

Contents

最表面の構造にどこまで迫れるか ..2

加速器「火入れ」の時 ..4

研究トピックス ..6

X線イメージング法で金属の実効原子番号を測定
鋳型を使わずに RNA を合成するしくみを解明

施設情報 ..7

新型検出器 KALLIOPE を設置
超低速ミュオン 建設状況
6 列型アンジュレーターの設置へ
低速陽電子 3 本のビームラインが利用可能に

お知らせ ..8

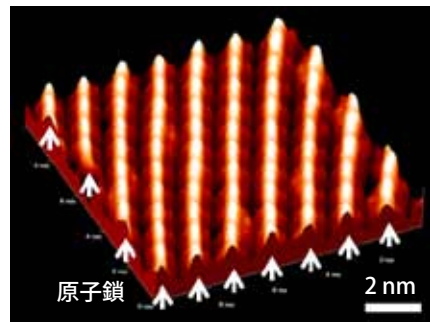
最表面の構造に どこまで迫れるか

ナノテクという言葉が使われ始め、10 余年。半導体素子や薄膜など、ナノ素材の開発は目覚ましい発展を遂げている。これら材料開発の背景には、ナノスケールで正確に観測する手段の発展があったこと。特にナノスケールでは、最表面の性質が材料としての性質を左右することが多く、最表面の本当の姿を正確に見ることが重要になっている。

見えているとは限らない？

物質の最表面を原子レベルで見えるには、走査型トンネル顕微鏡や原子間力顕微鏡などが活用されている。どちらも試料表面を探針でなぞるように移動させながら、表面を調べていくもので、探針と試料の間に流れる電流や力の大きさの変化から表面の凹凸を調べている。つまり観測結果として描かれるのは電流や力の大小の分布であり、実際の構造そのものではない。もちろん研究者はそれらを考慮した上で、構造を決めている。しかし、プロでも見解が分かれたまま 10 年以上も構造が決まらないものもある。

右図はゲルマニウム (Ge) の結晶表面の上に、ほぼ 1 層だけ白金 (Pt) を乗せたものを走査型トンネル顕微鏡で観測したもの。原子一粒ずつと思われる球体が見事に映し出され、その並びが非常に良くわかる。だが、どれがゲルマニウムでどれが白金か分かるだろうか？ 走査型トンネル顕微鏡で原子の種類まで見分けることは困難なのだ。当初、ゲルマニウムの上に白金が乗っていると考えられていた。しかし理論計算によって、白金はゲルマニウムの中に潜り込んでいる方がエネルギー的に安定であり、最表面にはいない可能性



が高いと指摘された。その後いくつかの理論研究が行われ、3 つの可能性にまで絞り込まれ、決定打の無いままおよそ 10 年、これまでとは違う実験による判定が待たれていた。

この問題解決に挑んだのは、KEK 物構研 研究員の望月出海さん (始めた当時は、日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター所属)。「陽電子」という正の電荷を持った、電子の反粒子のビームを試料表面すれすれの浅い角度に入射し、全反射して得られる回折パターンを解析する全反射高速陽電子回折 (TRHEPD) 法*の応用研究である。回折パターンとは、原子や分子が規則正しく並んだ結晶などにビームを入射すると現れる斑点模様のこと、原子の並びを反映している。X 線や電子線、中性子線を使った回折パターンから物質の構造を調べる手法が確立しており、物質・生命科学の広い分野で利用されている。しかし通常このような回折実験では、最表面だけの情報を取り出すのは非常に難しく、様々な工夫が必要になる。

