の薄膜を透過後のピーク強度は透過前の半分近くの値を保っており、強度を大きく損なうことなく XFEL のパルス幅を短縮できることが分かった。

詳細は他の文献^{7,9)}に譲るが、パルス幅短縮の程度は、使用する物質の厚みや XFEL の強度によって大きく変化させることができる。このホロー原子を利用したパルス幅の制御方法によって XFEL の時間幅を自在に制御することが可能になるほか、将来的にはアト秒の時間幅の XFEL を実現することが期待できる。

4. ダブルパルス XFEL

SACLA の BL3 では splitting undulator mode によって時間差を制御したダブルパルス XFEL を作り出すことができる¹¹⁾（図5）。この運転モードではアンジュレータを前半 8 台・後半 12 台に分割する。そして、前半と後半のアンジュレータギャップを異なった値にして、それぞれの区画で XFEL 発振を行うことによって波長の異なる 2 色の X 線パルスを作り出す。さらに 8 台目と 9 台目のアンジュレータの間にある磁場シケインによって電子ビームを迂回させることでダブルパルス間の時間間隔を変化させることができる。

SACLA では真空封止アンジュレータを採用しており、ギャップを広い範囲で変化させることができる。

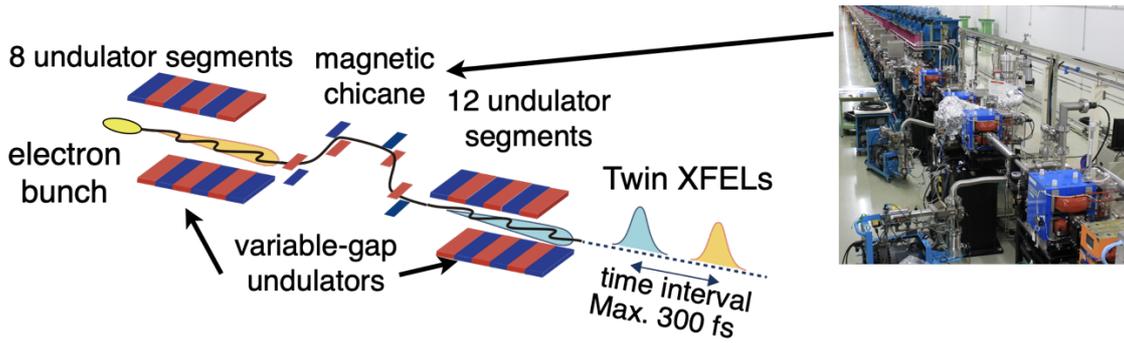


図5 SACLA BL3におけるダブルパルス XFEL の発振方法の概略図。

そのため、2色の波長を最大で30%程度異なった値にすることができる。また、ダブルパルスの時間間隔のショットごとのゆらぎは1 fs よりも小さく、XFELのパルス幅(5-7 fs)^[8,10,11]と比較して十分小さいため、ダブルパルスはほぼジッターフリーな光源とみなすことができる。

最近では、アンジュレータを3つのセクションに分けて、始めの2つのセクションで上記のセルフシードを行い、最後のセクションでSASE型XFELを発振させることで、広帯域XFELと狭帯域XFELからなるダブルパルスの生成にも成功している^[3]。

5. ダブルパルス XFEL を用いた X 線ポンプ・X 線プローブ実験

SACLA で開発されたダブルパルス XFEL は、非線形光学効果の探索^[12]や異常分散を利用した構造解析^[13]などに用いられている。ここでは、著者らが行っている、高強度 XFEL と物質との相互作用の研究について紹介する。

XFEL が試料に照射されると、フェムト秒の時間スケールで様々な試料の変化が生じる(図6)。まず、光電吸収によって原子のイオン化が起こって光電子が主に内殻から放出される。この励起状態を緩和するた

めに外殻の電子が内殻に移動し、その際に蛍光 X 線やオージェ電子が放出される。これらの光電子やオージェ電子がきっかけとなって、電子雪崩と呼ばれる急激な自由電子の放出現象が起こり、原子のイオン化が進行する。このような「電子系への X 線ダメージ」の後に、イオン化した原子間のクーロン反発力やイオン化による原子間のポテンシャルの変化によって起こる原子位置の変位、すなわち「構造への X 線ダメージ」が生じる。

Neutze らは XFEL のパルス幅を数フェムト秒以下にすればパルス照射中のこれらのダメージを低減できうることをシミュレーションによって示した^[14]。さらに彼らは、XFEL の光子密度を 200 photons/Å²まで高めることができれば(SACLA の XFEL パルスを 10 nm 程度に集光した場合に相当)、タンパク質を結晶化することなく構造解析できることを提唱している。XFEL の短いパルスの幅を活かすことでダメージを低減させて計測を行う方式は“measurement before destruction”(あるいは回折実験を想定して“diffraction before destruction”^[15])、と呼ばれ、このコンセプトに基づいて多くの実験が現在 XFEL 施設で行われている。

しかし、Neutze らのシミュレーションでは電子雪崩の影響やそれに伴う物質の電子状態の変化を考慮に入れておらず(おそらく当時の計算機能力の限界のため)、X 線が引き起こす物質の変化を過小評価している可能性がある。実は、この研究から約 25 年経った現在でも XFEL と物質との相互作用のシミュレーションを行うためには様々な近似や仮定によって計算量を現実的な値にまで抑える必要がある。そのため、XFEL によって“measurement before destruction”

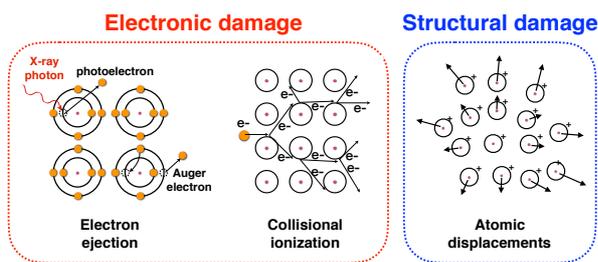


図6 XFEL の照射によって生じる物質へのダメージ。

が可能になる、ということとは自明ではない。

著者らは、ダブルパルスをそれぞれポンプ光・プローブ光として利用する「X線ポンプ・X線プローブ法」を開発し^[16]、XFEL 照射によって引き起こされる過渡的な物質の変化を観測してきた^[16-18]。以下ではその研究例として、ナノ集光した XFEL が照射された際のダイヤモンドの電子密度分布の時間変化について紹介する。

この研究では、ポンプ光として 200 nm のサイズに集光した光子エネルギーが 7.8 keV、パルスエネルギーが約 70 μ J、パルス幅が 6 fs の XFEL を用いてダイヤモンドを励起し、その時間変化を光子エネルギー 11.5 keV、パルス幅 6 fs のプローブ光による試料からの回折強度 (111, 220, 311, 400, 331 反射) を測定することで調べた (図 7)。図 8 は回折強度の指数間の相対値から multi-pole refinement によって求めた、原子変位と (110) 面の価電子の電子密度分布を示したものである (参考のためにダメージがない場合の電子密度分布も図に加えている)。この実験によって原子変位の増加はポンプ光照射後 20 fs までは生じないことが明らかになった。一方で、電子密度分布の変化は原子変位が生じる以前から顕在化している。例えば、ポンプ光照射後から約 10 fs 以降は、各原子の周りの価電子は等方的な分布をしている。このことは、化学結合が切断されていて各原子が周りの原子の影響をそれほど感じておらず、あたかも独立した原子のような状態になっていることを示唆している。詳細は文献^[17]で議論しているが、著者らはこれらの実験結果と理論シミュレーションによって、原子変位は電子励起がもたらす原子間ポテンシャルの変化が原因で生

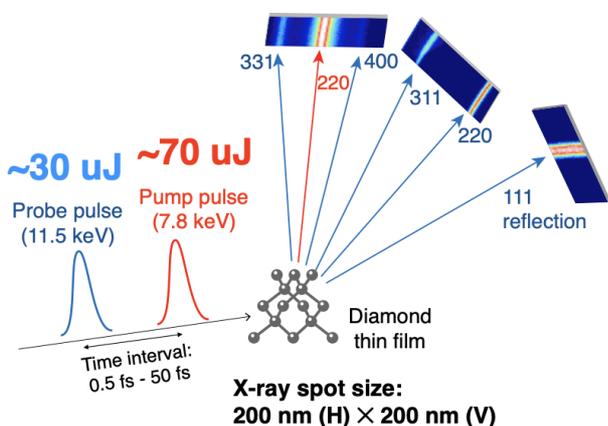


図7 ダイヤモンドのX線ポンプ・X線プローブ実験。

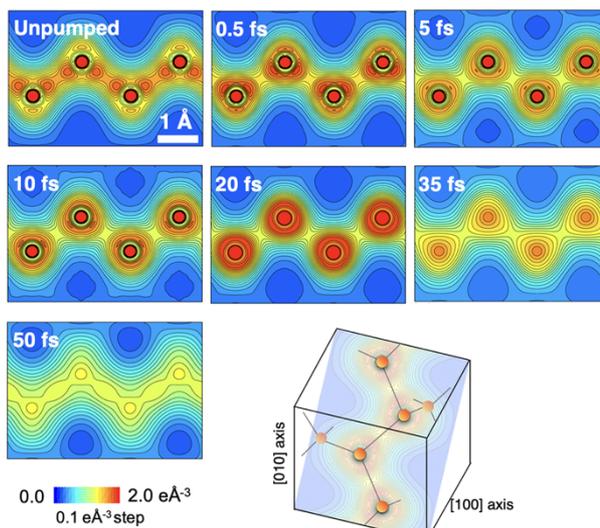
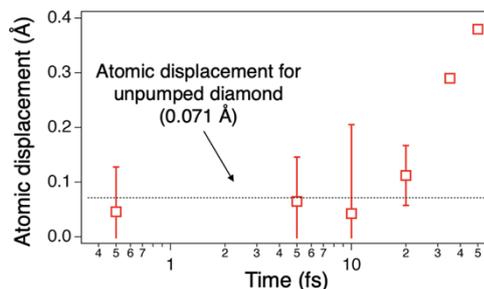


図8 ポンプ光を照射後の原子変位と価電子の電子密度分布の時間変化。

じるものであり、原子変位が起こり始める時間は電子励起の時間スケールによって決まっていることを主張している。実験結果で興味深い点は、遅延時間が 0.5 fs の場合の電子密度分布がダメージが生じていない場合と異なっていることである。この遅延時間は XFEL のパルス幅よりも十分に小さく、ポンプ光とプローブ光は時間的にほとんど重なっている。そのため、実験結果はポンプ光の照射中でも電子密度分布の変化が起こっていることを示している。このことは、ナノサイズに集光した高強度 XFEL を物質に照射した場合には、“measurement before destruction”が成り立っておらず、原子散乱因子がパルス幅内で変化していることを示唆している。著者らは、この回折強度の非線形性を生かすことで XFEL の短パルス化を実現する研究を最近行っており、近々論文を投稿予定である。

6. おわりに

本稿では、著者らが SACLA で行った光源技術やそ

の利用技術を掻い摘んで紹介した。XFEL が実現してから約 10 年が経過し、タンパク質の無損傷構造解析や光学レーザーポンプ・X線プローブといった一部の実験手法は、手法開発が一段落して徐々に汎用的な手法になりつつある。では、XFEL の光源技術や実験技術も定常運転に入りつつあるのだろうかと言えば、おそらくそうではないだろう。例えば、アト秒・zeptosecond のパルス幅の XFEL やシングルモードの XFEL を目指した研究は現在盛んに行われているし、今後 10 年程度は、間違いなく XFEL 光源は性能向上や多機能化に向けて様々な進歩をし続けるであろう。このように X 線科学が弛みなく発展していくなかで、今後も光学技術・光源技術開発を通じて X 線光源やその利用法の進化に貢献できるようチャレンジし続けたいと考えている。

謝辞

本稿で紹介した研究は、理化学研究所の矢橋牧名氏、大坂泰斗氏、山田純平氏 (現大阪大学)、田中均氏、原徹氏、田中隆次氏、渡川和晃氏、稲垣隆宏氏、後藤俊治氏、玉作賢治氏、石川哲也氏、JASRI の雨宮慶幸氏、登野健介氏、犬伏雄一氏、大和田成起氏、富樫格氏、大橋治彦氏、筑波大学の西堀英治教授、出口裕佳氏、笠井秀隆氏、ドイツ DESY の Beata Ziaja 教授、Victor Tkachenko 氏、Vladimir Lipp 氏、Zoltan Jurek 氏らを始めとする多くの研究者との共同研究によるものである。この場をお借りして感謝申し上げたい。

参考文献

- [1] T. Hara *et al.*: *Nature Commun.* **4** (2013) 2919.
- [2] I. Inoue *et al.*: *Nature Photon.* **13** (2019) 319-322.
- [3] I. Inoue *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **27** (2020) 1720-1724.
- [4] G. Geloni V. Kocharyan and E. Saldin: *J. Mod. Opt.* **58** (2011) 1391.
- [5] J. Amann *et al.*: *Nature Photon.* **6** (2012) 693-698.
- [6] T. Osaka *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **26** (2019) 1496-1502.
- [7] I. Inoue *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **127** (2021) 163903.
- [8] I. Inoue *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **26** (2019) 2050-2054.
- [9] H. Yoneda *et al.*: *Nature Commun.* **5** (2014) 5080.
- [10] Y. Inubushi *et al.*: *Appl. Sci.* **7** (2017) 584.
- [11] I. Inoue *et al.*: *Phys. Rev. Accel. Beams* **21** (2018) 080704.

- [12] H. Yoneda *et al.*: *Nature* **524** (2015) 446-449.
- [13] A. Gorel *et al.*: *Nature Commun.* **4** (2017) 1170.
- [14] R. Neutze *et al.*: *Nature* **406** (2000) 752-757.
- [15] H. N. Chapman, C. Caleman and N. Timneanu: *Phil. Trans. R. Soc. B* **369** (2014) 20130313.
- [16] I. Inoue *et al.*: *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **113** (2016) 1492-1497.
- [17] I. Inoue *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **126** (2021) 117403.
- [18] I. Inoue *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **128** (2022) 223203.

井上 伊知郎 INOUE Ichiro

(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 ext 9705
e-mail : inoue@spring8.or.jp

(SPRUC 2022 Young Scientist Award 受賞 研究報告)

放射光 X 線で照らす時計タンパク質 KaiC の概日振動メカニズム

自然科学研究機構 分子科学研究所

協奏分子システム研究センター 古池 美彦

Abstract

シアノバクテリアの概日時計は、時計タンパク質 KaiA、KaiB、KaiC によって構成される。ペースメーカーとして働く KaiC は、N 末端側の C1 ドメインにて ATP 加水分解反応を触媒して時計システム全体のペースを決定し、C 末端側の C2 ドメインではリン酸化・脱リン酸化によりサイクル反応を進行させる。C1 ドメインと C2 ドメインの間には、密接な連携メカニズムが存在すると長年考えられてきたが、リン酸化サイクル反応における C2 ドメインの構造変化の全容が解明されていなかったために、その仕組みは明らかになっていなかった。

SPRING-8 において構築した KaiC 結晶構造ライブラリーに基づき、リン酸化サイクル反応全体を原子分解能で可視化することによって、リン酸化部位の状態に依存して二次構造が転移するスイッチ機構を見出した。このリン酸化スイッチ機構は、C1 ドメインの ATP 加水分解反応によって生じる構造変化と連携していた。この 2 つのドメインにまたがって、それぞれのサイクル反応を統合するアロステリックな分子構造変化は、「概日周期をもった振動性」をはじめとする概日時計の機能に必須であった。

1. 原子スケールで時を刻むタンパク質、KaiC

地球の自転による 24 時間周期の環境変動に対応するため、生命は体内の計時システムを発達させ、細胞活動をリズムに制御している。これは概日時計と呼ばれ、時計遺伝子、時計タンパク質によって構成される。概日時計に関わる時計遺伝子がショウジョウバエで発見されて以降、シアノバクテリア、昆虫、植物、ヒトを含む哺乳類など、概日時計を支える生体分子が相次いで発見されている。

時計遺伝子が誘起する細胞活動の概日振動性は、転写-翻訳フィードバック機構によって説明がなされている。これは、細胞核内の時計遺伝子の転写-翻訳によって生成された時計タンパク質が、核外へと移動して他の関連因子との複合体形成・化学反応を通して状態変化し、核内に戻って自身の転写活性を抑制、しだいに時計タンパク質の濃度が低下するに伴い転写活性の抑制効果がおさまリ、ふたたび時計タンパク質の生成量が増加するという一連の振動メカニズムである。

研究の進展に伴い、転写-翻訳フィードバック機構の背後で実際に時刻情報を生み出す化学的基盤として、時計タンパク質の活性部位で進行する触媒

反応（リン酸化、脱リン酸化、ATP 加水分解など）が着目されはじめ、現在では時計タンパク質の動態研究とりわけ立体構造解析が主要な研究の舞台のひとつとなっている。

シアノバクテリアの概日時計^[1]は、時計タンパク質 KaiA、KaiB、KaiC によって駆動されている。2005 年には、これら 3 種のタンパク質と ATP（アデノシン三リン酸）を混合するだけで、24 時間周期の振動反応が試験管内で再現できることが明らかにされ、転写-翻訳フィードバックループに依存せずとも^[2]、時計タンパク質のみで概日振動を引き起こせることが実証された^[3]。以降、生化学、生物物理学、構造生物学にまたがる *in vitro* 実験が様々な角度から試みられ、KaiA-KaiB-KaiC の離合集散現象が、KaiC の ATP 加水分解反応および自己リン酸化・自己脱リン酸化反応によって指揮されていることが明らかにされてきた^[4-10]。

しかしながらペースメーカーとして働く KaiC の内部で、どのようなメカニズムが働き、時刻情報が生成されているかは謎に包まれたままであった。KaiC は、C1、C2 という 2 つのドメインによって構成され、ATP を結合して六量体を形成し機能する (図 1A)。C1 では ATP 加水分解反応 (C1-ATPase サイクル)

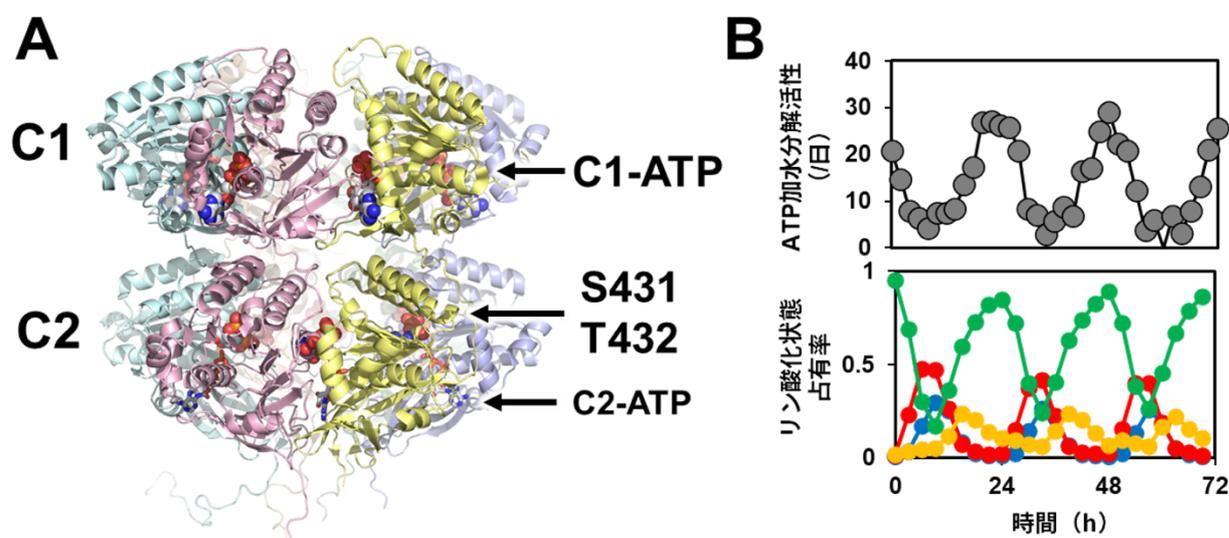


図1 時計タンパク質 KaiC の全体構造と ATP 加水分解活性およびリン酸化状態の概日振動
(A) KaiC 六量体の 2 つのドメイン (C1、C2) と基質 ATP およびリン酸化部位 (S431、T432) の配置、(B) ATP 加水分解活性およびリン酸化状態 (緑: KaiC-ST、赤: KaiC-SpT、青: KaiC-pSpT、黄: KaiC-pST) の振動。

が進行し、その反応速度により時計システム全体のペースが規定される^{5, 6)}。C2 では S431 と T432 という 2 つのアミノ酸残基が順にリン酸化・脱リン酸化されるサイクル反応 (C2-リン酸化サイクル) が進行し (ST → SpT → pSpT → pST → ST: S は S431、T は T432、p はリン酸化した状態を指す)、これにより KaiC の状態が 24 時間周期で変動する⁴⁾ (図 1B)。C1 と C2 のあいだには密接な連携があり、どちらか片方でも反応活性が損なわれると、KaiC は計時機能を失う。シアノバクテリア概日時計の中核を成すこの C1-C2 連携メカニズムは長年明らかにされてこなかった。

2. 時計タンパク質 KaiC の X 線結晶構造解析

KaiC がみせる「1 日」にわたる構造変化の全容を明らかにするためには、異なるリン酸化状態にある KaiC を調製する必要があった。あらかじめ溶液中でリン酸化状態をコントロールした KaiC 試料を用いて結晶化に取り組み、広範な条件探索の末、計 13 種類におよぶ KaiC 六量体構造を結晶中にて観察することができた。

SPring-8 BL44XU での回折実験で得られた 2.2-3.1 Å 分解能の電子密度マップに基づき、KaiC 六量体に含まれる全プロトマーのリン酸化状態を逐一同定した。その結果、本研究で構築した KaiC 構造ライブラリーには、六量体すべてが脱リン酸化した状態の

KaiC-ST、T432 を Glu に変異させて pT432 を模倣した KaiC-SpT (SE)、全てのリン酸化部位が修飾を受けた KaiC-pSpT、T432 が脱リン酸化した KaiC-pST が含まれており、C2-リン酸化サイクル全体をカバーすることができた。他にも、部分的に脱リン酸化が進行した KaiC 六量体 (KaiC-pSpT/pST や KaiC-pST/ST) も捉えられており、溶液中でみられる KaiC のリン酸化状態変化の特徴が再現されていた。

また同様に、C1 ドメインの活性部位の状態を判別したところ、ATP 加水分解反応の結果生じた生成物 ADP (アデノシン二リン酸) を結合している KaiC 六量体が構造ライブラリーに含まれていることが分かった。これは、C1 と C2 の 2 種類の反応サイクルにおける重要な反応ステップがはじめて同時に捉えられたことを示している。

3. KaiC を駆動する 2 つのドメインの連携メカニズム

KaiC 構造ライブラリーの詳細な観察の結果、C1-C2 連携メカニズムを支える 3 つの構造基盤を明らかにすることができた。

リン酸化部位である S431 と T432 は、C2 ドメインのプロトマー界面に位置している (図 1A)。その近傍に、リン酸化状態の変化に応じて二次構造が転移する領域が存在することがはじめて明らかとなった。KaiC-ST では、この領域はヘリックス構造をとってい

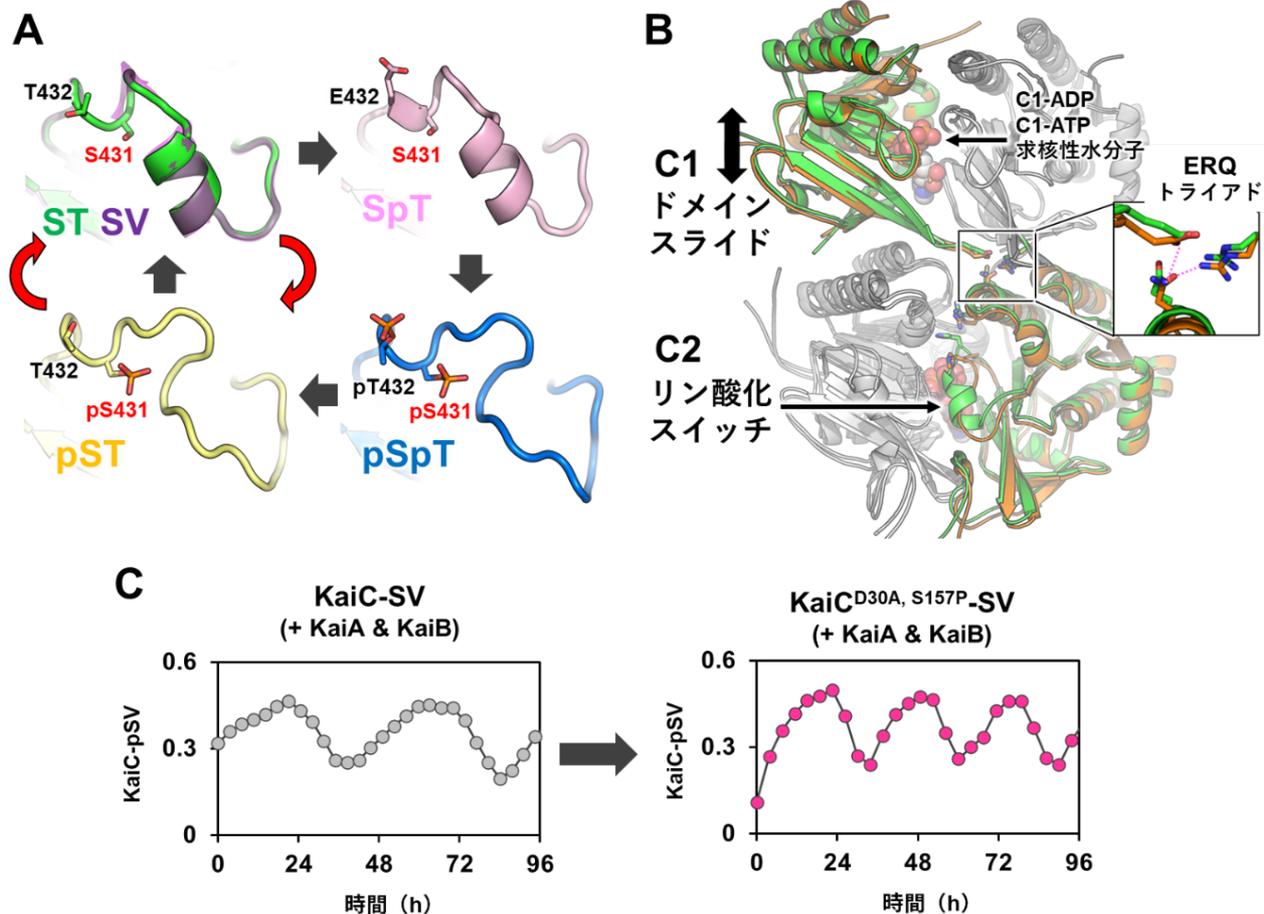


図2 KaiCの概日振動の根幹をなすC2-リン酸化サイクルとC1-ATPaseサイクルのあいだのアロステリックな連携(A)C2-リン酸化サイクルにともなうヘリックス構造-ほどけた構造の転移(緑: KaiC-ST、赤: KaiC-SpT、青: KaiC-pSpT、黄: KaiC-pST、紫: KaiC-STに重ねて描画したKaiC-SV)、野生型のKaiCは黒色の矢印に沿って4状態を経由するがKaiC-SVは赤色の矢印に沿って2状態のみを経由して概日振動を生み出す、(B)隣り合う2つのプロトマーを六量体の中心(リング内径)からみたときに見出されるC1-C2連携を生み出す構造的要素の配置(緑: C1-ATPと求核性水分子を結合したKaiC-ST、橙: C1-ADPを結合したKaiC-pST)、(C)S431単一リン酸化変異体(KaiC-SV)のKaiA、KaiB存在下での47時間周期振動(灰色)とATPase活性化変異によって短縮化された29時間周期振動(ピンク色)。

た(図2A)。このヘリックス構造は、T432のリン酸化の影響を受けず、KaiC-SpTにおいても同様に観察された。KaiC-pSpTでは、同じ領域に特定の二次構造は存在せず、ほどけた構造が見つかった。これはT432の脱リン酸化によって変化することはなく、KaiC-pSTでも同様のほどけた構造がみられた。このヘリックス構造-ほどけた構造の転移は、S431およびpS431の側鎖体積の違いや周辺との水素結合パターンの差異によって生じており、S431のリン酸化状態のみに依存して切り替わるスイッチ機構(C2-リン酸化スイッチ)として働くことが分かった。

生化学的に同定されていた4つのリン酸化状態(ST、

SpT、pSpT、pST)が2種類の構造に分類されるという結果は意外なものではあったが、このC2-リン酸化スイッチがC1とのドメイン間連携において重要な役割を果たすこともあわせて明らかになった(図2B)。C1は、プロトマー界面に結合している生成物ADP(C1-ADP)と新たな基質ATP(C1-ATP)の交換時に、隣り合うプロトマー間でドメイン全体が上下方向にシフトする構造変化(C1-ドメインスライド)を起こすこと、そしてC1-ドメインスライドがATP加水分解で反応物となる求核性水分子の配置と対応していることが判明した。

C2-リン酸化スイッチとC1-ドメインスライドの構

造変化は、水素結合の切り替え機構によって仲介されていた (図 2B 挿入図)。C2 に由来する中性の Q394 が、C1 ドメインに属する塩基性の R217 と酸性の E214 のあいだを行き来できるようにドメイン界面がデザインされていたのである (これら 3 つのアミノ酸残基をまとめて ERQ トライアドと名付けた)。

このように C1-C2 連携メカニズムは、たった 3 つの構造的要素、すなわち C2-リン酸化スイッチ、C1-ドメインスライド、ERQ トライアドによる仲介、によって単純化して記述できることが判明した。C1-ATPase サイクルは、ATP の結合、求核性水分子の配置、リン酸結合の開裂、ADP の解放、といった多数の素過程から成っている。C2-リン酸化サイクルについても、少なくとも 4 種のリン酸化状態が必須と考えられてきた。KaiC はこうした活性部位における化学反応をアロステリックな運動へと統合的に変換することで、分子全体のリズムミクな構造変化すなわち概日振動性を獲得しているのである。

4. S431 単一リン酸化変異体によって実証された KaiC 概日振動メカニズム

C2-リン酸化スイッチの発見は、KaiC がリン酸化主要 4 状態を経由せずとも、S431 のリン酸化状態変化のみによって KaiC が概日振動できる可能性を示していた。そこで、T432 を非リン酸化アミノ酸である Val に変異させた S431 単一リン酸化変異体 (KaiC-SV) を調製し、溶液条件中での検証を行った。KaiC-SV はリン酸化により KaiC-pSV となるが、KaiA および KaiB と混合したうえで、その存在比を電気泳動によって求めたところ、47 時間周期の振動がみられた (図 2C)。また概日スケールから逸脱して伸長した振動周期は、C1-ATPase サイクルの速度を操作することで再び短縮できた。ATP 加水分解活性を上昇させるアミノ酸変異 (D31A と S157P) を C1 ドメインに追加導入することで、振動周期は 29 時間周期になった。しかもこの変異体はシアノバクテリア細胞内でも機能することができた。これにより、C1 (ドメインスライド)-C2 (リン酸化スイッチ) 連動性に基づく S431 単一リン酸化変異体が、概日振動体として機能しうることが実証できた。

ヒト、昆虫、植物の時計タンパク質は、配列・構造

が異なるものの、いずれもが複数のリン酸化部位を有している。このリン酸化部位の複数性・多重性こそが概日振動を生み出す化学的基盤であるとする考えもある。しかし S431 単一リン酸化変異体が概日振動体として機能できるという事実は、個々の全てのリン酸化・脱リン酸化反応が等価に必須機能を担っているというよりは、時計タンパク質の全体構造の連動性のなかでそれぞれが異なる意義を有している可能性を示している。

5. 概日時計の時空間スケールと SPring-8/SACLA

本研究は、KaiC の 2 つのドメインそれぞれの反応サイクルを成す多数の素過程をできるだけ多く、X 線結晶構造解析によって捉えることを目標に開始した。その結果、KaiC の概日振動は原子スケールの機構で動作する C1-C2 連携メカニズムによって説明できた¹¹⁻¹³。この成果は、SPring-8/SACLA が幅広い時空間スケールの生命現象の解明に有力な性能を備えていることを示している。

SPring-8 では、進行速度をうまく制御した秒～分スケールのタンパク質結晶相反応の原子構造追跡研究や一分子回折計測研究が重ねられてきた実績があり、SACLA の供用開始以後には、フェムト秒スケール (10^{-15} 秒) に至るタンパク質の超高速動態研究が加速度的に進められている。一方で、概日時計のような 1 日 (10^5 秒) スケールで極端にゆっくり進行する生命現象の解明においても SPring-8/SACLA は有力であったように、放射光 X 線を用いた計測によって時間生物学をはじめとする長い時間スケールで進行する原子・分子構造変化の追跡研究が今後進展していくことが見込まれる。

謝辞

本研究は、分子科学研究所の向山厚助教、甲田信一助教、欧陽東彦博士、Damien SIMON 博士、秋山修志教授、斉藤真司教授、大阪大学蛋白質研究所の山下栄樹准教授、名古屋大学の伊藤 (三輪) 久美子特任助教、西脇 (大川) 妙子准教授、近藤孝男特別教授、立命館大学の寺内一姫教授との共同研究です。的確なご指導、有意義なご議論をいただきありがとうございます。

X線回折実験は、SPRING-8のBL44XUにおいて課題番号2017A6700、2017B6700、2018A6700、2018B6700、2019A6700、2019B6700、2020A6700、2020A6500、2017A6702、2017B6702、2018A6802、2018B6802、2019A6902、2019B6902、2020A6502のもとで行いました。BL44XUビームラインスタッフの皆さま、構造生物学ビームラインの関係者の皆さまにお礼を申し上げます。

また本研究は、科研費（17H06165、19K16061、18K06171）、AMED創薬等ライフサイエンス研究支援基盤事業（創薬等先端技術支援基盤プラットフォーム事業）JP20am0101072（support number 0583）等の支援を受けて実施しました。

参考文献

- [1] M. Ishiura *et al.*: *Science* **281** (1998) 1519-1523.
- [2] J. Tomita *et al.*: *Science* **307** (2005) 251-254.
- [3] M. Nakajima *et al.*: *Science* **308** (2005) 414-415.
- [4] T. Nishiwaki *et al.*: *EMBO J.* **26** (2007) 4029-4037.
- [5] K. Terauchi *et al.*: *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **104** (2007) 16377-16381.
- [6] S. Akiyama *et al.*: *Molecular Cell* **29** (2008) 703-716.
- [7] J. Abe *et al.*: *Science* **349** (2015) 312-316.
- [8] Y. Chang *et al.*: *Science* **349** (2015) 324-328.
- [9] R. Tseng *et al.*: *Science* **355** (2017) 1174-1180.
- [10] J. Snijder *et al.*: *Science* **355** (2017) 1181-1184.
- [11] Y. Furuike *et al.*: *Science Advances* **8** (2022) eabm8990.
- [12] Y. Furuike *et al.*: *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **355** (2022) e2119627119.
- [13] A. Mukaiyama *et al.*: *Biochem. J.* **479** (2022) 1505-1515.

古池 美彦 FURUIKE Yoshihiko

自然科学研究機構 分子科学研究所
協奏分子システム研究センター
総合研究大学院大学
〒444-8585 愛知県岡崎市明大寺町大字西郷中 39 番地
TEL : 0564-55-7336
e-mail : furuike@ims.ac.jp

2015 年度指定パートナーユーザー活動報告

構造用金属材料のマルチスケール高エネルギー4D イメージング・解析技術およびそのマルチモーダル化

九州大学 工学研究院 機械工学部門

戸田 裕之、藤原 比呂、WANG Yafei

SHARMA Bhupendra、XU Yuantao

京都大学 工学研究科 材料工学専攻 平山 恭介

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 散乱・イメージング推進室

竹内 晃久、上梶 真之、上杉 健太郎

岩手大学 理工学部 物理・材料理工学科 清水 一行

(1)

指定時PU課題番号/ビームライン	2015A0076/BL20XU											
PU氏名(所属)	戸田 裕之(九州大学)											
研究テーマ	構造材料の高エネルギー4D イメージング技術の完成およびそのX線回折との連成											
高度化	マイクロCTの多元イメージング化並びにマルチスケール化											
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	19A	19B	合計	
PU課題実施シフト数	38.875	35.5	35.625	29.625	32.875	29.375	35.875	26.5	26.875	32.75	323.875	
支援課題数	3	4	4	2	3	3	7	4	5	3	38	

(2) PU 活動概要

Abstract

X線トモグラフィー(以下、X線CT)は、産官学の材料研究・開発の場だけではなく、企業の製造現場などでもその高度な利用が進んでいる。空間分解能、時間分解能、密度分解能などの点で、その先端を行くのが放射光を用いたマイクロ・ナノトモグラフィーである。SPring-8の技術は、さらにそれらを金属材料のイメージングに応用できるような高エネルギーで実現できるところに先進性がある。しかし、これを単に3D/4D観察のための顕微鏡として利用するのでは、間尺に合わない。我々は、高度な画像解析を適用することで、マクロサイズの試料をカバーできる塑性歪みや化学成分などの局所3Dマッピングを実現した。さ

らに、解析を深めてGND・SSD転位密度、空孔濃度、水素濃度など、通常はX線CTでは可視化できないナノ構造の局所3D分布を得ている。また最近では、細束X線を用いた特徴的なXRD計測を組み合わせ、結晶方位、格子歪み、転位密度などの3D分布のマルチモーダルな計測も可能になっている。

1. はじめに

BL20XUは、X線CTなどによる高精細で安定した4D(4Dは、3D+時間軸)イメージングが利用できる、世界でもトップクラスの放射光イメージングのビームラインである。高速X線CTによる無中断その場観察、X線回折(以下、XRD)を応用した各種技法、幾つかの長さスケールをブリッジングする観察と形態・

空間分布などの定量解析、3D イメージベースシミュレーションなど、X線CTの利用・応用は、多岐にわたる。これらは、様々な分野で学術研究のブレークスルーに結びつきつつある。卓越した性能を有するSPring-8のX線CT装置に関しても、4Dイメージング周辺技術、先端実験技術、定量画像解析技術、画像応用解析技術などの開拓が進められている。SPring-8におけるX線CT技術は、4Dイメージングを行ってこそ、その真価を存分に発揮する。このような背景の下、パートナーユーザーとしてSPring-8スタッフと緊密に連携しながら、5年の長きにわたって上記3項目に関わるソフト・ハードの環境の整備に取り組んできた。表1には、パートナーユーザーとして取り組んだ研究目的と研究目標、技術課題をまとめた。

具体的な課題としては、①アルミニウムや鉄鋼、チタン合金、ニッケル合金などの構造用金属材料の組織変化や損傷・破壊挙動などがマルチスケールでその場観察できること、②そのための各種材料試験機（引張試験、疲労試験、クリープ試験など）が利用できること、③画像の高度な応用解析・処理ができること、④X線CTとXRDを組み合わせるなどして、マルチモーダル計測ができることが挙げられる。まず、①の高エネルギーイメージングに関しては、竹内などによるApodization フレネルゾーンプレートの実現が鍵となる^[22,23]。これにより2017年には20 keVで、そして2018年には30~37.7 keVでの結像型CTによる高分解能観察が可能になった^[22,23]。②のその場観察用の材料試験機に関しては、引張試験や疲労試験などの各種リグが試作され、その後も結像CTに合わせた軽量化などが行われ、変位保持精度が撮像系の空間分解能を上回るなど、実用レベルに達している^[22,23]。③の応

用画像解析・画像処理には、関心領域再構成、分散相のサイズ・形態・空間分布などの3D/4D定量解析技術、位相回復処理、レジストレーション、セグメンテーション処理、特徴点トラッキング、塑性歪みマッピング、応力解析、イメージベースシミュレーションモデル作成、大規模データの統計解析（リバース4D材料エンジニアリング：R4ME）などが含まれる。また、④のマルチモーダル計測では、数kgの重量がある4D観察用のリグ（材料試験機など）をマウントした状態で、ナノトモグラフィーの超高分解能を担保しながら（i.e., 回転中の偏芯量、面振れ量100 nm程度）、高速ラスタースキャンを行う特殊XRD計測に必要な高速回転（i.e., 100°/sec以上）が実現できる試料回転ステージの導入が鍵となった。それに加えて、ビームの細束化・高輝度化も重要である。前者に関しては、滑り軸受け式の試料回転ステージは、熱的な問題で安定性に欠けることが示された。最終的には、一般に摩擦損失や発熱が小さく高速向きと言われるエアベアリング式の試料回転ステージ^[22,23]を導入することで、上記諸条件をクリアしている。

5年間のパートナーユーザー期間には、「構造材料の高エネルギー4Dイメージング技術とその周辺解析技術の高度化、およびそのX線回折との連成」と題してこれら一連の課題に取り組み、計測・解析技術の完成、各種構造用金属材料の応用研究課題への適用とその結果のフィードバック、3Dその場観察を希望する多くの新ユーザーへの機器・ソフトウェアなどの貸与を含む技術指導、実験協力、研究指導などを行ってきた。

2. X線CTおよびXRD計測セットアップとその特徴
図1^[21]は、位相コントラストを利用した高エネルギー

表1 パートナーユーザーの研究目的とそれに対応する研究目標・技術課題など

研究目的	具体的目標	技術的課題	摘要
マルチスケール化	超高分解能⇔高分解能切替技術	高精度ステージ制御	ズームイン技術
	関心領域再構成技術	再構成アルゴリズム	
	XRD用高速回転ステージでの超高分解能観察実現	ステージ回転精度（CT）と高速回転（XRD）両立	XRD⇔X線CT援用
マルチモーダル化	XRD⇔X線CT対応技術	高精度位置合わせなど	
	歪み・転位・原子空孔換算	材料学的検討	ナノ欠陥間接可視化
	大情報量ナノ構造粗視化	3D画像定量化技術	ミクロ組織数増加対策

結像型 X 線 CT を中心に、従来からある投影型 X 線 CT、および細束 X 線を用いた XRD のセットアップを示す^[21-23]。これら 3 つのセットアップは BL20XU に併設され、各種デバイスやカメラ、ビームモニターなど、試料回転ステージ以外の構成物の光軸への出入りにより、数分で切り替えられる。つまり、1 本の試験片をセットした材料試験機を試料回転ステージ上にマウントし、外乱をかける前の初期状態から処理後・破断後などの最終状態まで、3 つのセットアップを適宜切り替えることで、それぞれ 5~30 回の計測を行うことができる。

投影型 X 線 CT では、通常、空間分解能は 1 μm 程度、視野幅は約 1 mm (オフセットスキャンではその数倍) である^[22,23]。母相と化学成分に差のない分散相があり、吸収コントラストで可視化できないような場合、若干の空間分解能の低下を伴う (2~4 μm) もの、長カメラ長でのイメージングと位相回復処理が組み合わされる^[3,22,23]。この位相回復処理により、密度差 1% 以下の第二相も明瞭に可視化・セグメンテーションされている^[3,22,23]。

一方、高エネルギー結像型 X 線 CT では、空間分解能の 1 桁向上、および Zernike 位相差顕微鏡の利用による高倍率・高エネルギーでのコントラスト低下の補正が可能である。これにより、やはり密度差 1% 程度以上の第二相が明瞭に可視化・セグメンテーションできる^[21-23]。BL20XU では、カメラ長を 165 m と他所では叶えられないレベルに設定できるため、倍率をかな

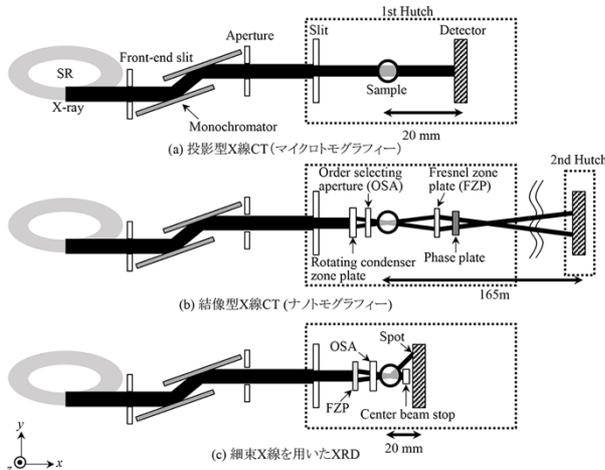


図 1 BL20XU に設置した投影型 X 線 CT、高エネルギー結像型 X 線 CT、および細束 X 線を用いた XRD のセットアップ^[21]。

り大きくすることができる。そのため、効率の良い検出器を選択できるというメリットがある。また、30 keV 以上のイメージングでは、当初一部の材料に対し、高分解能ではあるが低コントラストとなり、実用性が問題となった。このため、照明系の改良で S/N 比を上げるなどし、金属基地と密度差の乏しいマイクロ組織でも明瞭に可視化できるよう、改良が施されている。また、高エネルギー結像型 X 線 CT では、必然的に試料内部の一部分だけをイメージングする関心領域撮像になる。それによるアーティファクト対策も重要である。

図 2 に示す細束 X 線を用いた XRD では、試料を 1~10 μm ステップで上下左右にラスタースキャンしながら、各位置で試料を 180°ないし 360°回転させて XRD 図形を得る。典型的には、合計で数十万枚の XRD 図形を取得し、試料の全ての位置に全ての方向 (図 2 の ω) から細束ビームを当ててデータを取得する。多くの場合、合計 100 万個を越える回折斑点が記録され、全回折斑点の位置、サイズ、強度、拡がりなどのデータが解析される。この場合、カメラ長は数十 mm 程度である (近接場の XRD 計測)。これは、主として結晶方位や転位密度の計測に用いる。一方、カメラ長を数百 mm とし、試料位置は固定したまま高精度カメラ自体をラスタースキャンする遠隔場の XRD 計測も用いられる。得られたデータをラボに持ち帰った後、数十~100 枚以上の 2D 画像を繋ぎ合わせて 1 枚の XRD 図形を得ることで、格子歪みの精密計測などが可能になる。得られた格子歪みのデータからは、一つ一つの分散相の三軸内部応力が決定でき、3D 画像に写る各分散相と対応付けが可能である。当初は、特

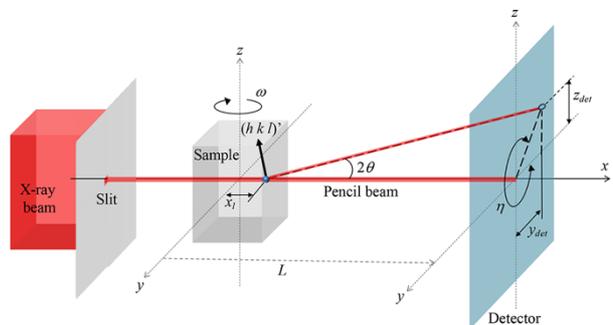
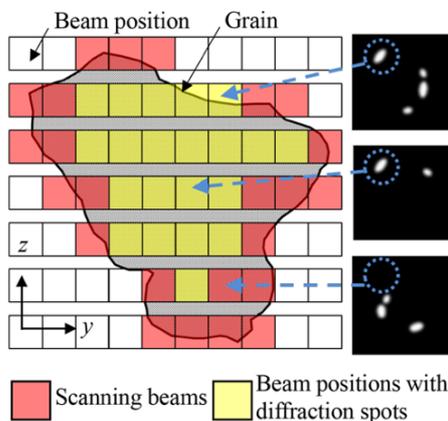


図 2 図 1(c) で示した細束 X 線を用いた XRD のセットアップの詳細図^[1]。2017 年以降は、スリットの代わりに FZP を用いて集光することでビームの細径化、高輝度化を図っている^[21]。

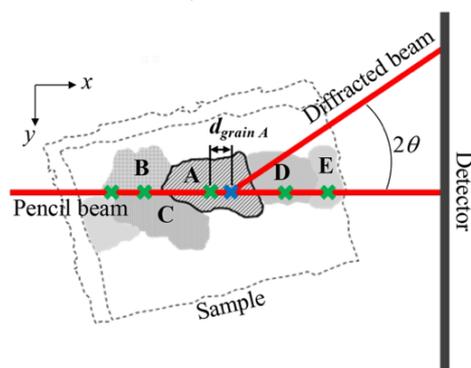
に検出器の縦方向移動でバックラッシュが数 10 μm ほど発生し、かつ往復移動した時の位置の再現性も低いといった深刻な問題があった。これらの対策として、定盤を下げることで高精細のステージを積載し、軽量なカメラを使用するとともに高剛性ステージを使用すること、バックラッシュを避ける移動シーケンスを検討することなどが実施され、現在ではこれらの問題は解決されている。

3. X線CTおよびXRD計測データの画像解析

図2のXRDの計測では、X線ビームのサイズ(幅と高さ)が結晶粒より大きい限り、ラスタースキャン



(a) XRD斑点とX線CT画像のマッチング: 検出器面内(図中では、 y - z 面内)



(b) XRD斑点とX線CT画像のマッチング: ビーム方向(図中では、 x 方向)

図3 図2で示した細束X線を用いたXRDで得られた回折斑点とX線CTなどで得られる結晶粒との対応を決定するためのXRD援用粒界追跡法(DAGT法)の概要^[2]。アルミニウムでは、結晶粒形状をガリウムによる粒界修飾で得るのに対し^[1]、鉄鋼材料では、位相コントラストによる^[21]。(a)の検出器面内では、特定の回折斑点の結晶粒内の持続性を、(b)のビーム方向では逆投影による位置をそれぞれ用い、対応する結晶粒と回折斑点を特定する。

時に縦・横方向に連続して同じ結晶粒、同じ回折面からの回折斑点が現れ続ける。一方、X線CTやその応用技法(GBT(Grain Boundary Tracking)法、DAGT(Diffraction Amalgamated Grain-boundary Tracking)法^[20]、位相コントラストによる第二相可視化など)により、各結晶粒の3D形態は、空間分解能0.1~数 μm 程度と高精細で得られる。そこで、図3に示すように、 x - y - z 三軸方向の情報を用いて個々の結晶粒と個々の回折斑点を対応付けることで、図4に示すように、個々の結晶粒の結晶方位を決定することができる^[1]、^[21]。また、結晶粒の不均一変形によって生じる結晶粒内部の局所結晶方位分布をも求めることができる^[1]。これは、通常、試験片表面や断面などに対してSEM-EBSD法で行われている結晶学的解析を3D/4Dへと拡張するものである。

特徴点追跡、塑性歪みマッピングの基礎は、連続的に取得した同一試料の3D画像をアフィン変換などにより精密に位置合わせ(レジストレーション)し、定量的な評価・解析ができるようにすることである^[21,22]。位置合わせが正確かどうかは、その後の4D画像解析

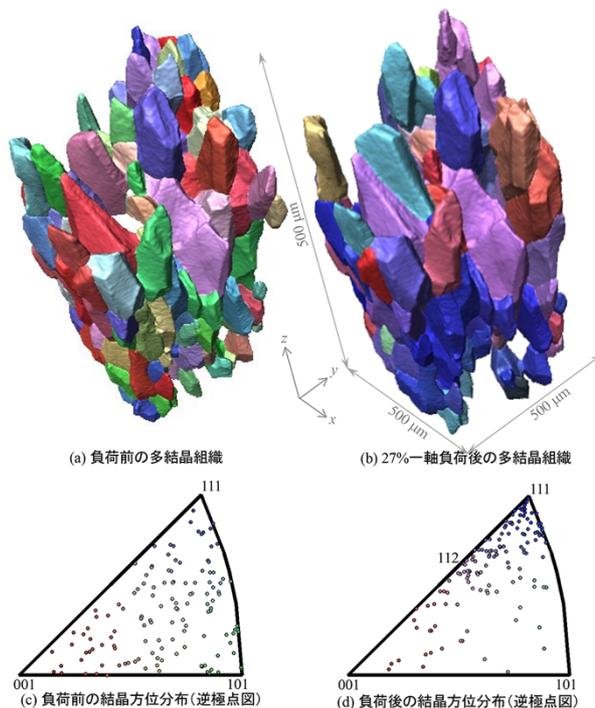


図4 図3の手法(DAGT法)で得られた引張試験前(左)と引張試験後(引張歪み27%負荷後)の多結晶組織(上段)^[1]。各結晶粒の方位を下の逆極点図の色で表示した:[111]配向が青、[001]配向が赤、[101]配向が緑。下段は、結晶方位分布を逆極点図上にプロットしたもの^[1]。

の成否を決める鍵となる。位置合わせ後、連続する 3D 画像内で粒子や欠陥など、同一の特徴点を見つけて対応させ、様々な力学的、材料組織学的情報を計算する。このような作業をトラッキングと呼ぶ。SPring-8 のシンクロトン放射光を用いたマイクロ・ナノトモグラフィでアルミニウムなどの構造用金属を観察すれば、往々にして試験片 1 本当たり数千～数十万個と非常に多くの粒子などを観察することができる。これらを正確にトラッキングできれば、高温暴露、変形・破壊、経時変化など、各種外乱下の力学量を 3D マッピングすることが可能となる。その基本となるのは、2 フレーム間の同一粒子のトラッキングであるが、詳細は、テキストに譲る^[21,22]。図 5 には、このようにして求めた Al-5.6Zn-2.6Mg-1.7Cu 合金の相当塑性歪み 3D 分布を示す。図 5 に示すように、相当塑性歪みから統計的に必要な転位 (SSD) や原子空孔濃度を、またその勾配から幾何学的に必要な転位 (GND) をそれぞれ 3D マッピングすることができる。ナノ構造の 3D 分布が薄膜や試料表面ではなく、材料試験片のようなバルクをカバーするようにして取得できるのは、この手法ならではの利点である。一方で、XRD データでは、回折斑点の拡がりから各結晶粒の平均的な転位密度を与えるため^[21]、複雑なトラッキング処理などを経ずに、各結晶粒の塑性変形挙動を簡便に評価することができる。

4. 特徴ある応用例の紹介

各種構造材料の疲労試験、引っ張り試験のその場観察において、必要に応じ、様々な他の先端分析計測手法をも援用した応用研究を行ってきた。主な応用例は、

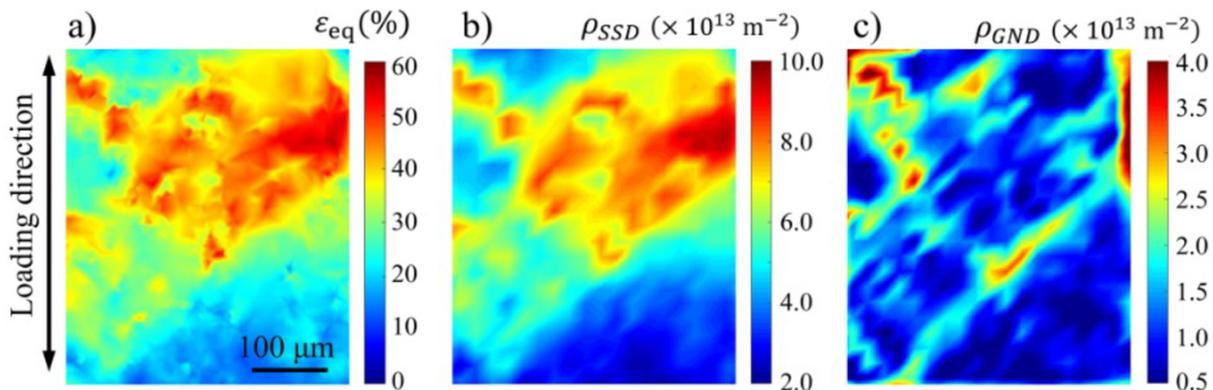


図 5 分散粒子のトラッキングによりアルミニウムの 3D 塑性歪み分布を求めたもの。仮想断面上のコンター図の形で示している^[1]。

チタン合金の疲労亀裂伝播 (DCT 法の適用、EBSD シリアルセクションングとの連成、および DAGT 法の適用)、鉄鋼材料の引張変形・相変態・破壊挙動 (DAGT 法の適用、およびそれら計測の高速化)、アルミニウム合金の応力腐食割れ・水素脆化の研究 (KFM、DCT、中性子 CT などとの連成) などである。アルミニウムや鉄鋼などに関する特定の研究テーマに関しては、結像型 CT+投影型 CT、投影型 CT+KFM、投影型 CT+中性子 CT、投影型 CT+結像型 CT+XRD など、同一の試料に対して X 線 CT を含む複数の技法を適用するマルチモーダル計測・解析を実施した。結像型 CT+XRD など、他のユーザーのニーズが予想されるものに関しては、マニュアル化も推進した。これらのうち、本報では、幾つかの応用例に絞って紹介する。

4.1. 準安定組織を有する鉄鋼材料の引張負荷下の変態挙動

マルチモーダル計測の例として、準安定の残留オーステナイト相を含む鉄鋼材料を引張試験した時に見られるオーステナイト相の相変態挙動^[21]を紹介する。この材料は、二相組織鋼である。オーステナイト相と母相 (フェライト) の密度差が 1.7% と小さいものの、オーステナイト相は、図 6 に示すように明瞭に可視化できている。一方で、オーステナイトが相変態してできるマルテンサイト相は、フェライト相と区別が付かなかった。ただし、パートナーユーザー期間の後、2022 年 4 月に実施した同種の実験では、S/N 比の向上によりマルテンサイト相もかろうじて可視化できている。この材料の破壊に際しては、オーステナイト相の加工誘起変態によるマルテンサイト相の生成、各

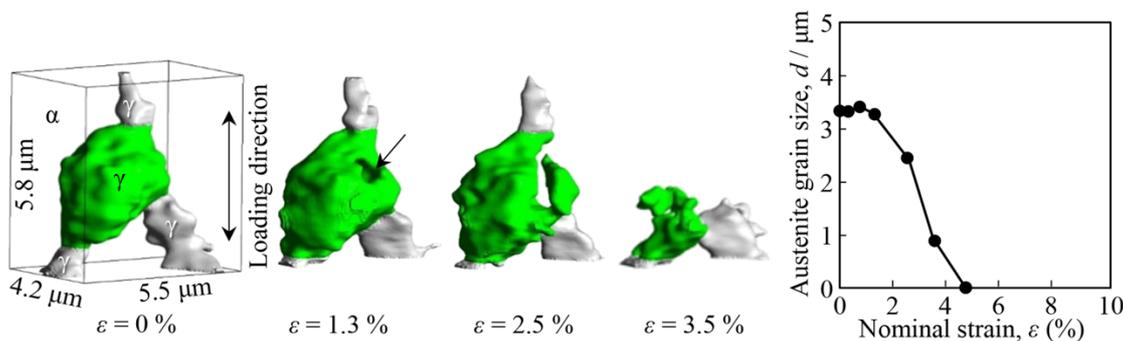


図6 (a) X線ナノトモグラフィーによる4D画像(特定のオーステナイト粒の変態による消滅挙動) (b) 左の緑色のオーステナイト粒の粒径(球相当直径)変化
 図6 図1(b)で示したX線ナノトモグラフィーを用いたオーステナイト粒の3D連続観察結果^[21]。(a)では、特定のオーステナイト粒(緑色)が負荷と共にマルテンサイトに変態して消滅する様子が分かる。ホームメードの画像解析ソフトを用い、サイズ変化を定量化したのが(b)。

