

4. 放射光科学研究系

表面科学研究部門

雨宮 健太

物質構造科学研究所放射光科学第一研究系

総合研究大学院大学高エネルギー加速器科学研究科物質構造科学専攻

1. 概要

表面科学研究部門は、表面および界面に特有の機能に着目し、放射光をはじめとする様々なプローブを用いた実験手法を駆使して、それらの機能の発現機構を解明するとともに、新たな機能性物質を創成することを目指している。単に既存の手法を利用するだけでなく、放射光実験施設や加速器研究施設・加速器第六研究系と協力して、新たな表面観察手法の開拓も行う。2019年度のスタッフは下記の表の通りである。

2. 活動内容

【雨宮グループ：働く表面・界面をその場で観る】

原子レベルで制御された磁性薄膜は、垂直磁気異方性や巨大磁気抵抗効果など、バルク磁性体には無い特長を示すことから、いわゆるスピントロニクス材料として利用されている。また、化学反応を促進させるために欠かせない触媒は、その表面において化学種の吸着、拡散、反応、脱離といったプロセスを協奏的に進行させることで、高い選択性と反応速度を実現している。こうした機能性物質において、その性能の鍵を握るのは、動作中の表面・界面の状態である。本グループでは、深さ分解 XAFS/XMCD 法、波長分散型 XAFS 法など、新たな発想に基づく実験手法を開発し、表面・界面が働いている状態をその場で観る（オ

パランド観察する）ことによって、磁性薄膜や触媒の機能発現機構を解明するとともに、より高い機能を示す物質を創成することを目指している。メンバーは、雨宮の他に、近藤寛（客員教授、慶応大理工）、鈴木真粧子（客員准教授、群大院理工）、山本涼輔（学際理学講座、東大院理）、渋谷昂平（受託学生、東理大理）である。

2019年度は、2019S2-003「軟 X 線深さ分解 XAFS/XMCD 法によるスピントロニクス材料研究の夜明け」を中心に、スピントロニクス材料に利用される薄膜における磁性の深さ分解観察を進めるとともに、より実際の反応条件に近いガス圧や電圧印加状態での化学反応のリアルタイム観察を目指した蛍光収量法による波長分散型 XAFS の開発を行った。

【堀場グループ：表面・界面で新しい電子状態を創り出す】

物質の表面や界面には、物質が本来持っているものとは異なる新しい電子状態が現れ、それにより新しい機能が生み出される。それらの機能は電子回路部品やハードディスク、電池や触媒など様々な技術に利用されている。

本グループでは、物質の原子を1層ずつ制御する技術を用いて、自然界には存在しない界面状態を人工的に作製したり、表面状態を制御したりすることによって、その表面・界面にこれまでにない新たな電子状態を創り出す研究

氏名	職位	主な研究内容
雨宮 健太	教授, 部門長	新しい表面・界面観察手法の開発 磁性薄膜の化学・磁気状態の深さ分解分析 表面化学反応の実時間観察
堀場 弘司	准教授	新しい電子状態観測装置の開発 ARPES や XAS による表面・界面電子状態の解明 実用機能性材料の電子状態観測
北村 未歩	助教	任意に構造制御した酸化物単結晶薄膜の作製 XAS や ARPES による酸化物界面における新奇電子状態の観測 XMCD による酸化物界面におけるスピン状態の解明
湯川 龍	特任助教 (2019年10月まで)	酸化物表面における2次元電子状態の制御と解明 新しい表面評価装置の開発
小畑 由紀子	博士研究員 (2019年9月まで)	トポロジカル絶縁体候補物質の薄膜作製 ARPES によるトポロジカル表面状態の観測
組頭 広志	特別教授 (クロスアポイントメント, 東北大多元研)	先端計測に立脚した機能性材料の開発 酸化物ナノ構造を用いた新奇量子物質の開拓 酸化物デバイスの界面評価手法の開発

を行っている。また自然界に存在する物質についても、新しい概念の表面電子状態を探索する研究も行っている。このような新しい電子状態を、角度分解光電子分光 (ARPES) や X 線吸収分光 (XAS)・X 線磁気円二色性 (XMCD) 等の放射光分光を駆使して、また中性子・ミュオン・低速陽電子など他のプローブも利用することによって明らかにし、更なる高い機能を持った表面・界面状態を実現することを目指している。そのために、既存の装置では達成できない更なる高機能・高精度な電子分光装置の開発も進めている。メンバーは堀場、北村、組頭、湯川、小畑の他に、志賀大亮 (連携大学院生, 東北大多元研), 相馬清吾 (客員准教授, 東北大材料科学高等研究所) である。