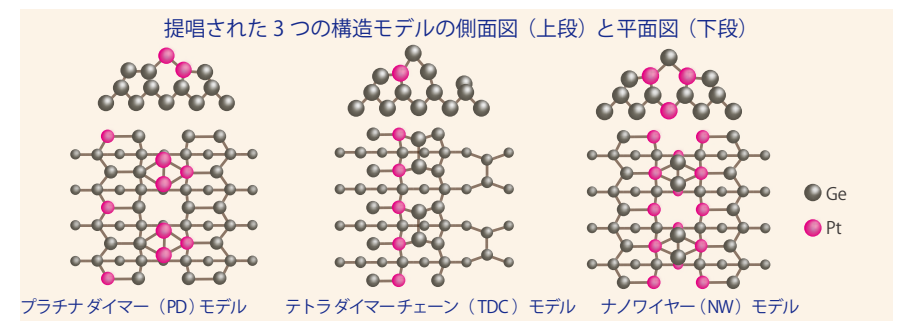
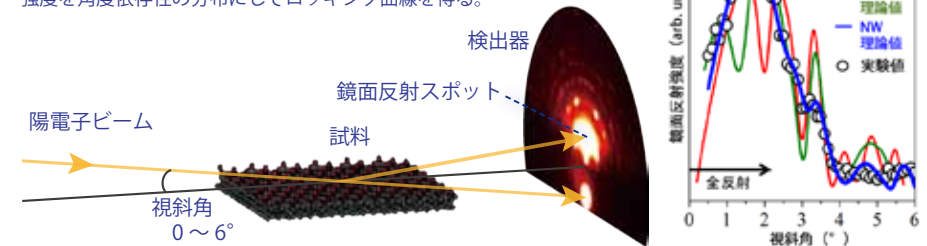
TRHEPD 法の画期的な点は、物質の中に入りにくい陽電子をビームとして利用し、最表面の原子 1 層分だけの回折パターンを得られること。エネルギー 10 keV の陽電子ビームをゲルマニウム結晶に入射した場合、視斜角 2.2° までが全反射領域となり、原子 1 層分を観測できる。徐々に視斜角を大きくしていくと、原子 2 層、3 層、と陽電子が入っていく。実際に白金を吸着させたゲルマニウムに陽電子ビームを視斜角 0.5° から 0.1° ずつ 6.0° まで変化させながら 56 枚の回折パターンを得た。そのパターンの鏡面反射スポットの回折強度を解析 (ロッキング曲線)、3 候補の構造からの予想と比較した結果、ナノワイヤーモデル (提唱者呼称) とだけ一致していることを確かめた。この 3 つ以外にこれまで提案されてきた構造モデル 10 種類以上についても同様に比較したが、ナノワイヤーモデルだけが、実験結果を一致する結果だった。10 年におよぶ未解決事案を解決した瞬間だった。

得意中の得意 最表面層の構造決定

次に挑んだのは、シリコン原子 1 層からなるシート状のシリセン。高い導電率、光学特性、熱特性など他にはない特性を兼ね備えた、炭素一層から成るグラフェンのシリコン版とも言えるシリセンには、今、熱い視線が注がれている。長らく理論的な興味の対象にす

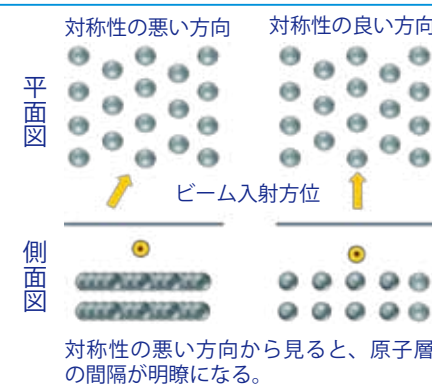
TRHEPD 実験の模式図とロッキング曲線

陽電子を浅い角度で試料に入射。鏡面反射スポットの強度を角度依存性の分布にしてロッキング曲線を得る。



ぎなかったシリセンを生成する方法が相次いで報告され、その構造も提案された。その中の一つ、銀の結晶表面上に作ったシリセンについて原子力機構の深谷研究副主幹らの共同利用で調べることにした。炭素と異なりダイヤモンド型構造しかないシリコンの場合、グラフェンのように原子 1 層が同一平面内に収まることはなく、配列そのものが規則的な凸凹構造になっていることが予測されていた。また基板の銀原子とシリセンの凸凹構造の下層の原子との間の距離も、シリセンの電子のエネルギー状態に影響を与えることが知られている。そのため、最表面層の詳細な原子配列、そのすぐ下の層との距離などを調べるのが重要で、TRHEPD 法が強力な手法となる。今回実験したのは、シリコン結晶の上に銀を 20 原子層積み上げ、その最表面にシリコンを 1 層重ねたもの。つまり、シリコン原子の網目のすぐ下には銀原子が並んでいる状態。この構造を決めるため、まず敢えて対称性の悪い方向から陽電子を入射し、視斜角を少しずつ変えて回折パターンを得た。この条件の測定は、凸凹の第 1 層目、2 層目、