相境界や介在物などからのボイド発生が相前後して複雑に生じる。ここでは、高分解能・高コントラストで3D像の連続取得が可能というX線CTの特徴を活かし、非常に可視化が難しい鉄鋼の二相組織の時間発展挙動を解明できた。

図6では、緑色でハイライトしたオーステナイト粒で相変態が局部的に始まり、徐々に進行する様子が明らかである^[21]。緑のオーステナイト相に接する3つの灰色の領域も同様にオーステナイト相であるが、こちらは先行して変態する緑色のオーステナイト粒との干渉効果により、かなり相変態が遅延することが分かる。

図7は、可視化できかつ方位が決定できた全58個のオーステナイト粒をその初期方位で分類し、それらの相変態挙動を見たものである^[21]。〈110〉方向が引張軸から15°以内にあるオーステナイト粒は迅速に相変態し、〈111〉方位に近いものは相変態の開始が特に遅く、その後もゆっくりと相変態している。これらは、

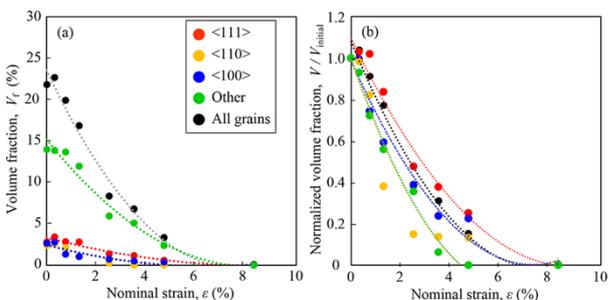


図7 観察できた全オーステナイト粒の変態挙動を初期方位別に分けたもの^[21]。(a)の体積率を初期体積率で除したのが(b)。指定方位が引張軸から15°以内にある結晶粒のデータを平均で表示している。

応力誘起変態機構から歪み誘起変態機構への遷移により説明することができた。相変態の中期～後期に支配的となる歪み誘起変態機構では、一般にシュミット因子が滑り変形の容易さを規定するとされる。図8は、58個のオーステナイト粒の引張変形中の回転挙動を逆極点図上で示したものである^[21]。オーステナイト相は、引張変形に伴い〈111〉方向に優先配向する引張集合組織を形成することはよく知られている。しかしながら、集合組織から離れる方向に大きく回転する結晶粒が見られること、シュミット因子が高い結晶粒で必ずしも優先的に相変態しないこと、むしろ引張変形中にシュミット因子が低くなる方向に回転するものも見られることなど、常識とは異なる興味深い挙動が見られる。これらの特異な挙動の多くは、隣接するフェライト粒ないしはオーステナイト粒、および特にオーステナイト相が相変態して生成する硬質なマルテンサイト相との干渉効果により生じることがこの研究で示された。

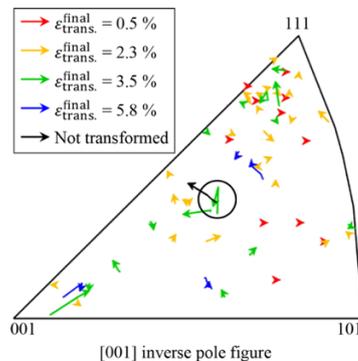


図8 観察できた全オーステナイト粒の引張変形中の方位変化^[21]。各オーステナイト粒が変態完了するまでの軌跡(方位回転挙動)を示している。

一方で、結晶方位に干渉効果なども加味して決定される各オーステナイト粒の転位密度と相変態には、良い相関が認められた。図9は、代表的な7つのオーステナイト粒の相変態挙動をそのサイズと転位密度変化の観点でまとめたものである^[21]。塑性変形が優先的に生じるオーステナイト粒では早期に相変態が生じ（図中、G1、G3、G6の3つのオーステナイト粒）、塑性変形が遅延するもの（同じく、G2、G4、G5）では、相変態も負荷後期まで遅延している。このうち、早期に塑性変形して相変態完了するG6粒は、塑性変形が乏しく相変態が遅延するG5粒、およびゆっくりとした塑性変形と相変態を呈するG7粒に隣接して存在することが、3D画像から確認できた。つまり、先行して変態するG6粒が早期に硬質なマルテンサイトとなり、力学的駆動力、シュミット因子とも高く、元々早期に相変態できるポテンシャルを持つG5粒、G7

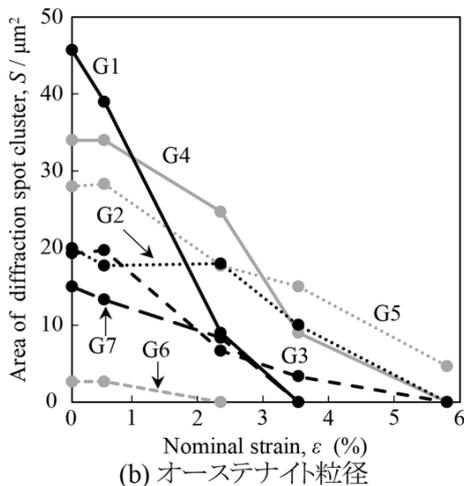
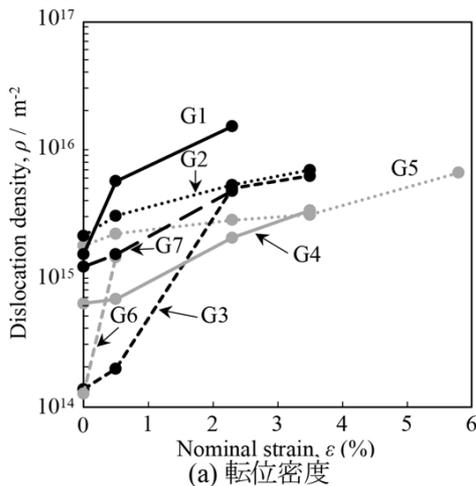


図9 観察できた全オーステナイト粒から代表的な7つのオーステナイト粒を抜き出し、その(a)転位密度と(b)サイズの変化を見たもの^[21]。

粒の変形を拘束し、それらの相変態を著しく遅延させていることになる。この研究により、個々のオーステナイト粒間の相互作用が直接可視化され、マイクロ組織設計の明瞭な指針が得られたとして、大学からプレスリリースもなされている（九州大学プレスリリース、「次世代自動車用鋼板の外力による内部組織の変化を直接観察」、2022年5月16日）

4.2. 高強度アルミニウム合金の水素脆化挙動

この研究では、水素が誘起する材料変形の局在化、擬へき開と称される結晶粒内の脆性破壊、および粒界破壊に焦点を当て、その起源の解明を目的とした。そのため、結像型X線CTを用いた高強度Al-Zn-Mg合金の変形破壊挙動のその場観察を行った。

図10は、粒界亀裂の先端付近を結像型X線CTで高分解能観察したものである^[10]。粒界亀裂、粒内の擬へき開亀裂とも、先端の開き量は、投影型X線CTの空間分解能レベル（1 μm）を大きく下回っている。亀裂先端の開き量は、亀裂先端開口変位（CTOD）と呼ばれ、弾塑性破壊力学では応力拡大係数やJ積分と同様に、亀裂の進展駆動力を表す物理量として取り扱われる。亀裂前縁に沿うCTODの3D分布を計測したのが図11である^[10]。粒界亀裂および擬へき開亀裂のCTOD値は、観察視野における平均で、それぞれ0.14 μmおよび0.23 μmであった。実用Al-Zn-Mg系合金（A7150合金）が延性破壊を呈する時の破壊靱性値がCTOD換算で68 μmであることを考えると、

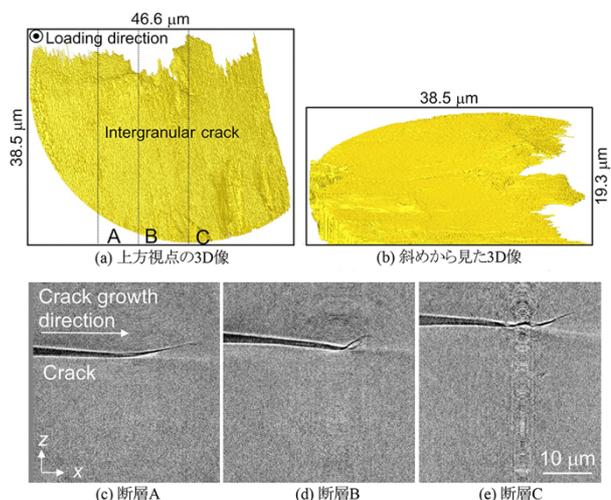


図10 Al-10.1Zn-1.2Mg合金の粒界亀裂先端付近を結像型X線CTで高分解能観察した例^[10]。

供試材料の擬へき開亀裂や粒界亀裂は、水素の影響を強く受けてそれよりはるかに小さな亀裂進展駆動力で進展する（つまり破壊抵抗が低い）ことがわかる。

また、擬へき開亀裂の発生と伝播に先立ち、顕著な塑性歪みの局在化が生じ、その変形局在化領域の中を水素脆化により発生した亀裂が進行することも特徴的である。この場合の塑性歪みの 3D マッピングは、図 5 で示した粒子トラッキングにより実施した。亀裂の開き量は、亀裂先端だけではなく、亀裂進展方向に沿う亀裂開口変位 (COD) のプロファイルとしても取得することもできる。これにより、亀裂先端の変位場の解析を行うことができる。一般に、弾塑性材料の単調荷重の場合、静止亀裂の場合には HRR 特異性が、また完全塑性体中の進展亀裂先端では RDS 特異性が成立するとされる。我々が COD の亀裂面に沿う分布を求め、応力特異場の解と比較した結果、粒界亀裂および擬へき開亀裂とも、亀裂先端のごく近傍では RDS 特異性に従うことがわかった^[10]。つまり、供試材の水

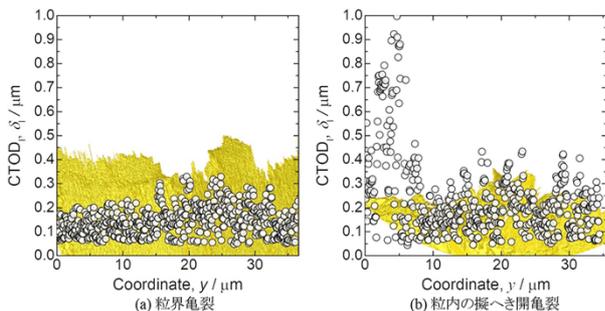


図 11 Al-10.1Zn-1.2Mg 合金の粒界亀裂・擬へき開亀裂先端付近の結像型 X 線 CT による高分解能画像 (黄色)、およびそれから直接計測した亀裂先端開口変位 (CTOD) の計測例^[10]。

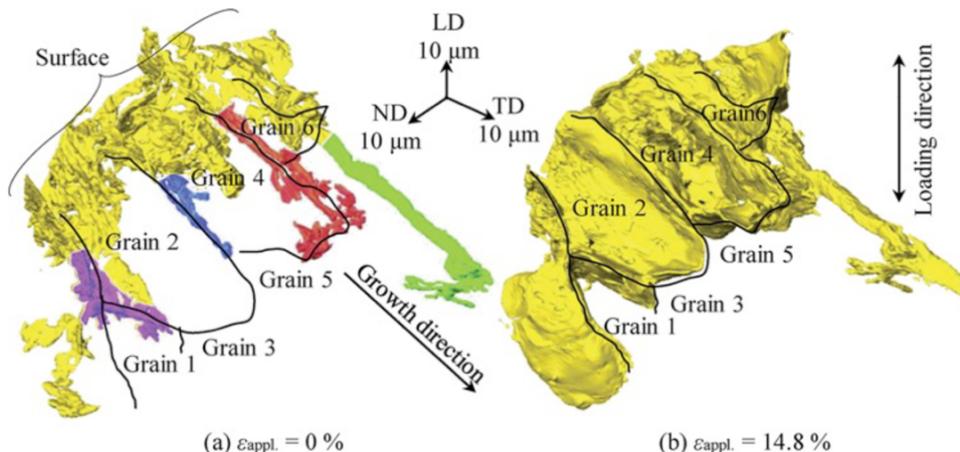


図 12 Al-10Mg 合金の粒界および粒内を通る応力腐食割れの結像型 X 線 CT による高分解能 3D 画像 (黄色)。黄色以外の領域は、主に腐食により先行して発生する粒界三重点に沿う腐食ピットを区別して表示したもの^[16]。

素脆化による亀裂は、小さな CTOD を呈する破壊抵抗が極めて低いものであるが、いわゆる脆性破壊とは異なり、限定的ではあるものの亀裂先端での塑性変形を伴うことが明らかになった。

結像 CT による高分解能観察を利用したズームイン・ズームアウト観察のもう一つの好適な例は、金属材料の局所的な腐食挙動の観察である。図 12 は、数十 μm 長さの応力腐食割れによる粒界亀裂とその進展挙動を結像型 CT で高分解能観察したものである^[16]。標点間が 1 mm 程度のサイズの試験片でこのような亀裂が 1~数個発生し、最終的にそれらが伝播することで試験片は破壊される。この場合の観察材料は、特に応力腐食割れ感受性の高い高 Mg 濃度を持つ Al-10Mg 合金である。一般に、応力腐食割れは、その発生までに長い時間を要するのが普通である。我々は、初期亀裂の発生が検知されるまで投影型 CT で試験片全体の観察を繰り返した。その後、一旦数 μm サイズの初期亀裂が検知されると、その領域にズームインして結像 CT での連続観察に切り替えた。これにより、通常は観察できない発生直後のミクロンレベルの損傷の発生・伝播挙動を評価することができた。

これら一連の研究は、ナノ～ミクロの破壊機構の解明のみには留まらず、定量的な局所破壊条件の提示とそれを利用した破壊防止手法の提案などに繋がり、プレスリリースにも繋がっている (九州大学プレスリリース、「高強度アルミニウム合金の破壊防止法を確立～そのさらなる高性能化、軽量化の実現に道～」、2022 年 2 月 9 日)。

5. 最後に

社会インフラの安全性向上と長寿命化、輸送用機械の効率化・軽量化による燃費向上など、構造用金属材料の課題は、依然として大きい。これらを実現するために、先端分析計測技術の開拓や SPring-8 などでの量子ビームの活用は、課題解決のための重要なツールとなり得る。本稿の主題である X 線 CT による 3D/4D イメージング技術に目を向けると、A) 高分解能 (X 線顕微鏡)、B) 高コントラスト (位相コントラストイメージング)、C) 高速、D) 高機能 (力学的歪み、き裂進展駆動力、化学成分、結晶方位、転位、原子空孔などの 3D/4D マッピングや、複雑挙動の大規模データ統計解析) が特に重要である。

ところで、「マルチスケール」という言葉は、今や人口に膾炙している。しかし、単に様々な機器を用い、幾つかのサイズスケールで別々に観察するだけのマルチスケールでは、その意義は乏しいと思われる。そのような場合、往々にして限られた領域のマイクロ構造をサンプリングしてそのサイズなどの平均情報を取得し、これとマクロ特性とが無理に関連付けられる。しかし、構造用金属材料では、直径 $1\ \mu\text{m}$ 以上に限っても、数十万個/ mm^3 の粒子や欠陥など、膨大な数のマイクロ構造が観察できる。それらの損傷・破壊挙動を X 線 CT で観察してみると、決して全粒子が一斉かつ一様に損傷・破壊する訳ではなく、ごく限られた数の、そして疲労破壊の場合にそうであるように、時としてただ 1 個のマイクロ構造 (粒子、欠陥など) がマクロ特性を支配する。その場合、サンプリング、平均化を旨とする従来の学術アプローチは、全く用をなさない。したがって、真に必要なのは、複雑な形態を有する膨大な数のマイクロ構造を全て観察、記録した上で、マクロ特性に直接大きく影響する、時として極めて限定された種類、性状、領域のマイクロ構造のみを特定し、マクロ特性との関係を解明することである。

上記 A) ~D) の基盤技術の確立により、表面、断面、薄膜などを 2D で分析し、サンプリング、平均化、単純化、抽象化を専らとする従来のアプローチから離れ、全体積、全時間、イメージベースを特徴とする 3D/4D のアプローチが可能になる。また、材料マイクロ・ナノ組織の最弱点とマクロ特性との関連付けによる複雑現象の解明や、最適組織の探索・材料組織設計

にまで繋げることができる。これまでの我々の活動により、材料内部の挙動を 4D 画像データとして克明に記録し、必要に応じてズームイン・ズームアウトしながら、同時に同じ試料に対し様々な高度な力学情報や材料学的情報の取得を試み、しかもそれらを局所的な 3D/4D 分布の形で得ることができるようになった。これこそが真のマルチスケールかつマルチモーダルの観察・計測と言える。これにより、ナノ〜マイクロ〜マクロの材料挙動を確度の高い実証性を持って理解する学術アプローチと学術方法論を確立できたと考えたい。

謝辞

パートナーユーザーとしての活動の一部は、SIP (戦略的イノベーション創造プログラム) 革新的構造材料研究開発計画 (2014~2018 年度、内閣府)、革新的新構造材料等研究開発 (2013~2022 年度、NEDO)、産学共創基礎基盤研究プログラム「革新的構造用金属材料創製を目指したヘテロ構造制御に基づく新指導原理の構築」(2014~2019 年度、JST)、科研費・基盤研究 (S) 「リバーズ 4D 材料エンジニアリングによる材料開発プロセス革新」(2012~2016 年度、JSPS)、CREST (戦略的創造研究推進事業) 「革新的力学機能材料の創出に向けたナノスケール動的挙動と力学特性機構の解明」(2019~2024 年度) の一環として実施した。これらを記して感謝する。

(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 = 30856

H. Toda *et al.*: “Diffraction-Amalgamated Grain Boundary Tracking for Mapping 3D Crystallographic Orientation and Strain Fields during Plastic Deformation” *Acta Materialia*, **107** (2016) 310-324.

[2] SPring-8 Publication ID = 30858

Md. Shahnewaz Bhuiyan *et al.*: “Influences of Hydrogen on Deformation and Fracture Behaviors of High Zn 7XXX Aluminum Alloys” *International Journal of*

- Fracture*, **200** (2016) 13-29.
- [3] SPring-8 Publication ID = 33809
H. Toda *et al.*: “Damage Micromechanisms in Dual-Phase Steel Investigated with Combined Phase- and Adsorption-Contrast Tomography” *Acta Materialia*, **126** (2017) 401-412.
- [4] SPring-8 Publication ID = 37120
M. Hassanipour *et al.*: “Short Crack Growth Behavior and its Transitional Interaction with 3D Microstructure in Ti-6Al-4V” *Materials Science and Engineering A*, **738** (2018) 229-237.
- [5] SPring-8 Publication ID = 39043
K. Hirayama *et al.*: “Influence of Hydrogen on Stress Corrosion Cracking Behavior in Al-10Mg Alloy” *軽金属 (Journal of Japan Institute of Light Metals)*, **69** (2019) 223-227.
- [6] SPring-8 Publication ID = 39044
H. Fujihara *et al.*: “Hydrogen Desorption Behavior in Al-8%Zn-1%Mg Alloy” *軽金属 (Journal of Japan Institute of Light Metals)*, **69** (2019) 186-193.
- [7] SPring-8 Publication ID = 39045
M. Hassanipour *et al.*: “Assessment of Predominant Microstructural Features Controlling 3D Short Crack Growth Behavior via a Surrogate Approach in Ti-6Al-4V” *Materials Science and Engineering: A*, **751** (2019) 351-362.
- [8] SPring-8 Publication ID = 39046
M. Hassanipour *et al.*: “Effects of 3D Microstructural Distribution on Short Crack Growth Behavior in Two Bimodal Ti-6Al-4V Alloys” *Materials Science and Engineering: A*, **766** (2019) 138264.
- [9] SPring-8 Publication ID = 39047
K. Shimizu *et al.*: “Hydrogen Partitioning Behavior and Related Hydrogen Embrittlement in Al-Zn-Mg Alloys” *Engineering Fracture Mechanics*, **216** (2019) 106503.
- [10] SPring-8 Publication ID = 39048
K. Shimizu *et al.*: “Local Deformation and Fracture Behavior of High-Strength Aluminum Alloys Under Hydrogen Influence” *Metallurgical and Materials Transactions A: Physical Metallurgy and Materials Science*, **51** (2020) 1-19.
- [11] SPring-8 Publication ID = 39093
H. Toda *et al.*: “Optimization of Mechanical Properties in Aluminum Alloys via Hydrogen Partitioning Control” *鉄と鋼 (Tetsu to Hagane)*, **105** (2019) 240-253.
- [12] SPring-8 Publication ID = 40604
K. Shimizu *et al.*: “Damage Behavior of Al-7%Si Alloys with Refined Eutectic Silicon Particles due to Reduced Phosphor” *铸造工学 (Journal of Japanese Foundry Engineering Society)*, **89** (2017) 239-245.
- [13] SPring-8 Publication ID = 40606
S. Lee *et al.*: “Precipitation Structure and Mechanical Properties on Peak-Aged Al-Zn-Mg Alloys Including Different with Some Zn/Mg Ratios” *軽金属 (Journal of Japan Institute of Light Metals)*, **67** (2017) 162-167.
- [14] SPring-8 Publication ID = 40679
K. Shimizu *et al.*: “Influence of Nanovoids in the Hydrogen Embrittlement Fracture of Al-Zn-Mg-Cu Alloys” *Materialia*, **11** (2020) 100667.
- [15] SPring-8 Publication ID = 41803
V. Tubei *et al.*: “3D short fatigue crack closure behavior in Ti-6Al-4V alloy investigated using in-situ high resolution synchrotron X-ray tomography” *Engineering Fracture Mechanics*, **249** (2021) 107755.
- [16] SPring-8 Publication ID = 41805
K. Hirayama *et al.*: “Damage micromechanisms of stress corrosion cracking in Al-Mg alloy with high magnesium content” *Corrosion Science*, **184** (2021) 109343.
- [17] SPring-8 Publication ID = 41806
H. Toda *et al.*: “Recent Progress and Technological Trends in X-ray Computed Tomography” *ふえらむ (Bulletin of the Iron and Steel Institute of Japan)*, **25** (2020) 666-674.
- [18] SPring-8 Publication ID = 41814
T. Tsuru *et al.*: “Hydrogen-accelerated spontaneous microcracking in high-strength aluminium alloys” *Scientific Reports*, **10** (2020) 1998.
- [19] SPring-8 Publication ID = 42115
H. Fujihara *et al.*: “Assessment of Hydrogen Accumulation Behavior in Al-Zn-Mg Alloy under Strain with Kelvin Force Microscopy” *Materials Transactions*, **62** (2021) 636-641.
- [20] SPring-8 Publication ID = 44180
K. Hirayama *et al.*: “Crystallographic Analysis of Hydrogen Embrittlement Behavior in Aluminum Alloy Using Diffraction Contrast Tomography” *Materials Transactions*, **63** (2022) 586-591
- [21] SPring-8 Publication ID = 44182.
H. Toda *et al.*: “Multimodal assessment of mechanically induced transformation in metastable multi-phase steel using

X-ray nano-tomography and pencil-beam diffraction tomography” *Acta Materialia*, **234** (2022) 117956.

単行本 (一部)

[22] SPring-8 Publication ID = 40605

戸田 裕之: “X線CT: 産業・理工学でのトモグラフィー実践活用”, (共立出版, 2019).

[23] SPring-8 Publication ID = 42117

H. Toda: “X-Ray CT: Hardware and Software Techniques”, (Springer, 2021).

戸田 裕之 *TODA Hiroyuki*

九州大学 工学研究院 機械工学部門
〒819-0395 福岡県福岡市西区元岡 744
TEL : 092-802-3246
e-mail : toda@mech.kyushu-u.ac.jp

藤原 比呂 *FUJIHARA Hiro*

九州大学 工学研究院 機械工学部門
〒819-0395 福岡県福岡市西区元岡 744
TEL : 092-802-3215
e-mail : fujihara@mech.kyushu-u.ac.jp

WANG Yafei

九州大学 工学研究院 機械工学部門
〒819-0395 福岡県福岡市西区元岡 744
TEL : 092-802-3288
e-mail : wang.yafei.626@m.kyushu-u.ac.jp

SHARMA Bhupendra

九州大学 工学研究院 機械工学部門
〒819-0395 福岡県福岡市西区元岡 744
TEL : 092-802-3288
e-mail : sharma.bhupendra.464@m.kyushu-u.ac.jp

XU Yuantao

九州大学 工学研究院 機械工学部門
〒819-0395 福岡県福岡市西区元岡 744
TEL : 092-802-3288
e-mail : xu.yuantao.158@m.kyushu-u.ac.jp

平山 恭介 *HIRAYAMA Kyosuke*

京都大学 工学研究科 材料工学専攻
〒606-850 京都府京都市左京区吉田本町
TEL : 075-753-4890
e-mail : hirayama@mech.kyushu-u.ac.jp

竹内 晃久 *TAKEUCHI Akihisa*

(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 散乱・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 : take@spring8.or.jp

上楯 真之 *UESUGI Masayuki*

(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 散乱・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 : uesugi@spring8.or.jp

上杉 健太郎 *UESUGI Kentaro*

(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 散乱・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 : ueken@spring8.or.jp

清水 一行 *SHIMIZU Kazuyuki*

岩手大学 理工学部 物理・材料理工学科
〒020-8551 岩手県盛岡市上田 4-3-5
TEL : 019-621-6414
e-mail : ksmz@iwate-u.ac.jp

2019 年度指定パートナーユーザー活動報告

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

広島大学 大学院先進理工系科学研究科

森吉 千佳子

大阪公立大学 大学院理学研究科

久保田 佳基

筑波大学 数理物質系物理学域

西堀 英治

(1)

指定時PU 課題番号/ビームライン	2019A0068/BL02B2				
PU 氏名 (所属)	森吉 千佳子 (広島大学)				
研究テーマ	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				
高度化	外場変化物質科学研究を実現する高エネルギー粉末X線回折の多角化				
利用研究支援	当該装置を用いた利用実験の支援				
利用期	19A	19B	20A	21A	合計
PU 課題実施シフト数	44.375	41.75	47.875	39	173
支援課題数	13	9	8	4	34

(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（大阪公立大学教授）、西堀英治（筑波大学教授）により構成される。2015A 期から 2018B 期の間実施された共用ビームライン BL02B2 の PU 課題「粉末・多粒子 X 線回折によるその場構造計測基盤の構築」を受け、さらにこれを発展させるために 2019A 期に新たにスタートした。

X線粉末回折法は言うまでもなく物質研究の中心的な手法である。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（operando）等外場下での微小・大強度ビームによる測定が注目されている。前回の PU 課題がスタートする以前から、BL02B2 では、大型デバイセ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・ガス雰囲気下等多様な外場変化用の機器が導入され、特色ある研究が実施されてきた。前回の PU 活動では、ノイズが小さくダイナミックレンジの大きいイメージングプレートに共存する形で新たに迅速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し、in-situ や operando 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た。今回の PU では、測定システムの自動化による利用効率の最大化と先端多目的実験の推進を軸とした高度化と利用研究を行うことにより、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

期間中にビームライン担当者により、BL02B2 の利用効率の最大化を主たる目的とし、一軸ゴニオ（電気炉またはクライオスタットを設置）とオートサンプルチェンジャー切り替え型ステージの効率利用に関する立ち上げ、オートサンプルチェンジャーの試料パレッ

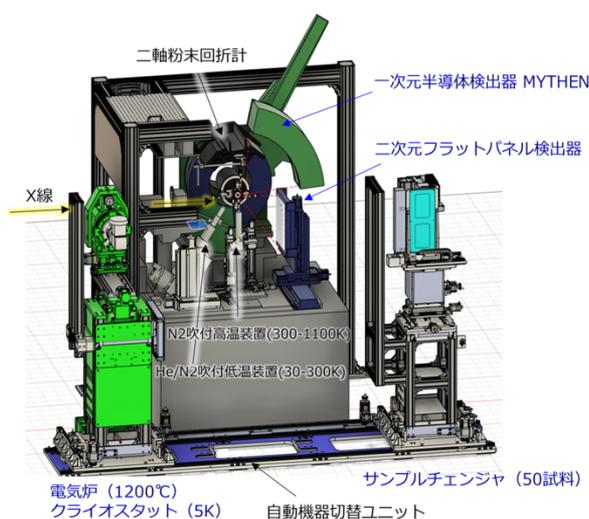


図1 BL02B2の実験ステーションの構成。

トの改良、デバイセラーカメラの架台上に設置された試料観察システムの再構築が行われた。PU は以下の2.1.から2.2.に示すような高度化に協力した。図1に今回のPU 期間終了後のBL02B2の実験ステーションの様子を示す。

2.1. ガス導入スピナーの利用実験への協力

ビームライン担当者が開発し試作したガス導入可能なスピナーを用いて多孔性配位高分子試料のガス吸着その場観察を行った。従来のガス導入用試料ホルダーの揺動に比べてスピナーの回転により、デバイセラー環の強度分布の均一性が著しく向上することを確認した。また、この装置がガス吸着過程の時間分解測定(gas-shotモード)にも有効にはたらくことがわかった。

2.2. フラットパネル検出器のその場計測への適用のためのソフトウェア開発への協力

新規導入されたオンライン計測可能な二次元フラットパネル検出器については、コロナ禍で来所できなかった期間を活用し、PUが基本的なソフトウェア開発を行い、ビームライン担当者が現地でテスト測定を行うことにより、その場計測を効率的に行うためのシステム構築を行った。二次元回折像が測定されると1秒未満で一次元回折データを自動で作成するよう整備した。一般に、その場計測では数ミリ秒～数分の短時間計測が多い。フラットパネル検出器を用いて

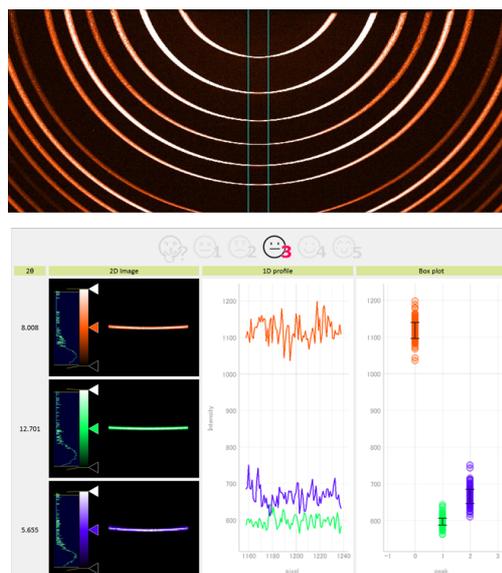


図2 上はフラットパネル検出器により観測された標準試料LaB₆粉末のデバイリングの様子。30度の試料揺動条件で測定。下は強度の大きい3本の回折線を選び出し、デバイリング上の強度均一性をボックスプロットと箱ひげ図により表示したものの。

azimuth 方向の積分範囲を拡大する一次元データの出力により、これまでは強度が小さくS/Nが乏しいデータであっても十分なS/Nを確保できる場合が多くなった。さらに、ビームライン担当者により一次元検出器を用いた通常測定を行いながら二次元回折像を取得するようシステム改良が行われたことをうけ、デバイリング上の強度均一性を測定と同時に評価するルーチンもソフトウェアに組み込んだ。図2にその例を示す。

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。

3.1. ガス雰囲気下その場計測システムによる実験

ビームライン担当者が開発したりモートガス・蒸気圧制御システムと回折測定システムを連動し、30～1473 Kの温度範囲で、1 Pa～130 kPaのガス・蒸気圧下での高分解能粉末回折データを得ることができるようになった。加えてガス導入スピナーの開発によりガス導入時測定における粉末回折データの質が著しく向上した。PUはこれらの開発において実試料に

よる測定を行いながら、より質の高いデータを効率的に取得できるよう測定システムやガス実験用アタッチメント等の改良について検討を行い、要望を担当者に提出した。このシステムを用いて従来の基本的なガス雰囲気下での平衡状態の測定だけでなく、例えば、多孔性配位高分子のガス吸着初期過程のサブ秒オーダーの時間分解データの測定 (gas-shot) が可能になった。初めは手法の確立を意識して、吸着や回折のプロファイルが良くわかっている多孔性配位高分子 CPL-1 のガス吸着データを取得し、動力学的手法のひとつである Kolmogorov-Johnson-Mehl-Avrami 理論を用いた解析により吸着相の時間発展の圧力依存性を明らかにすることができた。図3はアルゴン吸着相の時間発展を Avrami 方程式でフィッティングした結果である。その後、同試料に対して二酸化炭素や酸素等の測定を継続しており、ガス種による動的構造変化の違いが見えてきた。これらの知見は、構造柔軟性を持つ多孔性配位高分子がガス分子を認識して取り込む機構の理解に有用であり、多孔性配位高分子の構造研究の新たな展開へとつながると考えられる。

このシステムの共用化により、従来はセットアップに手間と時間がかかっていたガス・蒸気雰囲気下での粉末回折実験が効率的に行えるだけでなく、データの質も向上した。そして、ポテンシャルユーザーの利用拡大が図られ、2019 年度以降の利用ではその場計測や時間分解計測が全体の半分程度にまで増えている。さらに時間分解測定も高度化されたことにより、今後、ガス導入やガス雰囲気下での反応等変化の過程を観測する研究課題も増えていくことが期待される。

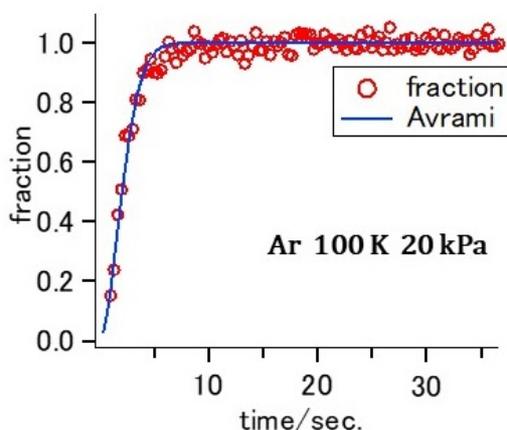


図3 CPL-1 のアルゴン吸着過程における 031 回折線の積分反射強度の時間発展。

3.2. 超臨界水熱合成のその場観察

前PU活動で開始した超臨界水熱合成のその場観察については、CeO₂を試料とした立ち上げを完成させた (J. Supercrit. Fluids, 2019)。BL02B2 が本来有する電子密度解析をも可能とする“質の高い回折データ”の利点を生かして、データのピーク位置変化などの議論だけでなく、データ自体を詳細に解析したうえでの議論が必要となる結晶成長プロセスに的を絞った研究を推進した。切り替え型ステージの導入により、その場観察装置の設置・退去にかかる時間が半分程度まで減少し、複数の研究を進めた。成果として、ジルコニア (ZrO₂)、酸化スズ (SnO₂) ナノ粒子の研究について述べる。

正方晶相と単斜晶相の ZrO₂ ナノ粒子の合成が、水熱合成法により複数報告されている。本研究では温度 623~673 K、圧力 20~33 MPa の 13 点について、超臨界領域の水熱合成のその場観察により結晶相と温度・圧力との関係を調べた。前駆体は組成・濃度・pH が同一の水溶液とした。

測定したデータをリートベルト解析し、正方晶と単斜晶のスケール因子の時間変化を求めた。温度や圧力と生成される結晶相の間の相関を見出すことはできなかった。測定した温度と圧力における水の物性と結晶相の相関を調べた。その結果図4に示すように水中の水素イオンおよび水酸化物イオン濃度の指標である水のイオン積が 10^{-14.8} から 10^{-11.8} では正方晶相が成長し、10^{-11.8} 以上では単斜晶相が成長することが分かった。

ナノ粒子のサイズ減少に伴う格子膨張は多くの機能性酸化物等において観測されている。格子定数のサイズ依存性は表面応力に起因すると考えられ、実験

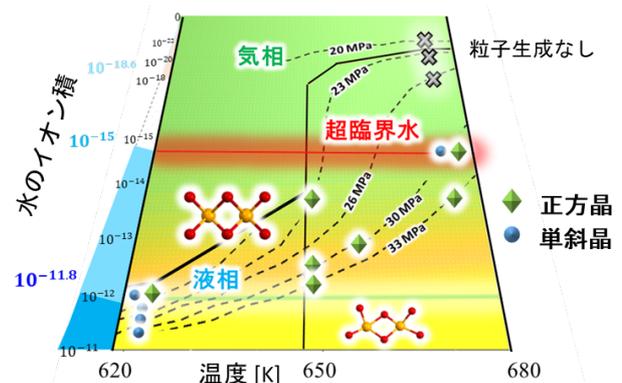


図4 ZrO₂ ナノ粒子の結晶相と水のイオン積の相関。

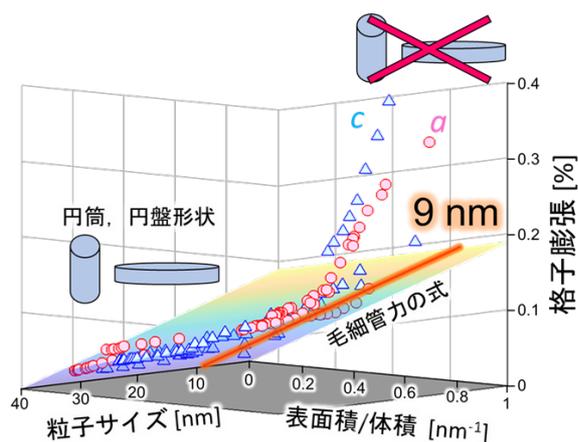


図5 格子膨張が毛細管力の式から外れて加速する臨界サイズ。

と理論で研究されている。BL02B2 で放射光 X 線回折を用いて SnO₂ のナノロッドとナノシートの水熱合成その場観察を行った。粒子成長の追跡によって、6 から 40 nm の粒子サイズと格子定数を系統的に調べた。528~638 K と 12~18 MPa の合成温度圧力下の格子定数は 587 K と 0 GPa の値に規格化し比較した。粒子の表面積/体積 (A/V) が 0.5 nm^{-1} 以下の範囲において、原子あたりの体積 V_{atom} は A/V に線形に依存していた。毛細管力の式^[1]を用いて、表面応力は $-1.7(2) \text{ N/m}$ と見積もった。線形フィッティングの切片から見積もったバルクの $V_{\text{atom}} = 11.992(2) \text{ \AA}^3$ は文献値と一致した。一方、図5に示すようにその線形依存性は $A/V > 0.5 \text{ nm}^{-1}$ の範囲で変化した。 $A/V > 0.5 \text{ nm}^{-1}$ において円筒円盤形状を仮定したキャピラリの式が適用できないことがわかった。約 9 nm の粒子サイズがサイズ減少に伴う格子膨張の傾向が変化する境界であることが明らかになった。

3.3. メカノケミストリー等ボールミルを使った粉碎その場観察装置の開発

機械的エネルギーを用いるメカノケミストリーは、溶媒を全くあるいはほとんど用いないために廃棄物を出さない持続可能な生産システムとして注目されている。物質科学において物質の原子配列は基盤的な観測量であり、メカノケミカル反応中の原子配列の変化の観測はメカノケミストリーの学問の構築に不可欠である。結晶学的手法で解析可能な回折データを測定できるその場観察システムの開発を開始した。

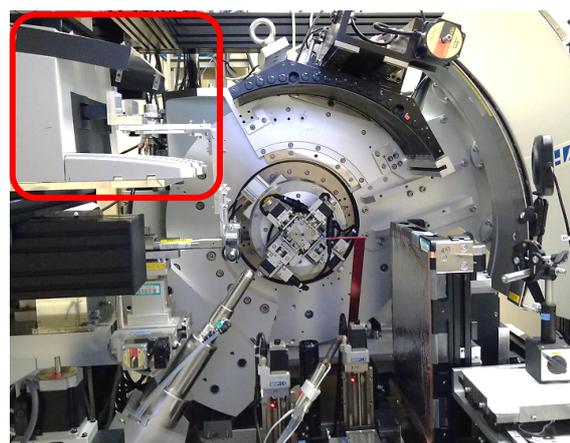


図6 BL02B2 に設置された MM400 ボールミル (赤枠の中)。

図6に示すように施設側の高度化により新たに設けられた入射 X 線側のステージを利用してレッチェ製ボールミル MM400 を設置できるようにした。フラットパネル検出器を用いて、粉碎中の金属粉末の回折データ測定に成功した。尚、この装置は PU 課題の後に大学院生提案型課題で開発を継続し、最初のメカノケミカル合成の成果は *Angew. Chem. Int. Ed. 誌*^[2] に掲載された。

3.4. 溶液下その場計測システムによる実験

溶液滴下装置と連動した溶液反応過程における構造観測手法を確立した。PU 期間に、カフェインを除去する研究、触媒反応機構の研究、イオン交換機構の解明等の論文発表があり、3 件のプレスリリースが行われた。現在、海外を含めたさらなるユーザー拡大が進んでいる。

4. ユーザー支援

PU 及び PU グループのメンバーにより、国内外の学会等、SPRING-8 シンポジウムや SPRUC 構造物性研究会等で、BL02B2 のシステム紹介や成果発表を行った。学会誌への寄稿も積極的に行った。さらに、大学をはじめとする研究機関、材料合成に関わるいくつかの企業の研究者や開発担当者との打ち合わせを行い、BL02B2 の高度化内容及び性能を周知するとともに、ニーズの調査を行った。既に BL02B2 の利用経験のある既存ユーザーについても、MYTHEN 検出器や新規導入されたフラットパネル検出器を中心とする高効

率化された新しいシステムを活用するように促した。高分解能の放射光回折実験が従来よりもゆとりをもって実験できること、初心者でもより簡単に実験できるように整備されたこと等が認識され、高評価を得ることができた。新規ユーザー、既存ユーザー共に、フラットパネル検出器を利用したその場計測装置の使用希望が拡大しており、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てビームライン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察等について、新たな研究テーマが開発された。

支援課題件数は、2019A~2021A 期の間は 34 課題であった。これら支援課題では、PU を構成するグループで分担して支援を行った。また、単純な温度変化測定だけではなく、電気炉中の固相反応合成 (SPring-8 Publication ID =42105 等) や様々な外場環境下での粉末回折計測に関する利用課題が増加している傾向がある。

課題申請の段階から実験計画について打ち合わせを行い、採択された課題については、ビームタイム前に具体的な実験内容を立案・提案した。放射光のエネルギーの選択や測定配置、温度制御装置の選択、試料の作成方法、ガス雰囲気等の条件を設定した。粉末試料の作成に慣れていないユーザーについては試料作成も支援した。ビームタイム中は、ユーザーに放射光実験の原理や BL02B2 の測定システムを説明し、ユーザー自身が放射光回折実験を習得して測定できるようにサポートした。測定されたデータの質をビームタイム中に判断し、再測定が必要なデータについては改善点を提案した。リートベルト解析については一般的なソフトウェアを用いた解析手法を指導した。ユーザー自身による解析が困難な場合には、PU が結晶構造決定までを支援した。論文執筆の際には、特に放射光実験に関係する部分について助言し、迅速な成果公表が行われるように努めた。

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、触媒等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・圧電セラミックス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察、超精密電子密度解析のための精密強度計測等、多種多様な分野の測定が行われ、成果が発表された。

5. 共用粉末回折ビームラインとして期待される BL02B2 の今後の発展

前回の PU と今回の PU 期間中に行われた BL02B2 の高度化により、溶媒蒸気・溶液その場計測システムや、超臨界水熱合成、ボールミルを用いたメカノケミストリー等、BL02B2 の特性を生かした研究の方向性を見出し、国際的に見ても独自性の高い成果を創出できたと考えている。他施設で行われているその場計測と比較して、BL02B2 はサンプルのセンタリング等基本的なビームラインの自動化技術が高いため、それらの性能を生かし、その場計測でありながらもできる限り質の高いデータを得ることが可能となった。これらの BL02B2 で培われた技術や新しい研究分野は、引き続き BL02B2 で実施されるだけでなく、新しく立ち上がった BL13XU の実験システムにも引き継がれ、さらなる発展が見込まれる。今後も両ビームラインが粉末・多粒子回折の基盤ステーションとして活用されることを期待する。

参考文献

- [1] J. Weissmüller, J. W. Cahn, "Mean stresses in microstructures due to interface stresses: a generalization of a capillary equation for solids." *Acta Mater.* **45** (1997) 1899-1906.
- [2] Y. Yano, *et al.*: "Multicomponent Crystals with Competing Intermolecular Interactions: In Situ X-ray Diffraction and Luminescent Features Reveal Multimolecular Assembly under Mechanochemical Conditions." *Angew. Chem. Int. Ed.* **61** (2022) e202203853.

(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 課題番号が関連付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 = 39930

S. Kawaguchi *et al.*: "Fast continuous measurement of

- synchrotron powder diffraction synchronized with controlling gas and vapour pressures at beamline BL02B2 of SPring-8” *J. Synchrotron Rad.* **27** (2020) 616-624.
- [2] SPring-8 Publication ID = 40355
T. Abe *et al.*: “Synchrotron Radiation X-ray Diffraction Evidence for Nature of Chemical Bonds in Bi₄Ti₃O₁₂ Ceramic Powders and Grain-Orientation Mechanism of Their Films Formed by Aerosol Deposition Method” *Japanese Journal of Applied Physics* **59** (2020) SPPA04.
- [3] SPring-8 Publication ID = 40356
S. Kim *et al.*: “Electric-Field-Induced Structural Changes for Cubic System of Lead-Free and Lead-Based Perovskite-Type Oxides” *Japanese Journal of Applied Physics* **59** (2020) SPPA05.
- [4] SPring-8 Publication ID = 40360
H. Hara *et al.*: “Control of Crystal Structure and Performance Evaluation of Multi-Piezo Material of Li_{1-x}Na_xNbO₃:Pr³⁺” *Journal of the Ceramic Society of Japan* **128** (2020) 518-522.
- [5] SPring-8 Publication ID = 41520
Y. Nakahira *et al.*: “Size Effect of the Guest Cation on the AlO₄ Framework in Aluminate Sodalite-type Oxides M₈[Al₁₂O₂₄](SO₄)₂ (M = Sr²⁺ and Ca²⁺) in the I-43m Phase” *Acta Crystallographica Section B* **77** (2021) 186-192.
- [6] SPring-8 Publication ID = 41885
Q. Zhao *et al.*: “Charge Order of Bismuth Ions and Nature of Chemical Bonds in Double Perovskite-type Oxide BaBiO₃ Visualized by Synchrotron Radiation X-ray Diffraction” *Japanese Journal of Applied Physics* **59** (2020) 095505.
- [7] SPring-8 Publication ID = 42297
T. Okada *et al.*: “Important Roles of Water Clusters Confined in a Nanospace as Revealed by a Synchrotron X-ray Diffraction Study” *Langmuir* **37** (2021) 10469-10480.
- [8] SPring-8 Publication ID = 42734
R. Nakamura *et al.*: “Critical Length for Lattice Expansion of SnO₂ Nanorods and Nanosheets: Implications for Lithium-Ion Batteries” *ACS Applied Nano Materials* **4** (2021) 9938-9944.
- [9] SPring-8 Publication ID = 42735
T. Fujita *et al.*: “Ion Product Scale for Phase and Size Selective Crystal Growth of Zirconia Nanoparticles” *Crystal Growth & Design* **20** (2020) 5589-5595.
- [10] SPring-8 Publication ID = 42775
K. Matsumoto *et al.*: “Increased Electrical Conduction with High Hole Mobility in Anti-ThCr₂Si₂-type La₂O₂Bi via Oxygen Intercalation Adjacent to Bi Square Net” *Applied Physics Letters* **116** (2020) 191901.
- [11] SPring-8 Publication ID = 42917
T. Hara *et al.*: “Specific Lift-Up Behaviour of Acetate-Intercalated Layered Yttrium Hydroxide Interlayer in Water: Application for Heterogeneous Brønsted Base Catalysts toward Knoevenagel Reactions” *Catalysis Science & Technology* **12** (2022) 2061-2070.
- [12] SPring-8 Publication ID = 43779
R. Sei *et al.*: “Tetragonality induced superconductivity in anti-ThCr₂Si₂-type RE₂O₂Bi (RE = rare earth) with Bi square net” *Dalton Transactions* **49** (2020) 3321-3325.
- [13] SPring-8 Publication ID = 43780
K. Omoto *et al.*: “Thermosaliency in Macrocyclic-Based Soft Crystals via Anisotropic Deformation of Disilanyl Architecture” *Journal of the American Chemical Society* **142** (2020) 12651-12657.
- [14] SPring-8 Publication ID = 43781
H. Kusaka *et al.*: “Crystalline boron monosulfide nanosheets with tunable bandgaps” *Journal of Materials Chemistry A* **9** (2021) 24631-24640.
- [15] SPring-8 Publication ID = 43735
H. Ishibashi *et al.*: “Phase diagram and crystal structure of Ti-doped HoMnO₃ by high resolution synchrotron powder diffraction” *J. Solid State Chem.* **312** (2022) 123273 (8 pages).
- [16] SPring-8 Publication ID = 44224
久保田佳基, 森吉千佳子, 西堀英治, 河口彰吾,
“SPring-8 粉末回折のこの 10 年” *日本結晶学会誌* **64** (2022) 17-25.
- [17] SPring-8 Publication ID = なし
森吉千佳子, 河口彰吾, “粉末結晶構造解析ビームライン BL02B2 の測定環境と利用事例” *日本セラミックス協会誌* 掲載予定 (2022).