2019 年度は、これまでの新奇表面・界面状態の創製とその電子状態観察を進めるとともに、薄膜の透過 XAS を行うための新しい装置開発を行った。また東北大学と協力して、BL-28 の ARPES ステーションにおいて、微小試料を計測するために放射光のマイクロ集光化を進めている。

3. 今後の展望

引き続き、軟 X 線を利用した先端的な表面・界面研究を進めるとともに、表面・界面における特異な状態をより多面的に観察するために、軟 X 線に加えて硬 X 線、中性子、低速陽電子などを相補的に用いたマルチプローブ利用研究を推進する。このために、放射光、中性子、低速陽電子を用いた測定装置間でホルダー形状を統一し、試料を真空に保持した状態で搬送して各装置で測定できるシステムの開発を進める。また、雨宮グループでは、2019 年度に開発した蛍光収量法による波長分散型 XAFS 法をさらに発展させ、準大気圧下での触媒反応や、固液界面における光触媒反応の観察を行う予定である。堀場グループでは、引き続き新奇表面・界面状態の創製とその電子状態観察を進めるとともに、新しいマイクロビームを用いた微小試料の ARPES 計測の実現に取り組む。また透過 XAS 法によって可能となる、薄膜デバイスのオペランド XAS 計測手法の開発を行っていく予定である。

引用文献

- [1] D. Shiga, M. Minohara, M. Kitamura, R. Yukawa, K. Horiba, and H. Kumigashira, *Phys. Rev. B* **99**, 125120 (2019).
- [2] M. Kitamura, M. Kobayashi, E. Sakai, M. Minohara, R. Yukawa, D. Shiga, K. Amemiya, Y. Nonaka, G. Shibata, A. Fujimori, H. Fujioka, K. Horiba, and H. Kumigashira, *Phys. Rev. B* **100**, 245132 (2019).
- [3] K. Nishio, N. Nakamura, K. Horiba, M. Kitamura, H. Kumigashira, R. Shimizu, and T. Hitosugi, *Appl. Phys. Lett.* **116**, 053901 (2020).

固体物理学研究部門

熊井 玲児

物質構造科学研究所放射光科学第一研究系

総合研究大学院大学高エネルギー加速器科学研究科物質構造科学専攻

1. 概要

固体物理学研究部門は、物質中のミクロからメゾスコピックな領域の構造や電子状態から、マクロな物性を理解するために、実験的あるいは理論的な研究を行っている。また、これらの知見をもとに、新奇な物性の開拓や新たな材料の開発を推進している。部門内では5名のPIがそれぞれ研究グループを形成して活動し、研究対象は学術的に興味ある物理現象から、応用面で重要な材料の物性まで広範囲にわたる。実験手法としては精密X線結晶構造解析、共鳴X線散乱、X線磁気散乱などをはじめとした放射光X線の利用に加え、中性子やミュオンなど、物構研の特徴でもあるマルチプローブによる研究を展開している。また、放射光実験施設とも協力して、これらの手法の高度化や、次世代の放射光源も視野にいたれた利用法・解析手法の開発もを行っている。

2. 活動内容

多数の原子や分子、イオンが集合した「凝縮系」では、それらの集合様式によって示す物性に大きな違いをもつ。物質の性質を理解するためには、これらの物質中で集合化した電子の状態を解明することが必須である。このような観点のもと、部門内の各グループでは、PIを中心に国内外の研究者と共同研究を行いつつ、以下のように多様なサイエンスを展開している。

村上グループは2012年からスタートした国家プロジェクトである「元素戦略プロジェクト電子材料研究拠点」に参画し、環境への負荷が少ない元素を用いた材料設計の新しい指針を作成し、材料科学への新しいアプローチの展開として、放射光、中性子、ミュオンを相補的に利用して結晶構造、電子構造、磁気構造の研究を推進している。佐賀山グループは、強相関電子系物質の研究を中心に展開している。スピン、電荷、格子、軌道占有率、軌道角運動量などの複数の自由度に起因するエキゾチックな物理現象がみ