銀の層のそれぞれの面内の配置と独立に、鉛直方向の距離だけを正確に定めることができる。次に、対称性のよい方向から陽電子を入射し、視斜角を少しずつ変えて回折パターンを得た。この条件の測定では、各層の面内の原子配置を正確に決めることができる。「これからも次々と未解決な物質の最表面層の原子配置を決めていきます。」と語る兵頭 俊夫 KEK 物構研特定教授。陽電子の研究に携わって 40 年余、KEK 物構研に着任してからは、同時に着任した和田 健 特別助教とともに、加速器から得られる高強度の陽電子ビームを使う施設の高度化を行い、新しい実験を立ち上げてきた。「同じグラフェンやシリセンでもそのすぐ下の基板層が何であるかによって原子間の距離やエネルギー状態も変わります。それらの構造の詳細を直接簡単に決められるのは、TRHEPD だけ。これを知ったら世界中の人が使いたがるのではないのでしょうか。」既にいくつかの研究は始まり、結果も出つつある。最表面やそのすぐ下の構造を高精度で見ること、また新たな物質科学のステージが拓ける。



※全反射高速陽電子回折 (TRHEPD) 法
日本で開発された比較的新しい手法。1992 年に一宮彰彦名古屋大学教授が提案、1998 年に日本原子力研究所 (当時) の河堀厚男研究員、岡田淑平主任研究員とともに当時) が有用性を実証。その後同研究所 (現日本原子力研究開発機構) で河堀研究主任のグループの深谷有喜研究副主任を中心に発展、成果を挙げてきた。しかし陽電子源に放射性同位元素を用いていたため、測定に多くの時間を要した。2010 年に KEK 物構研低速陽電子実験施設の低速陽電子ビームが世界最高の強度に達すると、TRHEPD 実験の高効率化が期待され、原子力機構の装置を移設して共同利用が開始された。なお当初は、反射高速陽電子回折 (RHEPD) 法と呼んでいた。

加速器「火入れ」の時

加速器をゼロから作り上げる現場に居合わせる機会は人生にそう無い。

2013 年 12 月末。加速器の制御室は、熱気と緊張感が入り混じっていた。未来の光源加速器として KEK が ERL（エネルギー回収型リナック）を提案したのは 2005 年のこと。その技術検証用加速器として cERL（コンパクト ERL）が建設されている。この日は、まさに「火入れ」が行われていた。ゼロから設計してきた加速器に電子が通るか、加速されるか... 皆がその時を見守っていた。



cERL 全景

放射光と呼ばれる光は、物質科学や生命科学の研究に利用されている。現在国内には放射光施設が 8 つあり、それぞれが蓄積型のリング加速器を持っている。これは電子を何周もさせながら光を発生させるものだ。KEK のフォトンファクトリーもその一つで、40 を超える実験ステーションがあり、毎年 3000 名以上の研究者が利用に訪れている。1982 年から稼働し始め 30 余年、科学の発展に伴い、より優れた性質の光が求められるようになってきた。そこで提案されたのが ERL。革新的なのは、加速器を電子が何周もする蓄積型とは違い、電子を一周だけさせて常にフレッシュな状態で利用すること。リング加速器では電子を塊にして利用し

ており、曲がって光を放出する度に電子の塊が広がり、ぼやけてしまう。放射光は電子から発生するため、電子の性質によって光の性質が決まる。ERL では新品の電子をまっすぐ加速するため、得られる光は鋭く、また連続的に電子を入射することで、短パルスで高輝度の放射光を作り出ることができる。他方、一周ごとに電子を使い捨てるには問題もある。毎回電子を加速させるには膨大なエネルギーが必要であり、諸般の電力事情を鑑みても現実的ではない。また、一周して戻ってきた電子はエネルギーが非常に高く、そのまま捨てると発熱や放射化を招いてしまう。これらを一挙に解決する新技術が、一周して戻ってきた電子のエネ