森吉 千佳子 MORIYOSHI Chikako

広島大学 大学院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 : 082-424-7399
e-mail : moriyosi@hiroshima-u.ac.jp

久保田 佳基 KUBOTA Yoshiki

大阪公立大学 大学院理学研究科

〒599-8531 大阪府堺市中区学園町 1-1

TEL : 072-254-9193

e-mail : kubotayoshiki@omu.ac.jp

西堀 英治 NISHIBORI Eiji

筑波大学 数理物質系物理学域

〒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

2019 年度指定パートナーユーザー活動報告

精密価電子密度解析による軌道物理の研究

名古屋大学大学院 工学研究科

澤 博

(1)

指定時PU 課題番号/ビームライン	2019A0070/BL02B1				
PU 氏名 (所属)	澤 博 (名古屋大学)				
研究テーマ	オペランド計測を含めた精密電子密度解析による軌道物理の研究				
高度化	オペランド計測を目指した精密電子密度解析の高性能化				
利用研究支援	当該装置を用いた利用実験の支援				
利用期	19A	19B	20A	21A	合計
PU 課題実施シフト数	35.75	41.5	35.875	41.125	154.25
支援課題数	-	-	-	1	1

(2) PU 活動概要

1. はじめに

物性を理解することは、その系の電子状態を理解することに他ならない。量子化学計算や第一原理計算が高度化されて様々な物性の舞台である電子状態を表現できるようになってきたが、電子相関が物性を支配するような系では近似法やパラメータなどの選択に流派が存在するために、異なる結果を与えることが論争を巻き起こすこともある。特に、分子動力学法による時間発展や電子励起状態の記述については、まだまだ十分な結果を与えられない。そこで、やはり実験的に電子状態を明らかにすることが望まれる。例えば、光電子分光法は多くの系に適用されて、フェルミエネルギーに近い電子系の分散関係を直接観測できることが、昨今の物質開発において重要な役割を担っている。このように、放射光を用いた分光学的な実験手法の進化には目を見張るものがある。

一方、回折実験については、放射光 X 線の高輝度化などによって粉末測定の高精度化や対象とする結晶の微小化、より短時間で測定可能なハイスループット化などにその開発方向が偏っている。単結晶の X 線回折については、国内で精密解析に取り組んでいる研究者が少ないこともあり、時代に置き去りにされつつあ

るようである。そのような中、我々は構造物性の観点から「世界に誇る高品質の放射光 X 線を用いた回折実験はどこまでその電子状態に迫れるか」という問題提起に完全に魅せられて、「超精密解析」と(勝手に)銘打って価電子密度分布解析から量子パラメータを決定できることを提案している。また、軌道の自由度が直接的に物性に寄与するような系の場合、この軌道自由度と物性の関係に注目するのがタイトルにもある「軌道物理」である。このような価電子密度分布の有用性を鑑みて周期的な構造を有する結晶についての回折実験を放射光で行うことに特化し高度化を試みたのが、この PU である。

2. X 線回折強度と電子密度分布解析

まず、構造物性の立場から見たとき、ユニットセル内の全電子密度を得られたとしても電子状態の解釈には不十分である。物質の解釈には、少なくとも価電子密度分布の情報が必要である。通常の構造解析では、モデルに含まれない結合電子や軽元素の情報を抽出するために差フーリエ合成を行う。ここではごく簡単に、この差フーリエ合成を発展させた新しい価電子密度分布解析を説明する。この手法を有効に利用するためには、大きく分けて二つの課題、①回折強度のダイ

ナミックレンジとその統計精度、②High-Q の測定を行うことで得られる十分な空間分解能、を解決する必要がある。どちらが欠けても得られる情報の信頼度は甚だしく損なわれるため、放射光X線回折実験が必須である。

図1に炭素の原子散乱因子 f_{carbon} を示す^[1]。全電子(内殻電子+価電子)、内殻電子、価電子の寄与をそれぞれ黒色、青色、橙色で示す。通常の結晶構造因子の計算にはこの黒色の曲線で表される等方的な原子散乱因子を用いる。この原子散乱因子は、主に低角領域 $\sin\theta/\lambda < 0.5 \text{ \AA}^{-1}$ に値を持つ価電子と、高角で原子全体の散乱因子とほぼ重なる内殻電子との和となっている。この散乱因子の振る舞いは、原子の持つ電子の空間分布を反映している。実験室系の特性X線を用いた単結晶回折実験の場合、回折データが測定可能な範囲は $\sin\theta/\lambda < 2 \text{ \AA}^{-1}$ 程度であり、範囲外の回折データの情報は得られない。このとき、内殻電子数に対して価電子数の割合が多い軽元素の場合は、軌道混成によって結合に寄与する価電子密度分布がX線回折強度に比較的大きく寄与する。すなわち、大きな異方性を持った電子雲の平均値が原子位置となる。また、実験で得られる $|F_{\text{obs}}(\mathbf{K})|$ は位相の情報を含んでいないため、電子密度解析に必要な位相項を計算構造因子 $F_{\text{cal}}(\mathbf{K})/F_{\text{c}}(\mathbf{K})$ から求めることにも大きく影響する。これらの問題は特に軽元素を多く含む分子性結晶の精密構造解析や電子密度解析を行う際に注意する必要がある。

改めて図1を見ると、炭素の場合には価電子の情報

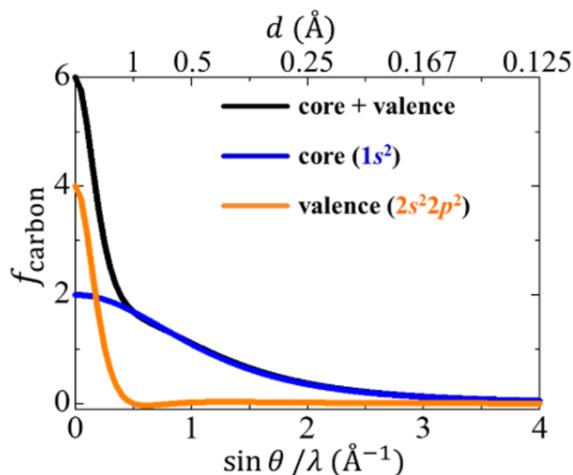


図1 炭素の原子散乱因子。黒線が全電子、青線が内殻電子 ($1s^2$)、橙線が価電子の寄与を表す。

をほとんど含まない $\sin\theta/\lambda > 0.5 \text{ \AA}^{-1}$ の高角領域の回折データを用いて精密化すれば、原子配置に特化した構造モデル $F_{\text{cal}}(\mathbf{K})$ を十分信頼できる精度で決定可能であることに気がつく。この精密化手法は高角解析と呼ばれる^[2]。このために必要な実験条件は、価電子の寄与をほとんど無視し得る d 値の反射強度を観測可能な短波長のX線を用いることである。この高角反射強度を用いた精密化によって得られた位相項 P を $P = F_{\text{cal}}(\mathbf{K})/F_{\text{cal}}(\mathbf{K})$ として与えることで、逆フーリエ変換による電子密度の再構成を行うことができる。しかし、よく知られているようにフーリエ合成の打ち切りの影響で、電子密度分布の情報を抽出できない。そこで、我々は物質の軌道状態の観測を目指し、コア差フーリエ合成 (core differential Fourier synthesis; CDFS) 法による電子密度解析手法を提案した^[3,5]。CDFS法による価電子密度 $\rho_v(\mathbf{r})$ の計算法を(1)式に示す。

$$\rho_v(\mathbf{r}) = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{K}} \left\{ \left[|F_{\text{obs}}(\mathbf{K})| P - \left| \sum_j f_j^{\text{core}}(\mathbf{K}) T_j(\mathbf{K}) e^{i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_j} \right| P^{\text{core}} \right] e^{i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}} \right\} + \frac{n_v}{V} \quad (1)$$

ここで、ユニットセルの体積を V 、各原子のユニットセル内での部分座標の位置ベクトルを $\mathbf{r}_j (j=1 \dots N, 0 \leq |\mathbf{r}_j| < 1)$ 、散乱ベクトル \mathbf{K} とし、 $T_j(\mathbf{K})$ は j 番目の原子変位パラメータ (通称: 熱振動因子) である。 $f_j^{\text{core}}(\mathbf{K})$ は j 番目の原子の内殻電子の寄与のみの原子散乱因子である (図1の青線に対応)。 P は全回折データで決めた位相因子であり、 P^{core} は $P^{\text{core}} = F_{\text{cal}}^{\text{core}}(\mathbf{K})/F_{\text{cal}}^{\text{core}}(\mathbf{K})$ で与えられる。また、 n_v はユニットセル内の価電子数に対応する。CDFS法では実験的に得られる全電子の情報をもつ $|F_{\text{obs}}(\mathbf{K})|$ から、計算した内殻電子の寄与を差し引き、その値を逆フーリエ変換することで、価電子密度分布の情報を効率よく抽出する。このとき、残った f_j^{valence} (図1の橙色の線) は $\sin\theta/\lambda > 0.5 \text{ \AA}^{-1}$ で有限の値をほとんど持たないため、(1)式の計算で得られる価電子密度 $\rho_v(\mathbf{r})$ には打ち切りの影響がほとんど現れない。

この手法を用いた軌道状態の観測の成果は、無機系・有機系についていくつか報告した^[4,5]。この手法の有効性を確認するために、遷移金属の軌道秩序状態について精密に議論した。軌道秩序と磁性との関連は昔から注目度が高く、偏極中性子散乱、放射光共鳴X線散乱など直接観測の実験報告が複数ある。このCDFS法で得られた軌道状態がこれらの過去の報告と定性的に同じであるだけでなく、定量的にも高い精度を持

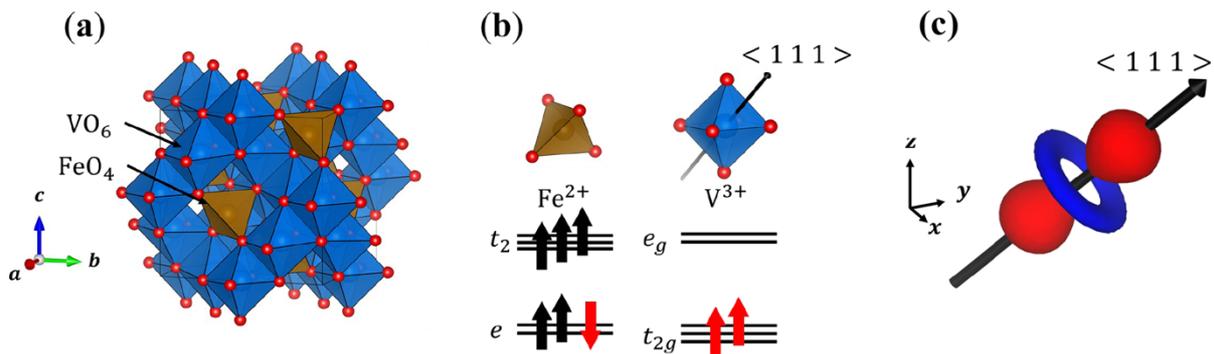


図2 (a) FeV_2O_4 の結晶構造、(b) 結晶中の Fe^{2+} 及び V^{3+} の最も対称性が高い場合の電子配置、(c) $\langle 111 \rangle$ 方向を量子化軸に持つ $\phi_1 = (|yz|+|zx|+|xy|)/\sqrt{3}$ 軌道。

つことを検証した。一方で、自由度を維持している状態、すなわち縮退軌道の電子密度分布についてはほとんど実験観測の報告がなく、縮退軌道の電子密度が異方性を持っていることはあまり積極的に議論されることはない。そこで、本質的な電子状態の観測が可能かどうかを判定するため、第一原理計算が難しい縮退軌道の電子状態の観測に挑戦した。

3. 遷移金属 3d軌道の縮退軌道の2電子占有状態

ここで取り上げるスピネル型酸化物 FeV_2O_4 では FeO_4 四面体と VO_6 八面体が三次元的なネットワークを形成している。高温相の晶系は cubic、空間群は $Fd\bar{3}m$ (No.227) であり、対称性が非常に高い (図2(a))。形式価数は Fe が 2+、V が 3+ であり、それぞれ 6 個、2 個の 3d 電子を持つ (図2(b))。閉殻になっていない電子配置に関わらず、この系は Mott 絶縁体であり電荷の自由度は失っている。しかし、縮退軌道が生じている部分占有の電子配置の場合、軌道自由度が残存する。強い電子相関と構造由来の幾何学的フラストレーションが存在するため、スピン・軌道・格子の自由度が複雑に絡み合い、降温過程において三回の構造・磁気相転移を示す⁶⁻¹⁰⁾。

高温 (140 K 以上) の cubic 相においては、対称性から Fe と V の 2 サイトにスピンと軌道の自由度を有しており (図2(b)の赤矢印)、これらが協奏することで逐次相転移が起こると考えられている。しかし、これまで実験と理論の両面から多くの研究がなされているにも関わらず、複雑に自由度が絡み合うために本系の各相における詳細な電子状態はいまだ統一的理解に至っていない。独立な自由度が多数共存してい

ることから、同型の物質との比較を行うことによって相転移機構の類推がなされている。

V^{3+} の持つ2つの3d電子は t_{2g} 軌道を部分的に占有するため、Vのサイトには軌道自由度が存在する。しかし、実際はユニットセル内の VO_6 八面体は正八面体ではない。Vのサイトシンメトリーは $\bar{3}m$ であり、3回回転軸を1本しか有しない制約のため、八面体は3回軸方向に歪む (D_{3d} 歪み) ことのみが許され、3回軸である $\langle 111 \rangle$ 方向に延びている。この時、 $\langle 111 \rangle$ が量子化軸となるため、縮退していた3軌道の中で1軌道の波動関数だけは一意に決めることができ、

$$\phi_1 = \frac{1}{\sqrt{3}}(|yz| + |zx| + |xy|) \quad (2)$$

となる (図2(c))。なお、 x, y, z は結晶軸 a, b, c とそれぞれ同じ方向に定義する。一方、残りの二重縮退した軌道は、 ϕ_1 を含めた3つの軌道がお互いに直交するという条件しか課されないため一意には決まらない。この二重縮退と1軌道のエネルギー準位は、どちらが安定化するか計算方法の違いによって対照的な結果が得られる。これは、 D_{3d} 歪みが $\langle 111 \rangle$ 方向に延びながら、 $\langle 111 \rangle$ 方向の正三角形の面積を小さくするように歪むため、2種類の結晶場の効果が闘ぎ合うことが原因である。もちろん歪が小さいために、 D_{3d} 歪みによる t_{2g} 軌道の分裂幅が小さく、熱的な揺らぎにより t_{2g} 軌道が縮退したままと見なせる可能性もある。以上のように、直感的には電子状態を区別することが困難であり、この系の逐次相転移の出発点である高温 cubic 相の軌道状態は自明ではない。そこで、実験による軌道状態の決定を試みた。

4. 回折実験条件と解析結果

使用した試料は東京大学の有馬孝尚先生に提供していただいた試料を加工したもので、サイズは約 $40 \times 40 \times 10 \mu\text{m}^3$ である。X線回折実験は SPring-8 BL02B1 で行った。温度制御には N_2 吹き付け装置を使用し、cubic 相の 160 K で測定した。入射 X 線のエネルギーは 40 keV ($\lambda = 0.3100 \text{ \AA}$) であり、検出器として光子計数型の CdTe-PILATUS を用いた。この検出器による強度積分の抽出は、従来装置に装備されていたイメージングプレート (IP) よりも高い精度で可能である。IP では行うことができなかった波長選択によるバックグラウンド強度の低減は、埋もれやすい低強度の反射に精度の差が顕著に表れることが期待される。

この新しい検出器を用いて価電子密度分布解析を行ってみたところ、測定条件によって異なる結果を示すことが分かってきて、極めて困った事態となった。このことを示したのが図 3 である。初期のころは、以前の IP の測定条件と同じ $\Delta\omega = 1^\circ$ で回折像を収集した。これを解析した結果が図 3(a) である。このグラフは縦軸が観測結晶構造因子 $|F_o|$ の二乗、横軸が計算構造因子 F_c の二乗である。目盛が対数表示になっていることに注意されたい。回折強度が小さい領域では、明らかに観測強度が小さくなっており統計誤差も大きい。PILATUS 検出器は最速 500 Hz (2 ms) でデータを読み出すことができるため、この機能を利用した Fine slice 測定を行った。すなわち、 $\Delta\omega = 0.1^\circ$ に分解して測定を行うことで 1 つの回折点を複数フレームに分割して記録することができ、回折点のロッキングカーブを分解して得られる。解析用ソフト CrysAlisPro^[11] を用いて、この測定データから回折強

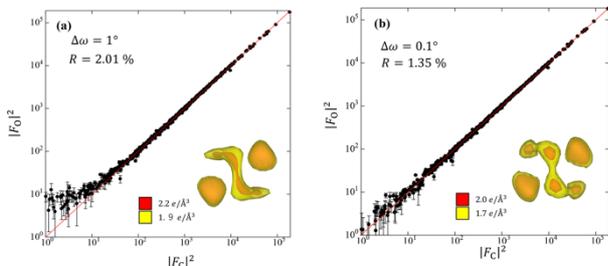


図 3 PILATUS を用いた 2 種類の測定法の $|F_o|$ と CrysAlisPro による解析結果 F_c による $|F_o|$ と $|F_c|$ のプロット。(a) $\Delta\omega = 1^\circ$ の測定の場合、(b) $\Delta\omega = 0.1^\circ$ の場合。グラフ中の挿入図は V^{3+} の価電子密度分布。

度抽出して構造解析した結果が図 3(b) である。 $|F_o|$ - $|F_c|$ プロットの線形性が上がっているだけでなく、挿入図に示された価電子密度分布が明らかに異なっている。再現性及び他の標準結晶の測定・解析を繰り返した多岐にわたる測定条件の検証実験により、図 3(b) の電子密度分布が本質的な結果であることを確認した。

ここでは、明らかに異なる結果を並べて示したため、Fine slice 測定が適切であることは自明のように感じるかもしれない。しかし、このような差異の原因は実験条件を精密に検証するまで明らかにすることができなかった。特に得られた価電子密度分布が 1 つしかない場合に、解析結果が正しいか否かを判断することは極めて困難である。あまりに煩雑になるためここでは詳細を省略するが、数え落とし補正や、検出器上の半導体素子の不安定性などについて検討し、現在では価電子密度分布解析を安定的に行える条件をほぼ洗い出すことができている。2022 年現在もこれらの件について、施設側の担当者との検討及び対応を進めている。

5. V の電子軌道状態

さて、得られた V サイトの価電子密度分布を量子力学的に理解するために、二重縮退した軌道を定義する。3 節で述べた通り、 ϕ_2, ϕ_3 は一意に決めることができない。そこで、仮に $\phi_2 = C_1|yz\rangle + C_2|zx\rangle + C_3|xy\rangle$ と定義すると、パラメータは C_1, C_2, C_3 の 3 つである。3 軌道の直交性から ϕ_2 だけ決めれば ϕ_3 は ϕ_1 と ϕ_2 の外積から自動的に決まるため、3 つのパラメータで十分で、課される条件式は、

$$\begin{cases} \sqrt{C_1^2 + C_2^2 + C_3^2} = 1 \\ \frac{1}{\sqrt{3}}C_1 + \frac{1}{\sqrt{3}}C_2 + \frac{1}{\sqrt{3}}C_3 = 0 \end{cases} \quad (3)$$

の 2 式である。それぞれ規格化条件と ϕ_1 との直交条件である。3 つの未知数に対して条件が 2 つなので、パラメータは一意に決まらない。例えば、 ϕ_2, ϕ_3 を (3) 式を満たす特殊解として

$$\begin{cases} \phi_2 = \frac{1}{\sqrt{6}}(|yz\rangle + |zx\rangle - 2|xy\rangle) \\ \phi_3 = \frac{1}{\sqrt{2}}(|yz\rangle - |zx\rangle) \end{cases} \quad (4)$$

を用いればよい。また、電子密度と比較するために、

ϕ_i ($i = 1, 2, 3$)を用いる。CDFS法で得られる情報は電子密度であり、波動関数の位相情報が失われていることに注意が必要である。

すでに実験結果として異方的な価電子密度分布が得られているため、以上の波動関数を用いて実際に電子状態を比較検討する。考えるべき電子軌道状態の可能性としては、(i) t_{2g} の分裂が熱エネルギーより小さく見かけ上三重縮退を維持している場合、(ii) ϕ_1 に対して二重縮退が安定化した場合、(iii) 逆に二重縮退が不安定化した場合、の3パターンがある。ここでは研究上最も面白かった検証過程を省くが、結論として(iii)の状態が実現しており ϕ_1 軌道を1電子、縮退した ϕ_2, ϕ_3 軌道を1電子が占有していることがわかった。この「二重縮退上に1電子が存在する」とは縮退軌道を等確率に占有すると考えられ、 $|\phi_1|^2 + \frac{1}{2}|\phi_2|^2 + \frac{1}{2}|\phi_3|^2$ と記述される。これを、実空間に描画すると図4(b)の価電子密度分布が得られる。これは、実験結果

である図4(a)を驚くほど忠実に再現している。すなわち、Vの軌道状態は、1つの電子が安定化した軌道を占有し、もう1つの電子がフント則により高エネルギーの二重縮退上に上がり、縮退した軌道を等確率で占有すると理解される。この結果は、軌道自由度を持つ軌道状態を決定した初めての例である。ここでは、紙面の制約から省略するが、Feについても全く同様に解析できて、縮退軌道を含む $Fe^{2+}: 3d^6$ 軌道状態を反映した異方的な価電子密度分布となっている。

Vサイトの解析結果は、軌道自由度のとりえ方に対して新たな知見を与える。 $|\phi_1|^2 + \frac{1}{2}|\phi_2|^2 + \frac{1}{2}|\phi_3|^2$ とは、1電子が ϕ_1 を、 ϕ_2 と ϕ_3 を各々1/2電子が占有していることを示している。これは、X線回折が結晶中のユニットセルの時間・空間平均であることを反映している。つまり、CDFS法によって得られた電子軌道の状態も時間・空間平均であり、結晶中のあるユニットセル中のVサイトが、ある瞬間に ϕ_2 か ϕ_3 を占有している電子が存在し、その時間・空間平均として1/2という係数が表れると解釈される。しかし、3節で述べた通り、二重縮退した軌道の波動関数は一意に決まらないため、シミュレーションで用いた ϕ_2, ϕ_3 は条件を満たす1つの組み合わせでしかない。 ϕ_1 との直交性を考慮すれば、二重縮退した軌道の波動関数は

$$\begin{cases} \phi'_2 = \phi_2 \cos \theta + \phi_3 \sin \theta \\ \phi'_3 = -\phi_2 \sin \theta + \phi_3 \cos \theta \end{cases} \quad (5)$$

と、任意の位相因子 θ を用いて表現される(図5(a))。単純な計算であるが、この $|\phi_1|^2 + \frac{1}{2}|\phi_2|^2 + \frac{1}{2}|\phi_3|^2$ は $|\phi_1|^2 + \frac{1}{2}|\phi_2|^2 + \frac{1}{2}|\phi_3|^2$ と同じ価電子密度分布を与える。すなわち、位相因子 θ をどのようにとっても、直交する ϕ_2, ϕ_3 の組み合わせの電子密度は同じ異方性を与える(図5(b))。

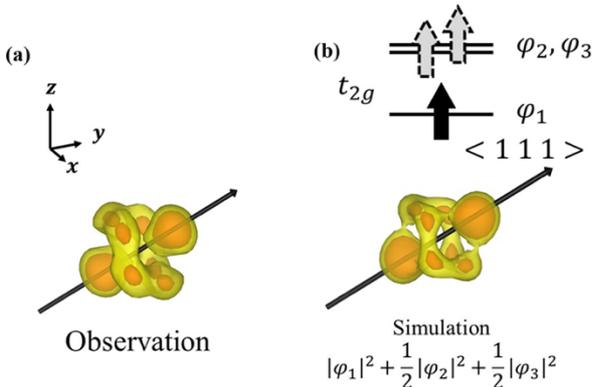


図4 (a) CDFS解析による V^{3+} の価電子密度分布(方向の異なる図3(a)と同じ解析結果)、(b) 二重縮退した ϕ_2, ϕ_3 軌道に1電子が等確率に存在する $|\phi_1|^2 + \frac{1}{2}|\phi_2|^2 + \frac{1}{2}|\phi_3|^2$ のシミュレーション結果(本文参照)。

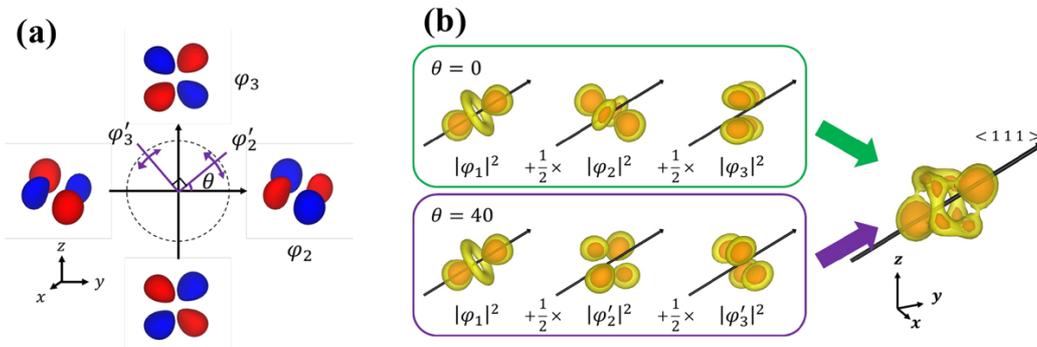


図5 (a) 互いに直交する ϕ_2, ϕ_3 の位相の関係。(b) $\theta = 0^\circ$ の場合と $\theta = 40^\circ$ の場合のシミュレーションの結果。 θ がどのような値をとってもシミュレーション結果は同じになる。

量子力学的には、この θ は時間・空間的に揺らいでいる。したがって、CDFS 法で観測された価電子密度分布は本質的に

$$\rho_v(r) = \frac{1}{N} \sum_j^{crystal} (|\varphi_{1,j}|^2 + |\varphi_2 \cos \theta_j(t) + \varphi_3 \sin \theta_j(t)|^2) \quad (6)$$

である。 N は結晶内の V サイトの数であり莫大な数となる。 j は j 番目の V サイト、 t は時間である。これを θ の積分と捉えたと、

$$\begin{aligned} & \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} (|\varphi_1|^2 + |\varphi_2 \cos \theta + \varphi_3 \sin \theta|^2) d\theta \\ &= |\varphi_1|^2 + \frac{1}{2} |\varphi_2|^2 + \frac{1}{2} |\varphi_3|^2 \end{aligned} \quad (7)$$

となり、解析結果と対応する。つまり、縮退軌道の電子状態は時間・空間的に揺らいでおり、この揺らぎこそが軌道自由度を持つことの本質である。

なお、この結論は少し飛躍があることにお気づきであろうか？回折実験では空間的な不均一なのか時間的揺らぎなのかを区別できないことを式(7)は示しており、「揺らぎ」の存在は演繹できない。この系においては、降温によって構造相転移を起こす origin が軌道自由度の消失であることを考えれば、空間的に不均一に軌道自由度を失っている一種の軌道ガラス状態を形成しているとは考えにくい。また、構造相転移において Jahn-Teller 歪の形成を伴う電子格子相互作用の存在を考えれば、相転移近傍におけるフォノンのソフト化が観測される筈である。我々は、放射光 X 線非弾性散乱実験によってこのソフト化の観測にも成功し、時間・空間的な揺らぎの平均を見ている仮説を検証した。詳細は文献^[12]を参照されたい。

6. 結びにかえて

以上のように、PU の期間中に到達した超精密解析による価電子密度分布解析の一例を紹介させて頂いた。現在も、他の多くの系の価電子密度分布解析を進めており、順次成果を公開していく。単結晶回折実験には、異方的な吸収補正や、多重散乱、同時反射、消衰効果など多くの補正が必要であると教科書的に謳われており、実際我々もこれらの補正が必要な側面に多々遭遇している。しかしながら、現状ではこれらの単結晶回折における原理的な困難よりも、例えば測定条件の安定度、検出器の特性など、多くの系統誤差が問題になることが多く、SPring-8 の高品質 X 線源の

特性を十分活かした解析に辿り着いていないのではないかと危惧してきた。そのような中で、今回紹介したような実験室系とは質的に異なる解析が可能であることを示すことに成功した反面、PU で用意されたビームタイム期間のすべてを条件探索に費やざるを得なかったことは痛恨の極みである。我々は、PU 申請時の研究テーマにあるオペランド計測についても UV 照射による光電気伝導系、または光貯蔵系について様々な実験をかなりのシフト数を用いて試みた。しかしながら、これらの照射による変化は、励起光の有無によらない大きな統計誤差に埋もれてしまい、現行では確度のある結果は得られていないと考えている。一方で、光照射時の破砕が暗闇中では変形のみ生じるという特異な単結晶 ZnS の回折実験を行ったところ、単結晶中の転位が光の有無によって異なることを突き止めたが、いわば巨視的な結晶の変化を微視的な不完全性として解釈できるというレベルに留まっている。

将来的にさらに施設・装置などの高度化が進めば、現状での最先端測定が標準測定となる日も遠くないと期待している。この価電子密度分布の直接観測手法は、多重極限下や外場応答に対応するオペランド計測にも適用できるように、現在も施設との協力のもとに開発を推し進めている。

謝辞

本研究は、多くの方々との共同研究であるが、主な共同研究者は有馬孝尚（東大新領域）、勝藤拓郎（早大理工）、杉本邦久（JASRI/SPring-8・現近大）、鬼頭俊介（名大院工・現理研）、原武史（名大院工）である。

参考文献

- [1] Z. Su and P. Coppens: *Acta Cryst.* **A53** (1997) 749-762.
- [2] 橋爪大輔: 日本結晶学会誌 **56** (2014) 313-318.
- [3] S. Kitou *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **119** (2017) 065701.
- [4] S. Kitou *et al.*: *Crystals* **10** (2020) 998.
- [5] S. Kitou *et al.*: *Phys. Rev. Research* **2** (2020) 033503.
- [6] S. H. Lee *et al.*: *J. Phys. Soc. Jpn.* **79** (2010) 011004.
- [7] T. Katsufuji *et al.*: *J. Phys. Soc. Jpn.* **77** (2008) 053708.

- [8] G. J. MacDougall, V. O. Garlea, A. A. Aczel, H. D. Zhou, and E. Nagler: *Phys. Rev. B* **86** (2012) 060414(R).
- [9] Y. Nii *et al.*: *Phys. Rev. B* **86** (2012) 125142.
- [10] D. Dey, T. Maitra and A. Taraphder: *Phys. Rev. B* **93** (2016) 195133.
- [11] Agilent. CrysAlis PRO. Agilent Technologies Ltd, Yarnton, Oxfordshire, England (2014).
- [12] T. Manjo *et al.*: *Materials Advances* **3** (2022) 3192-3198.

(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 = 40648
S. Kitou *et al.*: “Collapse of the Simple Localized 3d1 Orbital Picture in Mott Insulator” *Physical Review Research* **2** (2020) 033503.
- [2] SPring-8 Publication ID = 40836
S. Kitou *et al.*: “Direct Observation of Molecular Orbitals Using Synchrotron X-ray Diffraction” *Crystals* **10** (2020) 998.
- [3] SPring-8 Publication ID = 41434
T. Nakamura *et al.*: “Tetramethyltetrathiafulvalene $[(\text{NbOF}_4)]_x$: One-Dimensional Charge Transfer Salt with an Infinite Anion Chain” *Inorganic Chemistry* **60** (2021) 5206-5211.
- [4] SPring-8 Publication ID = 41820
S. Kitou *et al.*: “Complex Changes in Structural Parameters Hidden in the Universal Phase Diagram of the Quasi-One-Dimensional Organic Conductors $(\text{TMTTF})_2\text{X}$ ($\text{X} = \text{NbF}_6, \text{AsF}_6, \text{PF}_6, \text{and Br}$)” *Physical Review B* **103** (2021) 184112.
- [5] SPring-8 Publication ID = 43096
T. Manjo *et al.*: “Do Electron Distributions with Orbital Degree of Freedom Exhibit Anisotropy?” *Materials Advances* **3** (2022) 3192-3198.

澤 博 SAWA Hiroshi

名古屋大学大学院 工学研究科
〒464-8603 名古屋市千種区不老町 1
TEL : 052-789-4453
e-mail : hiroshi.sawa@cc.nagoya-u.ac.jp

長期利用課題報告

テンダーX線タイコグラフィの基盤技術開発とその応用展開

東北大学 国際放射光イノベーション・スマート研究センター

高橋 幸生、阿部 真樹、石黒 志

住友ゴム工業株式会社 研究開発本部 分析センター

金子 房恵、岸本 浩通

公益財団法人高輝度光科学研究センター 情報技術推進室

松本 崇博

公益財団法人高輝度光科学研究センター ビームライン技術推進室

工藤 統吾

(国) 理化学研究所 放射光科学研究センター

次世代検出器開発チーム

初井 宇記

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 分光推進室

為則 雄祐

Abstract

本研究課題では、SPRING-8 BL27SUにおいてテンダーX線タイコグラフィ計測の基盤技術の開発に取り組んだ。装置恒温化、ピンホールの精密加工、画像検出器 SOPHIAS-Lの導入、照明光学系の改良など様々な技術開発を行うことで計測精度が向上し、テンダーX線タイコグラフィ計測システムを世界で初めて確立することに成功した。また、同計測システムを用いてTaテストチャートの測定を実施することで、幅50 nmの構造を観察できることを示した。さらに、硫黄(S)のK端近傍において、硫黄変性ポリブチルメタクリレート粒子を測定することで、粒子内の硫黄化学状態を非破壊で可視化することに成功した。今後、開発したテンダーX線タイコグラフィ計測システムを活用した様々な応用研究への展開が期待される。

1. はじめに

テンダーX線に明確な定義はないが、2~5 keVの光子エネルギーを有するX線であるとされる。テンダーX線の特徴として、エネルギー領域内に硫黄やリンなどをはじめとする様々な元素の吸収端が含まれるため化学状態分析に有用なことや、比較的高い透過力を活かして厚さ数 μm 程度のバルク試料内部の情報を取得できることなどが挙げられる。テンダーX線領域に吸収端を含む元素の多くは様々な材料や生物の機能に関わっているため、試料内部における不均一な化学状態の変化を観察することで、それらの機能が発現するメカニズムの理解を深めることができる。テンダーX線領域において実績のある顕微法としては、走査型蛍光X線顕微法^[1]、走査型透過X線顕微法^[2]、全

視野透過型X線顕微法^[3]などが挙げられる。しかし、これらの手法において空間分解能を決定する集光・結像光学素子の作製精度が近年限界に近付きつつあり、テンダーX線顕微法の分解能はここ数年間50 nm程度で停滞している^[4]。X線タイコグラフィは、コヒーレントX線を試料に照射した際に観測される回折強度パターンに対し、位相回復計算を実行することで試料像を得る顕微法である。本手法において、レンズの役割を計算機が担い、空間分解能が集光・結像素子の加工精度の制限を受けないという利点を有している。また、本手法をX線吸収微細構造(X-ray absorption fine structure, XAFS)解析に拡張したX線タイコグラフィを用いることで、試料の化学状態を数十nm分解能で観察することが可能となる。しかしながら、コ

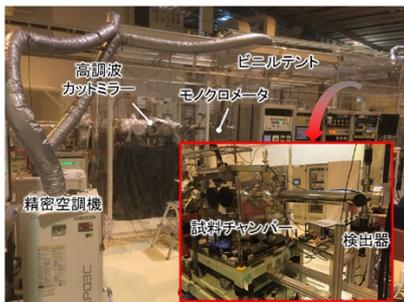
ヒーレントイメージング計測に特化したビームラインが世界的に希少なテンダー-X線領域において、X線タイコグラフィの実証例は存在していなかった。本研究課題では、SPring-8 BL27SUにおいてテンダー-X線領域におけるX線タイコグラフィ計測技術を開発⁵⁾し、軽元素イメージングに関する応用研究として、含硫黄高分子材料中の硫黄の化学状態イメージング⁶⁾を行った。

2. テンダー-X線タイコグラフィ計測システムの開発

2-1. 計測装置の恒温化

X線タイコグラフィの試料像再構成では、試料へのプローブ照射位置を既知情報として与えるが、その情報と実際の照射位置との間に相違がある場合、像質が低下する。この相違を生む原因の一つとして温度変化による光学系の膨張・収縮が挙げられ、これを緩和するためには光学系の恒温化が有効である。本研究では図1(a)の装置外観写真に示すように高調波カットミラーを含む装置全体をビニルテントで覆い、精密空調機により25°Cの空気を送り込むことでビニルテント内の温度変化を制御した。これにより、24時間で

(a)



(b)

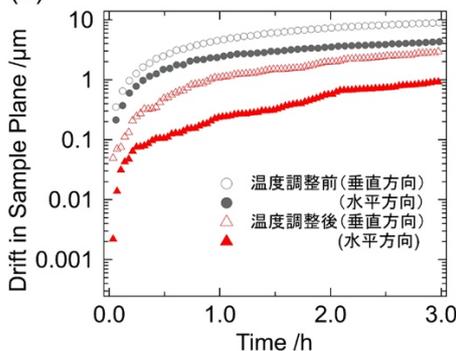


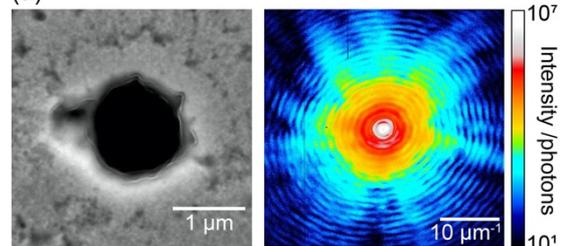
図1 (a)ビニルテントにより恒温化されている装置の外観写真、(b)温度調整前後における試料面でのビーム位置のドリフト量の時間変化。

外気温度が最大で0.8 K変化しているのに対し、試料チャンバー表面における温度変化は0.06 K以内に抑えられた。この恒温化がビーム位置の安定性に及ぼす影響を評価するため、試料面におけるビームのドリフト量の時間変化を暗視野ナイフエッジスキャンにより測定した。図1(b)に恒温化実施前後における水平・垂直方向へのビームドリフトの経時変化を示す。光軸調整後3時間の測定において温度調整前は水平、垂直方向のそれぞれに4.3 μm、8.9 μmのドリフトがあったのに対し、恒温化後ではそれぞれ920 nm、2.9 μmとなり、恒温化により熱ドリフトが大幅に抑制された。

2-2. ピンホールの精密加工

前述の通り、今回の光学系においては入射X線をピンホールにより切り出すことで空間コヒーレンスを確保している。ただし、使用するピンホールの内壁が平滑でない場合、寄生散乱が発生し像質の低下を招く恐れがある。2018B期において使用した市販の直径1 μmピンホールのSEM像ならびに2.5 keVのX線を照射して得られた回折強度パターンを図2(a)に示す。箔の表面は平滑とは言い難く、ピンホールの内壁にも凹凸が多数存在していることが確認できる。回折強度パターンにはフリンジの歪みやぼやけが生じているのが分かる。そこで、平滑な壁面を有するピンホールを開発・導入することができれば、試料入射X線のコヒー

(a)



(b)

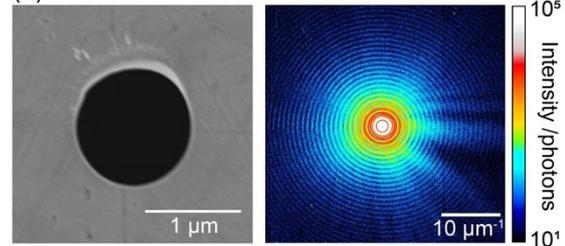


図2 (a)市販のピンホール(左)とその回折強度パターン(右)、(b)両面研磨した白金箔から作製したピンホール(左)とその回折強度パターン(右)。

レンズを改善できるのではないかと考えた。株式会社ティ・ディ・シーにより両面研磨処理が施された4 μm厚白金箔を用意し、これに集束イオンビームを用いて直径1 μmの円形開口を加工したピンホールを作製した。このピンホールのSEM像ならびに回折強度パターンを図2(b)に示す。箔表面の平滑性が大幅に改善し、開口端部の形状も真円に近い形状を示している。回折強度パターンには、ビジビリティにすぐれた同心円状のフリンジが得られていることが分かる。

2-3. 画像検出器 SOPHIAS-L の開発

X線タイコグラフィにおける試料像の空間分解能は、回折強度パターンの高空間周波数領域の信号対雑音比に依存する。したがって、空間分解能を向上させるためには、X線強度を増加させるか露光時間を長くする必要がある。露光時間を長くすることは計測のスループットの低下につながるためX線強度を向上させることが望ましく、光子計数率の大きな検出器が必要となる。現在広く用いられている光子計数型検出器の場合、2.5 keVで動作させようとする既存検出器に比べ1桁程度計数率を下げ、あるいは電力を1桁増(画素面積1桁増)などが必要と見積もられ、テnder-X線タイコグラフィに適用することは困難であった。そこで理研の検出器グループは積分型のSOPHIAS⁷⁾をテnder-X線に対応できるように低ノイズ化したSOPHIAS-Lを新たに開発した。SOPHIAS-LはSOPHIASと同じく1.9メガピクセル、ピクセルサイズ30 μm、撮像エリア26.7×64.8 mmを持ち、2.5 keVのX線を1光子まで検出可能かつ高い光子計数率を有する⁸⁾。これにより、テnder-X線領域でのタイコグラフィ計測に適した画像検出器が実現された。

2-4. 光学系の改良

計測装置の性能を評価するため、2.5 keVにおける200 nm厚Taテストチャートのタイコグラフィ計測を実施した。図3(a)に計測に用いた光学系の模式図、回折強度パターンの例、そして再構成された試料位相像をそれぞれ示す。幅50 nmの最小構造を再構成できていることが分かる。しかし、像の全体に細かいアーティファクトが存在しており、これは未だ試料入射

X線のコヒーレンスが不十分であることを示唆している。このことは、回折強度パターン中に本来生じるべきでない試料の投影像が存在していることから裏付けられている。そこで、回折に寄与しないインコヒーレントな成分を取り除くために光学系に変更を加えた。図3(b)に改良した光学系の模式図、回折強度パターンの例、そして再構成された試料位相像をそれぞれ示す。この光学系は、ピンホールによりX線を切り出すところまでは同様だが、ピンホールー試料間にFresnel zone plate (FZP) と Order-sorting aperture (OSA) を新たに設置した。その際、ピンホールを通り抜けたX線がFZPの中心から約50 μm離れた位置に照射されるようにFZPを配置し(off-axis配置)、1次光のみを選択的に切り出すようにOSAを配置した。回折強度パターンに試料の投影像が現れなくなり、これはFZPとOSAにより1次光のみを選択的に切り出す過程でインコヒーレント成分が大幅に低減したためだと考えられる。また、光学系の改良前後での試料像を比較すると、明確な分解能の向上は見られないものの、像全体に見られたアーティファクトが減少して像の質が改善していることが分かる。

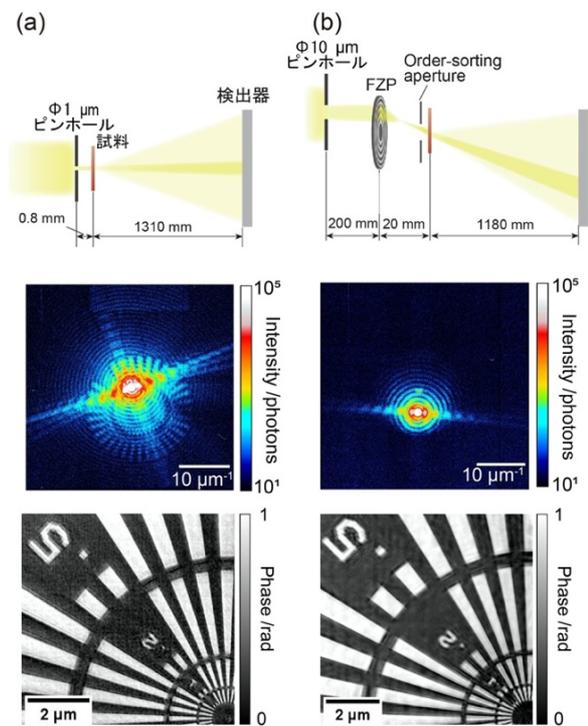


図3 照明光学系の(a)改良前と(b)改良後における光学系模式図(上)、200 nm厚Taテストチャート測定時の回折強度パターン(中)、再構成位相像(下)。

3. 硫黄化学状態イメージングへの応用

次に、テンダー-X線タイコグラフィ計測による含硫黄高分子粒子の硫黄化学状態イメージングに取り組んだ。測定試料としては、ポリブチルメタクリレートと硫黄を混合・焼成して作製した硫黄変性ポリブチルメタクリレート (SPBMA) を用いた。なお、SPBMAは主に硫黄 (~49 wt.%) と炭素 (~47.5 wt.%)、酸素 (~2.5 wt.%) から構成される。X線タイコグラフィ計測の実施にあたり、SPBMAをSiNメンブレン上に分散・担持させ、その中で孤立した単一粒子をS-K端 (~2.47 keV) 近傍である2.46~2.50 keVの30点で測定した。実際に測定した粒子のSEM像を図4(a)に示す。X線タイコグラフィにおける回折強度パターン測定は試料を500 nm間隔で11×11点走査することで行った。その際、試料に入射するフラックスは約 2.1×10^7 photons/sであり、各走査点における露光時間は5 sとした。1エネルギー当たりの計測に要する時間は約20分となり、全エネルギーでのトータルの測定時間は約10時間となった。

図4(b)、4(c)に2.5 keVにおける測定で得られたピクセルサイズ約30 nmの試料吸収像および位相像を示す。いずれの再構成像もSEM像と矛盾しない形状を示していることが確認できる。次に、各試料像中に示した3点から取得した空間分解XAFSスペクトルおよび空間分解位相スペクトルを図4(d)、4(e)に示す。

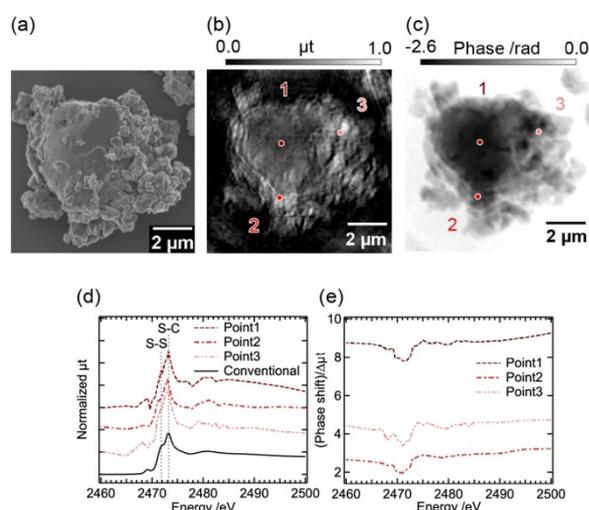


図4 (a)試料SEM像、(b,c)2.5 keVにおいて測定された試料の再構成吸収像および位相像、各試料像中に示した3点で得られた(d)空間分解XAFSスペクトルと(e)空間分解位相スペクトル。

なお、これらのスペクトルはいずれもXAFSスペクトルのエッジジャンプ量 $\Delta\mu t$ により規格化されている。また、比較のため図4(d)には、SAGA-LS BL16で転換電子収量法により測定されたSPBMAのconventional XAFSスペクトルも示している。テンダー-X線タイコグラフィにより得られた空間分解XAFSスペクトルがconventional XAFSスペクトルと相似の形状を有していることが確認でき、今回の計測精度の高さを示している。なお、各吸収スペクトルが示している~2.472, ~2.473 keVのピークは、SAGA-LS BL16にて測定された硫黄とpoly(3-hexyl thiophene)のconventional XAFSスペクトルが示すピークの位置と一致したことから、S-S結合とS-C結合に由来するものと考えられる。また、図4(e)に示した空間分解位相スペクトルはいずれも相似形状を示しているが、ベースラインの値が異なっている。電子密度投影に比例する位相シフト量を、硫黄量を反映した $\Delta\mu t$ で規格化した値は、硫黄以外の元素(主に炭素)が占める割合を反映しているため、この結果は同一粒子内においても位置によって組成が異なっていることを示唆している。

試料の化学状態についてより定量的に評価するため、空間分解XAFSスペクトルのカーブフィッティング解析を行った。カーブフィッティングの例を図5(a)

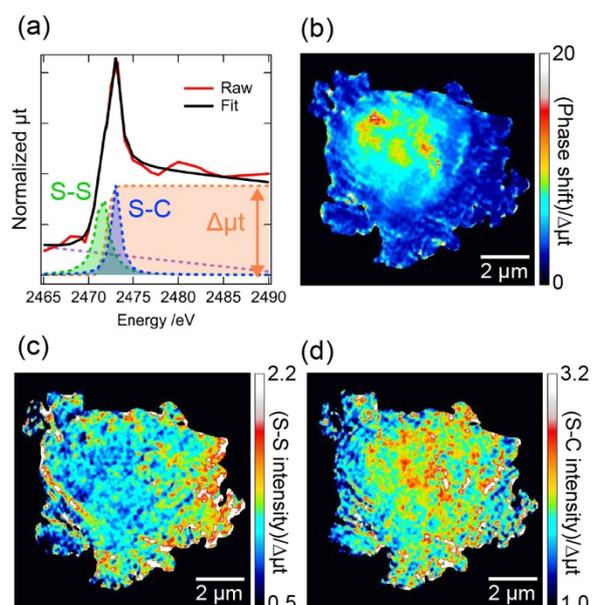


図5 (a)空間分解XAFSスペクトルのカーブフィッティング例、 $\Delta\mu t$ で規格化した(b)位相シフト、(c)S-S結合ピーク強度、(d)S-C結合ピーク強度のマップ。

に示す。フィッティングには $\Delta\mu t$ を抽出する1つの誤差関数、S-S結合とS-C結合に由来するピーク強度を抽出する2つのローレンツ関数、そしてバックグラウンドを補正する1つの直線を用いた。図5(b)-5(d)に位相シフト、S-S結合強度、S-C結合強度を $\Delta\mu t$ により規格化して得られた硫黄化学状態マップを示す。位相シフトの分布は粒子の内側から外側にかけて強度が高くなる傾向を示した。前述の通り組成の分布を反映しているため、この結果は粒子の表面近傍領域ほど硫黄元素の割合が高く、バルク領域ほど硫黄以外の元素（主に炭素）の割合が高いことを示唆している。また、図5(c)、5(d)に示したS-S結合、S-C結合の分布は粒子の表面近傍にはS-S結合が豊富に存在する一方でS-C結合が比較的少ないことを示唆しており、この結果は位相シフトの分布が示した元素分布の傾向とも整合している。別に行ったSEM-EDX観察の結果、硫黄が粒子表面に局在していたことから、今回の測定・解析結果の妥当性が示された。

4. おわりに

本研究課題では、SPRING-8 BL27SUにおいてテンダーX線タイコグラフィ計測の基盤技術の開発に取り組んだ。装置恒温化、ピンホールの精密加工、二次元検出器SOPHIAS-Lの導入、照明光学系の改良など様々な技術開発を行うことで計測精度が向上し、テンダーX線タイコグラフィ計測システムを世界で初めて確立することに成功した。また、同計測システムを用いてTaテストチャートの測定を実施することで、幅50 nmの構造を観察できることを示した。さらに、硫黄(S)のK端近傍において、硫黄変性ポリブチルメタクリレート(SPBMA)粒子を測定することで、粒子内の硫黄化学状態を非破壊で可視化することに成功した。今後、開発したテンダーX線タイコグラフィ計測システムを活用した様々な応用研究への展開が期待される。その一つがリチウム硫黄電池正極材料の反応・劣化解析である。正極材料が充放電過程において示す硫黄化学状態の変化を観察することにより、硫黄の反応経路や流出経路などの知見が得られる可能性があり、その知見を材料設計に活かすことで電池の高性能化への貢献が期待できる。

参考文献

- [1] Y. Tamenori, T. Yoshimura, N. T. Luan, H. Hasegawa, A. Suzuki *et al.*: *J. Structural Biol.* **186** (2014) 214-223.
- [2] Q. Xiao, A. MacLennan, Y. Hu, M. Hackett, P. Leinweber *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **24** (2017) 333-337.
- [3] M. Salomé, M. H. Lafage-Proust, L. Vico, D. Amblard, B. Kaulich *et al.*: *AIP Conf. Proc.* **507** (2000) 178-183.
- [4] M. A. Samarai, F. Meirer, C. Karunakaran, J. Wang, E. T. C. Vogt *et al.*: *J. Phys. Chem. C* **119** (2015) 2530-2536.
- [5] M. Abe, F. Kaneko, N. Ishiguro, T. Kudo, T. Matsumoto *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **28** (2021) 1610-1615.
- [6] M. Abe, F. Kaneko, N. Ishiguro, T. Kubo, F. Chujo *et al.*: *J. Phys. Chem. C* **126** (2022) 14047-14057.
- [7] T. Hatsui, M. Omodani, T. Kudo, K. Kobayashi, T. Imamura *et al.*: *Proceedings of the 2013 International Image Sensor Workshop (IISW)* (2013) Article No. 3.05. (12-16 June 2013, Snowbird, Utah, USA.)

高橋 幸生 TAKAHASHI Yukio

東北大学 国際放射光イノベーション・スマート研究センター
〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1
TEL : 022-217-5166
e-mail : ytakahashi@tohoku.ac.jp

阿部 真樹 ABE Masaki

東北大学 国際放射光イノベーション・スマート研究センター
〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1
TEL : 022-217-5818
e-mail : masaki.abe.p1@dc.tohoku.ac.jp

石黒 志 ISHIGURO Nozomu

東北大学 国際放射光イノベーション・スマート研究センター
〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1
TEL : 022-217-5818
e-mail : nozomu.ishiguro.c1@tohoku.ac.jp

金子 房恵 KANEKO Fusae

住友ゴム工業株式会社 研究開発本部 分析センター
〒651-0071 兵庫県神戸市中央区筒井町 2-1-1
TEL : 078-265-5688
e-mail : f-kaneko.az@srigroup.co.jp

岸本 浩通 KISHIMOTO Hiroyuki

住友ゴム工業株式会社 研究開発本部 分析センター
〒651-0071 兵庫県神戸市中央区筒井町 2-1-1
TEL : 078-265-5688
e-mail : h-kishimoto.az@srigroup.co.jp

松本 崇博 MATSUMOTO Takahiro

(公財) 高輝度光科学研究センター 情報技術推進室
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0833
e-mail : matumot@spring8.or.jp

工藤 統吾 KUDO Togo

(公財) 高輝度光科学研究センター ビームライン技術推進室
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0833
e-mail : kudo@spring8.or.jp

初井 宇記 HATSUI Takaki

(国) 理化学研究所 放射光科学研究センター
次世代検出器開発チーム
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0833
e-mail : hatsui@spring8.or.jp

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

微小結晶からの高精度/高効率データ収集に最適な測定条件を提案

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 構造生物学推進室

馬場 清喜

Abstract

タンパク質結晶構造解析では、世界中で回折データ収集の自動化が進められている。SPring-8 構造生物学ビームラインにおいても自動測定の開発が進んでおり、BL32XU において開発された ZOO システムによる自動測定は、結晶の形状や数により、(1) ループ内の複数結晶から small-wedge (10°程度) のデータを測定する「small-wedge synchrotron crystallography (SWSX)」、(2) 結晶への照射位置を移動しながら測定する「Helical」(3) 単点露光データ収集「Single」の測定などを選択できる。凍結した単結晶からのデータ収集においては、吸収線量と放射線損傷、得られるデータ精度の議論が多くなされて、ある程度コンセンサスができてきた。しかし、複数のタンパク質の微小結晶から得られた small-wedge データをマージして完全データを得る SWSX では、X 線の吸収線量をどの程度まで制限すれば高精度な解析ができるか系統的な調査報告がなかった。そのため我々は、SWSX 測定における高精度、高効率なデータ取得の最適な吸収線量の条件を調査し、マージによる吸収線量の平均化の効果を明らかにすることができた。さらに、シグナル量と放射線損傷の効果の低減のバランスが重要であることを示し、特に位相決定などの高精度データを必要とする場合には、1 結晶あたり吸収線量 5 MGy での測定を提案できた。

1. はじめに

タンパク質結晶構造解析では、結晶サイズと照射する X 線のビームサイズの組み合わせにより、照射位置で回転させて測定する single データ収集、結晶がビームサイズよりも大きい場合に回転+横移動を組み合わせて測定する Helical データ収集、small-wedge synchrotron crystallography (SWSX)、serial synchrotron rotation crystallography (SSROX) 実験^[1]などのデータ収集方法が用いられている。SWSX は、複数の結晶をマウントしたクライオループを X 線でラスタースキャンし、多数の結晶から 5-20° の small-wedge データを収集し、統合することで、完全性の高いデータセットを作成する^[2] (図 1)。BL45XU は全自動測定が可能なビームラインであり、ビームラインの機器はビームライン制御ソフトウェア BSS^[3]によって制御されている。ZOO システム^[4]は、BSS と通信することにより、上記の全てのデータ収集の自動化を実現している。SPring-8 では、ZOO システムを用いて膜タンパク質の微小結晶を SWSX で測定している。しかし、SWSX における吸収線量が最終的にマ-

ジされるデータセットに与える影響については、これまで系統的な研究がなされていなかった。今回我々は、SWSX における高精度データ取得のため、各結晶に対する吸収線量 (露光条件) を変えて測定を行い、吸収線量のデータ精度への影響を比較した^[5]。

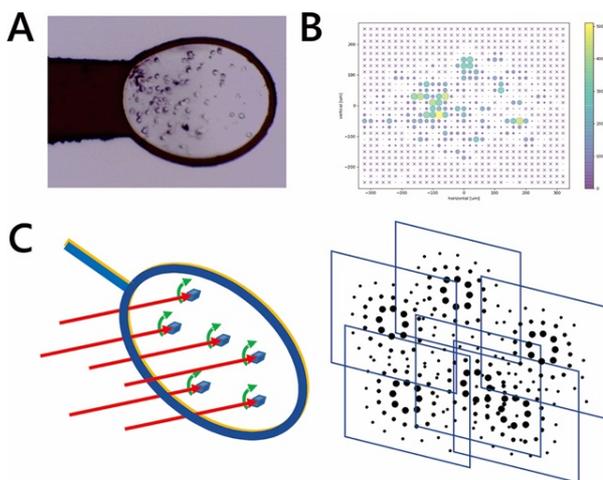


図 1 SWSX データ収集の流れ

A クライオループ内の微小結晶、B ラスタースキャンを行い、回折点の数で評価した結果、C ラスタースキャンの評価から結晶位置を決定し、各結晶から 5-20° の small-wedge データを収集。

2. SWSX における吸収線量のデータ精度への影響を比較した実験条件

SWSX の最適線量を評価する実験として硫黄-SAD (S-SAD) による位相決定を行った結果を解析し、高精度なデータを得るための最適な線量の検討を行った。実験には、約 20 μm の大きさにサイズをコントロールして作製したリゾチーム結晶を用いた。SWSX のデータセットは、SPring-8 BL45XU において、ZOO システムを用いた自動測定で行った。データ測定のためのビームサイズは 18 (H) \times 20 (V) μm^2 を使用した。波長は 1.0, 1.4, 1.7 \AA 、吸収線量は 1, 2, 5, 10, 20, 40 MGy の 18 種類で、各結晶から 10°分の条件で small-wedge データ測定を行い、各条件下で 400 以上の small-wedge データセットを収集した。small-wedge データの 1 結晶あたりの吸収線量は、RADDOSE 3D[®]を用いて計算した。各 small-wedge データの処理とマージは、XDS で KAMO[®]を用いて行った。マージのクラスタリング計算は BLEND[®]を用いた。マージされた各データセットについて、SHEL[®]の SHELXC, SHELXD, SHELXE を用いて、S-SAD の位相決定を行った。

3. 高効率/高精度なデータ収集に最適な SWSX の実験条件の提案

波長 1.0 \AA の条件では、5 MGy だけが S-SAD による位相決定に成功した。波長 1.4 \AA では、1, 2, 5, 10, 20 MGy で S-SAD による位相決定が成功し、40 MGy の条件では成功しなかった。波長 1.7 \AA では、すべての条件で位相決定が成功した。これは、S-SAD における硫黄 (S) の異常分散寄与 f' は、波長 1.0, 1.4, 1.7 \AA でそれぞれ、 $f' = 0.24, 0.46, 0.67$ であり、寄与が大きい長波長 (低エネルギー) であるほど S の異常散

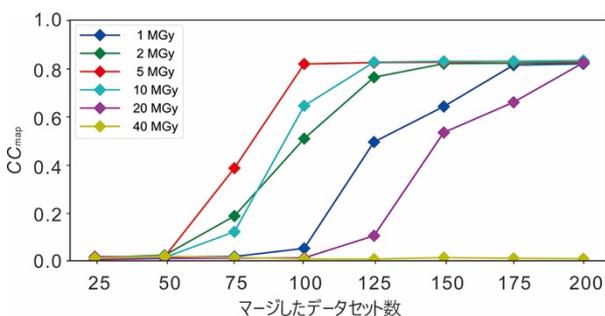


図 2 波長 1.4 \AA におけるマージしたデータ数と CC_{map} との相関。

乱強度が上がり、位相決定が容易となるためである。さらに位相決定におけるマージしたデータ数の寄与を調べるために、波長 1.4 \AA と 1.7 \AA の 2 種類の波長で、マージするデータ数を 8 パターン (25, 50, 75, 100, 125, 150, 175, 200 セット) とし、各マージデータの数に対してランダムにデータセットを抽出したマージ処理を各 10 回行い、位相決定直後のマップと正解のマップとの相関 (以下 CC_{map}) をプロットした (図 2, 3)。波長 1.4 \AA で 40 MGy のデータを除き、マージするデータセット数が増加するほど、両波長で CC_{map} が高くなった。すなわち、どの線量でもデータセット数が増加するほど、位相決定が容易になることが明らかになった。波長 1.4 \AA と 1.7 \AA 共に、5 MGy の吸収線量での測定条件が最も少ないデータ数のマージで CC_{map} の値が大きくなった。2 番目に良い条件は、2 MGy と 10 MGy であった。一方、波長 1.4 \AA で 20 MGy、波長 1.7 \AA で 20, 40 MGy の高 Dose 条件では、放射線損傷が激しく、データ精度は低下した。これらの結果から、S-SAD の位相決定には、どの波長でも 5 MGy 前後の吸収線量での測定条件が最もデータ数が少なく、短時間で測定できることがわかった。また、マージしたデータセット数が増えるほど、位相決定が容易になった。このことから、SWSX では、マージされたデータセット数が増えるにつれて、データの精度が向上していることがわかる。論文ではさらに、SWSX の大量データセットのマージの際に起きる吸収線量の実質低減の効果についても述べている。

上記の結果から、マージするデータ数を増やし、精度を向上させることで、より容易に S-SAD による位相決定が可能となることが明らかとなった。しかし、より高い線量条件である 40 MGy 波長 1.4 \AA では、

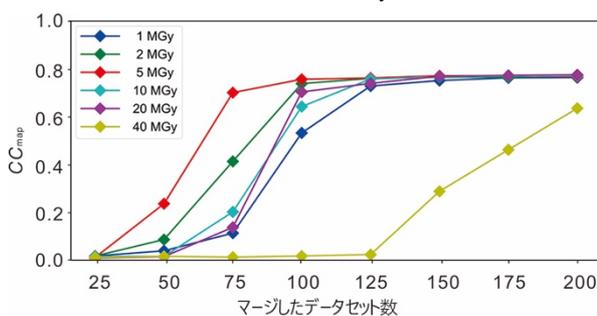


図 3 波長 1.7 \AA におけるマージしたデータ数と CC_{map} との相関。

放射線損傷のために低下したデータ精度をマージ処理で回復することができなかった。一方、低線量条件である 1 MGy と 2 MGy では、波長 1.4 Å と 1.7 Å とともに回折点の信号強度が不十分であるが、マージするデータ数を増やすことにより位相決定が可能であった。一般的なドーズスライシング測定では、ランダム誤差を低減するために、同じ結晶、同じ方位から X 線強度を N 分の 1 にして N 回回折データを測定し、N 個のデータをマージする方法である。我々の低線量 (1~2 MGy) の結果はこの測定法の模擬実験になっている。低線量実験では特に繰り返しの、測定時間が必要となり良いデータが得られても、効率的とは言えない。一方で、金属含有タンパク質の放射線損傷による局所的な損傷など、より低い吸収線量の条件での実験が必要な場合もある。解析する試料、目的に応じて最適な吸収線量を評価する必要があることは、留意する必要がある。

4. まとめ

SWSX を利用した高精度データ収集において、(1) マージ処理する結晶の数を増やすことで、位相決定は容易になる。(2) 波長 1.4 Å と 1.7 Å の両方で 5 MGy の条件が、放射線損傷による精度劣化とマージ回数による精度回復で最も効率的であることを明らかにした。この研究を通し、自動測定での特に位相決定などを目的とした SWSX の高効率・高精度なデータ収集の条件として、1 結晶あたり 5 MGy の吸収線量の測定条件での 1 データセットの取得を提案した。

参考文献

- [1] K. Hasegawa *et al.*: *J. Synchrotron Radiat.* **24** (2017) 29-41.
- [2] V. Cherezov *et al.*: *J. R. Soc. Interface.* **6** (2009) S587-S589.
- [3] G. Ueno *et al.*: *J. Synchrotron Radiat.* **12** (2005) 380-384.
- [4] K. Hirata *et al.*: *Acta Cryst.* **D75** (2019) 138-150.
- [5] S. Baba *et al.*: *J. Synchrotron Radiat.* **28** (2021) 1284-1295.
- [6] O. B. Zeldin *et al.*: *J. Appl. Crystallogr.* **46** (2013) 1225-1230.
- [7] K. Yamashita *et al.*: *Acta Cryst.* **D74** (2018) 441-449.
- [8] J. Foadi *et al.*: *Acta Cryst.* **D69** (2013) 1617-1632.
- [9] G. M. Sheldrick: *Acta Cryst.* **D66** (2010) 479-485.

馬場 清喜 *BABA Seiki*

(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 構造生物学推進室
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0833
e-mail : baba@spring8.or.jp

BL02B1 における単結晶構造解析測定 of 自動化に向けた開発の現状

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
中村 唯我
近畿大学 理工学部 理学科 化学コース
杉本 邦久

Abstract

SPRING-8 単結晶構造解析ビームライン BL02B1 では、高エネルギー X 線を活かした電子密度レベルの精密構造解析が可能である。BL02B1 では、大量の試料を高速に測定するハイスループット測定の需要が高まっており、単結晶構造解析測定の全自動化に向けて開発を進めている。多種多様な試料や実験条件に対応するため、試料環境や試料形状に依存しない自動測定システムの開発に取り組んでいる。測定の全自動化のためには、①試料の搬送と回折計への取り付け、②回折計の回転中心への単結晶試料の位置調整、③回折計の自動制御の 3 つを行うためのプログラムがそれぞれ必要となる。本稿ではこれら 3 つについての開発の現状について紹介する。

1. はじめに

SPRING-8 単結晶構造解析ビームライン BL02B1 では、高エネルギー X 線を活かした電子密度レベルの精密構造解析が可能である。BL02B1 は、無機物質のみならず有機物質も含めた多種多様な試料が測定可能であり、一片が 10 μm 未満の大きさの微小単結晶 (BL40XU EH2 の対象) やタンパク質結晶 (BL41XU、BL45XU) 以外の単結晶構造解析を一手に引き受けている。また、BL02B1 ではその場観察測定のため、電場印加や光照射等、様々な試料環境の制御が可能である。さらに、BL02B1 の回折計は、4 軸 (いわゆる χ - ϕ - ω - 2θ の 4 軸) を有することから広い逆格子空間をカバーできる。これにより、結晶構造データベースへの登録時に求められている Completeness、すなわち、格子体積、対称性、 2θ の最大値に対して期待される全反射数の充足率を達成できる。

BL02B1 では、大量の試料を高速に測定するハイスループット測定にニーズがある。上述した①様々な試料に対して測定が可能であること、②試料環境の制御が可能なこと、③十分な Completeness を達成するために 4 軸を独立に動かせること、の 3 点を維持したまま測定を全自動化することを指針として、開発を進めている。BL02B1 では形状や色が大きく異なる様々な試料を測定対象とするため、試料位置の自動調整機構

は、試料形状に依存しないことが望ましい。また、試料環境の制御ができ、かつ十分な Completeness を達成するためには、試料周囲のスペースを制限せず、フレキシブルに動作を設定できた方が都合がよい。

以上を踏まえ、我々は試料環境や試料形状に依存しない自動測定システムとして、人型の協働ロボットを活用して試料を取り付け、回折像を利用して試料位置を調整する全自動測定システムの構築に取り組んでいる。試料環境や試料形状に依存しない自動測定システムは、BL02B1 においてのみならず、放射線計測分野におけるオートメーション化に大きな役割を果たすと期待できる。

本稿では、①自動試料交換ロボット制御プログラム、②自動センタリング制御プログラム、③回折計制御プログラムの 3 つの開発状況について紹介する。

2. 自動試料交換ロボット制御プログラムの開発

試料交換を人間が行う場合、実験ハッチへの X 線入射を止めてから試料交換を行う必要がある。協働ロボットが 2 重扉を通して試料交換を行えば、この手順を省略でき、ハイスループット化が期待できる。このアイデアに基づき、我々は協働ロボットを用いた試料交換の実現に向け開発に取り組んでいる。

BL02B1 には協働ロボットが 2 体あり、1 体はハッ

チ外からハッチ内へ試料トレイを受け渡すもの (図 1(a))、もう 1 体はハッチ内で試料を交換するものである (図 1(b))。どちらのロボットも 2 つの目と腕を有し、トレイ中の試料の有無を判断し、両手を駆使して試料をトレイから出し入れできる。このトレイには現在ユーザーが使用しているマイクロマウントと同型のもので 25 個セットできる (図 1(c))。我々は、トレイをハッチ内に搬送するために、新たに 2 重扉ダクトを開発した。これにより、ハッチ外のロボットが外扉を開けてトレイをセットし外扉を閉めると、ハッチ内のロボットが内扉を開けてトレイを受け取るという一連の作業が X 線を出したまま行えるわけである。この仕組みは、我々の知る限り他の施設では実現できておらず、ハイスループット化に向けた本システムの長所である。試料がセットされたトレイをハッチ内のロボットが受け取ると、ロボットは指で器用に試料をつまみ、回折計に取り付ける。

ハッチ内外のロボットを制御するためのプログラムを、Python3 を用いて開発中である (図 1(d))。本プログラムでは、試料番号の指定、次の動作への移行のタイミングなどを制御している。

ハッチ外のロボットは、トレイ受け取り時に、マイクロマウント裏面の QR コードを読み取ることで、試

料の識別コードを取得する。本プログラムでは、読み取った識別コードを測定ファイルに自動で保存する。

ハッチ内のロボットは、プログラムからの指示に従い、自由自在に動作する。実際の実験時には、ある試料を予備測定し、あまり良質でない試料であった場合には測定をスキップするような使い方が想定される。そのため、ハッチ内のロボットの制御時には、単に試料番号 1 から 25 まで連続的に測定するだけでなく、リアルタイムに次の動作を変更できるようなフレキシブルさが要求される。本プログラムでは、測定を行う試料にチェックを入れると、その試料のみをピックアップし、測定を行うようにしている。現在、ロボット単体での制御方法は確立し、後述する自動センタリング制御プログラムおよび測定プログラムとの連携を進めているところである。

3. 自動センタリング制御プログラムの開発

BL02B1 では試料のセンタリング (回折計の回転中心に単結晶試料の位置を調整する作業) を手動で行っている。実験ハッチ内に立ち入った作業が必要のため、実験ハッチを開けてセンタリングをし、実験ハッチを閉めるという一連の作業の分、時間を浪費してしまう。また、センタリングの手作業にかかる時間は、

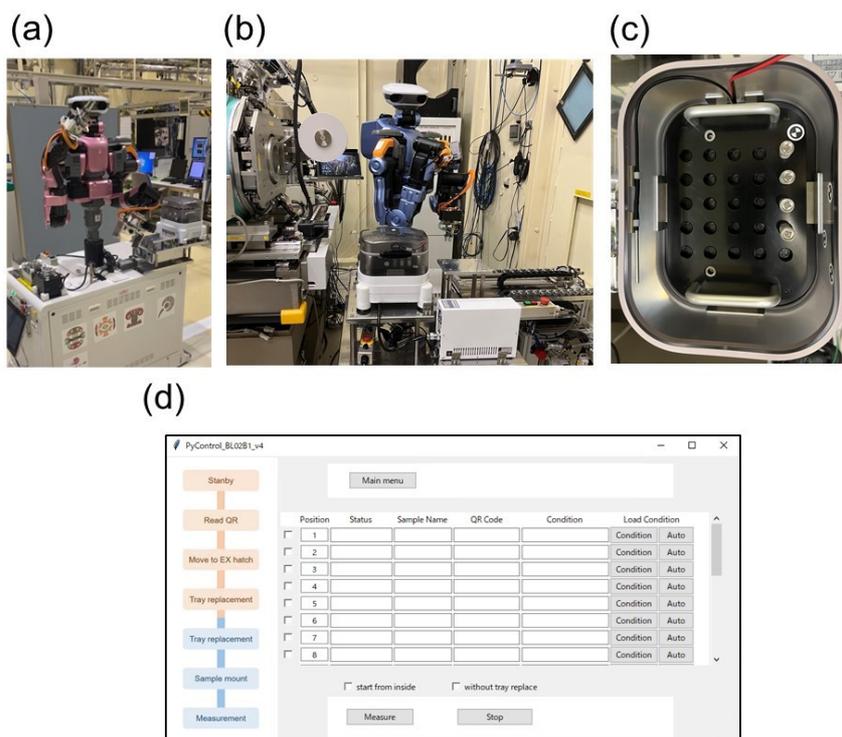


図 1 (a)ハッチ外ロボット (b)ハッチ内ロボット (c)試料用トレイ (d)ロボット制御プログラム

ユーザーの測定への習熟度によって変わってくる。新規ユーザーに対してもユーザーフレンドリーなビームラインを実現するためには、この工程は自動化することが望ましい。

測定システムのハイスループット化に向けて、自動センタリング制御プログラムを開発した (図 2(a))。初めに CCD カメラと XYZ 電動ゴニオメータヘッド (図 2(b)) を回折計に設置した。次に、Python3 を用いて、CCD カメラと XYZ 電動化ゴニオメータヘッド、および ω 軸ゴニオメータと通信し、カメラの画像を見ながら XYZ- ω 軸方向に移動するためのユーザーインターフェースを作成した。次に、表示されたカメラ画像をクリックすることで、クリックした箇所がカメラ中心にくるよう移動する機能を実装した。

測定の自動化に向け、画像認識を用いた自動センタリング粗調整プログラムを開発した。CCD カメラによって取得した画像を色相、彩度と明度でフィルタリングすることで 2 値化した。これにより、ポリイミド製マイクロループの概形を画像認識し、その頂点に対してセンタリングするように自動化した。さらに、単結晶がカメラ中央に来るように自動で微調整するためのプログラムを開発した。BL02B1 では、形状や色が大きく異なる多種多様な試料を測定対象とする。そのため、試料形状の画像認識ではなく、試料からの回折像を用いてセンタリング制御する手法を採用した。自動で回折像を取得した後、得られた回折像から回折強度を取得し、回折強度が最大となるよう単結晶位置を調整した。その結果、回折像を用いてのセンタリング制御機能を実装することができた。これによって、画像認識では概形取得が困難な小さな結晶や、形状のはっきりしない結晶に対しても自動センタリングす

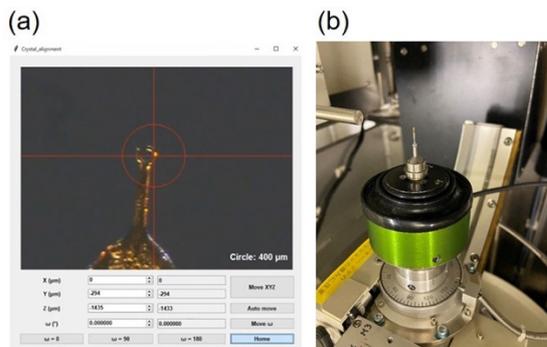


図 2 (a)自動センタリング制御プログラム (b)電動ゴニオメータヘッド

ることが可能となった。

現状の自動センタリング制御プログラムでは回折画像のファイル転送等、内部処理に時間がかかり、習熟したユーザーの手作業のセンタリングよりも高速に実行できるとは言いがたい。今後高速化のためにアップデートしていく予定である。一方で、画面上で結晶位置をクリックすることでセンタリングを行う機能については、現段階でも手作業よりも直感的に、高速にセンタリングすることが可能であるため、段階的にユーザーへの提供を進めていく予定である。

4. 回折計制御プログラムの開発

これまで、装置制御にはメーカー提供のプログラムを利用していた。このプログラムでは装置制御用サーバーにコマンドを送ることで、専用コントローラーを通じて回折計を操作するが、そのままではロボット制御プログラムや自動センタリングプログラムと連携をすることが困難であった。そのため、Python3 を用いて新たに測定プログラムを開発した (図 3)。新しいプログラムでは、これまで搭載されていなかったソフトウェアリミット機能を実装することで、実験条件の誤入力による装置エラーの可能性を排除し、安全性を向上させた。本プログラムでは、回折計の制御、検出器の制御および単結晶構造解析のために必要な種々のファイルの生成を行うことができる。

本プログラムは既にユーザー開放しており、ユーザーの声を受けて随時アップデートをしている。現状では、回折計付属のサーバーにコマンドを送る部分を本プログラムの機能としているが、将来的には回折軸のコントローラーを、より安定かつ高速に動作する汎用パルスモーターコントローラーと SPring-8 標準のモータードライバーに置き換える予定である。

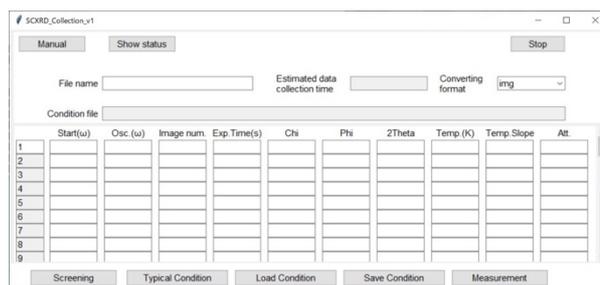


図 3 新たに開発した回折計制御プログラム

5. 最後に

SPring-8 単結晶構造解析ビームライン BL02B1 において、全自動ハイスループット単結晶構造解析測定システムを鋭意開発中である。最終的には、クリーンブース内でサンプリングした試料をトレイにのせ、ブース脇に待機しているロボットに受け渡せば、試料の搬送、結晶性のスクリーニングまでを自動で完了し、ユーザーは本測定を行う試料番号を指定するだけで一連の測定が完了するような全自動測定システムを構築したい。ロボット制御プログラム、測定プログラム、自動センタリング制御プログラムと個別に開発を進めており、それぞれについて段階的にユーザーへの提供を進めていく予定である。測定プログラムについては 2022A 期から提供を開始しており、自動センタリング制御プログラムについては 2022B 期から提供予定である。将来的には、リモート測定の可能性を視野に入れて開発を進めていきたい。

謝辞

自動試料交換ロボット制御プログラムの開発にあたり、グローリー株式会社の樽尚道氏、長澤正行氏、木戸健司氏、川崎健司氏、理化学研究所の溝曾路次雄氏には多大なるご支援・ご助力をいただいた。ここに感謝の意を表す。自動化システムの開発にあたっては、BL02B1 においてインハウス課題 2020A2133、2021A2085、2021B2075、2022A2078 に基づいて行った。

中村 唯我 NAKAMURA Yuiga

(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 : 0791-58-0833
e-mail : ynakamura@spring8.or.jp

杉本 邦久 SUGIMOTO Kunihisa

近畿大学 理工学部 理学科 化学コース
〒577-8502 大阪府東大阪市小若江 3-4-1
TEL : 06-4307-5099
e-mail : sugimoto@chem.kindai.ac.jp

高エネルギーX線用多層膜分光器の設計と導入

公益財団法人高輝度光科学研究センター

ビームライン技術推進室 小山 貴久、大橋 治彦

Abstract

SPring-8の大きな特徴の一つである100 keV前後の高エネルギーX線は、物質の透過能が高く金属内部の観察など利用分野は多様である。分光にあたり結晶では高次の反射面を用いることになり、エネルギー幅が必要以上に狭くなりすぎフラックス低下が課題である。エネルギー幅を結晶と比べ2桁以上広く設計可能な多層膜素子を用いた多層膜分光器は、試料を明るく照明可能な分光手段である。一方、高エネルギーX線用多層膜分光器をビームラインに導入するには、分光器の大きさや多層膜素子の精度などいくつかの考慮すべき技術課題がある。本稿では多層膜分光器の設計例を示し、最近、利用可能となった偏向電磁石ビームラインBL20B2とアンジュレータビームラインBL05XUにおける多層膜分光器の導入例を紹介する。

1. はじめに

SPring-8では、シリコン結晶分光器がほぼ全ての硬X線ビームラインに装備されている。SPring-8の標準的な二結晶分光器(Double Crystal Monochromator: DCM)ではSi 111面により4.5~38 keVをエネルギーバンド幅0.013%で利用可能である。より高いエネルギーにはSi 311やSi 511結晶が用いられる。Si 511の100 keVに対するエネルギーバンド幅は0.001%となり、エネルギーバンド幅が狭くなるほどエネルギー分解能は向上するが、光強度は低下し、結晶の姿勢に対して敏感となる。

高エネルギー領域では、イメージングや蛍光X線分析、高フラックスが必要な回折実験(二体分布関数解析など)のように光強度や安定性を必要とするが、エネルギー分解能は結晶分光器ほど必要としない利用が多数ある。そこで、高エネルギー領域において十分な反射率を有しつつ、エネルギー幅を広く設計可能な分光素子として2枚の多層膜ミラーを用いた多層膜分光器(Double Multilayer Monochromator: DMM)の設計と導入を進めてきた。本稿では、2020年以降の偏向電磁石ビームラインとアンジュレータビームラインにおける導入・試験例を紹介する。

2. 高エネルギーX線用多層膜分光器

本稿で紹介するようなX線分光で一般的な多層膜は、軽元素層(カーボン、炭化ホウ素、シリコンなど)

と重元素層(クロム、モリブデン、タングステンなど)の2種類の元素のペアをシリコンなどの平面基板上に数十から数百層、精度良く積み重ねた構造をしている。多層膜の周期長 d はブラッグの関係式から以下のように与えられる。

$$d = \frac{m\lambda}{2\sqrt{n^2 - \cos^2\theta}}$$

ここで m は反射の次数、 λ はX線の波長、 $n = 1 - \delta$ は多層膜の平均の屈折率(δ は1からのずれ量)、 θ は斜入射角である。多層膜の最小周期長は成膜の都合から2 nm程度である。これ以下になると界面粗さや拡散などにより反射率が急激に減少する。100 keVのX線を考えると δ は 10^7 程度であり n はほぼ1となり斜入射角は3 mrad程度と浅い角度となる。入射ビームを受光するために例えば2 mmの開口では、600 mm以上の長い基板が必要となる。また、光源からのガンマ線とX線を分離し遮蔽するために、分光器出射後のX線はSPring-8では通常30 mmのオフセットを設けている。入射ビームと平行に出射ビームを取り出すには、2枚の多層膜素子を5 m程度離す必要がある。偏向電磁石ビームラインの場合では横幅の広いビームを利用するため、長さだけでなく幅の広い基板と均質な多層膜が必要となり、大面積の高精度な研磨と成膜技術が必要となる。

二結晶分光器のように定位置出射で、広範囲に連続的にエネルギー可変とすることは、大きな素子を長距

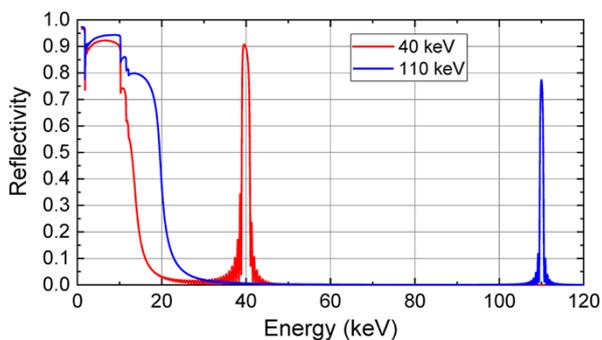


図1 W/B₄C 多層膜の反射率計算例。パラメータは表1を使用した。

離に移動させる必要があり現実的ではない。そのため、利用で求められる離散的な特定のエネルギーに特化して設計する。

40 keV および 110 keV 用多層膜の反射率を横軸エネルギーとした計算例を図1に示す。目的のエネルギー (40 keV と 110 keV) のほか、30 keV 以下の全反射成分も同軸上に混入するので、フィルタなどにより除去する必要がある。分光器の前に適切な厚さの水冷フィルタを挿入することで、全反射成分のほか、多層膜への入熱も減らすことができ、熱変形低減や長期安定性の向上に有益である。

多層膜反射率のピーク幅は、密度差が大きい材料系ほど、また斜入射角が小さい (多層膜周期が大きい) ほど、広がる傾向にある。これにより目的のエネルギーバンド幅に合わせてある程度設計できる。また、多層膜の密度と粗さによってもピーク幅が変化するので、使用する多層膜ミラーのパラメータと近い条件で成膜された多層膜の密度と粗さを予め知っておくことも重要となる。

3. 偏向電磁石ビームラインへの導入例

ビームライン再編計画に基づき中尺ビームライン BL20B2 に、高エネルギーX線 (40 keV と 110 keV) による広視野・高速イメージングのために多層膜分光器を導入した^[1]。40 keV は主に血管造影や材料破壊の高速現象をとらえること、110 keV は電子デバイスや比較的大きな化石などの高精細画像を得ることを目的としている^[2]。

多層膜素子はシリコン平面基板 (長さ 820 × 幅 80 × 厚さ 60 mm³) 上のタングステンと炭化ホウ素の多

表1 多層膜の設計パラメータ

エネルギー (keV)	40	110
周期長 (nm)	3.85	1.908
周期数	50	200
斜入射角 (mrad)	4.29	3.00

層膜とし、40 keV 及び 110 keV 用の設計パラメータを表1に、光源とフィルタと多層膜の反射率を考慮したフラックス密度のエネルギー分布の計算例を図2に示す。目的の高エネルギー領域において高い反射率が得られることが期待される。110 keV 使用時には0.3 mm 厚さの銅板を挿入することで、フラックスを十分確保しつつ、全反射成分を大きく除去し、多層膜ミラーに吸収される熱量を 123 W から 55 W に半減できる。

光学ハッチ内には、図3に示すように、スリットと水冷フィルタの下流に、110 keV 用の多層膜素子 (M1a と M2a) と 40 keV 用の多層膜素子 (M1b と M2b) を配置し、SPring-8 標準型の二結晶分光器 (DCM) と

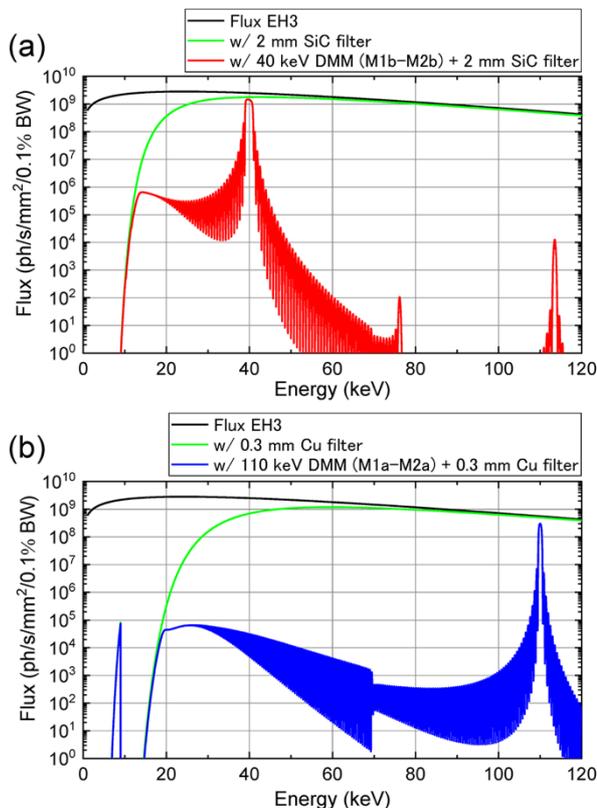


図2 光源とフィルタおよび(a) 40 keV 多層膜分光器、(b) 110 keV 多層膜分光器後の BL20B2 の実験ハッチ3におけるフラックス密度。

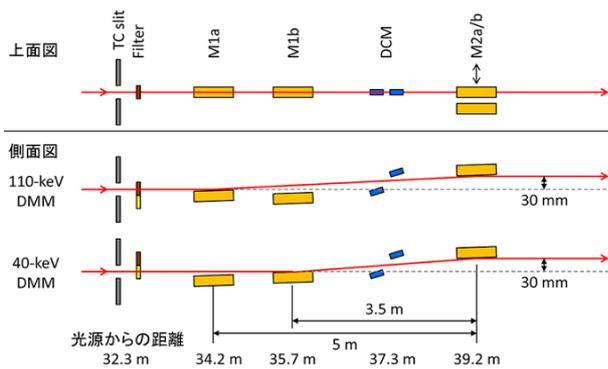


図3 BL20B2 光学ハッチの多層膜分光器の配置図。

同じ 30 mm オフセットで平行にビームを実験ハッチに導いている。これら素子はいずれも超高真空チャンバ内で水冷されている。エネルギーの切替えは素子の退避・挿入によって行われ、多層膜分光器の配置を工夫して二結晶分光器の中の 2 枚の結晶の間をすり抜ける光路を実現している。水冷フィルタは合計 11 種の材料と厚さを選択できる。M2a と M2b チャンバ内には 2 枚の多層膜ミラーを並列して設置しており、並進ステージにより切り替える。多層膜ミラーの姿勢は 3 台の上下並進ステージにより、上下、斜入射角、ロール角を制御する。M1a、M1b にはベント軸を設けミラーの自重たわみおよび熱負荷による変形を補正する。BL20B2 では光源から 200 m 離れた実験ステーションに 110 keV で幅 300 mm × 高さ 14 mm の大面積で均一な X 線が求められている。素子のわずかな歪みにより高さ方向のビームサイズが変わってしまうため、ベント軸によりビーム変形を補正している。多層膜分光器と二結晶分光器を、超高真空雰囲気損なうことなく自在に切り替え可能としており、広範な利用ニーズに応えられる光学配置とした。

2019 年から設計検討に着手し、2020 年 12 月から改造工事を進め、2021 年 4 月から立上調整・評価、2021B 期から供用開始した。各実験ハッチ (EH1:光源から 44 m、EH3:光源から 210 m) におけるフラックス密度 (ph/s/mm²) の測定値は 40 keV で 1.4×10^{12} (EH1)、 6.9×10^{10} (EH3)、110 keV で 3.9×10^{10} (EH1)、 1.6×10^9 (EH3) で、結晶分光器と比べて約 2 桁増を達成した。また、エネルギーバンド幅の測定値は 40 keV で 4.2%、110 keV で 0.9%であった¹⁾。

4. アンジュレータビームラインへの導入例

次世代光源に向けた高エネルギー・高フラックス光学系開発のため、理研の施設開発 ID ビームライン BL05XU では各種の光学機器の試験が進められている³⁾。2019 年度末にフロントエンド部と光学ハッチ内機器の大規模改修を終え、いくつかの種類の多層膜を SPring-8 キャンパス内で成膜し、評価を進めている。

改修当初から 2020 年末までは、30~40 keV 用の多層膜分光器の試験を行った。長さ 250 mm のシリコン平面基板に、タングステンとカーボンのペアを周期長 5.9 nm で 20 周期成膜した。成膜時間は 1 枚当たり 17 時間程度である。図 4 に示す M1 と M2a の位置に設置した。BL05XU では出射ビームの高さを変える (30 mm と 22.5 mm) ことで、1 組の多層膜で、斜入射角 4 mrad で 30 keV、3 mrad で 40 keV を出射可能とした。アンジュレータの 3 次光を切り出しており、エネルギーを 40 keV に設定したときのスペクトルを図 5(a)に示す。全反射成分を除去し多層膜への入熱を軽減するためのフィルタは、アンジュレータではパワー密度が高いためダイヤモンドからモリブデンまでのフィルタを多段に挿入し過度の温度上昇を防ぎつつ間接水冷で対応可能な構造とした³⁾。

実測されたビームサイズは光源から約 62 m 地点の開発試験エリアで 5 mm (H) × 1.2 mm (V) である。30 (40) keV においてダイヤモンド 1.2 mm 厚と SiC 1.4 mm 厚のフィルタを挿入して評価し、フラックス 1.2×10^{15} (6.5×10^{14}) ph/s、エネルギーバンド幅 1.5 (1.7) %となり、Si 111 結晶分光器と比較して 100 倍増を達成した。この高フラックス 40 keV ビームは、先導的試験利用として高圧その場環境下における SiO₂ ガラスの高精度構造測定に利用された^{4,5)}。

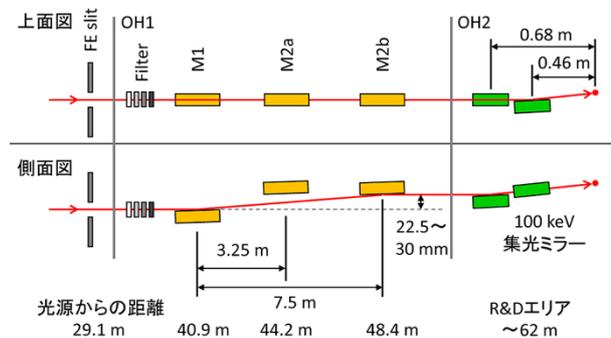


図4 BL05XU 光学ハッチの多層膜分光器と集光ミラーの配置図。

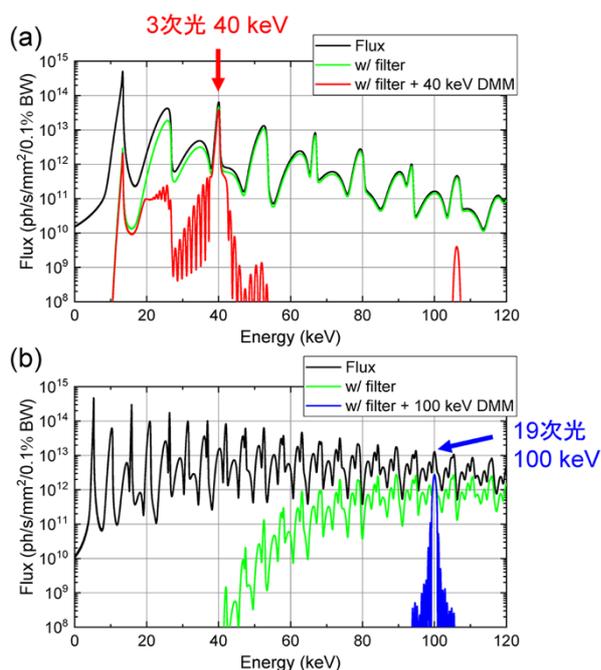


図5 光源とフィルタおよび多層膜分光器後のフラックス。(a) 40 keV 多層膜分光器設置時、(b) 100 keV 多層膜分光器 (現在)。

2021年には100 keV用多層膜に交換し、フラックス、エネルギースペクトルの評価や、冷却方式の技術開発を進めている。100 keV用多層膜は、クロムとカーボンの150周期で、周期長は3.33 nmであり、成膜時間は1枚あたり80時間を要している。100 keV用多層膜は図4に示すM1とM2bの位置に設置し、斜入射角は1.9 mradで、アンジュレータの19次光を多層膜分光器で分光する(図5(b))。アンジュレータの19次光はメインピークの裾に不要な成分が現れるため、これを除去するために多層膜反射率の幅をメインピークの幅と同程度の1%程度と設定した。多層膜材料は密度差の小さい材料系としクロムとカーボンを採用している。実測されたビームサイズは5 mm (H) × 0.8 mm (V)、フラックスは 3×10^{13} ph/s、エネルギーバンド幅は1.0%となり、Si 511と比較して290倍増を達成した^[6]。すでに高速イメージングなどの先導研究が始まっている。

さらに、タングステンとカーボンの50周期の多層膜ミラーを利用したKB (Kirkpatrick-Baez) 配置の集光光学系の開発・評価を行っている。100 keV多層膜分光器と組み合わせることで、ビームサイズ5 μm (H)

× 0.3 μm (V)、フラックス 1×10^{12} ph/sの高フラックスモードでの100 keVマイクロビームを実現した。また、フラックスは低下するが、フロントエンドスリットの横方向を制限し、ビームサイズ0.3 μm (H) × 0.3 μm (V)、フラックス 6×10^{10} ph/sの高空間分解能モードも装備している^[7]。

5. まとめ

偏向電磁石ビームライン BL20B2 とアンジュレータビームライン BL05XU における多層膜分光器の導入例を示した。すでに高速イメージングや回折実験などが進められている。高フラックスかつ高エネルギーのX線は他の施設と比べてもSPring-8の特徴であり、高エネルギー用光学素子の開発と利用機会の拡大は急務である。

高エネルギービームの均質化のために素子基板や多層膜の精度向上が求められており、また、110 keVを越える高いエネルギー領域に適応可能な多層膜の開発も課題である。あわせて高エネルギー用検出器の進展も求められる。

ビームライン再編計画では、高フラックスの100 keVビームの利用ニーズ拡大に応えるように、数年以内にアンジュレータビームラインにおける100 keV多層膜分光器の新たな整備を予定している。高エネルギー領域での高フラックスのマイクロビームの汎用化は、比較的厚い金属内部の微細な構造観察や、産業界などでニーズの高い実環境に近い試料や雰囲気での動的な観察など、利用分野の拡がりや、新たな手法の開拓が進むものと期待される。

謝辞

多層膜分光器の立ち上げと評価は、それぞれのビームライン担当者と関係スタッフと共に、JASRIのビームライン技術推進室及び理研の物理・化学系ビームライン基盤グループと制御情報・データ創出基盤グループによるビームライン改編に関わる研究員・技術職員の共同成果を代表して紹介したものである。BL20B2多層膜分光器の立ち上げ、評価はインハウス課題2021A2084に基づいて実施された。

参考文献

- [1] T. Koyama *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **29** (2022) 1265-1272.
- [2] 上杉健太郎他: SPring-8/SACLA 利用者情報 **26** (2021) 448-449.
- [3] H. Yumoto *et al.*: *Proc. SPIE* **11492** (2020) 114920I.
- [4] 河野義生: SPring-8/SACLA 利用者情報 本号.
- [5] Y. Kono *et al.*: *Nat. Commun.* **13** (2022) 2292.
- [6] H. Yumoto *et al.*: *to be submitted.*
- [7] T. Koyama *et al.*: *to be submitted.*

小山 貴久 KOYAMA Takahisa

(公財) 高輝度光科学研究センター
ビームライン技術推進室
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0831
e-mail : koyama@spring8.or.jp

大橋 治彦 OHASHI Haruhiko

(公財) 高輝度光科学研究センター
ビームライン技術推進室
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0831
e-mail : hohashi@spring8.or.jp

第12回 X線非弾性散乱国際会議 IXS2022 会議報告

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
精密分光推進室 福井 宏之

1. はじめに

X線非弾性散乱 (Inelastic X-ray Scattering: IXS) に関する国際会議の第12回目が、英国オックスフォード市の Saïd Business School に於いて、2022年8月21日から26日の日程で開催された。この会議はこれまで2年毎に開催されていたが、前回2019年の Stony Brook 大学での開催から3年ぶりとなった。予定されていた2021年開催が、COVID-19の影響により延期となったためである。本会議は放射光施設が主催することが常であり、今回は Diamond Light Source (DLS) による開催であった。依然ハイブリッド開催も多いこの時期に、原則現地参加での開催であった。世界に先駆けて COVID-19 に対する規制を全廃した英国のお国柄を反映しているように思われた。

会場となった Saïd Business School は Oxford 駅のすぐそばにあり、非常に近代的な建物である(図1)。21日の Welcome reception では、参加者たちが久しぶりの対面を喜び、親睦を深めていた。



図1 Saïd Business School の外観。英国らしい曇天であった。

2. 会議内容

Scientific Program は DLS の CEO である A. Harrison 氏の挨拶で始まった。セッションは主に研究対象による分類がなされており、Quantum Materials、Functional Materials、Energy & Catalytic Materials、

Time Domain Spectroscopy、Novel Instruments & Methods、Soft & Extreme Conditions の6ジャンルに分けられていた。プログラムは IXS2022 のウェブサイト¹⁾で閲覧できる。口頭発表が64件 (remarks 含む)、ポスター発表が37件であった。Delegate list に挙げられた人数は119人であった。



図2 主会場となった Nelson Mandela Lecture Theatre。

口頭発表は Nelson Mandela Lecture Theatre にて行われた(図2)。7件の Plenary talk を含めた口頭発表の内訳は、Resonant IXS (RIXS) が34件、フォノン非共鳴 IXS が7件、コンプトン散乱が3件、X線ラマンが3件、HERFD-XAS (蛍光検出高分解能 X線吸収分光法) が2件、時間ドメイン関係が8件、FELビームライン関係が5件であった。RIXS、特に軟 X線 RIXS の発表件数の多さが近年の特徴である (RIXS 発表中32件、FEL-BL 中4件)。

別の切り口として、発表者の所属について見てみたい。口頭発表の内、所属が非放射光施設の発表者 (ユーザー) によるものは34件、放射光施設の発表者 (理論除く) によるものは22件であった。なお、理論計算の発表は6件であった。SPRING-8に限ってみると、ユーザーと施設関係者による発表はそれぞれ3件ずつであった。

もうひとつ、本会議は基本的に完全に現地参加と聞いていたが、11件のバーチャル発表が実施されていた

た。バーチャル発表者はご自身の発表にだけ参加されており、会議全体を視聴されていなかったようだ。ただ技術的には可能だったように思われるため、もし一般にもバーチャル聴講を許容していれば、「IXS に興味はあるが会議に出向くまでは…」という潜在的ユーザーの掘り起こしになったのではないかと考える。

セッション中、特に熱い議論が交わされていたふたつの発表を紹介したい。ひとつ目は、Sorbonne 大学の H. Elnaggar 氏による、 Fe_2O_3 へマタイト中の Fe^{3+} の L_3 RIXS を測定し、1 フォトンによる 5 マグノンの励起を観察したとの報告である。これに対して多くの質疑がなされ、本当にマグノン励起なのか、単なる spin-flip ではないか、 $d-d$ 遷移を見ているのでは、といった議論が交わされた。筆者はこの分野に詳しくはないが、励起エネルギーの運動量依存性（つまり分散関係）が示されてはならず、これ無しにマグノンと言えるのかか疑問であった。興味のある方は参考文献をご覧ください⁹⁾。ふたつ目は、Hokkaido 大学の K. Asakura 氏による、MARX-Raman (Multi Atomic Resonant X-ray Raman) の報告である。 $\text{Er}(\text{C}_5\text{H}_5)_3$ に対して、Er L_3 端に対応した X 線を入射すると、エネルギーロススペクトルに、C K 端に対応する構造が観測されたという実験例と共に、散乱断面積の理論的解釈を発表していた。これに対する Potsdam 大学の A. Föhlisch 氏のコメントは圧巻であった。それとは別に、電子-電子相関項が実験系において有限の値を持つのかか指摘された。発表で紹介されたデータからは、Er の共鳴効果が効いたから見えたのか、非共鳴でも見えるものなのかか判別できなかったが、今後の更なる研究の進展が期待される。

次に、筆者が個人的に注目した発表をふたつ紹介したい。いずれも IXS を用いた応用研究である。ひとつ目は電池の充放電における電極の物性研究である。これについては多くの発表が行われたが、Oxford 大学の P. Bruce 氏による Plenary Lecture が纏まっており非常に分かりやすかった。最新世代のリチウムイオン電池の陽極に用いられる過剰リチウム酸化物の酸素の酸化還元反応が、電池の充放電容量を決めているとのことであった。このメカニズムの解明には、陽極物質に対する酸素の K 端 RIXS 測定が活用された。これらの研究の発展として、O K 端 RIXS を、実際のバ

ッテリーセルを用いた充放電下においてオペランド測定するとの計画が、他の方の発表においても提案されていた。確かに、充放電メカニズムの解明に酸素の詳細な電子状態解析が可能な RIXS が有用である。一方で、オペランド測定には RIXS による作動条件での精密電子状態解析だけではなく、X 線ラマンによるバルク電池セル測定が必要になるのではないかと筆者は強く感じた。

もうひとつは、文化自然遺産に対する軽元素 XRS 研究である。Paris-Saclay 大学の L. Bertrand 氏は、昆虫入り琥珀や、オーストラリア先住民が利用していた植物浸出液加工物に対し、炭素、窒素、酸素の K 端 X 線ラマン測定を行い、化学種分別イメージングや化学分析を行った研究について講演を行った。ESRF、SOLEIL、SSRL 等の放射光ビームラインを目的に応じて使い分けることで行われた研究は、非常に印象的であった。美しいイメージングの例は参考文献をご覧ください¹⁰⁾。この講演で気になったところは、試料の放射線損傷が問題になっているとの指摘であった。バルク試料中の軽元素を非破壊で測定できるという X 線ラマン散乱のメリットを生かすはずの測定で、貴重な試料がダメージを受けては堪ったものではない。試料を冷やして測定するという対策が検討されているようだが、よりエネルギーの高い X 線をプローブとすることで試料への放射線損傷を抑えるという方法もあるかもしれない。

最後にポスターセッションについて触れなければならない。37 件のポスターが貼られた会場には、コアタイムになると多くの参加者で賑わいを見せた。人と人の距離が近く、口頭発表会場ではあまり見られなかったマスク姿の参加者も多く見られたが、各所で活発な議論が行われていた。これこそがポスターセッションの醍醐味である。Tea & Coffee Break 中の情報交換と共に、現地開催ならではの雰囲気があった。

3. IXS2024

Conference Banquet は Wadham College で開催された。こちらは発表会場の Saïd Business School とは打って変わってゴシック調の建物で、いわゆる Oxford らしい趣があった (図 3)。通りに面した扉を入ると広い芝生の広場があり、さらに進むと広い庭や

礼拝堂があった。Oxford の Collage 文化を垣間見ることができた非常に良い機会であった。食堂ではそれこそハリーポッターの世界に飛び込んだような錯覚を覚えるほどで、素晴らしい体験をさせていただいた(図4)。



図3 Parks Road から見た Wadham College の外観。雨上がりの青空が見えていた。

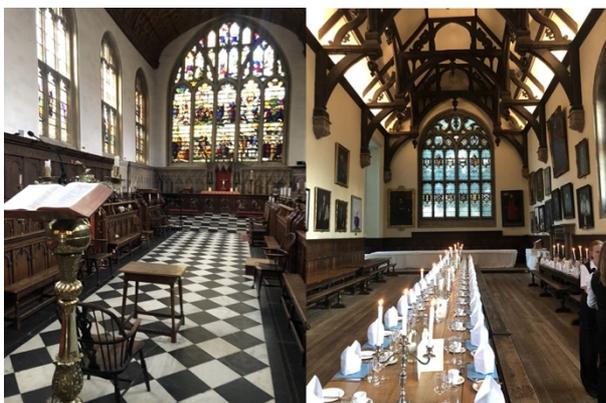


図4 Wadham College の礼拝堂(左)と食堂(右)(写真提供:A. Baron 氏)。食堂左側の壁の奥には Roger Penrose の肖像画(白っぽく見えるもの)が掛けられている。

さて、Conference dinner では次回会議開催地についての発表があった。第13回となる IXS2024 は SPring-8 がホストとなり姫路にて開催されるとのことで、RIKEN の A. Baron 氏から挨拶があった。

最終日には、本会議の International Steering Committee 会長の A. Bansil 氏による閉会の挨拶の後、再度 A. Baron 氏がスライドを用いて次会開催地である播磨地区のアピールを行った。SPring-8 がホストとなるのは2007年に行なわれた第6回以来の17年ぶりとなる。今回は開催地の関係もあり欧州研究機関からの発表が多かったが、IXS2024においては、多くの SPring-8 ユーザーによるご発表がなされることを祈念して、攔筆とする。

参考文献

- [1] <https://www.diamond.ac.uk/Conference/IXS2022.html>
- [2] <https://doi.org/10.48550/arXiv.2208.03198>
- [3] R. Georgiou, P. Gueriau, C. J. Sahle, S. Bernard, A. Mirone *et al.*: *Sci. Adv.* **5** (2019) eaaw5019.; <https://doi.org/10.1126/sciadv.aaw5019>

福井 宏之 FUKUI Hiroshi

(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 精密分光推進室
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0833
e-mail : fukuih@spring8.or.jp

第 19 回 SPring-8 産業利用報告会

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・産学連携推進室 上原 康

1. はじめに

産業用専用ビームライン建設利用共同体（サンビーム共同体）、兵庫県、(株)豊田中央研究所、高輝度光科学研究センター（JASRI）および SPring-8 利用推進協議会（推進協）の 5 団体の共催で第 19 回 SPring-8 産業利用報告会が 8 月 31 日、9 月 1 日に神戸国際会議場において開催された。

本報告会は、推進協を除く主催 4 団体がそれぞれ運用する専用および共用ビームライン（BL）の利用成果の報告会を合同開催する形で運営しており、その目的とするところは、(1) 産業分野における放射光利用の有用性の広報、(2) SPring-8 の産業分野利用者の相互交流と情報交換の促進にある。一昨年から続く COVID-19 感染症の感染拡大第 7 波が続くタイミングではあったが、3 年ぶりに対面方式で開催され、2 日間で計 214 名の参加を得た。表の開催歴から分かるように、SPring-8 サイトで開催された初期の 3 回を除いては 250 名前後の参加者があり、それらに比べるとやや少な目ではあるが、口頭発表、ポスター発表共に活発な交流が行われ、報告会の目的達成の上で対面方式が再開できた意義は大きい。

前回に引き続き、主催団体ではないが SPring-8 の産業利用に関係する団体からの発表報告があり、また産業利用に力を入れる他放射光施設や量子ビーム利用施設からは協賛機関としてポスターで各々の現状報告がなされた。本報告会が日本全体の量子ビームの産業利用の状況を知ることができる場として定着したと考える。

SPring-8 立地自治体である兵庫県が SPring-8 の社会全体における認識と知名度を高める目的で 2003 年度より設置した「ひょうご SPring-8 賞」の第 20 回受賞式と記念講演が本年も併催された。更に今回は、神戸トヨペット（株）の協賛で、SPring-8 利用成果が活

用された燃料電池自動車 MIRAI の試乗展示会が会場前の広場で同時開催された。

表 「SPring-8 産業利用報告会」開催歴

回	日程	会場	参加者
1	2004/9/7, 8	SPring-8 放射光普及棟	191
2	2005/9/5, 6	SPring-8 放射光普及棟	217
3	2006/9/5, 6	SPring-8 放射光普及棟	187
4	2007/9/11, 12	総評会館(東京 お茶の水)	255
5	2008/9/18, 19	日本科学未来館(東京 お台場)	284
6	2009/9/3, 4	東京ステーションコンファレンス	*
7	2010/11/4, 5	東京ステーションコンファレンス	*
8	2011/9/8, 9	臨床研究情報センター(神戸)	250
9	2012/9/6, 7	愛知芸術文化センター	282
10	2013/9/5, 6	兵庫県民会館	213
11	2014/9/4, 5	姫路商工会議所	269
12	2015/9/3, 4	川崎市産業振興会館	296
13	2016/9/7, 8	兵庫県民会館	248
14	2017/8/31, 9/1	川崎市産業振興会館	258
15	2018/9/6, 7	兵庫県民会館	240
16	2019/9/5, 6	川崎市産業振興会館	299
17	2020/9/3, 4	神戸国際会議場(ハイブリッド)	232
18	2021/9/1, 2	神戸国際会議場(ハイブリッド)	295
19	2022/8/31, 9/1	神戸国際会議場	214

* 「SPring-8 シンポジウム」と同時開催

2. 口頭発表・1 日目

今回は口頭発表の数が多くなったため、1 日目は従来よりも早く午前 11 時から開始された。セッション 1（開会挨拶）では、主催団体を代表して JASRI・雨宮理事長から「産業利用を更に進めるためには研究支援体制の充実が重要で、人事交流を含めた人材育成が大切。報告会を通して意見交換をお願いします」と挨拶された。

続くセッション 2（豊田 BL 研究発表会）では、BL33XU を利用した 2 件の研究事例が報告された。1 件目の加藤氏の報告は昨年度に引き続き燃料電池内

部の液水可視化についての取り組みで、触媒層からの液水排出を知るために外部から水蒸気を加えながら時系列的に CT 観察を行った結果が報告された。続く坂本氏からは人工光合成用触媒開発の中で、 C_2 化合物を効率よく合成できる“Cu 二核架橋ハロゲン錯体”を operand-XRD で解析した結果が紹介された。両報告共に反応プロセスの時系列的な解析ツールとして高輝度放射光が有用であることを示している。

昼休みを挟んでのセッション 3 (サンビーム研究発表会) では、最初にサンビーム共同体幹事の (株) 神戸製鋼所・林氏から共同体の活動概要並びに共同体が運用する BL16B2/BL16XU の現状報告がなされた後、共同体参加企業の成果について 6 件の発表が行われた。6 件のうち 3 件 (住友電気工業 (株)、三菱電機 (株)、名古屋大学 / (株) 豊田中央研究所) は化合物半導体デバイスの具体的な課題解決に関する内容で、共同体参加企業の多くがエレクトロニクス関連であるという特徴をよく表した発表となった。幹事の林氏からは、(株) 神戸製鋼所が製造しているリチウム電池の電極生産設備で製造される電池電極の構造と装置条件との関係を X 線 CT で調べた結果が報告された。また (株) 神戸製鋼所の 大友氏からは、シリコン添加鋼表面に高温プロセス下で生成する酸化膜の状態を XAFS や回折法で複合的に調べた結果が報告された。パナソニック (株) の黒岡氏から同社のサンビーム活用事例の報告があったが、その中で同社のサンビーム利用における成果専有利用率が年々増加し、2022B 期は 100%が成果専有利用という統計が紹介された。企業利用の一つの典型例であろう。

続くセッション 4 (企画講演 1) では、京都大学の安部氏から「放射光による次世代電池の反応解析」というタイトルで講演があった。安部氏は、BL29XU を運用する NEDO プロジェクト“RISING3”のプロジェクトリーダーで、“ポスト・リチウムイオン電池”の実現を目指した研究を推進されている。講演では、既に完了した“RISING2”での研究成果 (フッ化物シャトル電池の operand-XRD 解析、亜鉛空気電池・電解液中の金属イオン種の散乱解析、全固体電池校正材料の共焦点 XRD 解析) を紹介された。盛り沢山の内容で駆け足のお話だったが、電池開発に放射光が重要な役割を担っていることが再認識できる講演であった。

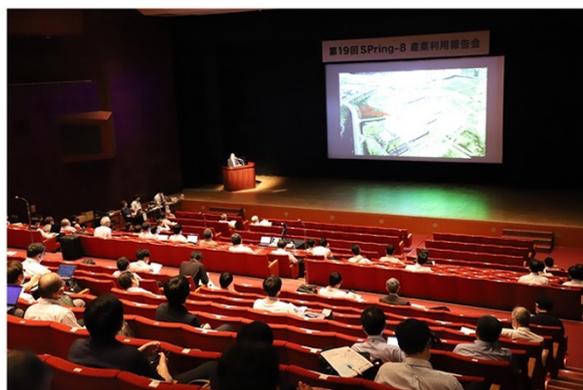


写真 1 口頭発表会場風景

1 日目最後のセッション 5 (JASRI 共用 BL 実施課題報告会) では、JASRI・佐藤氏から最近の BL 再編状況紹介を含む趣旨説明の後、5 件の発表が行われた。日本製鉄 (株) の西原氏は、ステンレス鋼の硫化ガス雰囲気下で生成した表面腐食層の深さ方向の状態を角度分散 HAXPES で調べた結果を報告した。続く住友ベークライト (株) の首藤氏からは、電子材料用エポキシ樹脂と金属との接着性評価のため、樹脂と金属界面における樹脂添加物の元素結合状態を HAXPES で調査した結果が紹介された。更にトヨタ自動車 (株) の山重氏は、次世代蓄電池として期待される全固体電池について粒子間接触状態と電池性能との関係を明らかにするため、小型電池に外部圧力をかけながら X 線 CT 撮影と交流インピーダンス測定を同時に行い内部空隙率と特性との関係を定量化した結果を報告した。九州大学の村山氏は、日本酒の香り劣化要因とされる有機硫黄化合物の選択除去を目的に開発したシリカ担持金 (Au) ナノ粒子吸着剤に関し、吸着能最適化のために焼成しながら Au の局所構造変化と焼成による生成ガスを XAFS と質量分析で同時測定し、水素中 300°Cでの調製が最適という結論を得た。明治大学の吉岡氏は、熱電変換素子として実用化が期待されるシリコン・ゲルマニウム (SiGe) 混晶薄膜について、XAFS による Debye-Waller 因子の温度依存性および X 線回折逆格子マッピングによる格子歪緩和の評価結果を報告した。吸着剤、熱電デバイス共に社会実装を行う上で超えるべき壁はまだ高いようだが、SPring-8 発の材料が 1 つでも多く実用化されることを期待したい。

今回、企業からの発表は、報告対象の材料やデバイスの各社ビジネス上の位置づけをしっかりと説明さ

れたものが多く、「産業分野における放射光利用の有用性の広報」といった報告会の一番目の目的に対する意識が根付いたと考えられる。次回以降も、こういった姿勢の継続が望まれる。

3. ポスター発表

今回は、口頭発表セッションの時間配分の都合で、ポスター発表はコアタイムを2日目午前9時半からと午後1時半からのそれぞれ1時間ずつに分けて、1F ロビーホワイエおよび地下フロアにて行われた。主催団体別にはサンビーム共同体25件、兵庫県20件、豊田中央研究所7件、JASRI 共用BL20件、協賛のFSBLから1件の計73件の発表に加え、JASRI 共用BLの整備状況や利用制度の説明、SPRUC 企業利用研究会、推進協および協賛機関（RIST、CROSS、AichiSR）の活動紹介ポスターも掲示された。特に1F ロビーホワイエは混雑が危惧されたが、想像よりは余裕が確保され且つ参加者は多くのポスターに分散し、密を回避することができた。本報告会では、初回から一貫して、口頭発表者に同一内容のポスターを掲示するようにお願いしており、今回も口頭発表時に十分に討論できなかったと感じる参加者が口頭発表案件ポスターの前で議論している風景が見えた。ポスターの配置は第11回から適用分野別としており、今回も「金属・構造材料（15件）」、「エネルギー（11件）」、「触媒（6件）」、「機械（3件）」、「食品・生活用品・医療（5件）」、「半導体・電子材料（11件）」、「有機材料（6件）」、「装置・分析技術（7件）」の区分けで展示発表がなされた。発表者間での意見交換が自然と進む他に、自分の専門とは全く異なる分野のポスターの前で話し込む姿も多く見られた。オンライン学会でもツール

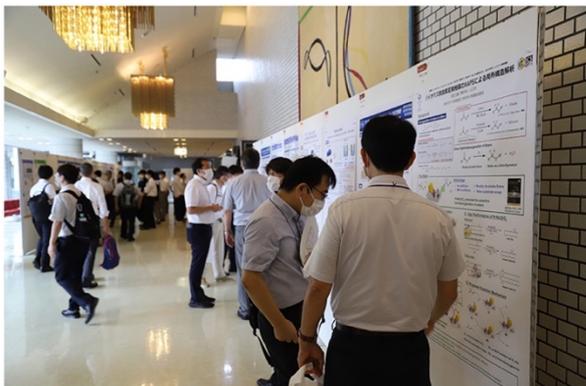


写真2 ポスター発表会場の様子

の進歩で対面に近いポスター発表も行われるようになったが、マスク越しではあっても対面での意見交換の良さを今回改めて感じた。

4. 口頭発表・2日目

2日目の午前10時半からセッション6（兵庫県成果発表会）が行われた。兵庫県は、SPring-8内のBL24XU/BL08B2の2本の専用BLの他に敷地内に兵庫県立大の付属施設である中型放射光施設ニュースバルを設置運営しており、本報告会では第7回からニュースバルでの研究成果も紹介されてきた。今回は最初に、兵庫県立大・渡邊氏より全体概況報告がなされた。専用BLの利用研究発表は3件で、最初に兵庫県手延素麺協同組合の原氏から、茹で麺内のデンプン膨潤や糊化状態の分布可視化の取り組みについて報告があった。次いで味の素（株）の大元氏からは米飯の老化（硬化、パサパサ感）とデンプンの結晶化との関係を明らかにするためにSAXS/WAXS同時測定を行った結果が紹介された。ここ数年、米飯や麺類の食感とデンプンの状態との関係評価は、食品分野における放射光利用の大きいテーマとなっている。（株）コベルコ科研の森氏は、BL08B2とニュースバルの両方を利用した二次電池材料評価の取り組み例を報告した。森氏は、本会直前に現地での発表が困難となってしまったが、昨今の状況からこのような事態に備え事務局側ではオンライン環境を整えており、講演者との接続テストも事前に実施していたため、本会では滞りなく発表いただいた。最後に渡邊氏からニュースバルでの産業利用の状況について報告があり、BLの改造により大気圧雰囲気中で電池材料中のS（硫黄）の吸収スペクトル測定が行えるようになった例が紹介された。

ポスター発表後半終了後の14時30分から、セッション7（ひょうごSPring-8 賞受賞記念講演）が行われた。今年度は（株）豊田中央研究所の加藤悟氏「ミクロ構造機能解明による次世代自動車三元触媒の実用化」と（株）日立製作所の小西くみこ氏「SiCパワーデバイス実用化に向けた動作中デバイスにおける結晶欠陥可視化技術の開発」の2名が受賞された。雨宮理事長（賞選定委員長）からの受賞理由説明、兵庫県知事（代理：産業労働部次長）からの賞状と副賞授与の後、それぞれの受賞内容に関する講演が行われた。

加藤氏はX線CT、小西氏はX線トポグラフィ技術をそれぞれ駆使した研究で、共に実用材料内部の違いや変化が「素人でも見れば分かる」ように可視化したというところが評価された。自動車三元触媒やSiCパワーデバイス是一般日常生活では目にすることがないが、いずれも社会の基本を支える重要なパーツであり、こうした分野で放射光材料解析が更に活躍することを期待したい。

セッション8(企画講演2)では、主催団体以外のSPring-8での産業利用成果として「フロンティアソフトマター開発専用ビームライン産学連合体」(FSBL)と「創薬コンソーシアム」構成企業である中外製薬(株)からの報告があった。FSBL代表の三菱ケミカル(株)・小島氏からは、FSBLの運営体制やBL03XUの状況、最近の研究成果概要について説明があった。中外製薬(株)の鳥澤氏からは、創薬プロセスにおける放射光結晶構造解析の位置づけについて説明がなされた。放射光利用前は約5年を要していたSBDD(Structure Based Drug Design)のサイクルが1.5~数カ月には大幅短縮できるようになっているという紹介があり、放射光利用の更なる効率向上への期待が示された。

最後のセッション9(講評と閉会の挨拶)では、一昨年、昨年に引き続き、理化学研究所・放射光科学研究センターの石川センター長から全体講評があった。分かり易い発表が増え明らかに年々質も向上しているが、ユーザーと分野の固定化が感じられるというコメントがあった。また、放射光産業利用の効率的拡大に向け、現状をfinal goalとするのではなく、集まって外部補助金獲得に動く等の取り組みや、東北放射光施設とSPring-8の使い分けなどの検討を進めていくことに対する期待が述べられた。

JASRI・山口常務理事からの閉会挨拶により、第19回SPring-8産業利用報告会は終了した。

5. おわりに

冒頭にも紹介したように、会場前にて燃料電池車MIRAIの展示試乗会が併催された。写真に示した展示車は公募による児童絵画をプリントしたカラフルなもので、試乗には別のホワイト車が用いられた。報告会参加者限定の試乗としたが、希望者が多く試



写真3 MIRAI 展示試乗会

乗車が会場前に止まっていることはほとんどなかった。試乗した人はみな、その静寂性に驚いていたようだ。

台風接近も危惧されたが、まずまずの天候の下で大きい問題も発生せずに開催できた。主催団体のご尽力と後援団体のご協力に改めて感謝の意を表したい。残念ながら交流会の実施は今回も見送られたが、第20回の区切りとなる来年には交流会も含めてコロナ禍前の状況に戻ることを今から祈りたい。

上原 康 UEHARA Yasushi

(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・産学連携推進室
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-2706
e-mail : yasushi.uehara@spring8.or.jp