ルギーを回収して、次の電子を加速させる「エネルギー回収」である。

エネルギー回収と加速を同時に

電子のように電荷を持つ粒子の加減速には、電場を利用する。マイナス同士は反発し、マイナスとプラスは引き合うという、シンプルな性質の延長線だ。それを効率良く行うのが、超伝導加速空洞。この中に高周波の交流電場を作り、電場で引っ張る（押す）ようにして電子を加速する。cERL に使用されている超伝導加速空洞は 9 個の小部屋がつながったような形をしており（下図）、この中に正 / 負の向きの電場が交互に作られる。電子が空洞内を通る

illustrations by Rey.Hori

ときに、電場が正の向きになるよう、タイミングをピッタリあわせることが肝心である。加速されると電子の速度はやがて光速に近づくが、決して光速を超えることはできない。それでもエネルギーを与え続けると、電場から得たエネルギーは電子自身に「重さ」として蓄えられていく。

エネルギー回収はこの逆で、電子が空洞内にいるときに電場を負の向きにする。すると電子は電場からブレーキをかけられている状態になり、電場にエネルギーを渡すことになる。空洞内は交流電場なので、電子から受け取った負の向きの電場のエネルギーは次の瞬間には正の向きに変わり、次の電子を加速させるために利用する。



超伝導加速空洞と電子のイメージ図
cERL では、9 セルの超伝導加速空洞を 2 本使用している。加速される電子とエネルギー回収される電子が交互に入る。

緊張の初日

冒頭に書いた日は、電子の加速とエネルギー回収が出来るかを初めて試す日だった。試験運転に与えられたのは 12 月 16 日から 20 日の 5 日間。まず電子銃で電子を発生させる。光速の約 80%（390 keV）の速さで電子銃から出てきた電子は、前段超伝導加速空洞で光速の 98% にまで加速される。翌日、入射ビームの調整も終わり、いよいよ主空洞内に電子を導く。まず主空洞にまっすぐ入るようにビーム軸を合わせる。そして、おそろおそろ主空洞のゲート弁を開ける。緊張の一瞬だった。3 分後、ビームが通り抜けた。「その瞬間に勝ったと思った。」当時を振り返りそう語るのは超伝導加速空洞グループリーダーの古屋 貴章 氏。設計から組み上げ、設置とたくさんの行程の中、ビームを曲げてしまう要素は、いくらかでも思いつく。その一つ一つを丹念に潰してきた。漏れは無いだろうか、ビームが通るだろうか、長い 3 分間だった。3 日目、主空洞内に電場を作り、少し

ずつ強くし、20 MeV で電子が加速されることを確認、ルートを切り替え、加速された電子を周回リングに導き、一周させる。周回してきた高いエネルギー状態の電子と、電子銃からの新しい電子の両方を主空洞に入れる。しかも、加速とエネルギー回収が同時に行われるように、タイミング良く。そして... 主空洞内に 2 つの電子ビームが同時にいることを確認できた。でも完璧ではなかった。戻ってきた電子と新しい電子が合流するタイミングが合わない。両者は主空洞に入る手前でちょうど逆位相になるように合流し、“そのまま”主空洞に導かなければならない。ところが、電子銃から入射したての電子は光速の約 98%。対して一周して戻ってきた電子はほぼ光速。この差によって、わずか 5 メートルほどの行程で光速の電子が前の電子に追いついてしまったと考えられる。タイミングがずれると、エネルギー回収、加速が効率良く働かない。「まさか、というのが率直な思いだった。」と古屋氏。そう語る一方で、「特に慌てることなく、最大加速が得られるように、空洞内の電場の位相を合わせた。」とも語る。ずっと超伝導加速空洞の開発一筋でやってきた経験がそうさせるのだろう。次の課題は、周回して戻ってくる電子を新しい電子のちょうど逆位相にすること。これには、予め用意された種々のモニターを駆使してビーム軌道を調整している。限られた時間の中、出来るだけのスタディを行い、データを収集する。そして 1 月末からの調整運転に再度挑む。課題はいくつか見つかったものの、全体的には合格点。次の試験運転では、位相調整を行い、ピッタリと加減速