第6回 SPring-8 秋の学校を終えて

SPring-8 ユーザー協団体 (SPRUC) 行事幹事 (秋の学校担当)
国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
物質科学研究センター
松村 大樹

秋の学校概要

2022年度の第6回 SPring-8 秋の学校が、9月4日(日)～9月7日(水)の4日間の日程で開催されました。昨年度、一昨年度と、新型コロナウイルスの影響により、当初日程の9月から延期して12月に開催しておりましたが、本年度は3年ぶりに元通りの日程である9月に開催することができました。大きなトラブルがなく無事に終了したことを報告すると共に、多くの関係者のお力添えをいただきましたことに感謝申し上げます。

第6回 SPring-8 秋の学校は、SPring-8 ユーザー協団体 (SPRUC) と高輝度光科学研究センター (JASRI) が主催し、理化学研究所放射光科学研究センター、兵庫県立大学理学部/大学院理学研究科、関西学院大学理学部/工学部/生命環境学部/大学院理工学研究科、岡山大学からの共催をいただき、関係諸機関の後援を受けて行われました。校長には SPRUC 会長の西堀英治先生 (筑波大学教授) が就任し、事務局は JASRI 利用推進部にご担当いただきました。共催大学においては、SPring-8 秋の学校を大学/大学院の単位として認定しているところもあります。

SPring-8 秋の学校が目的とするところは、幅広い観点からの SPring-8 ユーザーおよび放射光科学に関わる人材の発掘であります。SPring-8 では夏の学校も開かれ、毎年多くの参加者を数えております。夏の学校との最大の違いは、幅広く参加者を募るという観点から、SPring-8 秋の学校では放射線業務従事者登録が必要ないことです。今回の参加者におかれましても、大学3年生の方もいれば社会人経験が豊富の方もおり、多様な方に対して放射光を学ぶ機会を提供する場となっております。

秋の学校のもう1つの特徴は、SPRUC が主催団体に入っており、SPRUC の研究会及び評議員の皆様からグループ講習のテーマ及び講師の推薦を受けてい

ることです。今回も多く SPRUC メンバーの方々から講師として秋の学校にご協力いただき、バリエーション豊富で魅力的なグループ講習が行われました。遠方からお出でになられた講師の方も多くおられ、講師をお引き受けくださった皆様には深く感謝申し上げます。

参加申込者は 67 名を数え、その後体調不良等の理由で一部キャンセルが生じたものの、最終的に 23 校 7 社から 60 名の参加を得ました。内訳は次の通りです。学生 51 名 (学部 3 年生 10 名、学部 4 年生 17 名、博士課程前期 (修士) 1 年 (学部 5 年生含む) 17 名、博士課程前期 (修士) 2 年 5 名、博士課程後期 1 年 2 名)、社会人 9 名 (企業 9 名)。男性 44 名、女性 16 名。放射線業務従事者登録のない方は 44 名でした。

カリキュラムについて

カリキュラムは、1 日目に 3 講座、2 日目に 4 講座の基礎講義を行い、3 日目と 4 日目の 2 日間で 4 テーマのグループ講習を行いました。グループ講習に関しては、参加者は以下の「グループ講習について」で示す 18 テーマから希望する 4 テーマを選択し、受講しました。また、2 日目には、SPring-8 実験ホール及び SACLA 外部の見学が行われました。コロナ禍である状況を鑑み、昨年度及び一昨年度と同様に懇親会は中止としました。参加者の交流を深めるため、1 日目の最後に自己紹介の時間を設けました。

第6回 SPring-8 秋の学校 日程表

	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19
9/4 (日)		受付	開校式 [SPring-8 紹介]	「基礎講義 1」 放射光発生の基礎 正木 満博 (JASRI)	昼食	「基礎講義 2」 ビームライン 仙波 泰徳 (JASRI)	集合 写真 休憩 撮影	「基礎講義 3」 X線検出器の基礎 上杉 健太郎 (JASRI)	自己紹介	Check-in 夕食	
9/5 (月)	「講義 4」 X線自由電子レーザー入門 久保田 雄也 (理化学研究所)	休憩	「基礎講義 5」 X線イメージング 籠島 靖 (兵庫県立大学)	昼食	Spring-8実験ホール SACLA見学	休憩	「基礎講義 6」 回折・散乱の基礎と構造解析への応用 藤原 明比古 (関西学院大学)	休憩	「基礎講義 7」 XAFSの基礎 田淵 雅夫 (名古屋大学)	夕食	
9/6 (火)	移動	グループ講義 1		昼食	グループ講義 2		夕食				
9/7 (水)	移動	グループ講義 3		昼食	グループ講義 4		資料作成部 アンケート 回収				

基礎講義について

基礎講義の内容と担当者は以下の通りです。講義内容は私から見ても勉強するところが多く、参加者にとって有意義な講義であったと思われます。参加者からの講義後の質疑も活発でした。基礎講義の間にSPring-8 内の見学を実施しました。

基礎講義 1. 放射光発生の基礎

正木満博 (高輝度光科学研究センター)

基礎講義 2. ビームライン

～光源と実験ステーションを繋ぐもの～

仙波泰徳 (高輝度光科学研究センター)

基礎講義 3. X線検出器の基礎

上杉健太郎 (高輝度光科学研究センター)

基礎講義 4. X線自由電子レーザー入門

久保田雄也 (理化学研究所)

基礎講義 5. X線イメージング

籠島靖 (兵庫県立大学)

基礎講義 6. 回折・散乱の基礎と構造解析への応用

藤原明比古 (関西学院大学)

基礎講義 7. XAFS の基礎

田淵雅夫 (名古屋大学)



図1 講義風景



図2 見学風景

グループ講習について

グループ講習のテーマと担当者は以下の通りです。多くの皆様の協力により、18 テーマを準備することができました。秋の学校は放射線業務従事者登録が必要ない代わりに、放射光そのものを利用しての講習はできないのですが、実際の実験装置やデータを手にして疑似的測定や解析を進めることで、多くの参加者に取って刺激的な講習になったと思われます。

1. 単結晶構造解析
橋爪大輔（理化学研究所 CEMS）
足立精宏（理化学研究所 CEMS）
2. 粉末 X 線回折によるその場観測の実際
中平夕貴（量子科学技術研究開発機構）
漆原大典（名古屋工業大学）
3. タンパク質結晶構造解析
水島恒裕（兵庫県立大学）
河村高志（高輝度光科学研究センター）
4. 小角 X 線散乱
増永啓康（高輝度光科学研究センター）
関口博史（高輝度光科学研究センター）
八木直人（高輝度光科学研究センター）
5. 放射光を利用した応力・ひずみ計測
菖蒲敬久（日本原子力研究開発機構）
富永亜希（日本原子力研究開発機構）
城鮎美（量子科学技術研究開発機構）
6. X 線回折・散乱を用いた薄膜構造評価
小金澤智之（高輝度光科学研究センター）
7. X 線吸収分光法
大山順也（熊本大学）
山添誠司（東京都立大学）
細川三郎（京都工芸繊維大学）
片山真祥（高輝度光科学研究センター）
8. 赤外分光分析
池本夕佳（高輝度光科学研究センター）
岡村英一（徳島大学）
9. 光電子分光（HAXPES）
保井晃（高輝度光科学研究センター）
高木康多（高輝度光科学研究センター）
10. メスバウアー分光入門
藤原孝将（量子科学技術研究開発機構）
11. 結像型 X 線顕微鏡による顕微 CT
高山裕貴（兵庫県立大学）
12. 高圧力の発生と高圧下の物質科学
太田健二（東京工業大学）
13. ドーパント原子配列解析
松下智裕（奈良先端科学技術大学院大学）
14. GeV 光ビームの生成とサブアトム科学
村松憲仁（東北大学）
15. ソフト界面の構造解析
谷田肇（日本原子力研究開発機構）
矢野陽子（近畿大学）
今井洋輔（九州大学）
16. コンプトン散乱
櫻井浩（群馬大学）
辻成希（高輝度光科学研究センター）
17. X 線磁気分光と磁気イメージングによる磁性材料の解析
鈴木基寛（関西学院大学）
大河内拓雄（高輝度光科学研究センター）
18. 放射光軟 X 線光電子分光による表面化学反応の“その場”観察
吉越章隆（日本原子力研究開発機構）
津田泰孝（日本原子力研究開発機構）

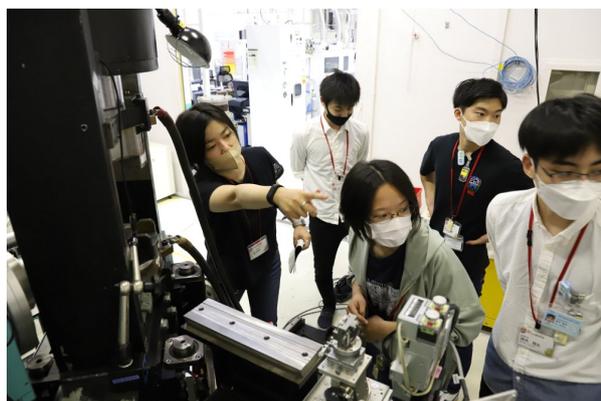


図3 グループ講習風景

まとめ

3年ぶりに秋に開催することができた SPring-8 秋の学校は、多くの参加申込をいただき、最終的に 60名の参加を得て開催することができました。当日も大きなトラブルはなく、帰宅後に体調を崩された報告も受けておらず、無事に秋の学校を終えることができました。

秋の学校では必須ではないもののレポート課題を設定しておりますが、多くの参加者から返信をいただいております。参加者の意欲の高さが伺われます。講師の方は添削のご負担をおかけしますが、参加者の一層の充実のため、宜しく願い申し上げます。

昨年度からグループ講習をそれまでの 3 テーマから 4 テーマ選択できるようにしております。これまでのアンケート結果によると参加者はグループ講習の満足度が高く、参加者により多くのグループ講習を体験できるようにしたものです。今回の参加者からのアンケート結果においても、グループ講習の満足度はとても高く、多くの参加者が有意義な時間を過ごしたものと評価しております。一方、グループ講習の講師の方の負担とはバランスを取る必要があります。先に記しました通り、グループ講習のテーマ・講師は SPRUC 研究会および評議員の皆様からの推薦を受けています。参加者・講師のどちらの満足度も高くなる形を目指して、今後も最適な秋の学校の形を考えていきます。

SPRUC は SPring-8 秋の学校の主催機関であります。今後秋の学校をどのように発展させていくか、会員の皆様の忌憚のないご意見を賜うことができれば幸いです。

SPring-8 秋の学校を実施するにあたりまして、講師の皆様を始めとして、多くの関係者の方々に大変お世話になりました。深く感謝申し上げます。より良い秋の学校にしていくことができるよう、今後とも御指導どうぞ宜しくお願い致します。

松村 大樹 MATSUMURA Daiju

(国) 日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター
〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0975
e-mail : daiju@spring8.or.jp

第 6 回 SPring-8 秋の学校に参加して

小林製薬株式会社

中央研究所 製剤研究グループ

堀合 真知

小林製薬株式会社は医薬品、芳香剤、栄養補助食品、日用雑貨品などの分野で様々な製品を提供しています。私は外用薬の処方設計を主業務としており、試作した製剤の構造を評価するために放射光設備を利用しています。恥ずかしながら“利用している”とは言うものの測定代行で取得したデータの評価しか経験がなく、基礎概論をほとんど勉強していませんでした。そこで今回、最先端の施設で最前線の研究者から直接講義を受けられる秋の学校への参加を決めました。

残暑が続く台風も心配された時期での開催ではありましたが、秋の学校という名にふさわしく朝晩は涼やかで気持ちの良い環境の中、多くの刺激を受けた 4 日間となりました。本報告記を読まれている方の中には「放射光は聞いたことがあるし興味もあるけど、何ができるのか分からない」という人も多いのではないでしょうか。もし、迷われているのであれば秋の学校への参加を強くお勧めします。大学院修士課程を対象とした夏の学校とは異なり、放射線業務従事者登録が不要であるため企業の方も参加しやすい募集要件となっています。内容も「放射光とは」の講義に始まり、発生した光から狙った光のみを取り出す「分光器」や「ビームライン」、「放射光を利用した研究実例」の一連の流れを座学で掴んでから施設見学やグループ講習へ進むため、理解しやすいカリキュラムとなっています。放射光の講義ということで数式が羅列されたものを想定していましたが、どの講師の方も「できるだけ直観的に、かつ正しく教える」ことを意識されており、物理学の苦手な私でも非常に理解しやすい内容になっていました。

コロナ禍直後は様々な研修や学会が中止され、学習機会が失われました。私自身入社 2 年目を前に予定されていた研修が次々と中止され、やるせなさや知識・経験不足による将来への不安を感じたのを今でも覚えています。現在ではオンライン開催が主流となり以前よりも学ぶ機会は遥かに多くなったように思いま

すが、秋の学校はリアル開催であり、会場の空気感や講師陣の熱量を肌を感じながら学び、自分の目で見て歩いた施設や機器のスケール感は確かに記憶に残るものでした。SPring-8は、一周1436mと聞いて思い浮かべたものより壮大であり、見た目は同じでもチームラインごとに部品の組み合わせが異なること、時にはユーザーに合わせて手作りすることもあるといった話は大変興味深く、また目を輝かせながら説明して下さる研究員の方々がとても印象的でした。

最後になりますが、新型コロナウイルス感染拡大の影響でオンライン開催が主流の中、例年と変わらないカリキュラムで秋の学校を開催していただき、誠にありがとうございました。講師の先生方、職員の皆様、並びに秋の学校事務局の皆様には厚くお礼申し上げます。来年以降も無事に開催され、より多くの学生、企業の皆さまが参加されることが次世代の放射光科学の進展に貢献することを願っています。



図4 集合写真（放射光普及棟前にて撮影）

SPring-8 シンポジウム 2022 報告

SPring-8 ユーザー協同体 (SPRUC) 行事幹事

近畿大学 理工学部 理学科 化学コース 杉本 邦久

はじめに

去る9月25日(日)、26日(月)に、SPring-8シンポジウム2022が、SPring-8 ユーザー協同体(以下、SPRUC)、理化学研究所放射光科学研究センター(以下、理研)、高輝度光科学研究センター(以下、JASRI)、東京大学の主催により開催されました。第11回目となった本年度のシンポジウムは、SPring-8の先端分析技術に裏打ちされた基礎研究から新たな社会基盤を構築し、その先に求められる未踏の分析アプローチに応えることが新しい学問分野の創成に繋がるとの思いから、「SPring-8がつむぐ学術と社会のリンケージ」をテーマとしました。この循環が生み出す学術と社会のリンケージ(つながり)を深めるようなSPring-8の利用を議論することにより、SPring-8の将来のビジョンが描かれることを期待して、SPring-8放射光普及棟大講堂・中講堂とオンラインのハイブリッドで2日間開催し、講演者及び参加者でSPring-8への来所が可能な方はSPring-8普及棟大講堂に集まる形をとりました。オンラインからの質問はチャットを経由して受け取り、座長が講演者に伝えるようにしました。開催方式の検討と当日の運営についてはSPRUC副会長の東京大学の原田慈久氏にご尽力いただきました。

セッションI オープニング

オープニングセッションでは、西堀英治 SPRUC 会

長(写真1)より開会の挨拶がありました。続いて、オンラインでの理研の松尾浩道理事(写真2)から挨拶がありました。今回は、接続の都合で画面なし音声のみの挨拶となりました。JASRIの雨宮慶幸理事長(写真3)より、現地での挨拶がありました。最後に、文部科学省科学技術・学術政策局研究開発基盤課古田裕志課長から来賓挨拶をいただきました。それぞれの方々の挨拶の中では、科学技術の探求と産業界や社会のつながりについての今後の期待が述べられたことから、社会の中におけるSPring-8およびSPRUCの役割を強く認識させられました。

セッションII 施設報告

セッションIIでは、施設報告として、理研とJASRIから、理研放射光科学研究センター物理・化学系ビームライン基盤グループ矢橋牧名グループディレクター(GD)(写真4)、JASRI利用推進部木村滋部長(写真5)、JASRI放射光利用研究基盤センター坂田修身副センター長(写真6)、JASRI XFEL利用研究推進室藪内俊毅グループリーダー(写真7)による講演が行われました。矢橋GDからは、「近況と展望」と題した講演が行われました。昨今の電気代の上昇に伴い、利用時間確保のため光熱費の推移を注視している点及びSPring-8の改修計画に先立って、ビームライン(BL)再編&運用改革を実施していることが報告されました。



写真1 西堀英治 SPRUC 会長



写真2 松尾浩道理事



写真3 雨宮慶幸理事長



写真4 矢橋牧名 GD



写真5 木村滋部長



写真6 坂田修身副センター長



写真7 藪内俊毅グループリーダー

木村部長からは、「利用制度の改正」と題し、利用制度改正の実施状況及び長期間有効な利用課題の改正について講演が行われました。利用制度改正に関しては、利用者層の拡大、利用制度の複雑化、国の中間報告を背景として、国の中間評価の提言を踏まえつつ、利用者にとって使い易い利用制度、産学官の多様な利用者の積極的な利用を促し、社会に対する一層の貢献を趣旨としている点について報告がありました。次に、利用制度改正の実施状況については、2022A期から緊急課題の改正、時期指定課題の改正、大学院生提案型課題の改正が行われたこと、2022B期からは、課題募集の頻度拡大、産業利用ビームラインI・II・IIIの運用変更が行われたことの詳細について示されました。

坂田副センター長からは、「共用BL再編の現状」と題した講演が行われました。再編のコンセプトとして、Production装置のカテゴリについて幅広い成果を目指し各手法を高度化、ハイスループット化、基盤的な分析装置群の高性能化や産学連携のさらなる促進、オペランド構造解析のニーズへの対応、重複装置の集約や配置最適化が示され、今後、X線分析の専門家ではない方が文化財や化石を代行測定可能となるようにX線マイクロCT自動測定装置やPDF測定時間を大幅短縮したハイスループットPDF測定装置の整備などを行なっていくことが報告されました。

藪内俊毅グループリーダーからは、「SACLA 共用開始10年のサマリー」と題した講演が行われました。X

線自由電子レーザー施設 SACLA の概要について話された後に、SACLA 共用開始からの10年に実施された光源性能と利用環境の高度化、主な共用装置と利用基盤の現状、世界のXFEL施設の現状を踏まえたSACLAの今後の展開について講演されました。この10年間において、SACLAの性能・利用環境は大きく向上し、FELビームラインの増設、高度化によるユーザー運転時間の倍増、ユーザーと密に連携した装置や利用手法の開発による利用基盤の高度化、XFEL光源と利用基盤の高品質化を目指したDXの取り組みを実現することにより幅広い分野で利用研究の成果が創出されたことについて報告がありました。また、現在、SACLAを取り巻くXFEL・放射光施設の環境は、世界のXFEL施設が2拠点から5拠点に増加し、放射光施設では第4世代化（低エミッタンス化、高輝度化）が進むなど大きく変化しており、今後は、競争と協力のバランス、SACLAの価値向上（XFEL光源性能・利用基盤の発展）が重要であり、2030年代を目処に高繰返し化（1kHz以上）を目指すことが示されました。

セッションⅢ 東大がつむぐ学術と社会のリンケージ

セッションⅢでは、東大がつむぐ学術と社会のリンケージとして、東京大学から、原田慈久氏（写真8）、伊藤耕三氏（写真9）、三村秀和氏（写真10）による講演が行われました。冒頭、原田慈久氏よりイントロダクションとして、東京大学を取り巻く学術と社



写真8 原田慈久氏



写真9 伊藤耕三氏



写真10 三村秀和氏

会のリンケージの現状に基づいて主旨説明が行われました。

引き続き伊藤耕三氏より「SPring-8 を利用した高分子の強靱化研究」と題した講演が行われました。ロタキサン構造を利用した高分子材料であるタフポリマーの研究成果のみならず、内閣府の革新的研究開発プログラム (ImPACT) 及び戦略的イノベーション創造プログラム (SIP) を通して築き上げられた学術と産業をつなぐ仕組みづくりであるマトリクスマネジメントについて示されました。

三村秀和氏からは、「高速 X 線撮像が拓く精密加工学」と題した講演が行われました。工作機械+放射光で何ができるかとの視点から、静的な加工前後の比較だけでは加工現象の理解に限界があるため、加工をしている様子を直接みたいとの興味から高速 X 線撮像による研削加工、レーザー加工の原理解明への産業的な展開と要望について示されました。

セッションⅣ パネルディスカッション

今回で6回目となる「パネルディスカッション」が行われました。原田慈久氏をモデレーターとし、パネリストとして、理研放射光科学研究センターの石川哲也センター長 (写真 11)、JASRI の山口章理事 (写真 12)、伊藤耕三氏、三村秀和氏が会場およびオンラインで参加しました (写真 13)。

当パネルディスカッションのテーマは、「SPring-8 がつむぐ学術と社会のリンケージ」です。最初に、司会の原田慈久氏よりセッションⅢを振り返り、SPring-8 が今後さらに進める産学連携の中で大学、国立研究機関、施設が果たす役割や学術側のモチベーション及びインセンティブに対する問いかけが行われました。次に、山口章理事より企業に在籍していた経験に基づき、SPring-8 の産業利用の更なる促進策として、



写真 11 石川哲也センター長



写真 12 山口章理事



写真 13 パネルディスカッション

「産」の単独での利用及び「産学連携」の両方を充実させることの重要性が示されました。さらに、「モノづくりの課題」へ裾野を広げるなど相手の立場を理解した産・学術・施設連携のあり方を議論し推進していく必要性について示されました。

伊藤耕三氏より、自身が進めてこられたプロジェクト研究の中で培ったマトリクスマネジメントについて、改めて紹介され、企業と大学の先生方との綿密な打ち合わせを複数回行うことによりマッチングを成立させて産学連携を推進した経験を紹介されました。三村秀和氏からは、自身の産学連携の姿勢として、最初から必ずビジネスとして利益を産むことを想定せず、科学的な興味に基づいて出発し、共同研究開発に発展させる方法について紹介されました。石川哲也センター長からは、学術研究機関・施設・産業が、サイバースペース上で連携するリサーチリンケージを構築することにより、相乗効果による関連分野の発展への期待が示されました。

また、会場からは、学術と産業を結ぶためには、多くの学生を博士後期課程に進学させ、課題解決が可能な科学的関心の高い人材を大学から送り出す努力も必要でないかとの意見や SPring-8 を使っている企業の多くは研究所を持つような大きな企業であるが、規模を問わず知的好奇心は持っているので、学術側からの歩みよりにより産学連携が推進できるのではないかとの意見が出されました。

最後に、原田慈久氏が議論について、産学連携はいろいろな形があるにせよ、企業から求められていることが再認識され、実施しやすい仕組みづくりについても、迅速に大学、企業、施設が連携して構築していく重要性を示された形で終了しました。

セッションⅤ 利用トピックス

セッションⅤでは、利用トピックスとして、大阪大学の山田純平氏 (写真 14)、東京大学の平沢達矢氏

(写真 15)、住友ゴム工業の金子房恵氏(写真 16)、京都大学の北川宏氏(写真 17)による講演が行われました。

山田純平氏からは、「SACLA における高強度 XFEL sub-10nm 集光」と題した講演が行われました。SACLA におけるナノ集光の話題から始まり、sub-10 nm 集光光学系の設計の境界条件を達成するために開発された Wolter III 型 advanced KB ミラーに関する開発と性能評価について報告されました。

平沢達矢氏からは、「放射光 X 線マイクロ CT を用いたデボン紀脊椎動物化石の骨格形態および組織構造の精密観察」と題した講演が行われました。脊椎動物の「かたち」は、どのように進化してきたのかをパレオスポンディルスの化石の X 線 CT 像を解析することにより脊椎動物の進化における 1890 年以後の謎を解明されたことについて報告されました。

金子房恵氏からは、「テnder-X 線タイコグラフィを用いたリチウム硫黄電池の化学状態の可視化」と題した講演が行われました。リチウム硫黄電池において課題となっているリチウムと結合した硫黄の溶出に伴うサイクル特性の悪化及び長寿命化のヒントを得るために活物質粒子単体だけでなく充放電における活物質の硫黄の化学状態をナノレベルで可視化するテnder-X 線タイコグラフィ開発の取り組みについて報告されました。

北川宏氏からは、「～多元素ナノ合金触媒の開発と SPring-8 への期待～」と題した講演が行われました。合金の組合せにおいては、未だに 7 割以上は自由に混ぜ合わせられないところ、多元素ハイエントロピー効果を利用した準安定状態の元素融合を行い、硬 X 線光電子分光などを用いた評価及び実用化に向けた取り組みについて報告されました。



写真 14 山田純平氏



写真 15 平沢達矢氏



写真 16 金子房恵氏



写真 17 北川宏氏

セッション VI データサイエンスと放射光

セッション VI では、データサイエンスと放射光として、理研の初井宇記チームリーダー(写真 18)、復旦大学の服部素之氏(写真 19)、トヨタ自動車の庄司哲也氏(写真 20)による講演が行われました。

初井宇記チームリーダーからは「SPring-8 データセンター構想」と題した講演が行われました。検出器の出力ポートのデータ帯域増大及びポート数の増大(並列化)によるデータ量の増大に関する課題について、大規模並列計算による解析フローの短縮などを念頭に置いた SPring-8 データセンター構想についての取り組みについて報告されました。

服部素之氏からは「AlphaFold、襲来」と題した講演が行われました。近年、構造生物学で注目を集めているタンパクの予測構造ソフトウェア AlphaFold2 において適切に使うためには、予測構造の正確さを判断できるリテラシーが必要であるなどの注意点について報告されました。

庄司哲也氏からは「大型研究施設における MI と DX」



写真 18 初井宇記チームリーダー



写真 19 服部素之氏



写真 20 庄司哲也氏(右上)

と題した講演が行われました (MI: Materials Informatics)。MI の活用が限定的になってしまっている原因として、分析データはあるものの、どうすれば欲しい情報をとりだせるのかが不明で MI 活用が滞っていることなどの事例を指摘し、将来の社会解決のために MI・DX による材料研究の課題や加速させる取り組みについて報告されました。

セッションVII SPRUC 総会・YSA 授賞式、受賞講演

SPRUC 総会、Young Scientist Award (YSA) 授賞式、受賞講演が行われました。総会では、まず、西堀会長による挨拶があり、続けて、行事、予算、研究会での活動状況についての報告がありました。最後に、今後の SPRUC の活動予定が示されました。続いて、SPRUC2022 YSA 授賞式が行われました。冒頭、尾嶋正治選考委員長 (写真 21) より、13 名の応募があり、計 2 名を受賞者としたことと、それぞれの受賞理由の紹介がありました。授賞式の後、受賞者である井上伊知郎氏と古池美彦氏による受賞講演が行われました (写真 22)。

井上伊知郎氏は、「ユニークな XFEL モードの開発と高強度 X 線科学への応用」について発表しました。高強度 XFEL パルス (マイクロ、サブマイクロ、シングル nm 集光ビーム) の照射中、照射後の材料の挙動及び XFEL パルス (マイクロ、サブマイクロ、シングル nm 集光ビーム) 照射後の材料の挙動及び高強度 X 線と物質との相互作用の応用となる超高速放射線損傷

に基づく非線形 X 線光学の研究内容に引き続き、将来のアト秒の X 線の科学への展開について発表しました。古池美彦氏は、原子スケールで「1 日」を表現する時計タンパク質 KaiC の反応サイクルをさまざまなタイプの結晶格子で捉えることに成功した成果について、C2-リン酸化サイクルの「1 日」に組み込まれたスイッチ機構と Cl-ATPase の連動システム、Cl-ATPase サイクルによる活性・複合体の制御機構の詳細に関する研究内容について発表しました。

セッションVIII クロージング

クロージングセッションでは、最初に理研 石川センター長より総括がありました。今回の主題である産学連携については、パネルディスカッションとしては大きなテーマであったため、改めて企業も入れた形での議論する場を設けてはどうかとの意見をいただきました。また、SPRING-8 の利用形態もダイバーシティが進んでおり、多様化かつ多層化になってきているが、尖ったサイエンスの出現について若手に期待を寄せられました。次に、主催機関を代表して SPRUC 西堀会長より閉会の挨拶がありました。会長自身の全体の感想が述べられ、最後に参加者数が 497 名であったことの報告、および実行委員を始めとした関係者、参加者へのお礼の言葉がありました。

セッションIX ポスターセッション

クロージングセッションの後、REMO を使ったポス



写真 21 尾嶋正治選考委員長



写真 22 2022YSA 授賞式

ターセッションが行われました。SPRUC 研究会、共用 BL、理研・専用 BL、施設、パートナーユーザー、長期利用課題から合計 90 件を超えるポスターが掲示されました。今回もポスターセッションはプログラムの構成上、一番最後にスケジュールされました。会合を活発に開いているような研究会や BL 再編に関するポスターでは 8 席満席で議論が進められていました。ポスターセッションでは、サイエンスより、BL の現状や装置開発、計測技術に関する情報交換が多くを占めているように見られました。講演では聞けない細かい点をじっくり議論しているようでした。コロナ禍において、REMO によるポスターセッションは、一般的に使われるようになり、物珍しさを感じなくなりましたが、やはり、早く対面での議論が日常になることを願っています。

会議のプログラムの詳細とアブストラクトは下記 Web ページにて公開されています。

<http://www.spring8.or.jp/ja/science/meetings/2022/sp8sympo2022/>

SPring-8 シンポジウム 2022

開催方法：現地・オンラインハイブリッド

9月25日(日)：1日目

セッションI オープニング

13:00-13:05 **開会挨拶**

西堀 英治 (SPRUC 会長、筑波大学 教授)

13:05-13:20 **挨拶**

松尾 浩道 (理化学研究所 理事)

雨宮 慶幸 (高輝度光科学研究センター 理事長)

来賓挨拶

古田 裕志 (文部科学省 科学技術・学術政策局 研究開発基盤課長)

セッションII 施設報告

座長：井上 伊知郎 (理化学研究所)

13:20-13:40 **近況と展望**

矢橋 牧名 (理化学研究所、高輝度光科学研究センター)

13:40-14:00 **利用制度の改正**

木村 滋 (高輝度光科学研究センター)

14:00-14:20 **共用 BL 再編の現状**

坂田 修身 (高輝度光科学研究センター)

14:20-14:50 **SACLA 共用開始 10 年のサマリー**

籾内 俊毅 (高輝度光科学研究センター、理化学研究所)

セッションIII 東大がつむぐ学術と社会のリンケージ

15:00-15:10 **イントロダクション**

原田 慈久 (東京大学)

15:10-15:30 **SPring-8 を利用した高分子の強靱化研究**

伊藤 耕三 (東京大学)

15:30-15:50 **高速 X 線撮像が拓く精密加工学**

三村 秀和 (東京大学)

セッションIV パネルディスカッション

司会 (モデレータ)：原田 慈久 (東京大学)

16:00-17:30 **「SPring-8 がつむぐ学術と社会のリンケージ」**

パネリスト：石川 哲也 (理化学研究所)

山口 章 (高輝度光科学研究センター)

伊藤 耕三 (東京大学)

三村 秀和 (東京大学)

9月26日(月)：2日目

セッションV 利用トピックス

座長：小林 正起 (東京大学)

9:30-9:50 **SACLA における高強度 XFEL sub-10nm 集光**

山田 純平 (大阪大学)

9:50-10:10 **放射光 X 線マイクロ CT を用いたデボン紀脊椎動物化石の骨格形態および組織構造の精密観察**

平沢 達矢 (東京大学)

10:10-10:30 **テングー X 線タイコグラフィを用いたリチウム硫黄電池の化学状態の可視化**

金子 房恵 (住友ゴム工業)

10:30-10:50 **～多元素ナノ合金触媒の開発と SPring-8 への期待～**

北川 宏 (京都大学)

セッションVI データサイエンスと放射光

座長：永村 直佳 (物質・材料研究機構)

11:00-11:20 **SPring-8 データセンター構想**

初井 宇記 (理化学研究所)

11:20-11:40 **AlphaFold、襲来**

服部 素之 (復旦大学)

11:40-12:00 **大型研究施設における MI と DX**

庄司 哲也 (トヨタ自動車)

セッションVII SPRUC 総会・YSA 授賞式、受賞講演

座長：杉本 邦久 (SPRUC 行事幹事、近畿大学)

13:00-13:20 **SPRUC 活動報告、2021 年度決算・2022 年度予算報告等**

13:20-13:30 **SPRUC2022 Young Scientist Award 授賞式**

尾嶋 正治 (東京大学)

WORKSHOP AND COMMITTEE REPORT

- 13:30-13:45 **Young Scientist Award 受賞講演 1**
ユニークな XFEL モードの開発と高強度 X 線科学
への応用
井上 伊知郎 (理化学研究所)
- 13:45-14:00 **Young Scientist Award 受賞講演 2**
放射光 X 線で照らす時計タンパク質 KaiC の概日
振動メカニズム
古池 美彦 (自然科学研究機構・分子科学研究所)

セッションⅧ クロージング

- 14:00-14:05 **総括**
石川 哲也 (理化学研究所)
- 14:05-14:10 **閉会挨拶**
西堀 英治 (SPRUC 会長)
- 14:10-14:15 **ポスターセッションの参加方法説明**
杉本 邦久 (シンポジウム実行委員長)

セッションⅨ ポスターセッション

(REMO Conference サイト公開時間 9/26 9:30-17:00)

- 14:30-16:30 **SPRUC 研究会、共用 BL、理研・専用 BL、施設、
パートナーユーザー、長期利用課題**

杉本 邦久 *SUGIMOTO Kunihisa*

近畿大学 理工学部 理学科 化学コース
〒577-8502 大阪府東大阪市小若江 3-4-1
TEL : 06-4307-5099
e-mail : sugimoto@chem.kindai.ac.jp

SPring-8 利用制度の変更について

公益財団法人高輝度光科学研究センター
利用推進部

2022B 期から 2023A 期にかけて、SPring-8 の利用制度・運用が一部変更になります。具体的な課題申請方法等の詳細は、SPring-8 User Information Web サイトの課題募集のページ (<https://user.spring8.or.jp/?p=22799>) をご覧ください。

1. 年 6 回募集ビームラインの拡張 (2022B 期より)

これまで、SPring-8 の課題募集においては、旧産業利用ビームライン (BL14B2、BL19B2、BL46XU) を除き、共用ビームラインにおいては年 2 回の課題募集を行ってまいりました。年 2 回の課題募集では、課題申請から実際に利用するまでの期間が長く、研究・開発計画における即時性への対応に課題があり、実際に特に産業界のユーザーより募集頻度の見直しに係る要望がこれまで寄せられておりました。

そこで、年 6 回の課題募集を、一般共用ビームラインの一部にも適用し、ユーザーの利用へのアクセス機会を拡大することにより、産業界はもとより、学術機関も含めた産学官のユーザーの更なる利用促進に資することを目的とし、2022B 期より一部ビームラインにおいて年 6 回募集ビームラインの拡張を行うことといたしました。

募集対象課題は、一般課題 (成果非専有)、成果専有課題、大学院生提案型課題、成果公開優先利用課題の 4 課題となります。但し、科学審査を行う一般課題および大学院生提案型課題については、募集対象の審査分野が限定されます。

対象ビームライン	募集対象審査分野	
	第 1 期	第 2 期・第 3 期
BL01B1	全ての審査分野	汎用XAFS・汎用MCD 産業利用
BL02B1		X線回折 (単結晶) 産業利用
BL02B2		X線回折 (粉末) 産業利用
BL09XU		光電子分光 産業利用
BL13XU		X線回折 (粉末) X線回折 (汎用・構造評価) 産業利用
BL47XU		産業利用 (かつ、イメージング装置利用のみ)
BL14B2		汎用XAFS・汎用MCD 産業利用
BL19B2		小角・広角散乱 X線回折 (粉末) X線回折 (汎用・構造評価) 産業利用
BL46XU		光電子分光 産業利用

2. 産業利用ビームラインの運用変更 (2022B 期より)

これまで旧産業利用ビームラインでは、応募資格として実験責任者もしくは共同実験者において、「民間企業」もしくは「産業界に準ずる機関」に属する方が 1 名以上含まれることを応募資格としておりましたが、近年、学術機関のユーザーからも旧産業利用ビームラインの利用を希望する声があったこと、学術機関のユーザーが実験責任者 (民間企業のユーザーが共同実験者) という利用割合が増加傾向であることを勘案し、実験責任者または共同実験者において「民間企業」もしくは「産業界に準ずる機関」に属する方を含まない学術機関のグループについても各測定手法に応じた分科会への課題申請により、旧産業利用ビームラインを利用できるように運用を変更し、更なる利用促進を図ることといたしました。

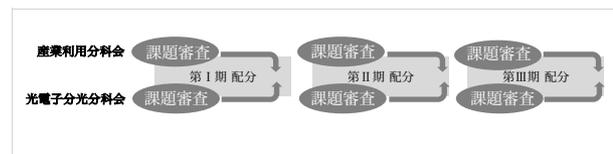
【2022A 期まで】

旧産業利用ビームラインへの申請は、産業利用の審査分野 (分科会) に限定

【2022B 期から】

各ビームラインの測定手法に関する各審査分野 (分科会) からも申請可能

例) BL46XU (HAXPES II)



3. 長期間有効な利用制度の変更 (2023A 期より)

これまで長期間有効な利用課題として、長期利用課題、パートナーユーザー課題、新分野開拓利用課題を設置し、運用して参りました。それぞれ課題の設置目

的に沿って活用され、一定の役割を果たし、数多くの成果が創出されて参りました。

一方で、長期間有効な利用制度が複数あることで、課題の実施目的が混在し利用制度の複雑化に繋がっているとの指摘もございました。

こうした課題を解消するため、複雑且つ細分化された利用制度を抜本的に見直し、新規ユーザーにとっても分かりやすい制度とすべく、長期間有効な利用制度については、長期利用課題、パートナーユーザー課題、新分野開拓利用課題を廃止し、新たに長期間有効な利用制度として、2023A 期より有効期間を 1 年とする成果公開優先利用課題を設置し、年に 1 回公募することとします。

また、これまで成果公開優先利用課題の申請においては、申請者（実験責任者）の条件として、国が実施する競争的資金（科研費補助金等）あるいは独立行政法人などの政府系機関が実施する競争的資金（JST、NEDO、医薬品機構等）において、研究課題の採択を受けた方に限ってきましましたが、計画的かつ安定的にチームタイムを確保する機会をより広く提供するため、2023A 期より課題応募資格において、競争的資金等の有無は問わないこととします。科学技術・イノベーション基本計画等、国の方針（政策）に則した研究であることのみを申請条件とすることで、更なる利用促進を図ることといたします。

<注>以上のうち、対象ビームライン等は 2022B 期公募時及び 2023A 期公募時の予定であり、その他の事項を含め今後変更する可能性があります。課題申請の際には、各利用期の募集要項でご確認ください。

2023A 期 SPring-8 利用研究課題募集について

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

2023A 期 SPring-8 利用研究課題の募集を開始しました。募集対象の課題種や申請の際の注意事項等の詳細につきましては、下記、SPring-8 User Information HP 上の「現在募集中の SPring-8 利用研究課題」よりご確認ください。2023A 期に関しましても、ビームタイムキャンセルの影響を軽減するための運用が適用されますので、「2023A 期における利用研究課題及びビームタイムの運用について」(<https://user.spring8.or.jp/?p=42265>) もご確認ください。

■ 現在募集中の SPring-8 利用研究課題

(<https://user.spring8.or.jp/?p=22799>)

2023A 期 SPring-8 利用研究課題の各課題種の応募締め切りは次の通りです。

- ・ 2023A 成果公開優先利用課題 (1 年課題を含む)
応募締切：2022 年 11 月 17 日 (木) 午前 10:00 JST (提出完了時刻)
- ・ 2023A 成果専有課題
応募締切：2022 年 11 月 17 日 (木) 午前 10:00 JST (提出完了時刻)
- ・ 2023A 一般課題
応募締切：2022 年 12 月 8 日 (木) 午前 10:00 JST (提出完了時刻)
- ・ 2023A 大学院生提案型課題
応募締切：2022 年 12 月 8 日 (木) 午前 10:00 JST (提出完了時刻)

<特記>

1. 緊急・特別課題、成果専有時期指定課題 (時間単位利用を含む)、測定代行課題は、随時募集しています。
2. 2023A 期より、成果公開優先利用課題の 1 年課題を募集いたします。利用詳細は HP にてご確認ください。
3. 次回の大学院生提案型課題 (長期型) の募集は 2023B 期に行う予定です。

初めて SPring-8 の利用をお考えの方は、申請の前に以下の Web サイトをご確認ください。

■ 初めて利用申請を考えている方へ

(<https://user.spring8.or.jp/?p=18832>)

申請にあたり、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
e-mail : sp8jasri@spring8.or.jp

第 49 回 (2022B) 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 49 回共同利用期間 (2022 年 10 月 7 日～2023 年 2 月 16 日 (放射光利用 264 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、年 6 回募集のビームライン (BL01B1、BL02B1、BL02B2、BL09XU、BL13XU、BL14B2、BL19B2、BL46XU および BL47XU) は 2022B 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 2022 年 10 月 7 日～11 月 14 日 (108 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]

2022 年 5 月 9 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 2022 年春号に募集案内記事を掲載)

5 月 31 日 成果公開優先利用課題、長期利用課題応募締切

6 月 14 日 一般課題、大学院生提案型課題応募締切

[課題審査、選定、採択および通知]

2022 年 7 月 8 日～21 日

各分科会による課題審査 (長期利用以外)

7 月 25 日 SPring-8 利用研究課題審査委員会 (PRC) による課題審査

7 月 28 日 SPring-8 選定委員会の意見を聴取

8 月 2 日 JASRI として採択決定し、応募者に審査結果を通知

2. 応募および採択状況

2022B の新規応募課題数は 823、採択課題数は 546 でした。表 2 に 2022B 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。表 2 に決定課題種別の統計を示します。また、

表 3 に成果非専有課題としての科学審査の対象となる課題 (成果非専有一般課題、大学院生提案型課題) への応募 701 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 823 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 における“SACLA、J-PARC MLF、または「京」/「富岳」を含む HPCI と連携した利用を行う課題”と連携して利用する課題として、SPring-8 には 15 件の応募があり、うち 12 件が採択されました。なお本記事の統計には、年 6 回募集のビームラインの第 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 (測定代行課題含む) 等は含まれていません。

3. 採択課題

2022B 期の採択課題の一覧は、SPring-8 User Information に掲載しています。以下をご覧ください。

ホーム > SPring-8 利用申請 > 課題募集 > 採択・実施課題一覧

<http://user.spring8.or.jp/?p=37038>

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-2021年02月	336	2019年12月05日	1460	1044
第46回:2021A	2021年04月-2021年07月	216	2020年12月08日	838	687
第47回:2021B	2021年09月-2022年02月	228	2021年06月10日	1105	797
第48回:2022A	2022年04月-2022年08月	216	2021年12月01日	957	708
第49回:2022B	2022年10月-2023年02月	210	2022年06月14日	(823)	(546)

*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、3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。

2022Bは今後、年6回募集ビームラインの第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 2022B 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

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) *	634	393	62.0	95.5
成果専有一般課題	61	61	100.0	92.5
大学院生提案型課題	67	33	49.3	94.8
成果公開優先利用課題	61	59	96.7	95.6
総 計	823	546	66.3	95.3
科学審査対象課題**のみの合計	701	426	60.8	95.4

*一般課題等のうち SPring-8 における SACL A、J-PARC MLF、または「京」/「富岳」を含む HPCI と連携した利用を行う課題は、応募 15 課題のうち 12 課題を採択。
 **成果専有一般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。

表 3 2022B 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	採択課題数計	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 I	29	12	41.4	65	5.42
BL02B1: 単結晶構造解析	26	20	76.9	81	4.05
BL02B2: 粉末結晶構造解析	35	16	45.7	69	4.31
BL04B1: 高温高圧	27	19	70.4	198	10.42
BL04B2: 高エネルギー X 線回折	43	20	46.5	165	8.25
BL05XU: 理研 施設開発 ID	3	2	66.7	6	3.00
BL08W: 高エネルギー非弾性散乱	26	12	46.2	192	16.00
BL09XU: HAXPES I	12	9	75.0	78	8.67
BL10XU: 高圧構造物性	23	20	87.0	168	8.40
BL13XU: X 線回折・散乱 I	25	7	28.0	51	7.29
BL14B2: XAFS II	18	13	72.2	83	6.38
BL17SU: 理研 物理学 III	8	4	50.0	45	11.25
BL19B2: X 線回折・散乱 II	16	12	75.0	82	6.83
BL19LXU: 理研 物理学 II	3	2	66.7	33	16.50
BL20B2: 医学・イメージング I	35	22	62.9	192	8.73
BL20XU: 医学・イメージング II	20	10	50.0	102	10.20
BL25SU: 軟 X 線固体分光	30	16	53.3	177	11.06
BL26B1: 理研 構造ゲノム I ***	3	3	100.0	30	10.00
BL26B2: 理研 構造ゲノム II ***	-	-	-	-	-
BL27SU: 軟 X 線光化学	29	15	51.7	142	9.47
BL28B2: 白色 X 線回折	11	11	100.0	114	10.36
BL29XU: 理研 物理学 I	1	0	0.0	-	-
BL32XU: 理研 ターゲットタンパク ***	-	-	-	-	-
BL35XU: 非弾性・核共鳴散乱	20	14	70.0	210	15.00
BL36XU: 理研 物質科学 II	2	2	100.0	24	12.00
BL37XU: 分光分析	21	14	66.7	149	10.64
BL38B1: 理研 構造生物学 I ***	-	-	-	-	-
BL39XU: 磁性材料	21	13	61.9	156	12.00
BL40B2: SAXS BM	61	37	60.7	189	5.11
BL40XU: 高フラックス	36	17	47.2	171	10.06
BL41XU: 生体高分子結晶解析 I ***	1	1	100.0	3	3.00
BL43IR: 赤外物性	25	22	88.0	210	9.55
BL43LXU: 理研 量子ナノダイナミクス	3	3	100.0	36	12.00
BL44B2: 理研 物質科学 I	-	-	-	-	-
BL45XU: 生体高分子結晶解析 II ***	1	1	100.0	8	8.00
BL46XU: HAXPES II	6	6	100.0	63	10.50
BL47XU: マイクロ CT	44	15	34.1	156	10.40
PX-BL (BL41XU, 45XU, 26B1, 26B2, 32XU, 38B1)	37	36	97.3	-	-
総 計	701	426	60.8	3,448	8.09

*成果非専有一般課題、大学院生提案型課題 (年 6 回募集ビームラインの第 2・3 期募集分等は含まず)
 **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)

表 4 SPring-8 2022B 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	47	33	10	6	226	139	117	81	29	23	6	5	16	7	4	4	455	298	65.5	
		シフト数	177	81	66	36	2047	1262	787	541	312	246	50	40	116	50	51	51	3606	2307	64.0	
	成果専有一般課題	課題数					1	1	1	1					1	1				3	3	100.0
		シフト数					2	2	6	6					1	1				9	9	100.0
	大学院生提案型課題	課題数	2	2	2	1	39	19	14	5	5	3	1	0	3	2				66	32	48.5
		シフト数			12	6	260	123	82	27	41	24	6	0	15	9				416	189	45.4
	成果公開優先利用課題	課題数	2	2			14	13	12	11					4	4				32	30	93.8
シフト数		24	24			83	71	89	82					22	22				218	199	91.3	
合計	課題数	51	37	12	7	280	172	144	98	34	26	7	5	24	14	4	4	556	363	65.3		
シフト数	201	105	78	42	2392	1458	964	656	353	270	56	40	154	82	51	51		4249	2704	63.6		
国立研究機関等	一般課題 (非専有)	課題数	10	8	4	3	42	22	10	5	10	4	3	1	7	4	14	10	100	57	57.0	
		シフト数	33	18	42	36	417	231	93	38	132	60	18	6	74	50	147	102	956	541	56.6	
	成果専有一般課題	課題数	1	1			1	1												2	2	100.0
		シフト数	2	2			3	3												5	5	100.0
	成果公開優先利用課題	課題数	2	2	2	2	10	10	2	2										16	16	100.0
		シフト数	56	52	15	15	75	67	39	27										185	161	87.0
	合計	課題数	13	11	6	5	53	33	12	7	10	4	3	1	7	4	14	10	118	75	63.6	
シフト数	91	72	57	51	495	301	132	65	132	60	18	6	74	50	147	102	1146	707	61.7			
産業界	一般課題 (非専有)	課題数					3	1						19	11	1	1	23	13	56.5		
		シフト数					15	6						202	126	15	15	232	147	63.4		
	成果専有一般課題	課題数	10	10			8	8	1	1				33	33				52	52	100.0	
		シフト数	1	1			36	36	3	3				105	93				145	133	91.7	
	成果公開優先利用課題	課題数							4	4				8	8	1	1	13	13	100.0		
		シフト数							54	54				99	99	6	6	159	159	100.0		
	合計	課題数	10	10	0	0	11	9	5	5	0	0	0	0	60	52	2	2	88	78	88.6	
シフト数	1	1	0	0	51	42	57	57	0	0	0	0	406	318	21	21	536	439	81.9			
海外機関	一般課題 (非専有)	課題数	5	4	3	3	38	12	4	1	3	3	2	2			1	0	56	25	44.6	
		シフト数	12	12	36	36	469	147	33	6	30	30	24	21			24	0	628	252	40.1	
	成果専有一般課題	課題数	2	2											2	2			4	4	100.0	
		シフト数																	0	0	-	
	大学院生提案型課題	課題数							1	1									1	1	100.0	
		シフト数							12	12									12	12	100.0	
	合計	課題数	7	6	3	3	38	12	5	2	3	3	2	2	2	2	1	0	61	30	49.2	
シフト数	12	12	36	36	469	147	45	18	30	30	24	21	0	0	24	0		640	264	41.3		
合計	課題数	81	64	21	15	382	226	166	112	47	33	12	8	93	72	21	16	823	546	66.3		
シフト数	305	190	171	129	3407	1948	1198	796	515	360	98	67	634	450	243	174		6571	4114	62.6		
採択率 (%)	課題数	79.0		71.4		59.2		67.5		70.2		66.7		77.4		76.2		66.3				
	シフト数	62.3		75.4		57.2		66.4		69.9		68.4		71.0		71.6		62.6				

*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

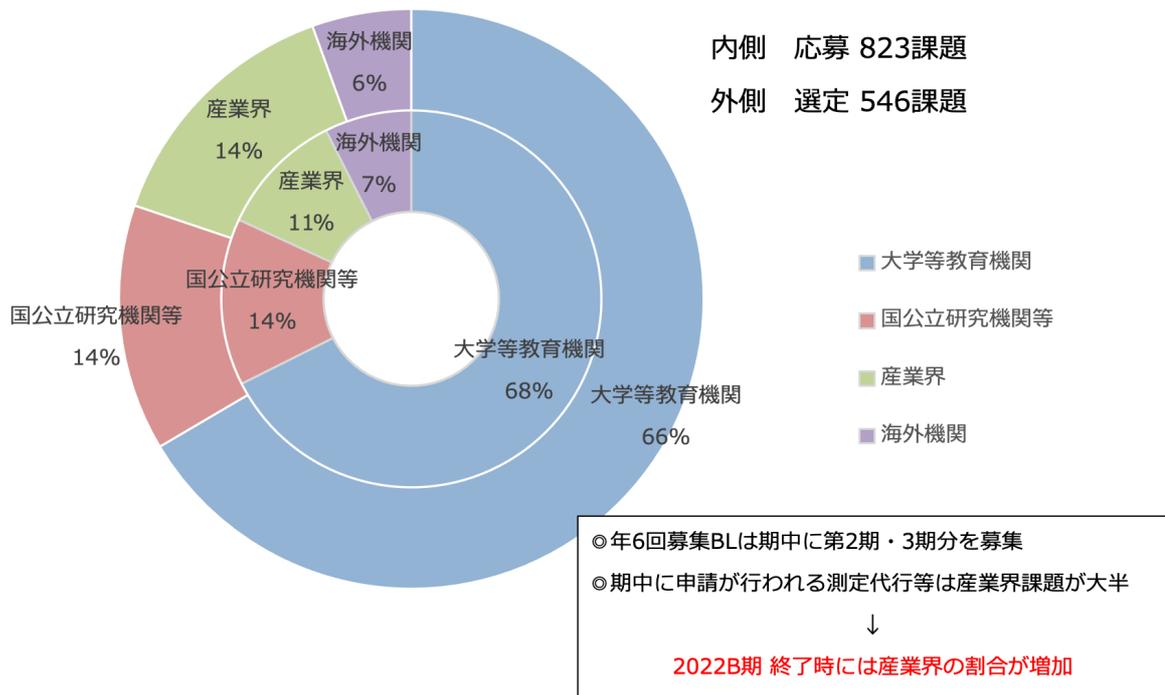


図1 2022B 所属機関別 応募/採択課題数割合

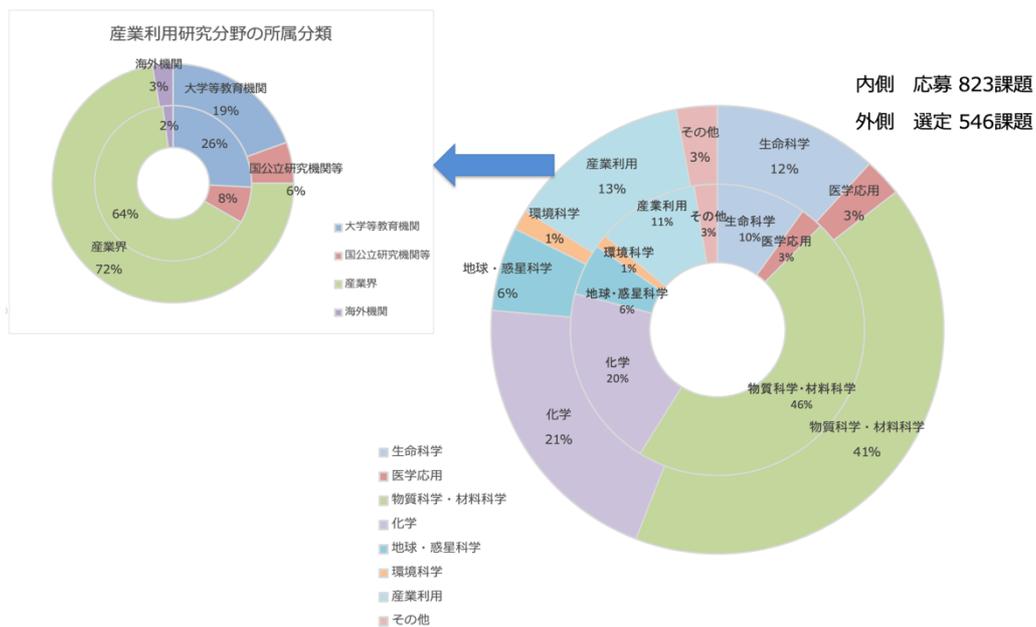


図2 2022B 研究分野別 応募/採択課題数割合

第 48 回共同利用期間（2022A）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 48 回共同利用期間（2022A）における SPring-8 の共同利用は、2022 年 4 月から 2022 年 8 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 270 シフト [1 シフト=8 時間] でした。

2022A では 26 本の共用ビームライン（共用施設）と、11 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、2022A 第 1 期（2022 年 4 月～5 月中旬）、第 2 期（同年 5 月中旬～7 月中上旬）および第 3 期（同年 7 月上旬～8 月）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、2022A 期の稼働数は 15 本でした。

表 1 に、SPring-8 共用施設の 2022A 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 2022A 実施課題数とシフト数を示します。表 3 に、2022A 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-2022A 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 2022A 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）	209	3062
専用ビームライン（成果専有）	32	129.375
合計	241	3191.375

表 1 SPring-8 共用施設^(注1)の 2022A 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）	706	502	71.1	486	29	515	4329.875
成果専有一般課題	43	43	100.0	41	13	54	286.625
大学院生提案型課題	76	45	59.2	44	2	46	337.625
大学院生提案型課題（長期型）	17	3	17.6	3	-	3	33
時期指定課題	14	14	100.0	14	-	14	15.375
測定代行課題 ^(注3)	42	42	100.0	41	-	41	20.375
成果公開優先利用課題	59	59	100.0	58	-	58	437.375
長期利用課題	2022A 期は募集なし				10	10	158.25
合計	957	708	74.0	687	54	741	5618.5

(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 2022A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	72	5	171	90	21	2	25	3	389
		シフト数	522.625	35.875	1474.75	622.25	227.625	14.375	177.5	42	3117
	成果専有一般課題	課題数							2		2
		シフト数							2		2
	大学院生提案型課題	課題数	4		21	6	4		10	1	46
		シフト数	31.25		163.625	42	35.375		59.375	6	337.625
	大学院生提案型課題 （長期型）	課題数			1	1	1				3
		シフト数			12	12	9				33
	時期指定課題	課題数			1					1	2
		シフト数			1					3	4
成果公開優先利用課題	課題数	2		13	10				8	33	
	シフト数	21		78	81.75			22.625		203.375	
長期利用課題	課題数	2		1	2	5				10	
	シフト数	24		14.625	4	115.625				158.25	
計	課題数	80	5	208	109	31	2	46	4	485	
	シフト数	598.875	35.875	1744	762	387.625	14.375	264.5	48	3855.25	
国 公 立 研 究 機 関 等	一般課題（成果非専有）	課題数	10	3	34	10	4	1	9	7	78
		シフト数	140.375	24	320.875	62.875	49.875	6	74.875	62.875	741.75
	成果専有一般課題	課題数	3								3
		シフト数	53.75								53.75
	時期指定課題	課題数			1						1
		シフト数			0.5						0.5
	測定代行課題	課題数							3		3
		シフト数							0.875		0.875
	成果公開優先利用課題	課題数		2	2			1	4		9
		シフト数		15	12			3	18		48
計	課題数	13	5	37	10	4	2	16	7	94	
	シフト数	194.125	39	333.375	62.875	49.875	9	93.75	62.875	844.875	
産 業 界	一般課題（成果非専有）	課題数			1				21		22
		シフト数			6				191		197
	成果専有一般課題	課題数	6		3	2			35		46
		シフト数	27.5		21	4			138.625		191.125
	時期指定課題	課題数	1						7		8
		シフト数	0.25						8.375		8.625
	測定代行課題	課題数							34		34
		シフト数							17.75		17.75
	成果公開優先利用課題	課題数				4			12		16
		シフト数				52.75			133.25		186
計	課題数	7		4	6			109		126	
	シフト数	27.75		27	56.75			489		600.5	
海 外 機 関	一般課題（成果非専有）	課題数	4	2	14	1	4		1		26
		シフト数	42	27	136.75	12	44.375		12		274.125
	成果専有一般課題	課題数	2						1		3
		シフト数	33.75						6		39.75
	時期指定課題	課題数	1						2		3
		シフト数	1.25						1		2.25
	測定代行課題	課題数							4		4
		シフト数							1.75		1.75
	計	課題数	7	2	14	1	4		8		36
		シフト数	77	27	136.75	12	44.375		20.75		317.875
課題数合計			107	12	263	126	39	4	179	11	741
シフト数合計			897.75	101.875	2241.125	893.625	481.875	23.375	868	110.875	5618.5

(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。

2022A の延べ利用者数は、共用施設 4,609 人、専用施設 2,231 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-2022A 課題種別実施課題数の推移

課題種	1997B~2013A	2013B	2014A	2014B	2015A	2015B	2016A	2016B	2017A	2017B	2018A	2018B	2019A	2019B	2020A	2021A	2021B	2022A	合計
一般課題 (成果非専有)	12022	384	444	611	457	476	489	459	502	570	524	537	507	563	661	470	536	515	20727
緊急課題	35	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	4	0	1	0	40
成果専有一般課題	701	55	34	55	36	37	42	47	35	48	41	46	38	52	88	36	67	54	1512
時期指定課題 (除く測定代行)	206	4	4	2	8	8	6	10	7	16	6	16	8	20	17	14	25	14	391
測定代行 (時期指定課題の一環)	336	47	41	54	37	46	32	48	29	46	37	60	29	40	65	42	43	41	1073
産業利用準備課題													3	10	5	6	3		27
長期利用課題	254	16	13	13	26	23	28	25	28	25	13	14	15	14	11	10	9	10	547
被光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])	364	32	38	58	45	54	65	52	29	53	53	58	41	52	53	43	52	46	1188
大学院生提案型課題 (長期型)																		3	3
成果公開優先利用課題	383	27	24	30	18	28	35	37	39	52	34	43	33	33	53	52	71	58	1050
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
重点産業トライアルユース 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	45	13																	58
産業新分野支援課題			10	14	12	14	11	4	6	4									75
放射光施設構築産業利用 課題											5	3	6	4					18
先進技術活用による産業 応用課題													5	4	8				17
重点メディカルバイオ・ トライアルユース課題	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	101	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 条戦略各課題)	64	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	65
重点/パートナーユーザー 課題	118	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	11	5	0	0	94
新分野創成利用課題						4	6	11	16	21	21	25	24	9	8	0	0	0	145
合計	17692	610	624	858	674	726	738	719	718	857	755	822	717	809	984	678	807	741	30529

備考 長期利用課題、重点パートナーユーザー課題、新分野創成利用課題は 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。

<https://user.spring8.or.jp/?p=37038>

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	2,205	717	4,579	331	2,911
第44回	2019B	2019年09月-2020年02月	2,333	809	5,378	344	3,102
第45回	2020A	2020年04月-2021年02月	4,309	984	5,906	337	3,265
第46回	2021A	2021年04月-2021年07月	2,155	678	4,156	241	1,877
第47回	2021B	2021年09月-2022年02月	2,272	807	5,134	270	2,313
第48回	2022A	2022年04月-2022年08月	2,147	741	4,609	241	2,231
合 計			99,382	30,529	197,412	10,900	98,346

注：長期利用課題、重点/パートナーユーザー課題、新分野創成利用課題をビームラインごとに1課題とカウント。
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。

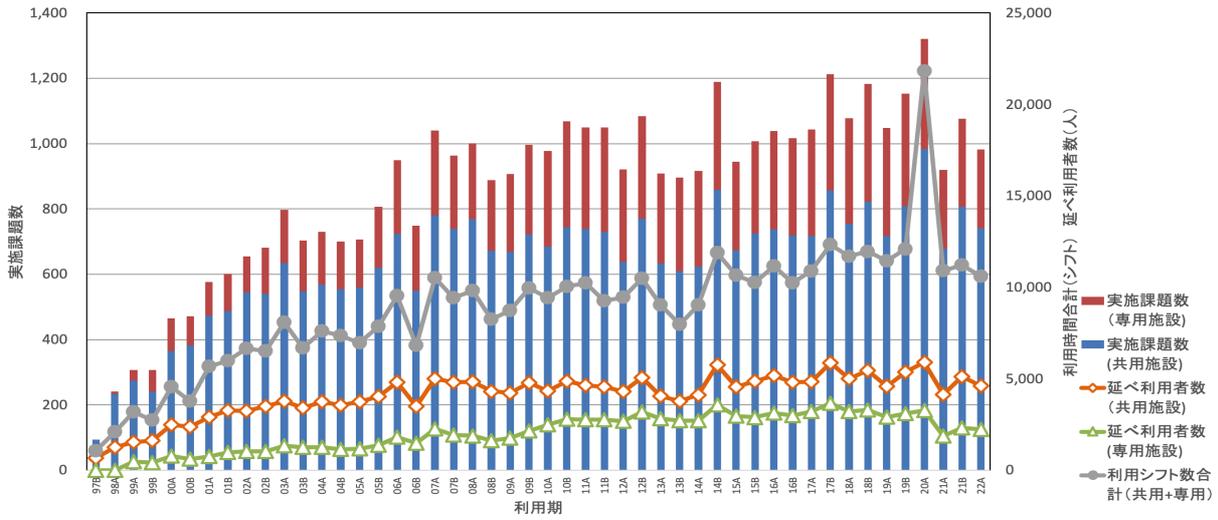


図1 SPring-8 共用施設および専用施設の利用実績の推移

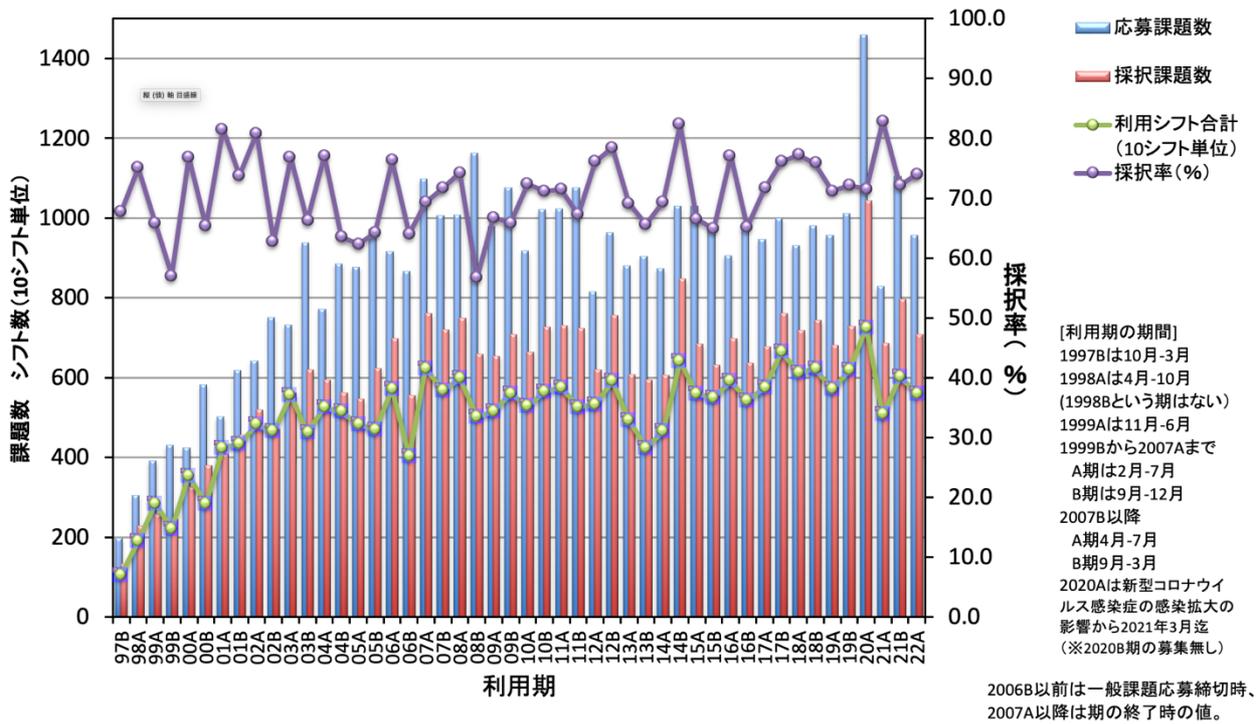


図2 SPring-8 共用施設の応募・採択課題数の推移実績

2015 年度指定パートナーユーザー事後評価報告 - 2 -

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、2014A 期から 2021A 期まで運用され、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した。

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した。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 PU1 名（指定期間：2015 年 4 月 1 日から 2020 年 3 月 31 日まで）について、事後評価（2021 年 6 月 16 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. 戸田 裕之（九州大学）

(1) 実施内容

研究テーマ：構造材料の高エネルギー4D イメージング技術の完成およびその X 線回折との連成

高度化：マイクロ CT の多元イメージング化並びにマルチスケール化

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：BL20XU

(3) 評価コメント

本 PU 課題は、SPring-8 の高エネルギー X 線マイクロ CT 技術と X 線集光技術を活用することにより、当初 4 年間は新型材料試験機を用いた引張試験・疲労試

験中の 4D-CT、X 線 CT と細束 X 線ビームを併用した XRD-CT、画像データの定量解析技術の開発などを中心に、多面的かつ戦略的な研究を行った。鉄鋼、チタン、アルミニウムなど各種合金の疲労破壊のその場観察、鉄鋼やアルミニウム合金における 3D 結晶方位分布の決定などの金属材料分野における重要な研究成果があがっている。

課題再延長期間の 1 年間では、中尺ビームラインの長さを生かした CT のマルチスケール化、および X 線ビームの 1 ミクロン程度への細束化と輝度の上昇が行われた。高エネルギー CT でのコントラストに問題を残しているが、大方の目標は達成されており、実用材料組織への対応と計測の高速化を目指している。これらが達成され、成果を広く利用者にアピールすれば、本ビームラインの大幅な利用拡大が期待できる。

5 年の実施期間を通して、本 PU がビームラインの高度化目標を提示し JASRI スタッフが技術的課題を解決する形でうまく協調が行われ、BL20XU の実験技術は大きく進展した。本 PU は高度化の成果を生かした実験技術と解析ソフトウェアの開発を行い、その結果、質的にも量的にも優れた利用研究の成果が得られている。本 PU らが開発した材料試験機やソフトウェアは一般利用者にも提供され、本 PU のグループが実験や解析のサポートも行っている。学会等におけるユーザー開拓も行われ、本 PU による X 線 CT に関する著書もあり、十分なユーザー支援が行われている。総じてこれらの実績から、利用支援を含めた PU の役割は十分に果たされていると判断できる。

2019 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、2014A 期から 2021A 期まで運用され、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した。

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した。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、2019 年度指定の PU4 名（指定期間：2019 年 4 月 1 日から 2021 年 7 月 31 日まで）について、事後評価（2022 年 6 月 21 日及び 29 日開催）を行いました。

なお、上記 4 名のうち、2 名の評価結果は次号以降に掲載する予定です。

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：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

高度化：外場変化物質科学研究を実現する高エネルギー粉末 X 線回折の多角化

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：BL02B2

(3) 評価コメント

BL02B2 は、粉末結晶構造解析を行うことを目的としたビームラインであり、近年は、外場による構造変

化の in-situ あるいはオペランドでの計測の要望が増加している。これに対応するため、施設側では、汎用計測と外場下先端計測の自動切替機構とともに、従来の湾曲イメージングプレートや一次元半導体検出器に加えて、高エネルギー X 線に対応した二次元フラットパネル検出器を導入する高度化を行った。

本 PU 課題では、導入された二次元検出器によって得られるデータの自動処理システムや、デバイリングの均一性の可視化など、ユーザーの利便性を大きく向上させるソフトウェアを構築し、高度化を支援した。また、自動切替機構に対応した外場下構造解析システムを整備した。本 PU 課題の利用研究の中では、そのシステムを利用して、ガス吸着による構造変化のサブミリ秒時間分解能での追跡、水熱合成のその場観察、メカノケミカル反応のその場観察などのオペランド計測を行うなどして、計 16 報の論文成果につなげた。さらに、期間中、のべ 34 件の利用者支援を行い、支援課題からも計 28 報の論文が公表されている。

本 PU 課題の期間中、新型コロナウイルス感染症のパンデミックが起きるなどの不可抗力もあり当初計画が達成できなかった部分はあるものの、本 PU 課題は、ビームラインの高度化やユーザーの支援を通じた施設への貢献度は高く、PU の役割を十分に果たしたと認められる。

2. 澤 博（名古屋大学）

(1) 実施内容

研究テーマ：オペランド計測を含めた精密電子密度解析による軌道物理の研究

高度化：オペランド計測を目指した精密電子密度解析の高性能化

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：BL02B1

(3) 評価コメント

本PU課題は、従来のイメージングプレートに代わって導入された高エネルギーX線対応の二次元検出器であるCdTeピラタス検出器を活用することにより、高精度かつハイスループットな単結晶構造解析基盤を確立することを目的としたものである。ピラタス検出器は、イメージングプレートに比べ、強度データの読み出し時間の大幅な短縮や、高いS/N比など、測定の高高度化および高精度化に有用な利点を有していることが期待され、これによって可能になる超精密電子密度解析に基づく軌道物理の研究とそのオペランド計測への展開が計画されていた。

ビームライン高度化では、ピラタス検出器について、アテネータやバンチモードに依存する数え落とし補正、サーバーの安定性、素子の不感領域の補完などの検証に多大な努力が振り向けられたことは評価されるが、系統的な動作検証には至っておらず、検出器の使い方の検討としては道半ばである。本研究で遭遇している問題点は当該検出器を使う他の実験でも知られており、本来はこの種の検出器の専門家と組んで進めることが適切であったと思われる。当初計画に掲げられていたAIの援用を含む測定自動化の推進、大量かつ高品質な回折データの解析ソフトウェアの整備などにはほぼ着手されていない。

このように本課題においては、検出器の問題の洗い出しとその解決方法の検討にほとんどの期間が消費され、結果として利用研究への展開は限定的にしか実施されなかった。しかしながら、遷移金属の原子軌道の状態や、分子性結晶における微小な電荷移動量の観測などに成功しており、いくつかのインパクトのある成果が出始めている。利用者支援に関しては、開発された計測技術を一般ユーザーが利用できる段階には達していないことや、測定試料の問題から、新規ユーザー開拓には至っておらず、十分に実施されたとは評価できない。

以上のように、本PU課題においては、CdTeピラタス検出器の特性の検証に多くの時間が費やされ、同検出器を用いる精密測定についていくつかの有用な知見を得るとともに、これを用いて精密構造解析が可能であることを示した意義は認められるものの、ユーザー開拓、ユーザー支援にまでは至らなかった点は残

念である。施設側との連携がもっととれていれば、当初の目標達成に近付いたのではないかと考えられる。検出器の検証結果を適切にまとめ、今後を活かしていくことを期待する。

2019A 期 採択長期利用課題の事後評価について - 3 -

公益財団法人高輝度光科学研究センター
利用推進部

2019A 期に採択された長期利用課題について、2021A 期に 2 年間の実施期間が終了したことを受け、第 72 回 SPring-8 利用研究課題審査委員会長期利用分科会（2022 年 6 月 29 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、2019A 期に採択された長期利用課題 3 課題のうち 2 課題の評価結果は 2022 春号および夏号に掲載済みです。

課題名	テンダーX線タイコグラフィの基盤技術開発とその応用展開
実験責任者(所属)	高橋 幸生 (東北大学)
採択時課題番号	2019A0164
ビームライン	BL27SU
利用期間/配分総シフト	2019A~2021A/66 シフト

[評価結果]

本長期利用課題は、テンダーX線を用いた X 線タイコグラフィ計測技術を開発し、軽元素ナノイメージングに関する応用研究を行うための基盤を構築することを目標として実施された。画質低下の原因として想定される複数の要因に対する解決策として、(1) 計測装置全体の恒温化、(2) 入射 X 線切り出しに用いる円形ピンホールの精密加工、(3) ミラー由来のインコヒーレント成分低減のための水平集光ミラーの取り外しと垂直集光ミラーのバンド解除、(4) イオン注入層を持たない光子計数型二次元検出器の開発・導入、(5) フレネルゾーンプレートとオーダーソーティングアパーチャの導入を着実に実施することに

より、課題期間中に分解能 50 nm を達成したことは高く評価できる。応用研究としては、当初計画していたタイヤゴムにおける硫黄架橋の観測はフラックス不足で成功には至らなかったが、リチウム硫黄電池正極活物質材料として開発された硫黄変性ポリブチルメタクリレート粒子について粒子内の硫黄化学状態を非破壊で可視化することに成功した。テンダーX線領域における X 線タイコグラフィ技術開発が世界初であることに加え、観測できる元素種の応用上の重要性もあり、新しい研究領域の開拓にも繋がると期待されるなど、科学技術的波及効果も大きい。情報発信については、装置開発の公表論文が 1 報、応用研究の論文 1 報が査読中である。技術開発に多くの時間を費やしていることを考えると妥当であると判断される。

上記の通り、テンダー領域のスペクトロタイコグラフィという世界でも初めての手法を開発し、それを用いた応用研究も進めており、長期利用課題として高く評価できる。

[成果リスト]

(査読付き論文)

[1] SPring-8 publication ID = 42298

M. Abe *et al.*: “Development and Application of a Tender X-ray Ptychographic Coherent Diffraction Imaging System on BL27SU at SPring-8” *Journal of Synchrotron Radiation* **28** (2021) 1610-1615.

[2] SPring-8 publication ID = 44008

M. Abe *et al.*: “Visualization of Sulfur Chemical State of Cathode Active Materials for Lithium-Sulfur Batteries by Tender X-ray Spectroscopic Ptychography” *The Journal of Physical Chemistry C* **126** (2022) 14047-14057.

2022A 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

第 20 回目の利用期である 2022A 期の利用研究課題（共用課題）が、2022 年 4 月 11 日から 2022 年 8 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 49 の利用研究課題が実施され、ビームタイムは計 249 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）並びに緊急課題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 3 課題実施され、ビームタイムは計 15 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 Guide > 採択課題／実施課題

> 実施課題一覧 > 2022A

http://sacla.xfel.jp/wp-content/uploads/sacla_performed_proposal_2022a_j.pdf

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>

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 2022A 期 SACLA 利用研究実施課題

課題種	産業界		大学等教育機関		国公立試験研究機関等		海外機関		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)	1	4	16	83	11	56	21	106	49	249
	(成果専有利用)										
時期指定課題（成果専有利用）											
緊急課題											
合計		1	4	16	83	11	56	21	106	49	249

○実施課題を実験責任者の所属（産学官 海外）で区分。

○延べ利用者数は計 570 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

◎2022年5～8月の運転実績

SPring-8は5月8日から7月8日までセベラルバンチ運転で第2サイクルの運転を行い、7月11日から8月3日までセベラルバンチ運転で第3サイクルの運転を実施した。

第2サイクルでは四極電磁石補助電源トラッキングエラー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2サイクルは約0.4%、第3サイクルは0%であった。

1. 装置運転関係

(1) 運転期間

第2サイクル (5/8 (日)～7/8 (金))

第3サイクル (7/11 (月)～8/3 (水))

(2) 運転時間の内訳

第2サイクル

運転時間総計 約1,465時間

①装置の調整およびマシンスタディ等 約121時間

②放射光利用運転時間 約1,338時間

③故障等による down time 約5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0.4%

第3サイクル

運転時間総計 約624時間

①装置の調整およびマシンスタディ等 約192時間

②放射光利用運転時間 約432時間

③故障等による down time 0分

④フィリング変更時間 約0.5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) 0%

(3) 運転スペック等

第2サイクル (セベラルバンチ運転)

・406 × 11/29-bunches + 1 bunch (H)

・203 bunches (A)

・406 × 11/29-bunches + 1 bunch (H)

・11 bunch train × 29 (C)

・203 bunches (A)

・1/7 filling + 5 bunches (D)

・1/7 filling + 5 bunches (D)

・203 bunches (A)

第3サイクル (セベラルバンチ運転)

・4 bunch train × 84 (B)

・406 × 11/29-bunches + 1 bunch (H)

・11 bunch train × 29 (C)

・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SACLA入射、Top-Upモードで実施。

・蓄積電流 8 GeV、～100 mA

(4) 主な down time の原因

・四極電磁石補助電源トラッキングエラーによる電源OFF(ビーム軌道変動によるアボート)

・SR RF Dst. Kly 出力低下(ビーム軌道変動によるアボート)

2. 利用関係 (JASRI 利用推進部 集計)

(1) 放射光利用実験期間

第2サイクル (5/9 (月)～7/8 (金))

第3サイクル (7/14 (木)～8/2 (火))

(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	16 本
理研ビームライン	13 本

第2 サイクル (暫定値)

共同利用研究実験数	722 件
共同利用研究者数	2,927 名
専用施設利用研究実験数	480 件
専用施設利用研究者数	1,405 名

第3 サイクル (暫定値)

共同利用研究実験数	238 件
共同利用研究者数	957 名
専用施設利用研究実験数	177 件
専用施設利用研究者数	498 名

©2022 年 8~10 月の運転実績 (停止期間)

SPring-8 は 8 月 4 日から 10 月 1 日まで夏期点検調整期間とし、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。

8 月 6 日は施設内全域の計画停電を行い、電気設備の点検整備を行った。

(夏期点検調整期間中の主な作業 (実績))

(1) 入射器関係 (XSBT 等)

- ・XSBT スクリーンモニター動作確認及びメンテナンス
- ・その他作業及び定期点検等

(2) 蓄積リング関係

- ・RF エージング
- ・運転前連続通電作業 (9/27~)
- ・電磁石、電磁石電源等定期点検
- ・SR 四極電源 QP4 不具合調査
- ・真空系作業及び点検 (保守、メンテナンス等)
- ・真空制御系ケーブル補修 (セル 1~35、43)
- ・SIP 高圧ケーブル交換作業 (セル 43~48)
- ・機器保護インターロック自主検査
- ・クライストロン電源定期点検 (A、B-st)、高電圧

試験

- ・クライストロン定期点検等
- ・クライストロン電源及び制御改造 (C、D-st)
- ・モニター系定期点検、動作確認試験
- ・ID rf-BPM インターロック機器定期検査
- ・データベース及びネットワーク関連作業
- ・MTCA.4 メンテナンス
- ・中央制御室運転端末更新 (一部)
- ・加速器安全インターロックメンテナンス
- ・入退管理システムメンテナンス
- ・BL インターロック自主検査
- ・BL インターロックハードウェアメンテナンス
- ・BL インターロックソフトウェアメンテナンス
- ・ID 関連作業/ID07 及び 17 撤去及び更新
- ・BL48IN/FE 整備作業 (壁貫通管設置等)
- ・FE 作業及び冷却系/圧空系保守作業
- ・FE 定期検査 (運転前・MBS 検査、駆動系検査)
- ・共用実験/制御ネットワーク関連作業
- ・BL 改造工事 (BL05XU、BL08W、BL09XU、BL13XU、BL28B2、BL46XU 他)
- ・BL 関連作業 (実験分電盤増設、ハッチ作業等)
- ・光学系・輸送チャンネル関係作業
- ・DCM・LN2 循環装置定期メンテナンス等
- ・その他作業及び定期点検等

(3) ユーティリティ関係

- ・電気設備保守点検及び整備作業
- ・冷却水設備保守定期点検及び整備作業
- ・空調用設備保守点検及び整備作業
- ・天井クレーン月次・年次点検作業
- ・消防設備等点検 (防排煙、放送設備等)

(4) 安全管理関係

- ・運転停止後の残留サーベイ
- ・安全インターロック自主検査 (定期検査)
- ・特例区域設置
- ・放射線監視設備定期点検
- ・放射線モニタ更新工事

(5) その他

- ・給水施設棟上水配管補修 (上水断水作業)
- ・空調機等間引き運転 (長期停止期間節電対策)
- ・施設建屋、外構関連小工事等

◎2022年10～12月の運転予定

SPring-8は10月2日から12月16日までセベラ
ルバンチ運転で第4サイクルの運転を予定している。

第4サイクルの運転実績については次号にて掲載
する。

◎今後の予定

12月17日から1月12日まで冬期点検調整期間と
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う予定
である。

第5サイクルの運転開始は1月13日からを予定し
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 (2022年9月30日現在)

SPring-8

Beamline Name		Public Use Since	~2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	2019	2020	2021	2022	Total	
Public Beamlines	BL01B1	XAFS I	1997.10	556	74	92	75	87	94	82	86	105	84	47	1382
		Technical Journal		1											1
	BL02B1	Single Crystal Structure Analysis	1997.10	170	36	42	36	44	40	30	48	52	54	25	577
	BL02B2	Powder Diffraction	1999.9	646	96	71	82	95	80	74	79	110	72	59	1464
	BL04B1	High Temperature and High Pressure Research	1997.10	212	20	19	16	16	15	17	19	13	11	7	365
	BL04B2	High Energy X-ray Diffraction	1999.9	245	28	33	38	43	30	42	40	59	31	39	628
		Technical Journal			1							1			2
	BL08W	High Energy Inelastic Scattering	1997.10	167	15	13	19	16	16	14	11	18	25	11	325
	BL09XU	HAXPES I	1997.10	136	15	15	18	16	19	28	14	11	14	10	296
	BL10XU	High Pressure Research	1997.10	355	21	30	28	30	28	26	33	33	23	21	628
	BL13XU	X-ray Diffraction and Scattering I	2001.9	172	16	21	24	36	27	32	34	31	25	16	434
	BL14B2	XAFS II	2007.9	111	53	53	61	53	58	67	81	87	72	42	738
		Technical Journal		1	1	1						1	3		7
	BL19B2	X-ray Diffraction and Scattering II	2001.11	231	59	63	66	64	69	60	57	60	57	21	807
		Technical Journal		1	1	1	2			2	1	1			9
	BL20B2	Medical and Imaging I	1999.9	241	28	25	35	26	28	32	28	40	23	22	528
	BL20XU	Medical and Imaging II	2001.9	185	40	45	44	37	34	31	44	34	38	15	547
	BL25SU	Soft X-ray Spectroscopy of Solid	1998.4	329	24	32	20	19	25	20	24	30	22	15	560
		Technical Journal		2											2
	BL27SU	Soft X-ray Photochemistry	1998.5	331	41	35	25	36	27	26	16	41	17	9	604
	BL28B2	White Beam X-ray Diffraction	1999.9	121	21	18	21	19	25	20	16	26	14	9	310
	BL35XU	Inelastic and Nuclear Resonant Scattering	2001.9	95	14	13	16	15	15	14	8	21	17	8	236
	BL37XU	Trace Element Analysis	2002.11	133	32	28	35	29	29	29	24	33	19	12	403
		Technical Journal				1									1
	BL38B1	Structural Biology III	2000.10	488	59	48	65	59	38	31	31	29	29	11	888
	BL39XU	Magnetic Materials	1997.10	213	20	25	19	24	30	20	19	29	21	8	428
	BL40B2	SAXS BM	1999.9	425	70	55	55	60	54	55	63	53	65	43	998
		Technical Journal			1		1					1			3
	BL40XU	High Flux	2000.4	120	37	21	32	42	30	35	52	30	39	26	464
		Technical Journal									1				1
BL41XU	Macromolecular Crystallography I	1997.10	799	65	55	60	68	58	51	41	46	32	9	1284	
BL43IR	Infrared Materials Science	2000.4	88	10	11	17	14	23	10	21	29	21	15	259	
BL46XU	HAXPES II	2000.11	137	38	28	56	51	50	45	56	42	61	25	589	
	Technical Journal						1	1			1			3	
BL47XU	Micro-CT	1997.10	275	36	36	31	29	37	28	33	33	21	14	573	
	Technical Journal							1						1	
Public Use at Other Beamlines	BL05XU	R&D-ID	2017.4							3	7	9	8	2	29
	BL11XU	QST Quantum Dynamics I (1999.3 - 2012.2)		13											13
	BL14B1	QST Quantum Dynamics II (1998.4 - 2012.2)		47		1									48
	BL15XU	WEBRAM (2002.9 - 2012.2)		34		1									35
	BL17SU	RIKEN Coherent Soft X-ray Spectroscopy	2005.9	21	11	12	5	2	3	5	8	6	4	2	79
	BL19LXU	RIKEN SR Physics	2002.9	5		1	1	2	5	7	2	3	8		34
	BL22XU	JAEA Actinide Science I (2004.9 - 2012.2)		5	1										6
	BL23SU	JAEA Actinide Science II (1998.6 - 2012.2)		48	3	2						1	1		55
	BL26B1	RIKEN Structural Genomics I	2009.4	11	2	9	6	17	15	27	30	34	23	14	188
	BL26B2	RIKEN Structural Genomics II	2009.4	7	3	5	7	11	8	7	9	7	1	3	68
		Technical Journal						1							1
	BL29XU	RIKEN Coherent X-ray Optics	2002.9	13		1	1	2	2	3		1			23
	BL32XU	RIKEN Targeted Proteins	2010.10	10	8	9	16	8	15	16	13	13	6	2	116
	BL43LXU	Quantum NanoDynamics	2020.8											1	1
	BL44B2	RIKEN Materials Science I	1998.5	14				6	5	2	6	4	1		38
BL45XU	RIKEN Structural Biology I	1997.10	99	7	9	13	20	10	7	15	19	25	11	235	
Subtotal				7308	1003	977	1043	1096	1042	996	1068	1192	984	574	17283

Beamline Name		Public Use Since	~2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	2019	2020	2021	2022	Total	
Contract Beamlines	BL03XU	Advanced Softmaterial	2009.11	14	24	21	14	17	23	9	19	20	12	8	181
		Technical Journal		35	42	39	36	33	31	28	28	34	24		330
	BL07LSU	The University-of-Tokyo Outstation Beamline for Materials Science	2009.11	12	10	13	12	19	19	15	21	13	14	11	159
		Technical Journal									1				1
	BL08B2	Hyogo BM	2005.9	5	7	9	5	6	11	5	7	11	10	7	83
		Technical Journal		7	1	18	7	4	4	1	3		1	1	47
	BL11XU	QST Quantum Dynamics I		95	16	14	8	20	20	15	20	14	20	7	249
	BL12B2	NSRRC BM	2001.9	169	22	21	29	38	34	37	47	32	26	10	465
	BL12XU	NSRRC ID	2003.2	70	11	18	19	18	25	19	26	29	14	13	262
	BL14B1	QST Quantum Dynamics II		138	10	15	19	17	23	20	21	26	27	19	335
	BL15XU	WEBRAM (2001.4 - 2021.9)		240	61	57	48	63	57	54	48	55	33	18	734
	BL16B2	SUNBEAM BM	1999.9	55	3	6	4	10	9	6	10	12	21	15	151
		Technical Journal		20	15	14	8	15	21	15	10	8	4	4	134
	BL16XU	SUNBEAM ID	1999.9	42	2	3	4	11	9	9	17	20	22	16	155
		Technical Journal		20	19	14	14	21	18	12	8	9	5	4	144
	BL22XU	JAEA Actinide Science I		81	14	19	15	14	15	26	25	18	27	16	270
		Technical Journal												1	1
	BL23SU	JAEA Actinide Science II		195	17	29	19	26	16	24	23	28	19	14	410
	BL24XU	Hyogo ID	1998.10	145	8	5	4	5	6	8	2	13	12	7	215
		Technical Journal		11	3	10	3	1	4		1	1	1		35
BL28XU	Advanced Batteries	2012.4		3	9	5	5	6	4	8	11	7	4	62	
	Technical Journal										1			1	
BL31LEP	Laser-Electron Photon II	2013.10			1		3	2	1	3	2		1	13	
BL32B2	Pharmaceutical Industry (2002.9 - 2012.3)		27			1					1			29	
BL33LEP	Laser-Electron Photon	2000.10	51	4	4	2	2	3	5	2		1		74	
BL33XU	TOYOTA	2009.5	8	2	8	4	10	16	6	9	19	17	8	107	
	Technical Journal		7	4	5	3	4	1						24	
BL36XU	Catalytic Reaction Dynamics for Fuel Cell (2013.1 - 2020.3)			1	7	6	7	12	15	8	11	4	5	76	
BL44XU	Macromolecular Assemblies	2000.2	341	59	50	65	54	61	47	59	64	52	25	877	
Subtotal			1688	274	309	283	345	367	325	375	399	338	204	4907	
RIKEN Beamlines	BL05XU	R&D-ID		3	1		1						2	7	
	BL17SU	Coherent Soft X-ray Spectroscopy		87	3	8	5	8	5		1	8	4	1	130
	BL19LXU	SR Physics		97	12	13	9	5	6	1	4	1	2		150
	BL26B1	Structural Genomics I		178	7	4	5	4	4	1		1	1	1	206
	BL26B2	Structural Genomics II		116	14	4	3	7	10	2	2	2		2	162
	BL29XU	Coherent X-ray Optics		180	15	9	10	15	9	8	4	7	4		261
	BL32XU	Targeted Proteins		12	8	8	7	13	5	3	1	3	3	1	64
	BL38B2	Diagnosis Beamline		2											2
	BL43LXU	Quantum NanoDynamics			1		1	1				2			5
	BL44B2	Materials Science I		235	19	16	20	16	18	14	10	3	2	2	355
	BL45XU	Structural Biology I		200	11	9	13	13	8	5	2	5	3		269
	Subtotal			1110	91	71	74	82	65	34	24	32	19	9	1611

SACLA

Public Beamlines	Beamline Name		Public Use Since	~2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	2019	2020	2021	2022	Total
	BL1	SXFEL	2016.3								7	6	9	8	2
BL2/BL3	XFEL2/XFEL1	2012.3	1	13	28	37	48	42	34	49	60	55	36	403	
Hardware / Software R & D				545	67	13	33	46	53	49	35	26	15	11	893
NET Sum Total				9081	1203	1105	1194	1291	1268	1141	1237	1338	1118	665	20641
Technical Journal				93	80	97	67	74	71	54	48	50	31	9	674

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 BL でカウントした。

共用・専用・理研の変更があった次の BL については、変更前のカテゴリに含めた。BL15XU、BL32B2、BL36XU、BL38B1（以上、現 理研BL）、BL45XU（現 共用BL）

このデータは論文発表等登録データベース（<https://user.spring8.or.jp/uisearch/publication2/>）に 2022 年 9 月 30 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 BL 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 (2022年9月30日現在)

SPring-8

Beamline Name		Public Use Since	Refereed Papers	Proceedings	Other Publications	Total	
Public Beamlines	BL01B1	XAFS I	1997.10	1383	66	89	1538
	BL02B1	Single Crystal Structure Analysis	1997.10	577	14	32	623
	BL02B2	Powder Diffraction	1999. 9	1464	41	85	1590
	BL04B1	High Temperature and High Pressure Research	1997.10	365	7	48	420
	BL04B2	High Energy X-ray Diffraction	1999. 9	630	13	62	705
	BL08W	High Energy Inelastic Scattering	1997.10	325	10	48	383
	BL09XU	HAXPES I	1997.10	296	15	37	348
	BL10XU	High Pressure Research	1997.10	628	22	61	711
	BL13XU	X-ray Diffraction and Scattering I	2001. 9	434	19	39	492
	BL14B2	XAFS II	2007. 9	745	11	39	795
	BL19B2	X-ray Diffraction and Scattering II	2001.11	816	47	94	957
	BL20B2	Medical and Imaging I	1999. 9	528	90	89	707
	BL20XU	Medical and Imaging II	2001. 9	547	106	151	804
	BL25SU	Soft X-ray Spectroscopy of Solid	1998. 4	562	15	61	638
	BL27SU	Soft X-ray Photochemistry	1998. 5	604	21	39	664
	BL28B2	White Beam X-ray Diffraction	1999. 9	310	17	24	351
	BL35XU	Inelastic and Nuclear Resonant Scattering	2001. 9	236	5	13	254
	BL37XU	Trace Element Analysis	2002.11	404	24	52	480
	BL38B1	Structural Biology III	2000.10	888	11	66	965
	BL39XU	Magnetic Materials	1997.10	428	17	80	525
	BL40B2	SAXS BM	1999. 9	1001	15	122	1138
	BL40XU	High Flux	2000. 4	465	24	71	560
	BL41XU	Macromolecular Crystallography I	1997.10	1284	4	101	1389
	BL43IR	Infrared Materials Science	2000. 4	259	15	62	336
	BL46XU	HAXPES II	2000.11	592	20	43	655
	BL47XU	Micro-CT	1997.10	574	93	135	802
Public Use at Other Beamlines	BL05XU	R&D-ID	2017. 4	29			29
	BL11XU	QST Quantum Dynamics I (1999. 3 - 2012. 2)		13	2	2	17
	BL14B1	QST Quantum Dynamics II (1998. 4 - 2012. 2)		48	1	11	60
	BL15XU	WEBRAM (2002. 9 - 2012. 2)		35	19	7	61
	BL17SU	RIKEN Coherent Soft X-ray Spectroscopy	2005. 9	79	1	29	109
	BL19LXU	RIKEN SR Physics	2002. 9	34		5	39
	BL22XU	JAEA Actinide Science I (2004. 9 - 2012. 2)		6			6
	BL23SU	JAEA Actinide Science II (1998. 6 - 2012. 2)		55	4	15	74
	BL26B1	RIKEN Structural Genomics I	2009. 4	188		9	197
	BL26B2	RIKEN Structural Genomics II	2009. 4	69		11	80
	BL29XU	RIKEN Coherent X-ray Optics	2002. 9	23		1	24
	BL32XU	RIKEN Targeted Proteins	2010.10	116		5	121
	BL43LXU	Quantum NanoDynamics	2020. 8	1			1
	BL44B2	RIKEN Materials Science I	1998. 5	38		3	41
	BL45XU	RIKEN Structural Biology I	1997.10	235	5	20	260
Subtotal			17314	774	1861	19949	

Beamline Name		Public Use Since	Refereed Papers	Proceedings	Other Publications	Total	
Contract Beamlines	BL03XU	Advanced Softmaterial	2009.11	511		18	529
	BL07LSU	The University-of-Tokyo Outstation Beamline for Materials Science	2009.11	160		11	171
	BL08B2	Hyogo BM	2005. 9	130			130
	BL11XU	QST Quantum Dynamics I		249	8	44	301
	BL12B2	NSRRC BM	2001. 9	465	1	2	468
	BL12XU	NSRRC ID	2003. 2	262	7	6	275
	BL14B1	QST Quantum Dynamics II		335	16	88	439
	BL15XU	WEBRAM (2001. 4 - 2021. 9)		734	14	60	808
	BL16B2	SUNBEAM BM	1999. 9	285	12	75	372
	BL16XU	SUNBEAM ID	1999. 9	299	8	61	368
	BL22XU	JAEA Actinide Science I		271	4	47	322
	BL23SU	JAEA Actinide Science II		410	45	110	565
	BL24XU	Hyogo ID	1998.10	250	19	63	332
	BL28XU	Advanced Batteries	2012. 4	63			63
	BL31LEP	Laser-Electron Photon II	2013.10	13			13
	BL32B2	Pharmaceutical Industry (2002. 9 - 2012. 3)		29		3	32
	BL33LEP	Laser-Electron Photon	2000.10	74	23	3	100
	BL33XU	TOYOTA	2009. 5	131	5	35	171
	BL36XU	Catalytic Reaction Dynamics for Fuel Cell (2013. 1 - 2020. 3)		76		6	82
	BL44XU	Macromolecular Assemblies	2000. 2	877		45	922
Subtotal			5624	162	677	6463	

RIKEN Beamlines	BL05XU	R&D-ID		7	6		13
	BL17SU	Coherent Soft X-ray Spectroscopy		130	4	13	147
	BL19LXU	SR Physics		150	8	27	185
	BL26B1	Structural Genomics I		206	2	19	227
	BL26B2	Structural Genomics II		162	1	13	176
	BL29XU	Coherent X-ray Optics		261	14	37	312
	BL32XU	Targeted Proteins		64		4	68
	BL38B2	Diagnosis Beamline		2	6		8
	BL43LXU	Quantum NanoDynamics		5			5
	BL44B2	Materials Science I		355	2	16	373
	BL45XU	Structural Biology I		269	5	45	319
	Subtotal			1611	48	174	1833

SACLA

Public Beamlines	Beamline Name		Public Use Since	Refereed Papers	Proceedings	Other Publications	Total
	BL1	SXFEL	2016. 3	32			32
	BL2/BL3	XFEL2/XFEL1	2012. 3	403	4	15	422

Hardware / Software R & D			893	554	474	1921
---------------------------	--	--	-----	-----	-----	------

NET Sum Total			21315	1370	2466	25151
---------------	--	--	-------	------	------	-------

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2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BLでカウントした。

共用・専用・理研の変更があった次のBLについては、変更前のカテゴリに含めた。BL15XU、BL32B2、BL36XU、BL38B1 (以上、現 理研BL)、BL45XU (現 共用BL)

・SPring-8 または SACLA での成果を論文等にする場合は必ず BL 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、2022 年 7 月～9 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 2022 年 7 月～9 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
Physical Review B	12	Chemistry Letters	4
Journal of the American Chemical Society	11	Chemistry Materials	4
Nature Communications	8	IUCrJ	4
Scientific Reports	6	Journal of Medicinal Chemistry	4
Biochemical and Biophysical Research Communications	5	Journal of Molecular Biology	4
		Journal of Synchrotron Radiation	4
Inorganic Chemistry	5	Nucleic Acid Research	4
The Journal of Biological Chemistry	5	Physical Review Research	4
Journal of the Ceramic Society of Japan	5	Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America	4
ACS Sustainable Chemistry & Engineering	4		
Acta Crystallographica Section D	4	Science Advances	4

他全 173 誌、計 312 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

Journal of the American Chemical Society

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
43932	Hiroki Minamihara	144 (2022) 11525-11529	2021A1202	BL02B2	北川 宏	Continuous-Flow Reactor Synthesis for Homogeneous 1 nm-Sized Extremely Small High-Entropy Alloy Nanoparticles
			2021B1202	BL02B2	北川 宏	
			2020A0622	BL04B2	Kumara L. S.	
44026	Sei-Hyun Choi	143 (2021) 20291-20295	2017B4000	BL12B2	Chen Chun Jung	Evidence for an Enzyme-Catalyzed Rauhut-Currier Reaction during the Biosynthesis of Spinosyn A
			2017B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2018A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2018B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2019A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
44094	Lichen Bai	141 (2019) 14190-14199	2016A4129	BL12B2	Chen Hao-Ming	A Cobalt-Iron Double-Atom Catalyst for the Oxygen Evolution Reaction
			2016B4129	BL12B2	Chen Hao-Ming	
44100	Aliki Moysiadou	142 (2020) 11901-11914	2019B4132	BL12B2	Chen Hao-Ming	Mechanism of Oxygen Evolution Catalyzed by Cobalt Oxyhydroxide: Cobalt Superoxide Species as a Key Intermediate and Dioxygen Release as a Rate-Determining Step
44156	Yuki Nakaya	144 (2022) 15944-15953	2021A1571	BL01B1	中谷 勇希	High-Entropy Intermetallics Serve Ultrastable Single-Atom Pt for Propane Dehydrogenation
			2021B1795	BL01B1	中谷 勇希	
			2020A0611	BL01B1	Wang Feng	
			2021A1541	BL14B2	古川 森也	
			2021A1387	BL01B1	Wang Feng	
44158	Naoki Ando	143 (2021) 9944-9951	2020A0834	BL02B1	西野 龍平	Boron-Doped Polycyclic π -Electron Systems with an Antiaromatic Borole Substructure That Forms Photoresponsive B-P Lewis Adducts
			2020A1650	BL02B1	薄葉 純一	
			2020A1644	BL02B1	潘 楊	
			2020A1056	BL02B1	笹森 貴裕	
			2019B1784	BL02B1	早川 雅大	
			2019B1129	BL02B1	笹森 貴裕	
			2019A1677	BL02B1	鈴木 文陽	
			2019A1057	BL02B1	笹森 貴裕	
			2018B1668	BL02B1	菅原 知紘	
2018A1167	BL40XU	笹森 貴裕				
44202	Tao Peng	143 (2021) 17226-17235	2019A4129	BL12B2	Chen Hao-Ming	Ternary Alloys Enable Efficient Production of Methoxylated Chemicals via Selective Electrocatalytic Hydrogenation of Lignin Monomers
44232	Leonie Spitz	144 (2022) 16866-16871	2021B1261	BL02B1	鬼頭 俊介	Entropy-Assisted, Long-Period Stacking of Honeycomb Layers in an AlB ₂ -Type Silicide
44250	Huachuan Sun	144 (2022) 1174-1186	2019B4138	BL12B2	Chen Hao-Ming	Atomic Metal-Support Interaction Enables Reconstruction-Free Dual-Site Electrocatalyst
44274	Shaoyu Chen	144 (2022) 3543-3553	2017A1514	BL04B2	梶谷 孝	Photoactuating Artificial Muscles of Motor Amphiphiles as an Extracellular Matrix Mimetic Scaffold for Mesenchymal Stem Cells
			2017A1526	BL45XU	梶谷 孝	

Physical Review B -1

43916	Kohei Yamagami	106 (2022) 045137	2020A3844	BL23SU	藤澤 唯太	Enhanced <i>d-p</i> Hybridization Intertwined with Anomalous Ground State Formation in the van der Waals Itinerant Magnet Fe ₅ GeTe ₂
43982	Shigenori Ueda	106 (2022) 075101	2020A4606	BL15XU	上田 茂典	Direct Probing of Temperature-independent Bulk Half-metallicity in Co ₂ MnSi by Spin-resolved Hard X-ray Photoemission
			2020A4702	BL15XU	上田 茂典	
44047	Yi-Ying Chin	100 (2019) 205139	2019B4263	BL12XU	Chin Yi-Ying	Spin-orbit Coupling and Crystal-field Distortions for a Low-spin 3 <i>d</i> ⁵ State in BaCoO ₃
44109	Johannes Falke	103 (2021) 115125	2019B4258	BL12XU	武上 大介	Electronic Structure of the Metallic Oxide ReO ₃
44118	Masato Fujii	106 (2022) 035118	2020A1148	BL17SU	溝川 貴司	Bulk and Surface Electronic Structure of MnPSe ₃ Revealed by Photoemission and X-ray Absorption Spectroscopy
			2019A1183	BL17SU	溝川 貴司	
			2019B1222	BL17SU	溝川 貴司	

Physical Review B -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
44221	Chien Wen Chuang	102 (2020) 165127	2019A4270	BL12XU	Chainani Ashish	Hard X-ray Photoemission Spectroscopy of GdNi and HoNi
44223	Biswajit Dalal	106 (2022) 104425	2020A4501	BL15XU	Belik Alexei	Inverse Exchange Bias Effects and Magnetoelectric Coupling of the Half-doped Perovskite-type Chromites Gd _{0.5} Sr _{0.5} CrO ₃ and Gd _{0.5} Ca _{0.5} CrO ₃
			2021A1169	BL02B2	山浦 一成	
44234	T. Ly Nguyen	106 (2022) 045144	2021A4255	BL12XU	Chainani Ashish	Hard X-ray Photoemission Spectroscopy of the Ferrimagnetic Series Gd ₆ (Mn _{1-x} Fe _x) ₂₃
44235	Thomas Gruner	106 (2022) 115142	2017A1295	BL35XU	Stockert Oliver	Phonon Softening in Lu(Pt _{1-x} Pd _x) ₂ In Close to a Zero-temperature Structural Instability
			2017B1526	BL35XU	Stockert Oliver	
			2017B1889	BL35XU	筒井 智嗣	
44236	H. Kizaki	106 (2022) 064434	2010A1173	BL39XU	内富 直隆	Anomalous Atomic Fluctuations in the Local Structure around Mn of (Zn,Sn,Mn)As ₂ Thin Films
			2011A1270	BL39XU	内富 直隆	

Nature Communications

43985	Rina Takahashi	12 (2021) 6691	2018B0938	BL14B2	若林 裕助	Mechanochemical Synthesis of Magnesium-based Carbon Nucleophiles in Air and Their Use in Organic Synthesis
			2020A1879	BL14B2	高谷 光	
44006	Kazuhiro Abe	12 (2021) 5709	2020A2707	BL41XU	阿部 一啓	Gastric Proton Pump with Two Occluded K ⁺ Engineered with Sodium Pump-mimetic Mutations
			2020A2707	BL45XU	阿部 一啓	
44097	Qilin Wang	11 (2020) 4246	2019A4129	BL12B2	Chen Hao-Ming	Coordination Engineering of Iridium Nanocluster Bifunctional Electrocatalyst for Highly Efficient and pH-universal Overall Water Splitting
			2019A4137	BL12B2	Chen Hao-Ming	
44170	Hirokatsu Yumoto	13 (2022) 5300	2020A8067	BL2	湯本 博勝	High-fluence and High-gain Multilayer Focusing Optics to Enhance Spatial Resolution in Femtosecond X-ray Laser Imaging
			2019A8096	BL2	湯本 博勝	
			2019B8085	BL2	湯本 博勝	
			2016B8089	BL2	小山 貴久	
			2017A8085	BL2	小山 貴久	
			2017B8089	BL2	小山 貴久	
			2018A8081	BL2	小山 貴久	
			2018B8096	BL2	小山 貴久	
			2017B8087	BL2	城地 保昌	
			2018A8047	BL2	西野 吉則	
			2018B8025	BL2	西野 吉則	
44189	Victoria C. Young	13 (2022) 5270	2020A2707	BL45XU	阿部 一啓	Structure and Function of H ⁺ /K ⁺ Pump Mutants Reveal Na ⁺ /K ⁺ Pump Mechanisms
			2020A2707	BL41XU	阿部 一啓	
44239	Yingcai Zhu	13 (2022) 4179	2021B1109	BL01B1	Zhu Yingcai	Multiple Valence Bands Convergence and Strong Phonon Scattering Lead to High Thermoelectric Performance in p-type PbSe

Scientific Reports

43925	Takao Takiyama	12 (2022) 13136	2014A1716	BL20B2	滝山 由美	A Maternal High-fat Diet Induces Fetal Origins of NASH-HCC in Mice
			2014B1802	BL20B2	滝山 由美	
			2018A1379	BL20B2	滝山 由美	
			2019B1445	BL20B2	滝山 由美	
43968	Yuta Matsukawa	11 (2021) 20505	2018B0938	BL14B2	若林 裕助	Microwave-assisted Photooxidation of Sulfoxides
			2020A1879	BL14B2	高谷 光	
43989	Kotaro Anamizu	12 (2022) 12653	2019A2557	BL26B1	橋本 涉	Substrate Size-dependent Conformational Changes of Bacterial Pectin-binding Protein Crucial for Chemotaxis and Assimilation
			2020A2577	BL26B1	橋本 涉	
			2021A2770	BL26B1	高瀬 隆一	
44043	Cheng Chung Lee	9 (2019) 4546	2016B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	An Effective Neutralizing Antibody Against Influenza Virus H1N1 from Human B Cells
			2017A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
44085	Hirokazu Masai	12 (2022) 14761	2020A1494	BL04B2	正井 博和	Densification in Transparent SiO ₂ Glasses Prepared by Spark Plasma Sintering
			2021A1166	BL04B2	正井 博和	
			2021A1144	BL43IR	正井 博和	
			2021B1149	BL43IR	正井 博和	
44203	Wen-Dung Hsu	11 (2021) 1929	2018A4135	BL12B2	Chen Tsan Yao	Preferential Lattice Expansion of Polypropylene in a Trilayer Polypropylene/Polyethylene/Polypropylene Microporous Separator in Li-ion Batteries

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
43952	Yumi Matsuo	61 (2022) 11746-11756	2019B1251	BL02B2	赤松 寛文	Topochemical Synthesis of LiCoF ₃ with a High-Temperature LiNbO ₃ -Type Structure
			2019A1144	BL02B2	赤松 寛文	
			2020A1253	BL02B2	赤松 寛文	
			2021A1473	BL02B2	赤松 寛文	
43981	Kengo Oka	61 (2022) 12552-12558	2021A1201	BL02B2	岡 研吾	Negative Thermal Expansion in Fluoroapatite Pb ₅ (VO ₄) ₃ F Enhanced by the Steric Effect of Pb ²⁺
			2020A1773	BL19B2	東 正樹	
43998	Masayuki Fukuda	61 (2022) 12719-12725	2021B1195	BL10XU	Xing Xianran	Suppression of Pressure-Induced Phase Transitions in a Monoclinically Distorted LiNbO ₃ -Type CuNbO ₃ by Preference for a CuO ₃ Triangular Coordination Environment
			2021B1869	BL19B2	東 正樹	
43999	Chengchao Zhong	61 (2022) 9816-9822	2018B1163	BL02B2	陰山 洋	Lone-Pair-Induced Intra- and Interlayer Polarizations in Sillén-Aurivillius Layered Perovskite Bi ₄ NbO ₈ Br
			2020A1669	BL02B2	加藤 大地	
44129	Shiori Kihara	61 (2022) 12822-12827	2022A1250	BL02B2	酒井 雄樹	Bi _{0.5} Pb _{0.5} FeO ₃ with Unusual Pb Charge Disproportionation: Indication of a Systematic Charge Distribution Change in Bi _{0.5} Pb _{0.5} MO ₃ (M: 3d Transition Metal)
			2017A1242	BL09XU	東 正樹	
			2017B1721	BL47XU	西久保 匠	
			2020A0589	BL02B2	Pan Zhao	
			2020A1646	BL02B2	福田 真幸	
			2020A1887	BL46XU	東 正樹	
			2021A1156	BL02B2	Pan Zhao	
			2021A1282	BL02B2	東 正樹	
			2021A1633	BL46XU	東 正樹	
2021B1358	BL09XU	東 正樹				

Chemistry Letters

43958	Arisu Sakai	51 (2022) 723-727	2020A1360	BL01B1	吉田 真明	Development of a MnCO ₃ -based Electrocatalyst for Water Oxidation from Rhodochrosite Ore
			2021B1168	BL01B1	吉田 真明	
44048	Julius Adrie Garcia	51 (2022) 898-901	2022A1200	BL02B1	箕浦 真生	Synthesis of a Kinetically Stabilized 2,2-Dihydrosilene
			2022A1621	BL02B1	行本 万里子	
44130	Sota Iwao	51 (2022) 781-783	2018B2107	BL40B2	太田 昇	Ordered Silica Nanostructure by the Calcination of Block Copolymer with Polyhedral Oligomeric Silsesquioxane (POSS) Side Chain
			2019A2063	BL40B2	太田 昇	
			2020A2044	BL40B2	太田 昇	
			2021A1162	BL40B2	平井 智康	
			2021B1157	BL40B2	平井 智康	
44181	Yuma Hamada	51 (2022) 894-897	2020A1307	BL40B2	櫻木 美菜	Characterization of w/o-type Microemulsions Containing l-Menthol-based Deep Eutectic Solvents for Use in Transdermal Drug Delivery
			2020A0616	BL40B2	櫻木 美菜	

Chemistry of Materials

43929	Suguru Yoshida	34 (2022) 6492-6504	2018B1696	BL02B2	吉田 傑	Interplay between Oxygen Octahedral Rotation and Deformation in the Acentric ARTIO ₄ Series toward Negative Thermal Expansion
			2019A1144	BL02B2	赤松 寛文	
43937	Yanchang Wang	34 (2022) 609-616	2019A1817	BL14B2	山本 健太郎	Anion Substitution at Apical Sites of Ruddlesden–Popper-type Cathodes toward High Power Density for All-Solid-State Fluoride-Ion Batteries
			2019B1015	BL02B2	内本 喜晴	
			2020A1010	BL02B2	内本 喜晴	
			2020A1288	BL27SU	山本 健太郎	
			2020A1790	BL02B2	内本 喜晴	
43953	Masaki Shimoda	34 (2022) 5634-5643	2021B1609	BL02B2	赤松 寛文	Controlling Defects to Achieve Reproducibly High Ionic Conductivity in Na ₃ SbS ₄ Solid Electrolytes
			2021A1473	BL02B2	赤松 寛文	
44256	Subin Song	34 (2022) 8237-8247	2021B1776	BL02B2	宋 水斌	Material Search for a Li ₁₀ GeP ₂ S ₁₂ -Type Solid Electrolyte in the Li–P–S–X (X = Br, I) System via Clarification of the Composition–Structure–Property Relationships
			2020A1645	BL02B2	李 予祥	

IUCrJ-1

43947	Tadeo Moreno Chicano	9 (2022) 610-624	2017B8014	BL2	Hough Michael	Complementarity of Neutron, XFEL and Synchrotron Crystallography for Defining the Structures of Metalloenzymes at Room Temperature
44030	Shao-Kang Chen	7 (2020) 934-948	2017A4000	BL12B2	Chen Chun Jung	Structural Insights into the Histidine-containing Phosphotransfer Protein and Receiver Domain of Sensor Histidine Kinase Suggest a Complex Model in the Two-component Regulatory System in <i>Pseudomonas aeruginosa</i>
			2017B4000	BL12B2	Chen Chun Jung	
			2017A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2017B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	

IUCrJ-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
44153	Byeong Jun Jeon	8 (2021) 168-177	2017A6770	BL44XU	Hwang Kwang Yeon	Insights into the Structure of Mature Streptavidin C1 from <i>Streptomyces cinnamonensis</i> Reveal the Self-binding of the Extension C-terminal Peptide to Biotin-binding Sites
44154	Kitaik Lee	7 (2020) 1019-1027	2017A6770	BL44XU	Hwang Kwang Yeon	Monothiol and Dithiol Glutaredoxin-1 from <i>Clostridium oremlandii</i> : Identification of Domain-swapped Structures by NMR, X-ray Crystallography and HDX Mass Spectrometry

Journal of Medicinal Chemistry

43883	Saki Tanaka	65 (2022) 7843-7853	2021B2530	EM01CT	阿部 一啓	Structural Basis for Binding of Potassium-Competitive Acid Blockers to the Gastric Proton Pump
			2020A2707	BL41XU	阿部 一啓	
			2018B2703	BL41XU	阿部 一啓	
			2020A2707	BL45XU	阿部 一啓	
44032	LungChun Lee	64 (2021) 11288-11301	2019A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	Xanthine Derivatives Reveal an Allosteric Binding Site in Methylene-tetrahydrofolate Dehydrogenase 2 (MTHFD2)
			2019B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
44035	Yi-Hui Peng	63 (2020) 1642-1659	2014A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	Unique Sulfur-Aromatic Interactions Contribute to the Binding of Potent Imidazothiazole Indoleamine 2,3-Dioxygenase Inhibitors
			2014B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2015A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
44041	Wen-Hsing Lin	62 (2019) 11135-11150	2015A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	Identification of a Multitargeted Tyrosine Kinase Inhibitor for the Treatment of Gastrointestinal Stromal Tumors and Acute Myeloid Leukemia
			2015B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2016A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2016B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	