フェーズに電子を乗せること。そして次にエネルギーを上げ、ERL に適する仕様を探っていく。

ゼロからの開発

この空洞の開発に着手したのは、およそ 10 年前のこと。ERL の性能を満たす仕様が検討された結果、超伝導加速空洞を作ることが決まり、開発が始まろうとしていた。そして古屋氏のもとには、超伝導空洞の開発という意欲に燃えた研究者たちが KEK の加速器グループの他、東京大学物性研究所、原子力研究開発機構から集まった。しかし全員が集まれるのは週に 2 日、当初はひたすら自由に議論をしていた。「違う機関から人が集まると、言葉も違う。」そう語った古屋氏の狙いは、専門用語の意味をすり合わせることだった。たとえ業界人でも、所変われば、使う用語の意味も異なるそう。そうこうしながら、設計を具体化させていく。世界には 20 ~ 25 MV/m という加速勾配の空洞もある中、cERL では 10 ~ 15 MV/m と設定した。その理由を「一番大事なのは、安定して動かすこと」と語る。放射光施設は、多くの研究者に利用されている反面、インフラ同様、安定して動き続けることが求められるからだ。「我々の実力で無理なく安定的に運転できる値を探ること、そして空洞の開発やメンテナンスできる人を育てること。」cERL の目的をそう語った。「今開発にあたっているメンバーは着実に力をつけていますよ。ERL 建設の時には彼らが主力になるはずです。」ほとんどゼロから開発を始め、運転までこぎつけた手応えをにじませ

超伝導加速空洞インストール打合せ中の様子
左から：佐藤 昌史 技師、野上 隆史 技師、
阪井 寛志 准教授、古屋 貴章 教授



研究トピックス

物構研、および PF、MLF の共同研究・
共同利用による研究成果

■ もっと詳しく
KEK ニュースルーム
<http://www.kek.jp/ja/NewsRoom/>

技術

X線イメージング法で金属の実効原子番号を測定

日立製作所、KEK および北里研究所は共同で、金属膜を透過するX線(放射光)の吸収量と位相の変化をX線干渉計によって測定し、金属の実効原子番号を観察するX線イメージング法を開発した。本方式で、アルミ、銅、鉄、亜鉛の単一元素からなる材料を観察し、誤差 5%以内で元素の特定を実証した。本計測技術は、大気中で数十ミリメートル領域を数十ミクロンの空間分解能で一括に観察できることから、磁石新素材やインフラ構造部材における元素分布の新たな評価技術として期待される。



X線が物質を透過する際に密度の高い領域ほど吸収されることを利用して、レントゲンのように被写体内部の密度分布を画像化する技術が実用化されている。近年、さらに高感度で知る方法として、被写体を透過するX線の位相の変化を調べるX線位相イメージング法が研究されている。位相は透過するX線の吸収による強度の変化に比べて 1000 倍以上敏感に変化するため、吸収の小さい生体組織や有機材料の観察手段として注目されている。しかし、この方法で観察できるのは物質の密度であり、原子の種類は判別できなかった。2010 年に発表された論文により、X線の位相と吸収の変化を同時に測定、比較することにより、測定部分の平均的な原子番号(実効原子番号)が特定可能であることが示された。この技術を応用し、日立が独自に開発してきたX干渉法と軽元素から金属までを観測できる 17.8keV (波長 0.7 Å) の放射光を用い測定、実証した。

錆びた鉄の観察例
左から、実効原子番号 X 線観察像、観察試料の写真(表)、観察試料の写真(裏)。○印の箇所が酸素の含有量が多い箇所、酸化(錆)が進行している箇所。

生命科学

鋳型を使わずに RNA を合成するしくみを解明

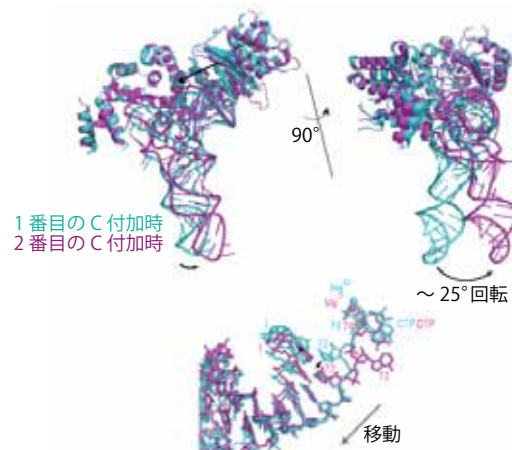
産業技術総合研究所 バイオメディカル研究部門の富田耕造氏(RNA プロセッシング研究グループ長)、山下征輔氏(特別研究員)らは、タンパク質の材料であるアミノ酸と結合する、tRNA の端(3' 末端)に普遍的に存在する CCA 配列が核酸性の鋳型を用いなくで付加されるしくみを放射光 X 線結晶回折などを用いて解明した。

全ての生物にはゲノム DNA に記された遺伝情報を読み取って、タンパク質を作り出す「翻訳」システムが備わっている。遺伝情報とタンパク質の材料であるアミノ酸との橋渡しをするアダプターの役割をする分子が、トランスファー RNA (tRNA) で、その 3' 末端は全て CCA 配列をしており、アミノ酸と結合する重要な部分。CCA 配列は CCA 付加酵素という酵素によって合成されるもので、DNA や RNA の鋳型を用いることなく、定まった配列を合成できる大変ユニークな RNA 合成酵素。

富田氏らの研究グループは、CCA 付加酵素による DNA や RNA の鋳型を用いなく付加反応の動的反応過程の分子メカニズムの解明に取り組んだ。今回、CCA 配列の最初の CC 配列が真正細菌由来の CC 付加酵素によって合成される過程を、いくつかの段階に分け、各反応を表した状態をフォトンファクトリーのビームライン BL-17A、1A を用いて X 線結晶構造解析を行った。

その結果、酵素が CC 配列を合成、付加していく過程で、tRNA 分子が CC 付加酵素の表面を動き、回転することが分かった。tRNA が酵素上を移動、回転することによって一つの活性触媒ポケットで 1 番目の C と 2 番目の C が同じしくみで付加されていた。また、CC 配列の合成が終了すると、tRNA が更に後ろへ動くことにより酵素から tRNA が離れ、tRNA の末端の CC 配列の合成を終結させる、という一連の過程が明らかになった。

Structure 3 Jan 2014. [DOI: 10. 1016/j.str.2013.12.002]

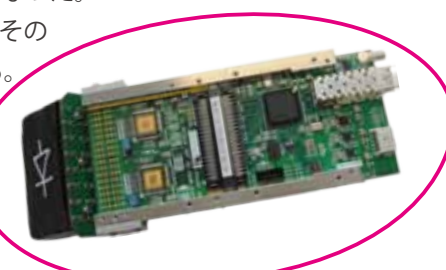
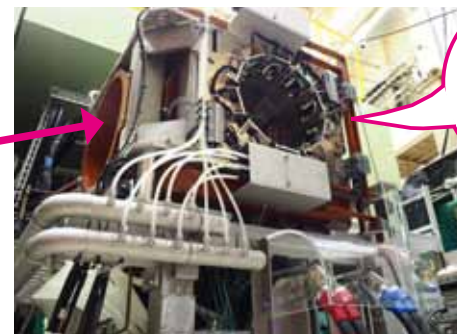


RNA 合成における tRNA の動き。1 番目の C 付加反応(シアン)と 2 番目の C 付加反応(マゼンダ)の構造の重ねあわせ(上)。1 番目の C が付加した後、tRNA は酵素のテイルの方へ動くとともに回転する。活性ポケット付近の様子(下)。矢印の方向に tRNA が動く。