Physical Review Research

43868	Laura Chaix	4 (2022) 033004	2019B1779	BL35XU	西久保 匠	Bulk Charge Density Wave and Electron-phonon Coupling in Superconducting Copper Oxochlorides
43908	Lisa Randolph	4 (2022) 033038	2018B8049	BL2	中堤 基彰	Nanoscale Subsurface Dynamics of Solids upon High-intensity Femtosecond Laser Irradiation Observed by Grazing-incidence X-ray Scattering
44110	Daisuke Takegami	4 (2022) 033108	2019B4258	BL12XU	武上 大介	Direct Imaging of Valence Orbitals using Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy
44213	Yoshinori Ohmasa	4 (2022) 033215	2017B3680	BL14B1	高木 成幸	Rotation of Complex Ions with Ninefold Hydrogen Coordination Studied by Quasielastic Neutron Scattering and First-principles Molecular Dynamics Calculations
			2018A3680	BL14B1	高木 成幸	
			2018B3680	BL14B1	高木 成幸	
			2019A3680	BL14B1	高木 成幸	
			2019B3680	BL14B1	高木 成幸	
			2020A3680	BL14B1	高木 成幸	

Science Advances

43917	Yoshihiko Furuike	8 (2022) eabm8990	2020A6502	BL44XU	秋山 修志	Elucidation of Master Allostery Essential for Circadian Clock Oscillation in Cyanobacteria
			2019B6902	BL44XU	秋山 修志	
			2019A6902	BL44XU	秋山 修志	
			2018B6802	BL44XU	秋山 修志	
			2018A6802	BL44XU	秋山 修志	
			2017B6702	BL44XU	秋山 修志	
			2017A6702	BL44XU	秋山 修志	
			2020A6500	BL44XU	山下 栄樹	
			2020A6700	BL44XU	中川 敦史	
			2019B6700	BL44XU	中川 敦史	
			2019A6700	BL44XU	中川 敦史	
			2018B6700	BL44XU	中川 敦史	
			2018A6700	BL44XU	中川 敦史	
2017B6700	BL44XU	中川 敦史				
44031	Shanshan Li	7 (2021) eabj9537	2011A6600	BL44XU	Hsiao Chwan Deng	Processive Cleavage of Substrate at Individual Proteolytic Active Sites of the Lon Protease Complex
			2011B6600	BL44XU	Hsiao Chwan Deng	
44131	Tatsushi Yoshioka	8 (2022) eabo3093	2020A0687	BL04B2	脇原 徹	Dealumination of Small-pore Zeolites through Pore-opening Migration Process with the Aid of Pore-filler Stabilization
			2021A1152	BL04B2	脇原 徹	
44230	Zhiyu He	8 (2022) eabo0617	2019A8070	BL3	Kraus Dominik	Diamond Formation Kinetics in Shock-compressed C—H—O Samples Recorded by Small-angle X-ray Scattering and X-ray Diffraction

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
43939	SeungHoon Yang	5 (2022) 667-673	2020A1789	BL20XU	山本 健太郎	High Rate Capability from a Graphite Anode through Surface Modification with Lithium Iodide for All-Solid-State Batteries
44122	Bizuaem Wakuma Olbasa	3 (2020) 4499-4508	2019A4255	BL12XU	Hwang Bing Joe	High-Rate and Long-Cycle Stability with a Dendrite-Free Zinc Anode in an Aqueous Zn-Ion Battery Using Concentrated Electrolytes
			2019A4258	BL12XU	Hwang Bing Joe	
			2019B4126	BL12B2	Hwang Bing Joe	
44179	Sheng-Wei Hsiao	5 (2022) 10994-11001	2015A4260	BL12XU	Wu Pin Jiun	Thermal Effect on the Electronic Properties of ZnO/CdS/CIGSeS Solar Cell at/near the Heterojunction Interfaces

ACS Applied Materials & Interfaces

44016	Kakaraparthi Kranthiraja	14 (2022) 28936-28944	2020A1875	BL46XU	佐伯 昭紀	Machine Learning-Assisted Polymer Design for Improving the Performance of Non-Fullerene Organic Solar Cells
			2021A1558	BL46XU	尾坂 格	
			2021A1641	BL46XU	但馬 敬介	
			2021A1687	BL46XU	森 裕樹	
44190	Nan-Hung Yeh	13 (2021) 7355-7369	2019A4134	BL12B2	Wang Fu-Ming	Controlling Ni ²⁺ from the Surface to the Bulk by a New Cathode Electrolyte Interphase Formation on a Ni-Rich Layered Cathode in High-Safe and High-Energy-Density Lithium-Ion Batteries
44206	Shin-Yu Wang	11 (2019) 40050-40061	2017A4127	BL12B2	Chen Hao-Ming	Defect Passivation by Amide-Based Hole-Transporting Interfacial Layer Enhanced Perovskite Grain Growth for Efficient p-i-n Perovskite Solar Cells

ACS Omega

43996	Kazu Okumura	7 (2022) 27458-27468	2021A1429	BL01B1	奥村 和	Formation of a Pt-MgO Solid Solution: Analysis by X-ray Absorption Fine Structure Spectroscopy
			2021B1291	BL01B1	奥村 和	
			2022A1242	BL01B1	奥村 和	
44010	Kenta Aoshima	4 (2019) 15645-15652	2018A1568	BL46XU	尾坂 格	Regioregularity and Electron Deficiency Control of Unsymmetric Diketopyrrolopyrrole Copolymers for Organic Photovoltaics
			2018B1595	BL46XU	尾坂 格	
			2019A1765	BL46XU	尾坂 格	
44163	Akito Kawai	7 (2022) 29944-29951	2018B6812	BL44XU	河合 聡人	Chlorine Atoms of an Aripiprazole Molecule Control the Geometry and Motion of Aripiprazole and Deschloro-aripiprazole in Subdomain IIIA of Human Serum Albumin

ACS Sustainable Chemistry & Engineering

44077	Mozaffar Abdollahifar	9 (2021) 13717-13725	2018A4129	BL12B2	Wu Nae-Lih	Room-Temperature Synthesis of LiMn ₂ O ₄ by Electrochemical Ion Exchange in an Aqueous Medium
			2018B4125	BL12B2	Wu Nae-Lih	
			2019A4125	BL12B2	Wu Nae-Lih	
			2019A4133	BL12B2	Wu Nae-Lih	
			2019B4133	BL12B2	Wu Nae-Lih	
44119	Erisa Kano	10 (2022) 12072-12081	2020A1690	BL01B1	相原 健司	Continuous Production of Lactic Acid from Glycerol over Bifunctional Catalysts under Base-Free Conditions Using a Liquid-Phase Flow Reactor
44205	You-Chiuan Chu	7 (2019) 14247-14255	2017A4127	BL12B2	Chen Hao-Ming	Anionic Effects on Metal Pair of Se-Doped Nickel Diphosphide for Hydrogen Evolution Reaction
			2017B4128	BL12B2	Chen Hao-Ming	

Biochemical and Biophysical Research Communications

43991	Sakiko Nakatsuji	594 (2022) 124-130	2017B2592	BL38B1	橋本 涉	Crystal Structures of EfeB and EfeO in a Bacterial Siderophore-independent Iron Transport System
			2019A2557	BL26B1	橋本 涉	
			2020A2577	BL26B1	橋本 涉	
			2021A2770	BL26B1	高瀬 隆一	
44150	Kimiko Chaen	424 (2012) 508-511	2007B1359	BL38B1	角田 佳充	Crystal Structure of the Rice Branching Enzyme I (BEI) in Complex with Maltopentaose
			2007B1995	BL41XU	角田 佳充	
44185	Asaka Ikeda	630 (2022) 30-35	2020A6513	BL44XU	木下 誉富	Bivalent Binding Mode of an Amino-pyrazole Inhibitor Indicates the Potentials for CK2α1-selective Inhibitors
			2021A6612	BL44XU	木下 誉富	

Frontiers in 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
43914	Naoto Kitamura	9 (2022) 954729	2020A1134	BL04B2	井手本 康	Effects of Ca Substitution on the Local Structure and Oxidation Behavior of Layered Perovskite Lanthanum Nickelate
			2014B1932	BL14B2	井手本 康	
			2017A1290	BL04B2	井手本 康	
44113	Mamoru Kitaura	9 (2022) 977371	2019B1080	BL13XU	北浦 守	Atomic Positions and Displacements in Piezoelectric Materials $\text{Ca}_3\text{TaGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ and $\text{Ca}_3\text{TaGa}_{1.5}\text{Al}_{1.5}\text{Si}_2\text{O}_{14}$ Investigated by Ta-La X-ray Fluorescence Holography
44155	Satoshi Watanabe	9 (2022) 825592	2020A1666	BL02B2	坂中 勇太	Mechanism of CO_2 Capacity Reduction of Flexible Metal-Organic Framework Caused by Water Adsorption
			2021A1588	BL02B2	坂中 勇太	
			2021B1792	BL02B2	坂中 勇太	
			2021B1526	BL02B2	平出 翔太郎	

Journal of Alloys and Compounds

44082	Dinesh Bhalothia	844 (2020) 156160	2018B4128	BL12B2	Chen Tsan Yao	Ir-oxide Mediated Surface Restructure and Corresponding Impacts on Durability of Bimetallic NiO_x/Pd Nanocatalysts in Oxygen Reduction Reaction
			2019A4261	BL12XU	Chen Tsan Yao	
			2019B4256	BL12XU	Chen Tsan Yao	
			2019B4274	BL12XU	Chen Tsan Yao	
44143	Shu-Chih Haw	862 (2021) 158050	2019A4267	BL12XU	Chen Jin-Ming	Unusual Mixed Spin-state of Co^{3+} in the Ground State of LaSrCoO_4 : Combined High-pressure and High-temperature Study
44259	Kakeru Ninomiya	928 (2022) 167101	2019B1433	BL37XU	西堀 麻衣子	Chemical Interactions of Solute Atoms during L_{12} Cluster Formation in Mg-Zn-Gd Alloys with Long-Period Stacking Ordered Structure
			2020A0608	BL37XU	西堀 麻衣子	
			2020A1405	BL28B2	西堀 麻衣子	
			2020A7479	BL07LSU	西堀 麻衣子	

Journal of Physics: Condensed Matter

43862	Atsushi Togo	34 (2022) 365401	2017A1042	BL35XU	田中 功	LO-mode Phonon of KCl and NaCl at 300 K by Inelastic X-ray Scattering Measurements and First Principles Calculations
			2017B1297	BL35XU	田中 功	
			2018A1298	BL35XU	田中 功	
43946	Samuel Thompson	34 (2022) 394003	2017B1338	BL10XU	駒林 鉄也	High-pressure Melting Experiments of Fe_3S and a Thermodynamic Model of the Fe-S Liquids for the Earth's Core
			2018B1464	BL10XU	駒林 鉄也	
44242	Tomoya Taguchi	33 (2021) 485704	2018B4140	BL12B2	久保園 芳博	Superconductivity of Topological Insulator $\text{Sb}_2\text{Te}_3\text{Se}_y$ under Pressure
			2019A4131	BL12B2	久保園 芳博	

Journal of Synchrotron Radiation

43994	Takahisa Koyama	29 (2022) 1265-1272	2021A2084	BL20B2	上杉 健太郎	Double-multilayer Monochromators for High-energy and Large-field X-ray Imaging Applications with Intense Pink Beams at SPing-8 BL20B2
44017	Satoshi Yamaguchi	29 (2022) 1258-1264	2017B7032	BL33XU	長井 康貴	Observation of Water Droplets in Microporous Layers for Polymer Electrolyte Fuel Cells by X-ray Computed Nanotomography
			2018A7032	BL33XU	長井 康貴	
			2018B7032	BL33XU	長井 康貴	
			2019A7032	BL33XU	山口 聡	
44079	Ryo Mashita	29 (2022) 1180-1186	2017B1397	BL09XU	間下 亮	Microscopic Observation of the Effects of Elongation on the Polymer Chain Dynamics of Crosslinked Polybutadiene using Quasi-elastic γ -ray Scattering
			2018B1105	BL09XU	間下 亮	
			2019A1514	BL09XU	間下 亮	
			2019B1442	BL09XU	間下 亮	

Journal of the Ceramic Society of Japan

43860	Takuya Aoyagi	130 (2022) 504-508	2019A5400	BL16B2	米山 明男	Effect of Adding Ag_2O to Vanadium-containing Low-melting Glass for Low-temperature Sealing
			2019B5400	BL16B2	米山 明男	
			2012B1720	BL14B2	青柳 拓也	
			2013A1801	BL14B2	青柳 拓也	
			2017A1234	BL13XU	小原 真司	
43878	Shinnosuke Yasuoka	130 (2022) 436-441	2021A1160	BL13XU	白石 貴久	Enhancement of Crystal Anisotropy and Ferroelectricity by Decreasing Thickness in $(\text{Al},\text{Sc})\text{N}$ Films
43949	Miki Uchida	130 (2022) 707-714	2019A1592	BL02B2	武井 貴弘	Low Temperature Synthesis of Aluminum Nitride from Anhydrous Aluminum Chloride-organic Amine Complex

Macromolecules

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
43934	Walter W. Young	55 (2022) 6590-6597	2020A1348	BL40B2	深尾 浩次	A Hidden Relaxation Process in Poly(2-vinylpyridine) Homopolymers, Copolymers, and Nanocomposites
			2021A1250	BL40B2	深尾 浩次	
			2021B1420	BL40B2	深尾 浩次	
			2021B1422	BL40B2	深尾 浩次	
43954	Kota Aoki	55 (2022) 5591-5600	2020A1198	BL40B2	高橋 倫太郎	Structure and Rheology of Poly(vinylidene difluoride-co-hexafluoropropylene) in an Ionic Liquid: The Solvent Behaves as a Weak Cross-Linker through Ion-Dipole Interaction
			2021A1270	BL40B2	高橋 倫太郎	
			2022A1193	BL40B2	高橋 倫太郎	
44149	Kohji Tashiro	55 (2022) 6644-6660	2016B1431	BL40XU	田代 孝二	Electric-Field-Induced Phase Transition and Crystal Structural Change of the Oriented Poly(vinylidene Fluoride) β Form as Clarified by the <i>In Situ</i> Synchrotron Wide-Angle X-ray Diffraction Measurement
			2017A1075	BL40XU	田代 孝二	
			2017B1213	BL40XU	田代 孝二	
			2019B1083	BL40XU	田代 孝二	
			2020A1224	BL40XU	田代 孝二	
			2021B1006	BL40XU	田代 孝二	
2016B1431	BL40XU	田代 孝二				

Physica Status Solidi B

44022	Izumi Masuda	259 (2022) 2100571	2020A4264	BL12XU	平岡 望	Synthesis and Electronic Characterization of Weyl Semimetal TaSb ₂ Polycrystalline Material
			2021A4251	BL12XU	吉村 政人	
			2021B4256	BL12XU	吉村 政人	
44111	Benedict Paulus	259 (2022) 2100619	2018A1654	BL01B1	Paulus Benedict	Short-Range Order Investigation of Cu _x Ge _{50-x} Te ₅₀ Phase-Change Materials
44144	Jianfa Zhao	258 (2021) 2100117	2019A4267	BL12XU	Chen Jin-Ming	Spin State and Spin-State Transition of Co ³⁺ Ion in BiCoO ₃

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

43865	Hiro Nakamura	119 (2022) e2123385119	2018A2580	BL32XU	當舎 武彦	Structural Basis for Heme Detoxification by an ATP-binding Cassette-type Efflux Pump in Gram-positive Pathogenic Bacteria
			理研	BL26B1		
			理研	BL26B2		
43910	Samuel Rose	119 (2022) e2205664119	2021A2747	BL26B1	當舎 武彦	Single Crystal Spectroscopy and Multiple Structures from One Crystal (MSOX) Define Catalysis in Copper Nitrite Reductases
43918	Yoshihiko Furuike	119 (2022) e2119627119	2020A6502	BL44XU	秋山 修志	Regulation Mechanisms of the Dual ATPase in KaiC
			2019B6902	BL44XU	秋山 修志	
			2019A6902	BL44XU	秋山 修志	
			2018B6802	BL44XU	秋山 修志	
			2018A6802	BL44XU	秋山 修志	
			2017B6702	BL44XU	秋山 修志	
			2017A6702	BL44XU	秋山 修志	
			2020A6500	BL44XU	山下 栄樹	
			2020A6700	BL44XU	中川 敦史	
			2019B6700	BL44XU	中川 敦史	
			2019A6700	BL44XU	中川 敦史	
			2018B6700	BL44XU	中川 敦史	
2018A6700	BL44XU	中川 敦史				
2017B6700	BL44XU	中川 敦史				

ACS Applied Polymer Materials

43863	Kakeru Obayashi	4 (2022) 5387-5394	2019A1558	BL40XU	高原 淳	Deformation Behavior of Polyurethane Adhesive in the Single-Lap Joint Based on the Microbeam X-ray Scattering Method
44011	Kakaraparthi Kranthiraja	3 (2021) 2759-2767	2017B1831	BL46XU	尾坂 格	Impact of Sequential Fluorination of Donor and/or Acceptor Polymers on the Efficiency and Morphology of All-Polymer Solar Cells
			2019A1765	BL46XU	尾坂 格	
			2020A1742	BL46XU	但馬 敬介	

ACS Nano

44126	Soressa Abera Chala	15 (2021) 14996-15006	2019B4272	BL12XU	Hwang Bing Joe	Tuning Dynamically Formed Active Phases and Catalytic Mechanisms of <i>In Situ</i> Electrochemically Activated Layered Double Hydroxide for Oxygen Evolution Reaction
			2019A4136	BL12B2	Hwang Bing Joe	
44133	Carlos Sanchez-Cano	15 (2021) 3754-3807	2019A1073	BL40B2	Conceicao Andre	X-ray-Based Techniques to Study the Nano-Bio Interface

Acta Crystallographica Section D

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
44039	Hsien-Wei Yeh	75 (2019) 733-742	2015B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	Biochemical and Structural Explorations of α -hydroxyacid Oxidases Reveal a Four-electron Oxidative Decarboxylation Reaction
			2016A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2016B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2017A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2017B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
44040	Syue-Yi Lyu	75 (2019) 918-929	2015B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	The Flavin Mononucleotide Cofactor in α -hydroxyacid Oxidases Exerts its Electrophilic/Nucleophilic Duality in Control of the Substrate-oxidation Level
			2016A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2016B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2017A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2017B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	

Advanced Functional Materials

44000	Daichi Kato	32 (2022) 2204112	2020A1669	BL02B2	加藤 大地	$\text{Bi}_2\text{O}_{17}\text{Cl}_2$ with a Sextuple Bi—O Layer Composed of Rock-Salt and Fluorite Units and its Structural Conversion through Fluorination to Enhance Photocatalytic Activity
			2022A1081	BL02B2	加藤 大地	
44012	Kakaraparthi Kranthiraja	31 (2021) 2011168	2017B1831	BL46XU	尾坂 格	Experiment-Oriented Machine Learning of Polymer:Non-Fullerene Organic Solar Cells
			2019A1765	BL46XU	尾坂 格	
			2020A1742	BL46XU	但馬 敬介	

Advanced Materials

44007	Dmitrii V. Semenok	34 (2022) 2204038	2020A0576	BL10XU	Troyan Ivan	Effect of Magnetic Impurities on Superconductivity in LaH_{10}
44095	Rong Chen	31 (2019) 1903909	2017B4136	BL12B2	Chen Hao-Ming	Layered Structure Causes Bulk NiFe Layered Double Hydroxide Unstable in Alkaline Oxygen Evolution Reaction
			2017B4142	BL12B2	Chen Hao-Ming	

Bioscience, Biotechnology and Biochemistry

43990	Kenji Okumura	85 (2021) 2410-2419	2017B2592	BL38B1	橋本 涉	The Role of Calcium Binding to the EF-hand-like Motif in Bacterial Solute-binding Protein for Alginate Import
			2016A2574	BL38B1	橋本 涉	
43992	Daiju Doubayashi	75 (2011) 1662-1667	2010A6538	BL44XU	三上 文三	Formate Oxidase, an Enzyme of the Glucose-Methanol-Choline Oxidoreductase Family, Has a His-Arg Pair and 8-Formyl-FAD at the Catalytic Site

Bulletin of the Chemical Society of Japan

44072	Ryohei Nishino	94 (2021) 2919-2921	2020A0834	BL02B1	西野 龍平	Synthesis of Dialkyl-Diphosphenes and -Distibenes that Bear Extended Triptycyl Groups
			2020A1056	BL02B1	笹森 貴裕	
			2020A1644	BL02B1	潘 楊	
			2020A1656	BL02B1	西野 龍平	
			2021A1592	BL02B1	西野 龍平	
			2019A1057	BL02B1	笹森 貴裕	
			2019A1677	BL02B1	鈴木 文陽	
			2019B1578	BL02B1	行本 万里子	
			2019B1774	BL02B1	鈴木 文陽	
44227	Yuma Nakagawa	95 (2022) 1438-1444	2021B1188	BL02B1	内田 欣吾	Phototunable Golden Luster Microcrystalline Film of Photochromic Diarylethene

Chemical Communications

44135	Arnau Carné-Sánchez	58 (2022) 9894-9897	2016B1126	BL02B2	古川 修平	Photoactive Carbon Monoxide-releasing Coordination Polymer Particles
			2017A1180	BL02B2	古川 修平	
44263	Masaki Fujita	58 (2022) 9870-9873	2021A1597	BL02B1	田中 宏樹	Ion-pairing Assemblies of Heteroporphyrin-based π -electronic Cation with Various Counteranions
			2021A1339	BL40XU	前田 大光	
			2021B1703	BL40XU	前田 大光	

European Journal of Organic Chemistry

43873	Jingfeng Shen	2022 (2022) e202101563	2020A1177	BL02B1	砂田 祐輔	An Iridium Complex with a Phosphine-Pendant Silyl Ligand as an Efficient Catalyst for the (<i>E</i>)-Selective Semihydrogenation of Alkynes
44253	Hang Xu	2022 (2022) e202200826	2021A1091	BL01B1	満留 敬人	Green Oxidation of Indoles Using Molecular Oxygen over a Copper Nitride Nanocube Catalyst
			2021A1647	BL14B2	水垣 共雄	
			2021B1945	BL14B2	水垣 共雄	

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
43870	Keita Aoyama	61 (2022) 070915	2016A1408	BL27SU	奥田 浩司	Absolute Measurements of Anomalous Small-angle X-ray Scattering Intensity using Glassy Carbon at the Mg K Absorption Edge
			2018A1205	BL27SU	奥田 浩司	
43997	Norihiro Oshime	61 (2022) SN1008	2020A3761	BL22XU	大和田 謙二	The Ferroelectric Phase Transition in a 500 nm Sized Single Particle of BaTiO ₃ Tracked by Coherent X-ray Diffraction
			2020A3762	BL22XU	押目 典宏	
			2021A1100	BL40XU	黒岩 芳弘	
			2021A3751	BL22XU	町田 晃彦	
			2021A3761	BL22XU	大和田 謙二	
			2021A3762	BL22XU	押目 典宏	
			2021B1244	BL02B2	黒岩 芳弘	
			2021B3751	BL22XU	町田 晃彦	
			2021B3761	BL22XU	大和田 謙二	
			2021B3762	BL22XU	押目 典宏	
2022A1228	BL02B2	黒岩 芳弘				
2022A3784	BL22XU	黒岩 芳弘				

Journal of Applied Crystallography

43961	Kohei Yatabe	55 (2022) 978-992	2019B3201	BL24XU	高山 裕貴	Phase Retrieval Based on a Total-variation-regularized Poisson Model for X-ray Ptychographic Imaging of Low-contrast Objects
			2020A3201	BL24XU	高山 裕貴	
43988	Nozomu Ishiguro	55 (2022) 929-943	2022A1430	BL37XU	石黒 志	Method for Restoration of X-ray Absorption Fine Structure in Sparse Spectroscopic Ptychography

Journal of Applied Physics

43931	Kosuke Sato	132 (2022) 045104	2019B1057	BL09XU	松波 雅治	Electronic Structure of Silver Chalcogenides Investigated by Hard X-ray Photoemission Spectroscopy and Density Functional Theory Calculations
43959	Hiroshi Fukui	132 (2022) 055902	2018B1152	BL35XU	米田 明	Single Crystal Elasticity and Equation of State of Tantalum up to 54 GPa
			2019A1339	BL35XU	米田 明	
			2019B1144	BL35XU	福井 宏之	
			2020A1227	BL35XU	福井 宏之	

Journal of Biomedical Science

44028	I Fan Tu	29 (2022) 9	2014B4011	BL12B2	Huang Kai Fa	Structural and Biological Insights into <i>Klebsiella pneumoniae</i> Surface Polysaccharide Degradation by a Bacteriophage K1 Lyase: Implications for Clinical Use
			2014A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2014B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
44029	Cheng Chung Lee	27 (2020) 12	2013B4011	BL12B2	Wang Andrew	Structural Basis of Polyethylene Glycol Recognition by Antibody
			2013A4001	BL12B2	Wang Andrew	

Journal of Molecular Biology

43895	Keiko Kubota	407 (2011) 543-555	2006A2721	BL41XU	田之倉 優	The Crystal Structure of L-Sorbose Reductase from <i>Gluconobacter frateurii</i> Complexed with NADPH and L-Sorbose
44033	Wen-Chih Kuo	433 (2021) 166766	2015A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	Structure-based Development of Human Interleukin-1 β -Specific Antibody That Simultaneously Inhibits Binding to Both IL-1RI and IL-1RAcP
			2015B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2016A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2016B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	

The Journal of Physical Chemistry C

44008	Masaki Abe	126 (2022) 14047-14057	2021B1595	BL27SU	高橋 幸生	Visualization of Sulfur Chemical State of Cathode Active Materials for Lithium-Sulfur Batteries by Tender X-ray Spectroscopic Ptychography
			2019A0164	BL27SU	高橋 幸生	
			2020A0629	BL27SU	高橋 幸生	
			2018A1307	BL27SU	岸本 浩通	
			2018B1303	BL27SU	岸本 浩通	
44260	Yuki Omura	126 (2022) 6008-6015	2021A1648	BL14B2	梶原 貴人	Uniform Organically Modified CeO ₂ Nanoparticles Synthesized from a Carboxylate Complex under Supercritical Hydrothermal Conditions: Impact of Ce Valence

The Journal of Physical Chemistry Letters

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
43936	Takuya Kurihara	13 (2022) 7023-7028	2021A1401	BL02B2	栗原 拓也	Slow CO ₂ Diffusion Governed by Steric Hindrance of Rotatory Ligands in Small Pores of a Metal–Organic Framework
44105	Shunnosuke Tanaka	13 (2022) 8403-8408	2020A1274	BL13XU	中村 将志	Interfacial Structure of Pt(110) Electrode during Hydrogen Evolution Reaction in Alkaline Solutions
			2021A1257	BL13XU	中村 将志	

Materials Transactions

43877	Tetsu Watanuki	63 (2022) 1380-1383	2014A1281	BL01B1	綿貫 徹	Temperature Dependence of Yb Valence in an Au-Al-Yb Intermediate-Valence Quasicrystal Investigated by Yb L ₃ -edge X-ray Absorption Near-edge Structure Spectroscopy
			2012B0046	BL39XU	渡辺 真仁	
44180	Kyosuke Hirayama	63 (2022) 586-591	2015A0076	BL20XU	戸田 裕之	Crystallographic Analysis of Hydrogen Embrittlement Behavior in Aluminum Alloy Using Diffraction Contrast Tomography

NPG Asia Materials

44098	Makoto Takeuchi	14 (2022) 70	2018A1129	BL39XU	鈴木 基寛	Real Picture of Magnetic Domain Dynamics along the Magnetic Hysteresis Curve Inside an Advanced Permanent Magnet
			2018A2067	BL39XU	鈴木 基寛	
			2018B1015	BL39XU	廣澤 哲	
			2018B1332	BL39XU	鈴木 基寛	
			2018B2100	BL39XU	鈴木 基寛	
			2019A1555	BL39XU	豊木 研太郎	
			2019B1003	BL39XU	廣澤 哲	
			2020A0816	BL39XU	岡本 聡	
44186	Junichi Nomoto	14 (2022) 76	2020A1876	BL46XU	野本 淳一	Over 130 cm ² /Vs Hall Mobility of Flexible Transparent Conductive In ₂ O ₃ Films by Excimer-laser Solid-phase Crystallization

Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A

44147	Chen Wu	1015 (2021) 165756	2020A6004	BL33LEP	堀田 智明	Test of a Small Prototype of the COMET Cylindrical Drift Chamber
			2019B6004	BL33LEP	堀田 智明	
44148	Norihiro Muramatsu	1033 (2022) 166677	2019A6102	BL31LEP	新山 雅之	SPring-8 LEPS2 Beamline: A Facility to Produce a Multi-GeV Photon Beam via Laser Compton Scattering
			2019B6102	BL31LEP	新山 雅之	
			2020A6102	BL31LEP	新山 雅之	
			2021A6102	BL31LEP	新山 雅之	

Nucleic Acids Research

44038	Roshan Satange	47 (2019) 8899-8912	2017B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	Polymorphic G:C Mismatches Act as Hotspots for Inducing Right-handed Z DNA by DNA Intercalation
			2014A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2014B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
44159	Kousuke Ito	40 (2012) 10521-10531	2008B2182	BL41XU	内海 利男	Structural Basis for the Substrate Recognition and Catalysis of Peptidyl-tRNA Hydrolase

Physical Chemistry Chemical Physics

43903	Daisuke Asakura	24 (2022) 19177-19183	2017A7531	BL07LSU	朝倉 大輔	<i>Operando</i> Resonant Soft X-ray Emission Spectroscopy of the LiMn ₂ O ₄ Cathode using an Aqueous Electrolyte Solution
			2018A7573	BL07LSU	朝倉 大輔	
			2018B7584	BL07LSU	朝倉 大輔	
			2019A7595	BL07LSU	朝倉 大輔	
			2020A7486	BL07LSU	張 文雄	
44168	Tomohiro Sugahara	24 (2022) 22557-22561	2015B1296	BL02B1	橋爪 大輔	Characterization of Resonance Structures in Aromatic Rings of Benzene and its Heavier-element Analogues
			2016B1281	BL02B1	橋爪 大輔	
			2016B1716	BL02B1	菅原 知紘	

Physical Review Materials

43955	Hiroshi Nakajima	6 (2022) 074411	2022A1085	BL04B2	中島 宏	Direct Observation of Monoclinic Polar Nanoregions in Relaxor Ferroelectric Pb(Yb _{1/2} Nb _{1/2})O ₃ -PbTiO ₃
44231	Takashi Kurumaji	6 (2022) 094410	2021B1261	BL02B1	鬼頭 俊介	Anisotropic Magnetotransport Properties Coupled with Spiral Spin Modulation in a Magnetic Semimetal EuZnGe

Polymer

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
43993	Katsuya Komiyama	247 (2022) 124772	2019A7234	BL03XU	岩田 忠久	Mechanical Properties and Highly-ordered Structural Analysis of Elastic Poly[(<i>F</i>)-3-hydroxybutyrate-co-(<i>F</i>)-3-hydroxyvalerate] Fibers Fabricated by Partially Melting Crystals
			2019B7270	BL03XU	岩田 忠久	
			2020A7223	BL03XU	岩田 忠久	
			2021A7204	BL03XU	岩田 忠久	
44162	Hideki Kai	257 (2022) 125260	2021A7208	BL03XU	和泉 篤士	Interchain Ordering Structure and Main Chain Conformation Analysis of Thermal Stability in Vinyl-addition Polynorbomene
			2021B7258	BL03XU	和泉 篤士	
			2022A7209	BL03XU	和泉 篤士	

Protein Science

44046	Kuan-Hung Lin	29 (2020) 1655-1666	2016B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	Structural and Chemical Trapping of Flavin-oxide Intermediates Reveals Substrate-Directed Reaction Multiplicity
			2017A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2017B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2018A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
44137	Tomoki Himiyama	29 (2020) 1138-1147	2019A6931	BL44XU	中村 努	Disassembly of the Ring-type Decameric Structure of Peroxiredoxin from <i>Aeropyrum pernix</i> K1 by Amino Acid Mutation
			2019A2525	BL26B1	中村 努	

Small

43911	Wei Liu	18 (2022) 2202439	2021B1902	BL14B2	岡崎 湧一	Effects of A-site Cations in Quadruple Perovskite Ruthenates on Oxygen Evolution Catalysis in Acidic Aqueous Solutions
			2020A0583	BL02B2	山田 幾也	
44112	Satoshi Hiroi	18 (2022) 2203412	2018A1172	BL04B2	大石 昌嗣	Adaptive Cation Pillar Effects Achieving High Capacity in Li-Rich Layered Oxide, $\text{Li}_2\text{MnO}_3\text{-LiMeO}_2$ (Me = Ni, Co, Mn)
			2018B1463	BL04B2	大石 昌嗣	

AAPPS Bulletin

44225	Jun Miyawaki	31 (2021) 25	2019A7410	BL07LSU	宮脇 淳	Fast and Versatile Polarization Control of X-ray by Segmented Cross Undulator at SPring-8
			2019A7411	BL07LSU	平田 靖透	
			2019B7410	BL07LSU	平田 靖透	
			2019B7411	BL07LSU	宮脇 淳	
			2020A7411	BL07LSU	平田 靖透	
			2021A7412	BL07LSU	小嗣 真人	

ACS Applied Electronic Materials

44015	Kakaraparthi Kranthiraja	4 (2022) 2086-2094	2020A1875	BL46XU	佐伯 昭紀	Diketopyrrolopyrrole-Based Chlorinated Bithiophene Polymers for Organic Solar Cells: Effect of Thiophene or Pyridine Flank
			2021A1558	BL46XU	尾坂 格	
			2021A1641	BL46XU	但馬 敬介	
			2021A1687	BL46XU	森 裕樹	

ACS Catalysis

43971	Katsuhiro Isozaki	11 (2021) 13180-13187	2018B0938	BL14B2	若林 裕助	Gold Nanocluster Functionalized with Peptide Dendron Thioliates: Acceleration of the Photocatalytic Oxidation of an Amino Alcohol in a Supramolecular Reaction Field
			2019B3584	BL11XU	高谷 光	

ACS Infectious Diseases

44042	Chun Man Huang	5 (2019) 430-442	2015B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	Teicoplanin Reprogrammed with the N-Acyl-Glucosamine Pharmacophore at the Penultimate Residue of Aglycone Acquires Broad-Spectrum Antimicrobial Activities Effectively Killing Gram-Positive and -Negative Pathogens
			2016A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	
			2016B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	

ACS Medicinal Chemistry Letters

44157	Jiro Kondo	3 (2012) 741-744	2011A1895	BL38B1	近藤 次郎	Crystal Structure and Specific Binding Mode of Sisomicin to the Bacterial Ribosomal Decoding Site
-------	------------	---------------------	-----------	--------	-------	---

Acta Crystallographica Section F

44142	Kohei Sasamoto	77 (2021) 399-406	2019B6931	BL44XU	中村 努	Crystal Structure of Acetylcholin Esterase from <i>Caldanaerobacter subterraneus</i> subsp. <i>Tengcongensis</i>
-------	----------------	----------------------	-----------	--------	------	--

Acta Materialia

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
44182	Hiroyuki Toda	234 (2022) 117956	2015A0076	BL20XU	戸田 裕之	Multimodal Assessment of Mechanically Induced Transformation in Metastable Multi-phase Steel using X-ray Nano-tomography and Pencil-beam Diffraction Tomography

Advanced Energy Materials

44125	Jiashun Liang	10 (2020) 2000179	2019B4254	BL12XU	Hwang Bing Joe	Biaxial Strains Mediated Oxygen Reduction Electrocatalysis on Fenton Reaction Resistant L1 ₀ -PtZn Fuel Cell Cathode
			2019A4136	BL12B2	Hwang Bing Joe	

Advanced Powder Technology

43984	Takumi Kusano	33 (2022) 103585	2020A7035	BL33XU	松永 拓郎	Shear Properties and Water Connectivity of Wet Granules at High Solid Content Concentration
-------	---------------	---------------------	-----------	--------	-------	---

Analytical Chemistry

43943	Hiroshi Kobayashi	94 (2022) 6882-6892	2018B0938	BL47XU	若林 裕助	Separation of Glycoproteins Based on Sugar Chains Using Novel Stationary Phases Modified with Poly(ethylene glycol)-Conjugated Boronic-Acid Derivatives
-------	-------------------	------------------------	-----------	--------	-------	---

Analytical Methods

44136	Akihiro Uehara	14 (2022) 2439-2445	2019A3659	BL14B1	上原 章寛	Uranium Chelating Ability of Decorporation Agents in Serum Evaluated by X-ray Absorption Spectroscopy
			2019B3659	BL14B1	上原 章寛	
			2020A3659	BL14B1	上原 章寛	
			2020A3662	BL14B1	上原 章寛	
			2021A3662	BL14B1	上原 章寛	

Angewandte Chemie International Edition

44092	Sounak Sarkar	61 (2022) e202202742	2014A0078	BL02B1	Iversen Bo	X-ray Electron Density Study of the Chemical Bonding Origin of Glass Formation in Metal–Organic Frameworks
			2019A0159	BL02B1	西堀 英治	
			2021B1140	BL02B1	西堀 英治	

Antioxidants

44151	Sulhee Kim	10 (2021) 389	2017A6770	BL44XU	Hwang Kwang Yeon	Structural Insights into a Bifunctional Peptide Methionine Sulfoxide Reductase MsrA/B Fusion Protein from <i>Helicobacter pylori</i>
-------	------------	------------------	-----------	--------	------------------	--

Applied Catalysis A: General

44002	Qian Huang	643 (2022) 118765	2018B1787	BL14B2	村山 美乃	Intramolecular Cyclization of Alkynoic Acid Catalyzed by Na-salt-modified Au Nanoparticles Supported on Metal Oxides
			2019A1800	BL14B2	村山 美乃	
			2020A1638	BL14B2	村山 美乃	
			2020A1769	BL14B2	村山 美乃	

Applied Materials Today

44252	Shi-Wei Chen	26 (2022) 101333	2016A4126	BL12B2	Chen Shi-Wei	Polymorphic Transition to Metastable Phases in Hollow Structured Silicon Anode in a Li-ions Battery
-------	--------------	---------------------	-----------	--------	--------------	---

Applied Physics Express

44257	Mutsunori Uenuma	15 (2022) 085501	2018B1307	BL25SU	上沼 睦典	Atomic Structure Analysis of Gallium Oxide at the Al ₂ O ₃ /GaN Interface using Photoelectron Holography
			2021B1411	BL25SU	上沼 睦典	
			2021B1091	BL25SU	藤井 菜美	

Applied Surface Science

44247	Shuichi Ogawa	605 (2022) 154748	2020A3801	BL23SU	吉越 章隆	Evaluation of Doped Potassium Concentrations in Stacked Two-Layer Graphene using Real-time XPS
			2021A3801	BL23SU	吉越 章隆	
			2021B3801	BL23SU	吉越 章隆	

Archives of Biochemistry and Biophysics

44034	Sailla Pengthaisong	706 (2021) 108924	2016A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	Structural Basis for Transglycosylation in Glycoside Hydrolase Family GH116 Glycosynthases
-------	---------------------	----------------------	-----------	--------	----------------	--

Biochemical Journal

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
43919	Atsushi Mukaiyama	479 (2022) 1505-1515	2020A6502	BL44XU	秋山 修志	Highly Sensitive Tryptophan Fluorescence Probe for Detecting Rhythmic Conformational Changes of KaiC in the Cyanobacterial Circadian Clock System
			2018B6802	BL44XU	秋山 修志	

Biochemistry and Biophysics Reports

43894	Takayoshi Kawahara	31 (2022) 101302	2019A1327	BL40B2	秋葉 勇	Complex Formation of Potassium Salt of Highly Fatty Acid with Hemagglutinin Protein in Influenza Virus via Exothermic Interaction
			2019A1359	BL40XU	秋葉 勇	
			2021A7221	BL03XU	山本 勝宏	

Bioconjugate Chemistry

44140	Tomoki Himiyama	32 (2021) 153-160	2019A6931	BL44XU	中村 努	Rebuilding Ring-Type Assembly of Peroxiredoxin by Chemical Modification
			2019A2525	BL45XU	中村 努	
			2019A2525	BL26B1	中村 努	

Biomolecules

44037	Kamal Adhikari	10 (2020) 738	2019A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	Chemoenzymatic Synthesis and Biological Evaluation for Bioactive Molecules Derived from Bacterial Benzoyl Coenzyme A Ligase and Plant Type III Polyketide Synthase
-------	----------------	------------------	-----------	--------	----------------	--

Calcified Tissue International

43928	Takeshi Matsumoto	111 (2022) 535-545	2016A1137	BL20B2	松本 健志	Effects of Whole-Body Vibration on Breast Cancer Bone Metastasis and Vascularization in Mice
			2014B1766	BL20B2	板持 伸弥	

Catalysis Science & Technology

43871	Yoshihide Nishida	12 (2022) 4128-4137	2020A1692	BL01B1	西田 吉秀	Nitrile Hydrogenation to Secondary Amines under Ambient Conditions over Palladium-Platinum Random Alloy Nanoparticles
			2019A1703	BL01B1	西田 吉秀	

Cement and Concrete Research

44208	Gyeongryul Kim	159 (2022) 106869	2020A3782	BL22XU	裴 晟哲	Effect of Magnesium Silicate Hydrate (M-S-H) Formation on the Local Atomic Arrangements and Mechanical Properties of Calcium Silicate Hydrate (C-S-H): In situ X-ray Scattering Study
-------	----------------	----------------------	-----------	--------	------	---

Chem

44201	Chenyuan Zhu	7 (2021) 406-420	2019A4126	BL12B2	Chen Hao-Ming	Product-Specific Active Site Motifs of Cu for Electrochemical CO ₂ Reduction
-------	--------------	---------------------	-----------	--------	---------------	---

ChemBioChem

44044	Cheng Chung Lee	20 (2019) 193-202	2017A6600	BL44XU	Chen Chun Jung	Crystal Structure of PigA: A Prolyl Thioester-Oxidizing Enzyme in Prodigiosin Biosynthesis
			2016B6600	BL44XU	Chen Chun Jung	

Chemical Science

44269	Yoshiaki Shoji	13 (2022) 9891-9901	2017A1514	BL04B2	梶谷 孝	Design of Discotic Liquid Crystal Enabling Complete Switching along with Memory of Homeotropic and Homogeneous Alignment over a Large Area
			2017A1526	BL45XU	梶谷 孝	

Chemistry - A European Journal

44091	Emilie Skytte Vosegaard	28 (2022) e202201295	2021B1140	BL02B1	西堀 英治	Synchrotron X-ray Electron Density Analysis of Chemical Bonding in the Graphitic Carbon Nitride Precursor Melamine
			2019A0159	BL02B1	西堀 英治	
			2014A0078	BL02B1	Iversen Bo	

Chemistry - An Asian Journal

43995	Zhenzhong Zhang	17 (2022) e202101243	2017A1780	BL14B2	村山 美乃	Anchored Palladium Complex-Generated Clusters on Zirconia: Efficiency in Reductive N-Alkylation of Amines with Carbonyl Compounds under Hydrogen Atmosphere
-------	-----------------	-------------------------	-----------	--------	-------	---

Chemistry and Physics of Lipids

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
44009	Shigeru Sugiyama	247 (2022) 105227	2015A1056	BL38B1	杉山 成	Experimental and Theoretical Investigations into the Mechanism of Interactions between Membrane-bound Fatty Acids and Their Binding Protein: A Model System to Investigate the Behavior of Lipid Acyl Chains in Contact with Proteins
			2020A2532	BL41XU	杉山 成	
			2021A6620	BL44XU	杉山 成	
			2021B6620	BL44XU	杉山 成	
			2021B2721	BL41XU	杉山 成	

ChemistrySelect

43956	Yusaku Araki	7 (2022) e202200600	2020A1360	BL01B1	吉田 真明	Development of a Hemispherical Cavity Cobalt Electrocatalyst for Water Oxidation Based on a Polystyrene Colloidal Template Electrodeposition Method
			2021B1168	BL01B1	吉田 真明	

ChemPhysChem

44005	Virgile Adam	23 (2022) e202200192	2018A8026	BL2	Weik Martin	Rational Control of Off-State Heterogeneity in a Photoswitchable Fluorescent Protein Provides Switching Contrast Enhancement
-------	--------------	-------------------------	-----------	-----	-------------	--

ChemSusChem

44014	Fumiya Hamada	14 (2021) 3528-3534	2019A1765	BL46XU	尾坂 格	Mobility Relaxation of Holes and Electrons in Polymer:Fullerene and Polymer:Non-Fullerene Acceptor Solar Cells
			2020A1875	BL46XU	佐伯 昭紀	

Communications Materials

44222	Yen-Fa Liao	3 (2022) 23	2018A4250	BL12XU	Chainani Ashish	Dual Kondo Effect Charge Ordering and Zero Thermal Expansion in a Correlated Intermetallic
			2018A4262	BL12XU	Chainani Ashish	

Crystal Growth & Design

43930	Zhuxi Yang	22 (2022) 4472-4479	2021A1080	BL40XU	久木 一朗	Slip-Stacking of Benzothiadiazole Can Provide a Robust Structural Motif for Porous Hydrogen-Bonded Organic Frameworks
			2021B1180	BL40XU	久木 一朗	

Crystals

44018	Tadao Hashimoto	12 (2022) 1085	2021B5370	BL16B2	山口 聡	Progress in Near-Equilibrium Ammonothermal (NEAT) Growth of GaN Substrates for GaN-on-GaN Semiconductor Devices
-------	-----------------	-------------------	-----------	--------	------	---

CrystEngComm

43948	Takuya Ohmi	24 (2022) 5428-5434	2019A1104	BL02B2	山本 隆文	Temperature-induced Structural Transition in an Organic-Inorganic Hybrid Layered Perovskite (MA) ₂ PbI _{2-x} Br _x (SCN) ₂
			2021A1130	BL02B2	山本 隆文	

Dalton Transactions

43935	Tomomi Tabata	51 (2022) 9601-9605	2021B1598	BL02B2	永井 杏奈	Magnetic Orientation Behavior of L-type Zeolite with Rare-earth Elements under Low Magnetic Field
-------	---------------	------------------------	-----------	--------	-------	---

Drug Development and Industrial Pharmacy

44020	Kazuhiro Suzuki	48 (2022) 301-309	2021A1639	BL14B2	鈴木 一博	Visualizing Fluid Transport Inside Orally Disintegrating Tablets and Changes in Tablets using Real-time X-ray Radiography and X-ray Computed Tomography
-------	-----------------	----------------------	-----------	--------	-------	---

e-Journal of Surface Science and Nanotechnology

44023	Satoshi Yasuno	20 (2022) 180-185	2020A1608	BL46XU	安野 聡	Suppression of Charging Effect of Insulating Materials in Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy
			2020A1612	BL46XU	安野 聡	
			2020A1736	BL46XU	安野 聡	
			2021A1553	BL46XU	安野 聡	
			2021B1750	BL46XU	安野 聡	

Electrochimica Acta

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
44124	Mulatu Kassie Birhanu	356 (2020) 136756	2019A4136	BL12B2	Hwang Bing Joe	Electrocatalytic Reduction of Carbon Dioxide on Gold-copper Bimetallic Nanoparticles: Effects of Surface Composition on Selectivity
			2019B4126	BL12B2	Hwang Bing Joe	

Energy & Environmental Materials

44076	Mozaffar Abdollahifar	3 (2020) 405-413	2016A4128	BL12B2	Wu Nae-Lih	Enabling Extraordinary Rate Performance for Poorly Conductive Oxide Pseudocapacitors
			2016B4127	BL12B2	Wu Nae-Lih	
			2017A4129	BL12B2	Wu Nae-Lih	
			2017B4127	BL12B2	Wu Nae-Lih	
			2017B4141	BL12B2	Wu Nae-Lih	

Energy & Fuels

44106	Takeshi Morita	36 (2022) 10043-10051	2017A1550	BL19B2	森田 剛	Disaggregation of Asphaltene Aggregates in Solutions Depending upon Affinity Indices of the Hansen Solubility Parameter Using Ultrasmall-, Small-, and Wide-Angle X-ray Scattering
			2017B1592	BL19B2	森田 剛	
			2018A1550	BL19B2	森田 剛	
			2018A1735	BL19B2	森田 剛	
			2019A1759	BL19B2	森田 剛	
			2019B1892	BL19B2	森田 剛	

Energy Environmental Science

44240	Yingcai Zhu	15 (2022) 3958-3967	2021B1109	BL01B1	Zhu Yingcai	Breaking the Sodium Solubility Limit for Extraordinary Thermoelectric Performance in p-type PbTe
-------	-------------	------------------------	-----------	--------	-------------	--

Environmental Pollution

43864	Lunchao Duan	308 (2022) 119702	2021A1634	BL14B2	橋本 洋平	Zero Valent Iron or Fe ₃ O ₄ -loaded Biochar for Remediation of Pb Contaminated Sandy Soil: Sequential Extraction, Magnetic Separation, XAFS and Ryegrass Growth
			2019A1621	BL14B2	橋本 洋平	

Environmental Research

43957	Lely Ayu Ningsih	214 (2022) 113690	2019A1386	BL01B1	吉田 真明	Ag-modified TiO ₂ /SiO ₂ /Fe ₃ O ₄ Sphere with Core-shell Structure for Photo-assisted Reduction of 4-nitrophenol
-------	---------------------	----------------------	-----------	--------	-------	---

Glycobiology

43881	Junji Noguchi	21 (2011) 1108-1116	2007B1359	BL38B1	角田 佳充	Crystal Structure of the Branching Enzyme I (BEI) from <i>Oryza sativa</i> L with Implications for Catalysis and Substrate Binding
			2007B1995	BL41XU	角田 佳充	

Hydrometallurgy

44161	Keisuke Ohto	213 (2022) 105932	2019A3736	BL22XU	大渡 啓介	Effect of Spacer Length between Two Weak <i>NH</i> Hydrogen Atoms of Secondary Diamido Reagents on Anionic Platinum Extraction
-------	-----------------	----------------------	-----------	--------	-------	--

Hypertension

43951	Takeshi Tokudome	79 (2022) 1409-1422	2010B1291	BL28B2	徳留 健	Endothelial Natriuretic Peptide Receptor 1 Play Crucial Role for Acute and Chronic Blood Pressure Regulation by Atrial Natriuretic Peptide
			2012A1657	BL28B2	徳留 健	
			2012B1791	BL28B2	徳留 健	
			2013A1673	BL28B2	徳留 健	
			2013B1749	BL28B2	徳留 健	
			2014A1719	BL28B2	徳留 健	
			2014B1807	BL28B2	徳留 健	
			2015A1870	BL28B2	徳留 健	
			2016B1387	BL28B2	Pearson James	

The International Journal of Advanced Manufacturing Technology

43861	Daichi Yamaguchi	121 (2022) 3965-3975	2021B3422	BL08B2	山口 大地	In situ Visualization of Aluminum Sintering for Binder Jetting by X-ray Transmission
			2020A3422	BL08B2	山口 大地	

International Journal of Ceramic Engineering & 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
43904	Yuta Kato	4 (2022) 249-256	2020A0583	BL02B2	山田 幾也	High-pressure Synthesis, Crystal Structure, and Properties of a Novel Quadruple Perovskite CeMn ₃ Rh ₄ O ₁₂
			2021B1726	BL14B2	山田 幾也	

Investigative Ophthalmology & Visual Science

44134	Kehao Wang	63 (2022) 15	2017A1197	BL20B2	Pierscionek Barbara	Oxysterol Compounds in Mouse Mutant αA- and αB-Crystallin Lenses Can Improve the Optical Properties of the Lens
			2018A1105	BL20B2	Pierscionek Barbara	
			2019A1115	BL20B2	Pierscionek Barbara	
			2019A1335	BL20B2	星野 真人	

Journal of Advanced Mechanical Design, Systems, and Manufacturing

44019	Naoko Takeuchi-Takahashi	16 (2022) JAMDSM0024	2017A5071	BL16XU	高橋 直子	Non-destructive Depth Analysis of Acidic Phosphate Ester Boundary Layers by Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy
			2017B5071	BL16XU	高橋 直子	
			2018A5071	BL16XU	高橋 直子	
			2018B5071	BL16XU	高橋 直子	

The Journal of Biochemistry

44139	Yuya Shimozawa	170 (2021) 97-105	2019A2525	BL26B1	中村 努	Structural Analysis and Reaction Mechanism of Malate Dehydrogenase from <i>Geobacillus stearothermophilus</i>
			2018B2521	BL38B1	中村 努	

The Journal of Biological Chemistry

43874	Hiroko Ideo	286 (2011) 11346-11355	2005A0865	BL38B1	野中 孝昌	Galectin-8-N-domain Recognition Mechanism for Sialylated and Sulfated Glycans
			2006A1715	BL38B1	野中 孝昌	

Journal of Bioscience and Bioengineering

44001	Atsushi Okawa	133 (2022) 213-221	2016A6635	BL44XU	原田 繁春	Characterization and Application of L-methionine γ-lyase Q349S Mutant Enzyme with an Enhanced Activity toward L-homocysteine
			2017A6722	BL44XU	志波 智生	
			2017B6722	BL44XU	志波 智生	
			2018A6820	BL44XU	志波 智生	
			2018B6820	BL44XU	志波 智生	

The Journal of Chemical Physics

43975	Tomoki Matsuyama	155 (2021) 044307	2018B0938	BL40XU	若林 裕助	Thermal Stability of Crown-motif [Au ₉ (PPh ₃) ₆] ³⁺ and [MAu ₈ (PPh ₃) ₆] ²⁺ (M = Pd, Pt) Clusters: Effects of Gas Composition, Single-atom Doping, and Counter Anions
			2020A0665	BL40XU	高谷 光	
			2020A0715	BL01B1	山添 誠司	
			2020A1219	BL01B1	山添 誠司	

Journal of Materials Chemistry A

44204	Baskar Selvaraj	8 (2020) 22620-22625	2018A4129	BL12B2	Wu Nae-Lih	Remarkable Microstructural Reversibility of Antimony in Sodium Ion Battery Anodes
			2019A4125	BL12B2	Wu Nae-Lih	
			2019A4133	BL12B2	Wu Nae-Lih	
			2019B4133	BL12B2	Wu Nae-Lih	

Journal of Materials Chemistry C

43906	Nacja Klipfel	10 (2022) 10075-10082	2018B1809	BL19B2	中村 唯我	Structural and Photophysical Investigation of Single-source Evaporation of CsFAPbI ₃ and FAPbI ₃ Perovskite Thin Films
			2018B1855	BL46XU	柴山 直之	
			2018B1862	BL19B2	中村 唯我	

Journal of Materials Research

43859	Daiko Takamatsu	37 (2022) 1576-1590	2020A5100	BL16XU	米山 明男	Quantitative Visualization of Ion and Thermal Distributions in Electrolytes during Operation of Electrochemical Devices by <i>Operando</i> Phase-contrast X-ray Imaging
			2021A5400	BL16B2	米山 明男	
			2021A5100	BL16XU	米山 明男	

Journal of Non-Crystalline Solids

44083	Jayani Kalaha	588 (2022) 2022	2016A1499	BL04B2	滝本 康幸	Influence of Interatomic Potential and Simulation Procedures on the Structures and Properties of Sodium Aluminosilicate Glasses from Molecular Dynamics Simulations
			2016A0130	BL04B2	小原 真司	

Journal of Nuclear 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
44188	Yoshihiro Okamoto	570 (2022) 153962	2017B3712	BL22XU	岡本 芳浩	Structural Change by Phosphorus Addition to Borosilicate Glass Containing Simulated Waste Components
			2018A3712	BL22XU	岡本 芳浩	
			2018B3712	BL22XU	岡本 芳浩	

The Journal of Organic Chemistry

44264	Hiromitsu Maeda	87 (2022) 7818-7825	2018B1714	BL02B1	水口 敬	Ion-Pairing Assemblies of Anion-Responsive π -Electronic Systems Bearing Triazole Moieties Introduced by Click Chemistry
			2019A1508	BL02B1	羽毛田 洋平	
			2019A1704	BL02B1	水口 敬	
			2019B1638	BL02B1	羽毛田 洋平	
			2021A1597	BL02B1	田中 宏樹	
			2018B1244	BL40XU	久木 一朗	
			2019A1475	BL40XU	前田 大光	
2021A1339	BL40XU	前田 大光				

Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry

44241	Ken-ichi Yamataka	435 (2023) 114267	2017B8012	BL3	森川 健志	Ultrafast Charge-Transfer Dynamics in a Visible-Light-Excited Iridium(III) Terpyridine 2-Phenylpyridine Complex Studied by Femtosecond X-ray Absorption Spectroscopy
			2017A8025	BL3	森川 健志	
			2018A8004	BL3	森川 健志	

Journal of Photopolymer Science and Technology

44013	Rei Shimono	34 (2021) 263-269	2020A1742	BL46XU	但馬 敬介	Top Thermal Annealing of 2D/3D Lead Halide Perovskites: Anisotropic Photoconductivity and Vertical Gradient of Dimensionality
			2020A1875	BL46XU	佐伯 昭紀	

The Journal of Physical Chemistry B

43902	Ryosuke Yamamura	126 (2022) 1101-1107	2019B7468	BL07LSU	山添 康介	Identification of Valence Electronic States Reflecting the Hydrogen Bonding in Liquid Ethanol
			2019B7401	BL07LSU	宮脇 淳	
			2020A7482	BL07LSU	山添 康介	

Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics

44051	Xu Kang	52 (2019) 245202	2012B4262	BL12XU	Zhu LinFan	A Study on the Validity of the First Born Approximation for High-energy Electron Scattering with Nitrogen Molecules
			2013A4260	BL12XU	Zhu LinFan	

Journal of The Electrochemical Society

43907	Hiroyuki Fujimoto	169 (2022) 070507	2018A7603	BL28XU	松原 英一郎	Phase Diagram of Li-Graphite Intercalation Compound Formed by the Charge/Discharge Reaction in Li-Ion Battery
			2019A7613	BL28XU	安部 武志	
			2019B7613	BL28XU	安部 武志	
			2020A7613	BL28XU	安部 武志	

Journal of the Japan Petroleum Institute

44261	Ryota Osuga	65 (2022) 67-77	2021A1648	BL14B2	梶原 貴人	Development of Synthetic Route for Fe-substituted MWW-type Zeolites Using Mechanochemical Method
			2021A1642	BL14B2	金子 雅英	

Journal of the Physical Society of Japan

44049	Hitoshi Yamaoka	91 (2022) 024704	2017B4267	BL12XU	辻井 直人	Temperature and Pressure Dependences of the Electronic and Crystal Structures of Yb_4TGe_8 ($T = \text{Cr, Mn, Fe, Co, and Ni}$) Studied by High-resolution X-ray Absorption Spectroscopy, X-ray Diffraction, and Photoelectron Spectroscopy
			2018A4258	BL12XU	辻井 直人	
			2018A4141	BL12B2	辻井 直人	
			2019B4252	BL12XU	辻井 直人	
			2020A4263	BL12XU	辻井 直人	
			2020A4269	BL12XU	山岡 人志	

Journal of Wood Science

44117	Hiroaki Horiyama	68 (2022) 52	2019B1176	BL40B2	今井 友也	Combined Analysis of Microstructures within an Annual Ring of Douglas Fir (<i>Pseudotsuga menziesii</i>) by Dynamic Mechanical Analysis and Small Angle X-ray Scattering
			2020A1592	BL40B2	今井 友也	
			2021A1384	BL40B2	今井 友也	

Langmuir

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
44226	Kosuke Yamazoe	38 (2022) 3076-3081	2015B7403	BL07LSU	原田 慈久	Critical In-Plane Density of Polyelectrolyte Brush for the Ordered Hydrogen-Bonded Structure of Incorporated Water
			2016A7507	BL07LSU	田中 賢	
			2018B7401	BL07LSU	原田 慈久	
			2019A7401	BL07LSU	宮脇 淳	
			2020A7488	BL07LSU	原田 慈久	

Make Life Visible

43950	James Pearson	(2019) 147-162	2017A1324	BL40XU	Pearson James	Investigating In Vivo Myocardial and Coronary Molecular Pathophysiology in Mice with X-ray Radiation Imaging Approaches
			2015B1533	BL40XU	Pearson James	
			2015A1354	BL40XU	Pearson James	
			2013B1767	BL28B2	Pearson James	
			2012A1674	BL28B2	Pearson James	

Molecules

44089	Shigesaburo Ogawa	27 (2022) 4359	2018A7203	BL03XU	藤原 明比古	Short-Chain Mono-Alkyl β -D-Glucoside Crystals—Do They Form a Cubic Crystal Structure?
-------	-------------------	-------------------	-----------	--------	--------	--

Nano Energy

44078	Junxiu Wu	102 (2022) 107715	2019A4125	BL12B2	Wu Nae-Lih	Unexpected Reversible Crystalline/Amorphous (De)lithiation Transformations Enabling Fast (Dis)charge of High-capacity Anatase Mesocrystal Anode
			2019A4133	BL12B2	Wu Nae-Lih	
			2019B4133	BL12B2	Wu Nae-Lih	

Nanomaterials

44080	Dinesh Bhalothia	9 (2019) 1003	2016A4133	BL12B2	Chen Tsan Yao	Conformational Effects of Pt-Shells on Nanostructures and Corresponding Oxygen Reduction Reaction Activity of Au-Cluster-Decorated NiO _x @Pt Nanocatalysts
			2016B4133	BL12B2	Chen Tsan Yao	
			2017A4134	BL12B2	Chen Tsan Yao	
			2017B4137	BL12B2	Chen Tsan Yao	
			2017B4145	BL12B2	Chen Tsan Yao	

Nature Catalysis

44164	Daoping He	5 (2022) 798-806	2021A1664	BL14B2	中村 龍平	Regulation of the Electrocatalytic Nitrogen Cycle Based on Sequential Proton–Electron Transfer
			2021B1920	BL14B2	中村 龍平	
			2022A1045	BL14B2	中村 龍平	
			2022A1669	BL14B2	足立 精宏	

Nature Chemistry

43926	Xiaohong Liu	14 (2022) 1054-1060	2018B8016	BL2	Wang Jianguan	Excited-State Intermediates in a Designer Protein Encoding a Phototrigger Caught by an X-ray Free-Electron Laser
			2019B8008	BL2	Wang Jianguan	
			2020A8064	BL2	Wang Jianguan	
			2021B8046	BL2	Wang Jianguan	
			2021A8014	BL2	Wang Jianguan	

Nature Energy

44101	Lichen Bai	6 (2021) 1054-1066	2019B4132	BL12B2	Chen Hao-Ming	Double-atom Catalysts as a Molecular Platform for Heterogeneous Oxygen Evolution Electrocatalysis
			2019A4260	BL12XU	Chen Hao-Ming	
			2019A4278	BL12XU	Chen Hao-Ming	
			2019B4255	BL12XU	Chen Hao-Ming	
			2019B4259	BL12XU	Chen Hao-Ming	
			2019B4273	BL12XU	Chen Hao-Ming	

Nature Nanotechnology

44099	Lizhi Jiang	15 (2020) 848-853	2019B4127	BL12B2	Chen Hao-Ming	Facet Engineering Accelerates Spillover Hydrogenation on Highly Diluted Metal Nanocatalysts
-------	-------------	----------------------	-----------	--------	---------------	---

Optica

研究成果番号	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
43909	Miki Nakano	9 (2022) 776-784	2016B8089	BL2	小山 貴久	Three-dimensional Structure Determination of Gold Nanotriangles in Solution using X-ray Free-electron Laser Single-particle Analysis
			2017A8085	BL2	小山 貴久	
			2017B8087	BL2	城地 保昌	
			2017B8089	BL2	小山 貴久	
			2018A8047	BL2	西野 吉則	
			2018A8081	BL2	小山 貴久	
			2018B8025	BL2	西野 吉則	
2018B8096	BL2	小山 貴久				

Organic & Biomolecular Chemistry

43963	Masahiro Ueda	20 (2022) 387-395	2018B0938	BL40XU	若林 裕助	Four- and Two-armed Hetero Porphyrin Dimers: Their Specific Recognition and Self-sorting Behaviours
-------	---------------	----------------------	-----------	--------	-------	---

Organic Letters

43965	Shinya Tajima	23 (2021) 8678-8682	2018B0938	BL40XU	若林 裕助	Synthesis of a Mechanically Planar Chiral and Axially Chiral [2]Rotaxane
-------	---------------	------------------------	-----------	--------	-------	--

Organometallics

43973	Takanori Iwasaki	40 (2021) 2489-2495	2018B0938	BL14B2	若林 裕助	Lithium Hexaphenylrhodate(III) and -Iridate(III): Structure in the Solid State and in Solution
			2020A1879	BL14B2	高谷 光	

PeerJ

44024	Nozomu Iwasaki	10 (2022) e13931	2013B1301	BL27SU	岩崎 望	Synchrotron μ -XRF Mapping Analysis of Trace Elements in <i>in-situ</i> Cultured Japanese Red Coral, <i>Corallium japonicum</i>
			2015B1278	BL27SU	岩崎 望	
			2014A1410	BL27SU	岩崎 望	

PLoS Pathogens

44123	Mitsuhiro Nishimura	16 (2020) e1008648	2018B2701	BL26B1	西村 光広	Structural Basis for the Interaction of Human Herpesvirus 6B Tetrameric Glycoprotein Complex with the Cellular Receptor, Human CD134
			2015A1070	BL36XU	鶴田 宏樹	

Protein Engineering Design and Selection

44141	Yuya Shimozawa	34 (2021) gzab026	2020A2546	BL45XU	中村 努	Increasing Loop Flexibility Affords Low-temperature Adaptation of a Moderate Thermophilic Malate Dehydrogenase from <i>Geobacillus stearothermophilus</i>
			理研	BL26B1		

Radiation Protection Dosimetry

44187	Yusuke Unno	198 (2022) 943-946	2021B2014	BL14B2	海野 佑介	Investigation of Short-Term Chemical Change in Stable Ruthenium Added to Rainwater through X-ray Absorption Fine Structure Analysis
-------	-------------	-----------------------	-----------	--------	-------	---

RADIOISOTOPES

43887	Naoki Shinyoshi	71 (2022) 171-177	2021B1717	BL14B2	植竹 裕太	Radiation Induced Synthesis of Tin-based Nanoparticles and Investigation of the Generating Mechanism
-------	-----------------	----------------------	-----------	--------	-------	--

Review of Scientific Instruments

44021	Naohisa Hirao	93 (2022) 083908	2019A2056	BL10XU	平尾 直久	X-ray Focusing to 62 keV by Compound Refractive Lenses for High-pressure X-ray Diffraction
			2019B2102	BL10XU	平尾 直久	
			2020A2047	BL10XU	平尾 直久	
			2020A2138	BL10XU	平尾 直久	

Scripta Materialia

44233	Vivekanand Muralikrishnan	222 (2023) 115055	2017A1534	BL20XU	Krill Carl	Observations of Unexpected Grain Boundary Migration in SrTiO ₃
			2018A1521	BL20XU	Krill Carl	

Solar RRL

44096	Ching-Wei Tung	4 (2020) 2000028	2018B4137	BL12B2	Chen Hao-Ming	In situ Observation of Electrodeposited Bimetallic p-Si Micropillar Array Photocathode for Solar-Driven Hydrogen Evolution
			2019A4126	BL12B2	Chen Hao-Ming	

Solid State Ionics

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
43941	SeungHoon Yang	377 (2022) 115869	2020A1017	BL27SU	山本 健太郎	Studies on the Inhibition of Lithium Dendrite Formation in Sulfide Solid Electrolytes Doped with LiX (X = Br, I)
			2020A0697	BL13XU	山本 健太郎	
			2020A0753	BL08W	内本 喜晴	
			2020A1016	BL08W	山本 健太郎	
			2020A1789	BL20XU	山本 健太郎	

Supramolecular Materials

43857	Chiharu Ueda	1 (2022) 100001	2020A0546	BL43IR	高島 義徳	Behavior of Supramolecular Cross-Links Formed by Host-Guest Interactions in Hydrogels Responding to Water Contents
			2021A1608	BL43IR	以倉 峻平	
			2021B1814	BL43IR	小西 昂	

Sustainable Energy & Fuels

44081	Dinesh Bhalothia	4 (2020) 2541-2550	2018A4135	BL12B2	Chen Tsan Yao	A Highly Mismatched NiO ₂ -to-Pd Hetero-structure as an Efficient Nanocatalyst for the Hydrogen Evolution Reaction
			2018A4271	BL12XU	Chen Tsan Yao	
			2018B4256	BL12XU	Chen Tsan Yao	
			2018B4266	BL12XU	Chen Tsan Yao	

Tetrahedron

43979	Bunta Watanabe	91 (2021) 132194	2018B0938	BL40XU	若林 裕助	Synthesis and Structural Confirmation of Calibagenin and Saxosterol
			2018A1173	BL40XU	高谷 光	

鉄と鋼 (Tetsu to Hagane)

44251	Atsushi Ito	108 (2022)	2017B1934	BL14B2	鳥塚 史郎	Effect of Dislocation Behavior on High Strength and High Ductility of Low Carbon-2% Si-5% Mn Fresh Martensitic Steel
			2019A1745	BL14B2	伊東 篤志	
			2017B1626	BL19B2	鳥塚 史郎	
			2018A1590	BL19B2	鳥塚 史郎	
			2018B1586	BL19B2	鳥塚 史郎	
			2019A1027	BL46XU	鳥塚 史郎	
			2019A1807	BL46XU	鳥塚 史郎	
			2019B1029	BL46XU	鳥塚 史郎	

電気化学 (Denki Kagaku)

44266	Takahiro Ozawa	90 (2022) 21-25	2019B5020	BL16XU	北原 周	Synchrotron XRD and XAFS Analysis of Electrochemical Mechanism of Rust Layer Formed on Carbon Steel
			2020A5020	BL16B2	北原 周	
			2020A5320	BL08B2	横溝 臣智	
			2019A3409	BL08B2	小澤 敬祐	
			2019A3051	BL24XU	小澤 敬祐	
			2019B3409	BL08B2	小澤 敬祐	

日本結晶学会誌 (Journal of the Crystallographic Society of Japan)

44224	Yoshiki Kubota	64 (2022) 17-25	2015A0074	BL02B2	森吉 千佳子	Upgrade and Achievements at the Powder Diffraction Beamline in SPring-8
			2019A0068	BL02B2	森吉 千佳子	

日本ゴム協会誌 (Journal of the Society of Rubber Industry, Japan)

43900	Masatoshi Tosaka	95 (2022) 207-211	2019A1619	BL46XU	登阪 雅聡	Material Transportation During Strain-induced Crystallization of Vulcanized Natural Rubber Filled with Carbon Black
-------	------------------	----------------------	-----------	--------	-------	---

膜 (Membrane)

44229	Yosuke Imai	46 (2021) 254-260	2017A1367	BL39XU	今井 洋輔	Counterion Binding in Adsorbed Surfactant Films Studied by Surface Tensiometry and Total Reflection XAFS Spectroscopy
-------	-------------	----------------------	-----------	--------	-------	---

まてりあ (Materia Japan)

44248	Hitoshi Yusa	61 (2022) 656-660	2019A1193	BL10XU	遊佐 斉	High-pressure Synthesis of Novel Functional Compounds
			2019A4500	BL15XU	遊佐 斉	
			2020A1379	BL10XU	遊佐 斉	

博士論文 (Technical University of Denmark)

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
43912	Mariana Mar Lucas	(2020)	2019A1440	BL20XU	Andreasen Jens	Three Dimensional X-ray Diffraction Analysis of Polycrystalline Thin-Films

博士論文 (大阪大学)

43856	Ryohei Ikura	(2022)	2020A0546	BL43IR	高島 義徳	Design of Polymeric Materials with Movable Cross-links and Their Characterization
			2021A1608	BL43IR	以倉 峻平	
			2021B1814	BL43IR	小西 昂	

博士論文 (京都大学)

44138	Yusuke Kobayashi	(2021)	2019A1628	BL20B2	小林 祐介	Fe-Cr-Ni-Mo-Cu 合金における固液間溶質分配係数およびミクロ偏析予測に関する研究
			2017B1581	BL20B2	小林 祐介	
			2018A1586	BL20B2	小林 祐介	

課題以外の成果として登録された論文

The Journal of Biological Chemistry

研究成果番号	主著者	雑誌情報		ビームライン	タイトル
43897	Kathleen Aertgeerts	286 (2011) 18756-18765		BL41XU	Structural Analysis of the Mechanism of Inhibition and Allosteric Activation of the Kinase Domain of HER2 Protein
44025	Shveta Bisht	287 (2012) 20369-20381	理研	BL26B1	Crystal Structure of <i>Escherichia coli</i> Diaminopropionate Ammonia-lyase Reveals Mechanism of Enzyme Activation and Catalysis
				BL44XU	
44045	Shota Hoshino	287 (2012) 32103-32112	理研	BL26B2	Filament Formation of the FtsZ/Tubulin-like Protein TubZ from the <i>Bacillus cereus</i> pXO1 Plasmid
44145	Seiji Negoro	287 (2012) 5079-5090		BL38B1	Three-dimensional Structure of Nylon Hydrolase and Mechanism of Nylon-6 Hydrolysis

PLoS One

43875	Kazufumi Takano	6 (2011) e16226		BL38B1	Stabilization by Fusion to the C-terminus of Hyperthermophile <i>Sulfolobus tokodaii</i> RNase HI: A Possibility of Protein Stabilization Tag
43892	Tomoko Ishihara	15 (2020) e0243874	理研	BL17SU	Visualization of Elemental Distributions and Local Analysis of Element-Specific Chemical States of an <i>Arachnoidiscus</i> sp. Frustule using Soft X-ray Spectromicroscopy
43913	He Li	6 (2011) e26743		BL41XU	Determination of the Crystal Structure and Active Residues of FabV, the Enoyl-ACP Reductase from <i>Xanthomonas oryzae</i>

Acta Crystallographica Section D

44115	Sang Jae Lee	68 (2012) 784-793		BL38B1	Structures of <i>Staphylococcus aureus</i> Peptide Deformylase in Complex with Two Classes of New Inhibitors
44167	Anton A. Trofimov	68 (2012) 144-153		BL41XU	Covalent Modifications of the Catalytic Tyrosine in Octahaem Cytochrome c Nitrite Reductase and Their Effect on the Enzyme Activity

Biochemical and Biophysical Research Communications

43896	Wen-Jun Gui	405 (2011) 272-277		BL41XU	Crystal Structure of DNA Polymerase III β Sliding Clamp from <i>Mycobacterium tuberculosis</i>
44050	Eun Hye Lee	419 (2012) 160-164	理研	BL26B1	Crystal Structure of LeuD from <i>Methanococcus jannaschii</i>
			理研	BL26B2	

Biochimica et Biophysica Acta - General Subjects

43885	Yoshimitsu Kakuta	1810 (2011) 1355-1360		BL38B1	Crystallographic Survey of Active Sites of an Unclassified Glutathione Transferase from <i>Bombyx mori</i>
44146	Koji Yamamoto	1820 (2012) 1469-1474		BL38B1	Structural Basis for Catalytic Activity of a Silkworm Delta-class Glutathione Transferase

Crystallography Reports

43901	V. Kh. Akparov	56 (2011) 596		BL41XU	Three-dimensional Structure of Recombinant Carboxypeptidase T from <i>Thermoactinomyces vulgaris</i> without Calcium Ions
44160	Vladimir Timofeev	57 (2012) 96-104		BL41XU	Three-dimensional Structure of Phosphopantetheine Adenylyltransferase from <i>Mycobacterium tuberculosis</i> in the Apo Form and in Complexes with Coenzyme A and Dephosphocoenzyme A

The Journal of Biochemistry

研究成果番号	主著者	雑誌情報		ビームライン	タイトル
43898	Naoki Okamoto	150 (2011) 563-568		BL41XU	Structural Insight into the Stereoselective Production of PGF _{2α} by Old Yellow Enzyme from <i>Trypanosoma cruzi</i>
44108	Yuuji Kado	151 (2012) 447-455		BL38B1	Human Hematopoietic Prostaglandin D Synthase Inhibitor Complex Structures

Journal of Molecular Biology

43866	Midori Murakami	413 (2011) 615-627		BL38B1	Crystallographic Analysis of the Primary Photochemical Reaction of Squid Rhodopsin
			理研	BL26B2	
43867	Ragunathan Priya	413 (2011) 657-666	理研	BL26B2	Conserved Glycine Residues in the P-Loop of ATP Synthases Form a Doorframe for Nucleotide Entrance

Journal of the Ceramic Society of Japan

44084	Shinji Kohara	130 (2022) 531-544	その他	BL04B2	Probing Order within Disorder in Oxide Glasses and Liquids by Quantum Beam Diffraction
44087	Yohei Onodera	130 (2022) 627-638	一般	BL04B2	Topological Analyses of Structure of Glassy Materials toward Extraction of Order Hidden in Disordered Structure

Nature Communications

43884	Xiaochun Li	2 (2011) 408		BL41XU	Structural Mechanisms of DIAP1 Auto-inhibition and DIAP1-mediated Inhibition of drICE
				BL38B1	
44219	Mohcin Akri	10 (2019) 5181		BL12B2	Atomically Dispersed Nickel as Coke-resistant Active Sites for Methane Dry Reforming

Nucleic Acids Research

43960	Ingjye Jiang	39 (2011) 8992-9008		BL44XU	Molecular Basis of the Recognition of the ap65-1 Gene Transcription Promoter Elements by a Myb Protein from the Protozoan Parasite <i>Trichomonas vaginalis</i>
44073	Kan Kobayashi	40 (2012) 9319-9328	理研	BL32XU	Structural Basis for Translation Termination by Archaeal RF1 and GTP-bound EF1α Complex

Physical Review B

43888	T. Ly Nguyen	103 (2021) 245131	理研	BL17SU	Electronic Structure of Tb _{0.5} Sr _{0.5} MnO ₃
43893	Chien Wen Chuang	102 (2020) 195102	理研	BL17SU	Attractive Coulomb Interaction, Temperature-dependent Hybridization, and Natural Circular Dichroism in 1T-TiSe ₂

Proteins: Structure, Function, and Bioinformatics

44027	Young Kwan Kim	81 (2013) 261-270	理研	BL26B2	Crystal Structure and Nucleic Acid-binding Activity of the CRISPR-associated Protein Csx1 of <i>Pyrococcus furiosus</i>
44075	Yuichiro Kezuka	80 (2012) 2447-2458		BL38B1	Structural Insights into Catalysis by βC-S Lyase from <i>Streptococcus anginosus</i>

Structure

43876	Ayumu Konno	19 (2011) 711-721		BL38B1	Tracing Protein Evolution through Ancestral Structures of Fish Galectin
43933	Hiroyoshi Matsumura	19 (2011) 1846-1854		BL41XU	Structure Basis for the Regulation of Glyceraldehyde-3-Phosphate Dehydrogenase Activity via the Intrinsically Disordered Protein CP12
				BL44XU	

ACS Sustainable Chemistry & Engineering

44217	Chitra Sarkar	7 (2019) 10349-10362		BL12B2	Integration of Interfacial and Alloy Effects to Modulate Catalytic Performance of Metal-Organic-Framework-Derived Cu-Pd Nanocrystals toward Hydrogenolysis of 5-Hydroxymethylfurfural
-------	---------------	-------------------------	--	--------	---

Acta Crystallographica Section F

44003	Sakiko Suzuki	68 (2012) 14-19	理研	BL26B1	Structure of <i>N</i> -formylglycinamide Ribonucleotide Amidotransferase II (PurL) from <i>Thermus thermophilus</i> HB8
-------	---------------	--------------------	----	--------	---

Advanced Science

研究成果番号	主著者	雑誌情報		ビームライン	タイトル
44218	Lei Chen	6 (2019) 1802126		BL12B2	Reduced Local Symmetry in Lithium Compound $\text{Li}_2\text{SrSiO}_4$ Distinguished by an Eu^{3+} Spectroscopy Probe

Archives of Biochemistry and Biophysics

44004	Young-Ran Lim	528 (2012) 111-117	理研	BL26B1	Crystal Structure of Cytochrome P450 CYP105N1 from <i>Streptomyces coelicolor</i> , an Oxidase in the Coelibactin Siderophore Biosynthetic Pathway
-------	---------------	-----------------------	----	--------	--

Bioorganic and Medicinal Chemistry Letters

43927	Yosuke Demizu	21 (2011) 6104-6107		BL41XU	Design, Synthesis and X-ray Crystallographic Study of New Nonsecosteroidal Vitamin D Receptor Ligands
-------	---------------	------------------------	--	--------	---

Bioscience, Biotechnology and Biochemistry

43880	Huy Nhat Chu	75 (2011) 388-390		BL38B1	The Crystal Structure of SDR-Type Pyridoxal 4-Dehydrogenase of <i>Mesorhizobium loti</i>
-------	--------------	----------------------	--	--------	--

Chemistry & Biology

43983	Takuya Terai	18 (2011) 1261-1272		BL44XU	Rational Development of Caged-Biotin Protein-Labeling Agents and Some Applications in Live Cells
-------	--------------	------------------------	--	--------	--

Communications Materials

43889	Hiroyuki Yamane	2 (2021) 63	理研	BL17SU	Physical and Chemical Imaging of Adhesive Interfaces with Soft X-rays
-------	-----------------	----------------	----	--------	---

The FEBS Journal

44166	Mamoru Yamanishi	279 (2012) 793-804		BL41XU	Redesign of Coenzyme B_{12} Dependent Diol Dehydratase to be Resistant to the Mechanism-based Inactivation by Glycerol and Act on Longer Chain 1,2-diols
-------	------------------	-----------------------	--	--------	---

Japanese Journal of Applied Physics

44210	Yuji Hosaka	61 (2022) 076504	加速器	over all	Visualization of Light-emitting Diode Lighting Damage Process in Radiation Environment by an in situ Measurement
-------	-------------	---------------------	-----	----------	--

Journal of Adhesion Science and Technology

43891	Masaki Oura	(2022) Online published: 6 Jul. 2022	理研	BL17SU	Application of Soft X-ray Microspectroscopic Analyses to Architectural Structures – a Case Study on Ceramic-tile/Adhesive/Mortar-structured Composite Materials
-------	-------------	--------------------------------------	----	--------	---

Journal of Biomolecular Structure and Dynamics

44258	Dhanalakshmi K.	(2022) Online published: 22 Aug. 2022	理研	BL26B2	Crystal Structure Analysis and Molecular Dynamics Simulations of Arginase from <i>Thermus thermophilus</i>
-------	-----------------	---------------------------------------	----	--------	--

Journal of Hazardous Materials

44216	Sikhumbuzo Charles Kunene	383 (2020) 121167		BL12B2	Speciation and Fate of Toxic Cadmium in Contaminated Paddy Soils and Rice using XANES/EXAFS Spectroscopy
-------	---------------------------	----------------------	--	--------	--

Journal of Synchrotron Radiation

43882	Misumi Kataoka	18 (2011) 58-61		BL38B1	Detection of the Reaction Intermediates Catalyzed by a Copper Amine Oxidase
				BL44B2	

Journal of the American Chemical Society

43899	Daisuke Sawada	133 (2011) 7215-7221		BL41XU	Development of 14- <i>epi</i> -19-Nortachysterol and Its Unprecedented Binding Configuration for the Human Vitamin D Receptor
-------	----------------	-------------------------	--	--------	---

Molecular and Cellular Biology

研究成果番号	主著者	雑誌情報		ビームライン	タイトル
44074	Hossain Md. Murad	361 (2012) 97-104		BL38B1	Crystal Structure of Sulfotransferase STF9 from <i>Mycobacterium avium</i>

Molecular Cell

43915	Qi Hao	42 (2011) 662-672		BL41XU	The Molecular Basis of ABA-Independent Inhibition of PP2Cs by a Subclass of PYL Proteins
-------	--------	----------------------	--	--------	--

Molecular Immunology

43886	Cerrone Cabanos	49 (2011) 115-123		BL38B1	Crystal Structure of the Major Peanut Allergen Ara h 1
-------	--------------------	----------------------	--	--------	--

New Journal of Physics

44220	Kazumasa Horigane	21 (2019) 093056		BL12B2	Superconductivity in a New Layered Triangular-lattice System Li ₂ Si ₂
-------	----------------------	---------------------	--	--------	--

Physical Review A

43890	N. Boudjemia	104 (2021) 012804	理研	BL17SU	Experimental and Theoretical Study of the Kr <i>L</i> -shell Auger Decay
			理研	BL29XU	

Physical Review Accelerators and Beams

44211	Toshihiko Hiraiwa	25 (2022) 040703	加速器	over all	Suppression of Emittance Variation in Extremely low Emittance Light Source Storage Rings
-------	----------------------	---------------------	-----	----------	--

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

44090	Kyoung Hoon Kim	109 (2012) 7729-7734		BL38B1	<i>Mycobacterium tuberculosis</i> Eis Protein Initiates Suppression of Host Immune Responses by Acetylation of DUSP16/MKP-7
-------	--------------------	-------------------------	--	--------	---

Review of Scientific Instruments

44209	Kazuaki Togawa	93 (2022) 073304	加速器	over all	Frequency-segmented Power Amplification using Multi-band Radio Frequency Amplifiers to Produce a High-voltage Pulse
			XFEL		

Small

44215	Dengyu Xie	17 (2021) 2007239		BL12B2	Dual-Active Sites Engineering of N-Doped Hollow Carbon Nanocubes Confining Bimetal Alloys as Bifunctional Oxygen Electrocatalysts for Flexible Metal-Air Batteries
-------	------------	----------------------	--	--------	--

Solid State Ionics

44107	Keiji Itoh	383 (2022) 115986		BL04B2	Structural Study of Li ₂ S-GeS ₂ Glasses: Ge-S Network and Local Environment of Li
-------	------------	----------------------	--	--------	--

2022A 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「ビームタイム終了届」を提出いただいております。ビームタイム終了届には、次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。

2022A 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）につきましまして、User Information で公開されています。

1. 2022A 期 要望等全体概要

2022A 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	741	1,154	23	66	127
SACLA 共用BL	53	55	5		

^{*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 23 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
小角・広角散乱		2				
X線回折 (単結晶)		1	1			
X線回折 (汎 用・構造評価)		1				
X線回折 (高圧)				1		
汎用 XAFS・ 汎用 MCD		1				
先端 X 線分光				1		
光電子分光		2				
赤外分光				1		
イメージング						1
非弾性散乱		1				
構造生物学	4					
その他		2	2			2

^{*2} 課題申請時の利用者申告ベース。

2. 2022A 期 要望等の内容 (一部抜粋)

(1) 技術的要望等

○ASC 測定中にはスリットサイズの変更ができないため、結晶性サンプルと非晶質性サンプルとは同時に測定できないことが難点でした。測定 PC とデータ吸出し用 PC の時刻を合わせておいて欲

しいです。

【物質科学・材料科学/X線回折 (汎用評価)】

○プレート測定とクライオピンの測定をユーザーでも切り替えできるような仕組みを可能であればご検討ください。実際、プレート測定が想定よりも時間がかかることや、低温条件での測定の必要と感じたため、両方が適時に切り替えができればと感じました。

【生命科学/構造生物学】

○特性X線を用いた試料のマッピング機能が有効であった。光電子によるマッピングも併用できるようになると実験精度が上がり、新たに実験できることが増えるので、期待している。

【物質科学・材料科学/光電子分光】

(2) 施設その他要望等

○食堂ラストオーダー時間が30分早くなりました。働き方改革かとも思いますが、ユーザーとしてはビームタイム開始が10:00であり、機器の調整などを行うと、13:30までに食堂に出向くのが難しい場合も多々あります。特に奥のビームラインの場合は大変です。LO14:00、利用14:30まで、くらいにできないでしょうか？

○食堂の質を改善して欲しいです。現状、高い(品にもよるが50~100円ずつ下げて良いぐらい)、品数が少ない、お世辞にも美味しいとは言えないと思いました。食堂を利用する人は、測定のために施設を訪れており、食事が一番の目的ではないことは承知しています。ですが、食堂で満足いく食事ができればリフレッシュできますし、より良い状態で次の測定に臨めるはずで。良い測定結果にもつながると思います。またコンビニの営業時間が短すぎます。測定をしていると装置から離れられない時間があるため、気づけば営業終了していることがありました。もう少し長くできないでしょうか。ぜひご検討の程お願い致します。

○AU、Softbankの実験ホール内での電波増強を望みます。緊急時に問題となると思います。

3. 要望等及び施設側回答の公開場所

SPring-8/SACLA User Information のいずれからも検索・閲覧ができます。

[検索・閲覧手順]

- ① 「ビームタイム終了届 (ビームタイム利用報告書) (要望・回答) 検索」
- ② 利用期、ビームライン番号等を入力
- ③ 「検索」

The screenshots illustrate the following steps:

- Accessing the '情報' (Information) section from the homepage.
- Selecting the search link for 'ビームタイム終了届 (ビームタイム利用報告書) (要望・回答) 検索'.
- Viewing the search results table.

期	ビームライン	当該利用期に関するアドバイスや施設に関する要望、回答	SPring-8/SACLA 対応内容
2020A	BL4082	施設側からの依頼や希望事項の進捗から、調整スケジュール管理機能への対応が開始されました。システム側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。
2020A	BL1802	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。
2020A	BL1300	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。
2020A	BL2801	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。
2020A	BL4700	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。
2020A	BL2801	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。
2020A	BL0401	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。
2020A	BL2802	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。
2020A	BL2700	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。
2020A	BL1402	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。
2020A	BL4082	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。	調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。調整スケジュール管理機能の進捗については、施設側からの依頼や希望事項の進捗についても同様です。

利用系活動報告

放射光利用研究基盤センター 回折・散乱推進室 粉末回折全散乱チーム

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

肥後 祐司、尾原 幸治、河口 彰吾、河口 沙織

1. はじめに

粉末回折・全散乱チームでは、7~115 keV の高エネルギー領域の X 線を利用して、粉末 X 線回折・全散乱を主な測定手法とし、広範な研究分野のユーザーに、試料の短~中・長距離における X 線構造解析技術や、超高温高压の極限環境を含む外場を変数としたオペランド測定技術を提供し、また、これらの技術開発を推進している。

本チームは結晶性物質の精密構造解析を担当するビームライン (BL02B2)、液体・非晶質物質の構造解析を担当するビームライン (BL04B2、BL08W)、超高温・高温環境下での X 線回折測定を行うビームライン (BL04B1、BL10XU) を擁し、更にアンジュレーター光源の高輝度・高フラックス性を活かした、高分解能粉末回折プラットフォーム (BL13XU、第 3 ハッチ) を新たに整備している。ユーザー利用支援の他に、チーム全体として X 線回折・散乱測定に重要な光学系 (分光器・ミラー・屈折レンズ等) の開発や CdTe-2 次元検出器、Ge-SSD などの検出器の利用開発、解析法の開発なども担当する。また、超高压発生装置や高

温・低温装置、ガス雰囲気炉などの試料環境装置、オートサンプルチェンジャーの開発など多岐にわたる業務を担当している。以下、各ビームラインについて詳しく述べる。

2. BL02B2、BL13XU

粉末結晶構造解析 BL02B2 の実験ハッチには、自動その場粉末回折装置が設置されており、検出器として 1 次元半導体検出器 (MYTHEN) が 2 θ 軸に多連装で配置されている。低温・高温 N₂ 吹付装置は常設されており、試料温度は 90 K から 1100 K までの広い範囲で変更可能である (He ガスの場合は 30 K まで冷却可)。また、上記、回折装置とサンプルチェンジャーを組み合わせることにより、最大 50 試料の自動測定が可能である。更に、クライオスタットを利用することで 5 K までの低温実験や、電気炉を利用することで 1473 K までの高温環境も整備されており、様々なガス雰囲気下や持込装置による多種多様な non-ambient 条件下での粉末回折実験が行われている。

ここでは、最近の開発をいくつか挙げる。

表 1 各ビームラインの諸元

BL	BL 名称	光源	光学系	エネルギー範囲	主要測定手法	測定装置	試料環境
BL02B2	粉末結晶構造解析	偏向電磁石	DCM/ミラー	12-37 keV	粉末回折	MYTHEN 検出器 大型デバイシユラーカメラ	低/高温ガス吹付、クライオガス/溶媒雰囲気、Xe ランプ
BL04B1	高温高压	偏向電磁石	白色/DCM	30-62 keV (Mono) <150 keV (White)	粉末回折 イメージング	Ge-SSD、大型 CCD 検出器 sCMOS カメラ	超高温高压 大型プレス
BL04B2	高エネルギー X 線回折	偏向電磁石	SCM	61, 113 keV	回折・散乱	ポイント型検出器 7 連装 (CdTe4 台 Ge3 台)	高温雰囲気加熱、クライオ無容器 (レーザー加熱)
BL08W	高エネルギー非弾性散乱	ウィグラー	非対称 CM	115 keV	回折・散乱	フラットパネル検出器	高温雰囲気加熱、無容器 (レーザー加熱)
BL10XU	高圧構造物性	真空封止 アンジュレーター	DCM/CRL	6-61 keV	粉末回折	IP 検出器、CdTe 検出器 フラットパネル検出器	超高温高/低温 LHDAC
BL13XU	X 線回折・散乱	真空封止 アンジュレーター	DCM/ミラー	5-72 keV	回折・散乱	2 次元検出器 6 連装 (CdTe)	低/高温ガス吹付、電気炉/クライオ

(1) 2次元フラットパネル検出器の整備(2019年): 高エネルギーX線を用いた *in-situ* 計測環境の拡充および2次元回折像と1次元回折パターン(ゴニオメーターによる角度スキャン)の同時計測による予備実験の高効率化を目的として導入された。この整備によりガス・溶媒蒸気雰囲気下などの *in-situ* 実験¹⁾だけでなく、2次元検出器を活用した多種多様な *in-situ* 計測が展開されている。また、既存のイメージングプレートを用いたデバイリングの確認等の予備的な計測は不要となり、ビームタイムの有効活用に繋がっている。

(2) 自動機器切替システムの開発(2020年): *in-situ* 実験の増加に伴う、大型機器(サンプルチェンジャーや汎用1軸ゴニオステージ)の切替作業を高効率化するために整備した。本開発により、全自動測定と *in-situ* 計測用の切替がPC上の操作一つで誰でも簡単に実行可能となった。

(3) 小型高温ステージの導入(2021年): 高温領域の計測環境を拡充するために、Linkam製のTS-1500を導入した。本装置では、従来のキャピラリ試料は用いず、粉体またはペレットを、新たに開発したサファイア製平板試料上にマウントすることで、簡単に~1500°C程度までの高温実験が可能となっている。

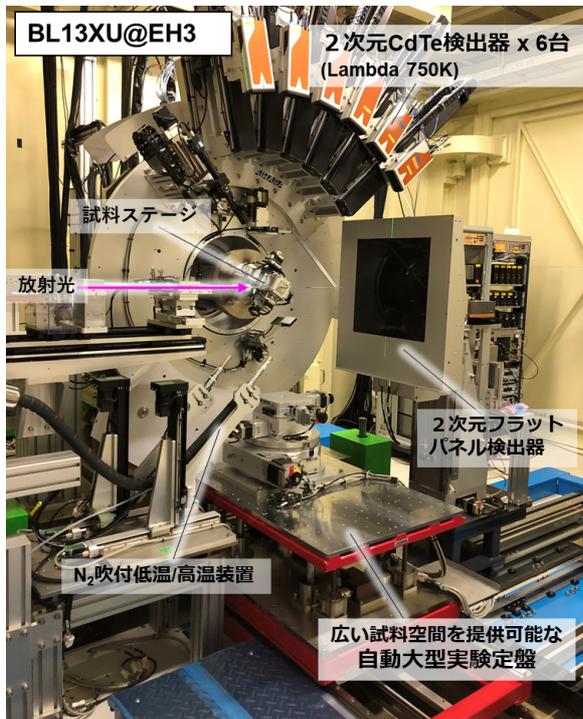


図1 新たに BL13XU の実験ハッチ 3 に設置された高分解能粉末回折装置の写真。

また、ガス雰囲気と組み合わせた計測も展開されつつある。

その他、オフラインの機器として理化学研究所の協力のもと開発を行った自動粉末充填装置により、従来手作業で行っていたキャピラリへの粉末試料の充填作業が自動化されている。人の手で充填するよりも、再現よく、また大幅な実験準備効率化が図られており、現在、装置の試験運用を行っている。上記(1)-(3)や詳細は、SPring-8/SACLA 年報および参考文献²⁾にも記載しているのでそちらをご参照願いたい。

X線回折・散乱ビームライン BL13XU の第3ハッチにおいて、2022年に新規高分解能粉末回折装置が設置された(図1)。2022A期に順調に装置の立ち上げが行われ、2022B期より供用を開始する予定である。利用可能なエネルギーは16~70 keV程度であり、高エネルギーX線を利用した高いQ領域の測定から、ミリ秒レベルの時間分解能および高い角度分解能を有する粉末回折パターンを計測することが可能となっている。なお、BL02B2で利用可能な試料環境は、BL13XUの装置においても同等のものが整備されており、試料周りのステージにも高い互換性がある。また、特徴として、高エネルギーX線($E \geq 25$ keV)を利用した粉末回折計測は、BL02B2においては数分以上の積算時間を要していたが、BL13XUでは挿入光源の高輝度X線と高エネルギーX線用の6連装の2次元CdTe検出器が利用可能であり、数秒の積算時間で構造解析可能なデータが取得可能となっている。また、試料-検出器間の距離も可変であるため、BL02B2より約2倍程度、角度分解能を向上した計測も可能である。これらの計測は、100試料搭載可能なサンプルチェンジャーと連動することにより自動計測が可能である。更に、自動機器切替システムも搭載されており、1辺600mm程度、耐荷重300kg程度まで持込装置を自動大型定盤ステージ(θ , XYZ軸)に搭載可能であり、その定盤ステージを回折計測に自動で挿入する機構を有している。この機構により広い試料空間を利用した様々な *in-situ*/operando X線回折実験が可能となるようにデザインされている。なお、BL13XUの紹介や詳細は、2022年に別号で掲載されている利用者情報誌³⁾をご参照頂きたい。

3. BL04B1

BL04B1 は偏向電磁石を光源とする放射光を実験ハッチ（区分上は光学ハッチ）にそのまま導入しており、幅広いエネルギー範囲を持つ高フラックス白色 X 線をそのまま利用可能である。また、小型の Si(111) 二結晶分光器も備えており、30~62 keV の単色 X 線を利用した角度分散型の X 線回折測定や X 線ラジオグラフィ観察も可能である。BL04B1 には 2 つの実験ハッチが直列に設置され、それぞれ最大荷重 1500 トンの大型プレスを有している。上流側には、SPEED-1500 川井型高圧発生装置（DIA 型プレス、光学ハッチ 2）、下流側には SPEED-Mk.II 川井型高圧発生装置（D-DIA 型プレス、光学ハッチ 3）が設置されており、SPEED-Mk.II ではより高精度な均等加圧が可能であり、焼結ダイヤモンドアンビルを使用した 100 万気圧以上の高圧実験が可能である。

これらの高圧プレスはどちらも 6 個のアンビルを使って立方体試料空間を等方的に圧縮する機能を備えた DIA 型装置であるが、2010 年度には新たに上下のアンビルを独立に駆動させて偏差応力場を作り出す D-DIA 型変形装置を SPEED-Mk.II に導入し、高圧下での応力・歪み状態の制御を可能にした。更に 2011 年度には、大型 X 線 CCD 検出器（200 mm 口径）を設置し、応力変化に伴うデバイリングの歪み量を時分割で測定を行うシステムを構築した（図 2）。本ビームラインの主研究対象である地球マントルは数千度に達する高温状態となるため、鉱物の結晶生成や応力変化は非常に速く進行する。このような数秒~数分単位の X 線回折パターンの変化を連続的に追跡するため、入射スリット

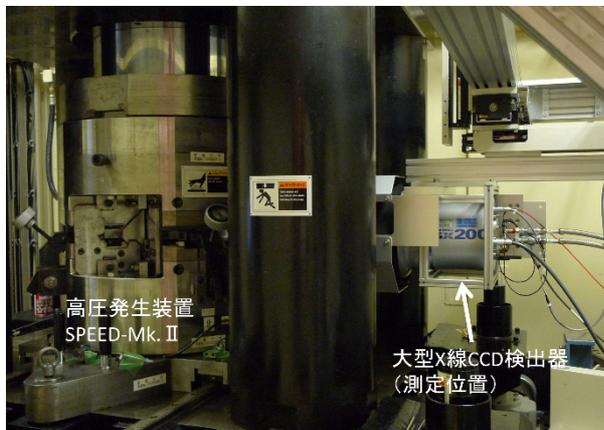


図 2 BL04B1 に設置の高圧発生装置及び大型 CCD 検出器。

の改造や、メカニカルシャッターの設置を行い、X 線 CCD 検出器から発信される TTL 信号と同期することで、高圧高温下での高速時分割測定を可能にしている。

4. BL04B2、BL08W

BL04B2 は一枚振り分光結晶による 60 keV 以上の高エネルギー光が利用でき、また BL08W は、ウィグラー光源による 100 keV 以上の高フラックス・高エネルギー X 線を用いた全散乱測定、およびその測定データを用いた二体分布関数（Pair distribution function, PDF）解析が多く実施されている。PDF 解析は、ブラッグ回折の有無を問わず、回折データをフーリエ変換することにより、ある原子から距離 r (Å) だけ離れた位置に存在する原子の数を確認できるため、液体・非晶質物質の構造研究によく利用される。PDF 解析の実空間分解能は、測定逆 (Q) 空間領域により決定するため、わずかな散乱角度で広い Q 空間領域をカバーできる 60 keV 以上の高エネルギー X 線利用が好まれる。SPring-8 の高エネルギー X 線がもたらす高実空間分解能 PDF 解析により、多くの非晶質材料の構造解析について優れた成果が発信されてきている^[46]。

BL04B2 は、1999 年度に Ge 半導体ポイント型検出器を用いた PDF 解析専用装置が開発され^[7]、2013 年度にはポイント型検出器 3 台を 16°間隔で設置するシステムを採用し、測定時間は当時半分以下に短縮された。更に、2017 年度からは、CdTe 半導体検出器 4 台と Ge 半導体検出器 3 台を 8°間隔で設置したシステムへアップグレードし、更に測定時間の短縮化を図っている。現状は回折計の 2θ を 9°程度動かす測定によって 7 個の検出器のデータが全て重なり、 $2\theta = 0.3\sim 57^\circ$ (61.4 keV の場合、 $Q = 0.15\sim 28 \text{ \AA}^{-1}$) の広い範囲の X 線全散乱・構造因子を 2 時間弱で得ることができるようになっている^[8]。

最近では、BL04B2 に高温炉と全自動アライメントシステムを組み合わせた新しいサンプルチェンジャーが設置された（図 3）。従来のサンプルチェンジャーは最大 10 個までしか搭載できず、更に室温での操作は手動でのアライメントに限られていたが、この新型サンプルチェンジャーは最大 21 個まで搭載可能である。温度依存性（室温~1200°C）の測定自動化も同装置で可能であるため、このシステムにより、温度の異なる

最大 21 個の試料の全 X 線散乱測定を自動的に行うことができるようになった^[9]。

BL08W は、フラットパネル検出器を用いた時分割 PDF 解析装置が開発され、2018 年度よりユーザー運用が開始されている (図 4)。本装置は検出器位置をビーム方向、および鉛直方向に移動できるように設計されている。カメラ長は 20 cm から 80 cm まで変更可能であり、例えばカメラ長を 20 cm とすれば、 $Q_{\max} > 40 \text{ \AA}^{-1}$ の高実空間分解能データを取得でき、非晶質材料の最近接結合に関する精密な構造解析が可能となる。一方で、80 cm とした場合、 $Q_{\max} = 20 \text{ \AA}^{-1}$ 程度となるが小角領域のデータ及び角度分解能について、精度を上げることが可能となる ($dQ = 0.01 \text{ \AA}^{-1}$ 程度となる)。こちらは比較的大きな構造を有する非晶質材料、例えばイオン液体やナノ粒子などの PDF 解析に有効な測定モードと言える。ユーザーが観察・解析したい現象に合わせて、適宜変更可能である。なお本装置にてシリカ (SiO_2) ガラスを 15 秒測定すれば、BL04B2 のポイント型検出器 7 連装置 2 時間 (7,200 秒) 積算と同等の統計精度の PDF 解析が可能である^[10]。

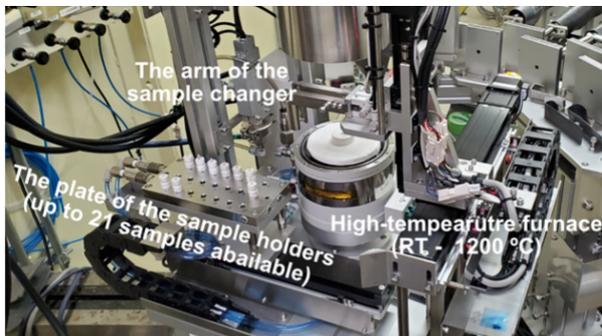


図 3 BL04B2 に設置された全自動サンプルチェンジャー X 線全散乱測定システム。

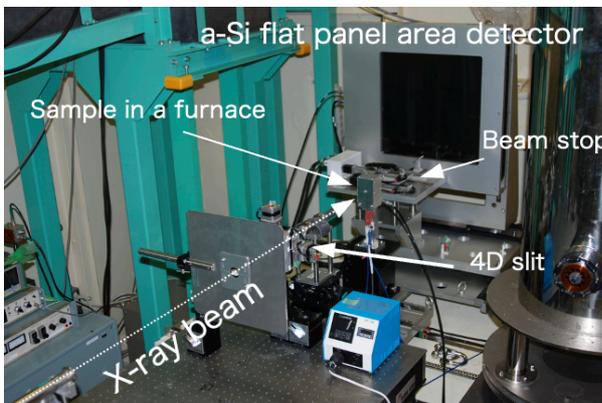


図 4 BL08W のフラットパネル検出器を用いた X 線全散乱測定システム。

5. BL10XU

BL10XU はダイヤモンドアンビルセル (DAC) に封入された微小試料をターゲットとして、複合屈折レンズと多段階集光系をはじめとした測定基盤整備がなされている。実験ハッチ内にはクライオスタット (7 ~ 300 K) と、レーザー加熱システム (1500 ~ 6000 K) が整備されており、低温/高温かつ高圧下における複合極限環境における X 線回折測定が可能である。本ビームラインでは、SPring-8 の X 線光源の特徴である高エネルギー・高強度という特性と、更に物性測定やラマン分光測定と組み合わせることで物質材料科学分野から地球/惑星科学分野まで多岐に渡る研究が行われている。BL10XU の近年の開発理念として、従来通り複雑な試料環境の更なる高度化を図るのみでなく、ユーザーフレンドリー化の促進の共存を掲げている。以下に、2020 年以降の主な開発をご紹介します。

DAC の実験を行う上で、加圧・減圧作業は避けて通れない。従来は、実験ハッチ外設置のギアボックスやネジにより手で作業を行うユーザーが多く、加・減圧のたびにハッチへ出入りする必要があった。DAC の自動加圧を可能とする方法の一つがメンブレン駆動式 DAC の利用である。メンブレン駆動式 DAC とは、DAC のピストン側にメンブレン (金属製の風船のようなもの) を取り付け、ガス圧をかけてメンブレンを膨らませることで、ピストンを駆動し試料を加圧するタイプの DAC である。BL10XU でも昇圧のため 1 系統ガス圧力制御システムを有しているが、以下の問題があった。(1) 従来のガス圧力制御システムには PC からの遠隔操作機能がなく、昇圧時にはハッチ入口付近に設置した装置まで移動し、直接操作する必要があった。(2) DAC のピストン-シリンダ間の抵抗により、メンブレンからのガスリークのみで減圧を制御することが困難であるため、特に冷凍機を用いた実験において減圧時の相平衡関係を正確に調べることが困難であった。

このような実験上の困難を解決するために、2021 年度、2 系統ガス圧制御システムの開発を行った。ガスボンベからのガスは、装置内のガス圧調整器と流量計を介して目標圧力 (最大 18 MPa) まで減圧され、指定された流量値でハッチ内に供給される。更に本装置はガス圧を印加するためのガスラインを 2 系統備

えている。本装置と、新たに開発したダブルメンブレン駆動 DAC (シリンダ側をメンブレンで押し戻すことで減圧制御が可能な DAC) を組み合わせることで、加圧実験のみでなく、精密な減圧制御実験も可能となった。本装置は BL10XU の主制御システムを介し、リモート操作はもちろんのこと、その他装置と簡単に同期可能で、今後、本装置を用いた圧力フィードバック制御機能を確立し、加減圧実験の自動化を目指す。

更に本装置は、TTL 信号による各電磁弁の開閉機構を備えており、急速な加減圧実験も可能である。近年、地球の水・アミノ酸の起源を探るため、隕石衝突のような温度・圧力を急激に変化させながらの実験ニーズが高まっている。また、超高速構造変化の可視化は、新奇材料合成分野においても重要である。我々は 2020 年度に高速検出器 Lambda 750k (X-spectrum、DESY) とレーザー加熱システムに対し、統一制御および外部トリガ制御を可能とするサブミリ秒 XRD 測定システムを構築した。今回、更に新規ガス圧制御システムをサブミリ秒 XRD 測定システムに組み込み、高速加減圧中のその場構造変化可視化を実現した。図 5 は、DAC を用いた高圧実験において圧力マーカーとして広く用いられている Au と NaCl を用いた高速圧縮実験の結果である。解析結果から、100 GPa/s 以上の高速圧縮実験が可能であることが示された。本装置は 2022B より共用開始予定である。

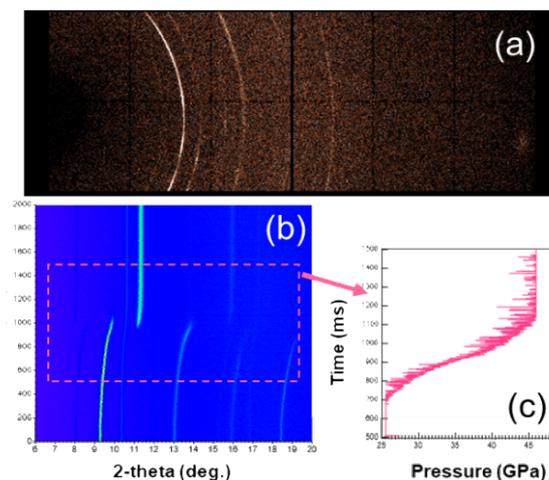


図 5 Au と NaCl の急速圧縮実験の試験結果

(a) Lambda 750k で連続 1 kHz で収集した XRD2 次元画像。(b) Au と NaCl の時間分解データ。(c) Au の状態方程式から求めた試料圧力の時間依存性。

参考文献

- [1] S. Kawaguchi *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **27** (2020) 616-624.
- [2] 河口 彰吾、日本放射光学会誌 **35** (2022) 127.
- [3] SPRING-8/SACLA 利用者情報誌 **27** (3) (2022) 274-279.
- [4] T. Matsunaga, J. Akola, S. Kohara, T. Honma, K. Kobayashi *et al.*: *Nat. Mat.* **10** (2011) 129-134.
- [5] B. Li, S. I. Kawaguchi, S. Kawaguchi, K. Ohara *et al.*: *Nature* **567** (2019) 506-510.
- [6] Z. J. Zhang, K. Ohara, H. Yamada *et al.*: *Nat. Commun.* **13** (2022) 1499.
- [7] S. Kohara, K. Suzuya *et al.*: *Nucl. Instr. And Meth. A* **467-468** (2001) 1030.
- [8] K. Ohara, Y. Onodera, S. Kohara *et al.*: *J. Phys.: Condens. Matter* **33** (2021) 383001.
- [9] H. Yamada, K. Nakada, M. Takemoto, K. Ohara: *J. Synchrotron Rad.* **29** (2022) 549-554.
- [10] K. Ohara, H. Yamada, N. Tsuji *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **25** (2018) 1627-1633.

肥後 祐司 HIGO Yuji

(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 : higo@spring8.or.jp

尾原 幸治 OHARA Koji

(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 : ohara@spring8.or.jp

河口 彰吾 KAWAGUCHI Shogo

(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 : kawaguchi@spring8.or.jp

河口 沙織 KAWAGUCHI Saori

(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 : sao.kawaguchi@spring8.or.jp

SPring-8 ユーザー協同体 (SPRUC) 四季報

SPring-8 ユーザー協同体 (SPRUC) 会長

筑波大学 数理工物質系物理学域 エネルギー物質科学研究センター

西堀 英治

1. SPring-8 シンポジウム 2022

SPring-8 シンポジウム 2022 は、2022 年 9 月 25 日 (日) と 26 日 (月) の 2 日間、SPring-8 放射光普及棟大講堂・中講堂とオンラインのハイブリッドにより開催されました。今年度は、東京大学にホストをお願いしました。前日からの入念な準備と当日の運営を担当いただいた杉本行事幹事をはじめとする実行委員の皆様へ感謝の意を表します。詳細については杉本行事幹事による報告を参照してください。現場の様子と、私が気になった点について記述します。会場の配置はこれまでのオンライン開催とは異なり、約 10 名の実行委員が並んで待機していました。当日、会場には、参加者、スタッフ含めて常時 50~60 名程度が参加していました。初日に、“SPring-8 がつむぐ学術と社会のリンケージ”の主題で東京大学のセッションが行われ、続いてパネルディスカッションが行われました。最初の講演で、大型プロジェクト研究で複数の企業とトップサイエンティストが集う産学連携について東京大学の伊藤耕三先生より話がありました。広範にわたる成果とその成果を生み出した仕組みはパネルディスカッションでも話題になりました。続いて、東京大学の三村秀和先生より、研究者の関心からの産学連携への道筋として、加工のその場観察の話がありました。先生自身の産学連携への考え方が示され印象的でした。2 日目には、SPring-8 利用のみならず、AlphaFold やマテリアルインフォマティクスなど関連研究分野の最先端の研究成果が目白押しで圧巻の内容でした。今回、何名かの現地参加者から現地参加が可能で良かったとの意見を伺いました。是非、次回は対面での開催を期待します。来年度は大阪大学にホストをお願いする予定です。

2. SPring-8 秋の学校

昨年は新型コロナウイルス感染症の影響で 12 月に延期された「SPring-8 秋の学校」については、今年は 9 月 4 日から 7 日の日程で開催されました。3 年ぶりに秋の開催でしたが 60 名の参加者がありました。初日を見学した印象は、全国から学生が集まっているということと、女性の参加者数が多いことでした。実際の参加者は男性 44 名、女性 16 名でした。ジェンダーバランスの観点では、放射光分野の将来は明るいのではとも思いました。また、参加者の半数以上が放射線業務従事者資格を有しておらず、夏の学校と異なる秋の学校の特徴が出ていることもわかりました。懇親会は中止でしたが、皆さん、楽しそうに参加していたのが印象的でした。担当の松村行事幹事をはじめ JASRI の実行委員の皆様、基礎講義、グループ講習を担当いただいた SPRUC 研究会の皆様へ感謝いたします。詳細については、松村行事幹事の報告をご参照ください。

西堀 英治 NISHIBORI Eiji

筑波大学 数理工物質系物理学域

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

SPring-8/SACLA 利用者情報 編集委員会

委員長	木村 滋	利用推進部
委員	池端 宏之	利用推進部
	大和田成起	XFEL 利用研究推進室
	小川 浩平	企画室
	重松 秀樹	構造生物学推進室
	田村 和宏	加速器部門
	辻 成希	回折・散乱推進室
	辻本 繁樹	利用推進部
	南後恵理子	SPring-8 ユーザー協同体 (SPRUC) 編集幹事 (東北大学)
	平岡 裕治	情報技術推進室
	福井 宏之	精密分光推進室
	本間 徹生	産業利用・産学連携推進室
	森脇 太郎	分光推進室
	安武 正展	散乱・イメージング推進室
	山崎 裕史	ビームライン技術推進室
	(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
	青木 智子	利用推進部

SPring-8/SACLA 利用者情報

Vol.27 No.4 Autumn 2022

SPring-8/SACLA Information

発行日 2022年11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)



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/>