施設情報

ミュオンビームライン D1 新型検出器 KALLIOPE を設置

1 月上旬、J-PARC 物質・生命科学実験施設(MLF)のミュオンビームライン D1 に、新型検出器 KALLIOPE(カリオペ)が設置された。KALLIOPE はミュオンが崩壊してできる陽電子/電子を検出するための装置で、試料の周りを囲うように配置されている。従来、陽電子/電子検出に用いられていた光電子増倍管を光半導体素子に変更。光半導体素子は小型で、磁場の影響もほとんど受けないため、シンチレータと共に試料近くに置くことができ、高効率で陽電子/電子を検出できる設計となっている。検出できるチャンネル数は 256ch から 1280ch に、立体角はおおよそ 2 倍となった。今後、ビームを当てての動作確認、ソフトウェアなどの整備を行う予定。検出器とその技術は、現在建設中の U ラインなど、他のビームラインにも展開が予定されている。



D1 に設置された旧検出器(左)と、新型分光器(中央)。新型検出器は、KALLIOPE(右)が一周に 2 台 10 ユニット、前後に設置され、計 40 台設置されている。

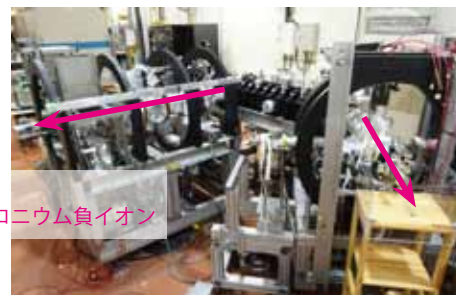
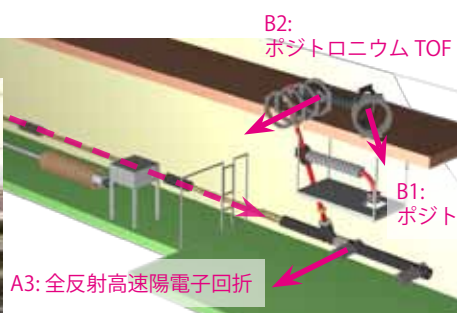
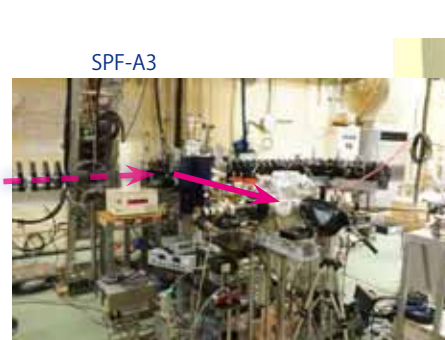
放射光ビームライン BL2 6 列型アンジュレーターの設置へ

株式会社日立製作所との共同研究により建設中の BL-2 に設置する 6 列型アンジュレーター(写真左)が搬入され、調整が進められている。6 本の磁石列(写真右)が独立に動くことで垂直偏光、水平偏光、円偏光を作り出せる。現在、各運転モードの試験が行われている。本アンジュレーター導入により、BL-2 には 2 台のアンジュレーターが並ぶことになり、軽元素から希土類まで幅広い元素の元素選択的な分光実験が可能になる。今後は 3 月にリング内に設置、4 月に調整運転を行う予定。



低速陽電子 3 本のビームラインが利用可能に

低速陽電子実験施設(SPF)では、ビームラインの整備、大幅な配置換えが行われ、現在 3 本のビームラインが共同利用に公開されている。1 階には、ポジトロニウム負イオン(電子 2 個と陽電子 1 個)の基礎・応用研究を行う SPF-B1、ポジトロニウム生成を通じて表面を調べるポジトロニウム TOF 実験を行う SPF-B2 が設置され、地下 1 階には全反射高速陽電子回折(TRHEPD)実験を行う SPF-A3 が設置されている。A3 は、巻頭で紹介した最表面を観測する実験が行われたビームライン。加速器の運転停止期間の 4 月にはビームのパルス幅を 400 マイクロ秒まで可変にするための改造を行う予定。



左から：SPF-B2 と B1