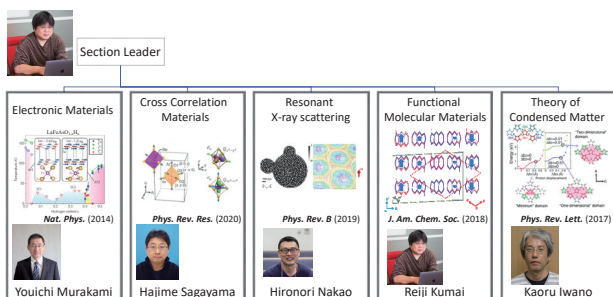
られる強相関電子系物質における交差相関現象の起源解明のために、放射光、中性子、ミュオンの相補的利用を推進している。中尾グループは、共鳴X線散乱を用いて、凝縮系の様々な興味深い現象の解明を目指している。共鳴X線散乱は、物質の電子状態の空間秩序や相関を観測するための強力なツールであり、様々な系へ応用されている。最近では、第2.5世代光源といわれるフォトンファクトリーでもコヒーレント軟X線回折が可能であることを実証し、物性のミクロな起源を解明する鍵となるこの手法を推進している。熊井グループは、分子系のマクロな物性をミクロな結晶構造から明らかにすることを目的とし、様々な分子性結晶や薄膜の構造から、その機能発現機構の解明を進めている。また、電場や圧力など外場下での物性制御と構造変調の観測にも力を入れている。岩野グループは、強相関電子系物質における光誘起相転移現象における電子的・構造的变化を、超高速時間スケールで理論的に研究するとともに、フォトンファクトリーの実験グループと協力して、産業界からの需要が高い高性能永久磁石の理解に向けた研究を行っている。

これらの実験的、理論的研究を推進するにあたり、メンバーのうち、中尾、佐賀山、熊井は、フォトンファクトリー内のX線回折・散乱ビームライン（BL-3A, 4C, 8A/B, ユーザーグループ運営ビームラインBL-4B2, 6C, 10A, および所外ステーションBL-18B）において、担当者としてビームラインおよび実験装置の維持、管理、高度化にもあたっている。

各ビームラインでは、装置の老朽化が進んでおり、ユーザー実験を円滑に進めるための維持・管理を中心に行っているが、スタッフおよびユーザー実験のニーズに合わせた高度化も検討している。アウトプットを最大化するための方策を検討しているが、予算的な制約もあるため、外部資金への積極的な応募を推奨している。

3. 今後の展望

各グループで推進するサイエンスおよびそのための手法が多岐にわたるが、各グループが外部の研究者と協力して研究を進める一方で、部門内で協力する体制も引き続き整えていきたい。また、PF内のビームラインにおいて、新たな手法開拓や装置・解析手法の高度化、自動化なども積極的に行うとともに、将来光源を視野にいれ、展開可能な新たなサイエンス、実験手法の検討を併せて行っていきたい。



構造生物学研究部門

千田 俊哉

物質構造科学研究所放射光科学第二研究系

総合研究大学院大学高エネルギー加速器科学研究科物質構造科学専攻

1. 概要

構造生物学研究部門は、複雑な生命現象を理解するために、放射光及びクライオ電子顕微鏡を利用して生体高分子の立体構造を原子分解能で解明し、その構造情報を利用して生命活動が維持されるメカニズムを分子や原子のレベルで理解することを目的として研究を進めている。この目的を達成するために必要な生化学、分子生物学、生理学的な研究も共同研究を含む形で行う。構造解析の手法に関しても、放射光実験施設との協力の下、推進している。

2. 活動内容

タンパク質結晶構造解析分野においては、タンパク質の発現、精製、結晶化から、回折データ測定、構造決定まで一貫した研究が可能のように幅広い取り組みを行っている。例えば、全自動結晶化スクリーニングロボットを開発するとともに、これに対するデータベースやソフトウェアを開発整備しユーザーに公開している。また、結晶化装置のデータベースは、ビームラインのデータベースとも連携している。2019年度は、全自動測定の高速度化やソフトウェア改良による利便性向上を推進した。*In-situ* 測定に関しても事前登録した結晶化プレート上の複数の結晶位置から一括でデータ収集を行えるようにプログラムを整備した。一方、構造生物学的な研究としては、(1) GTP エネルギー代謝と疾病、(2) 糖鎖と疾病、(3) 感染症、(4) 転写とエピジェネティクス、(5) 酸化還元酵素などのテーマを主に扱ってきた。2019年度の代表的な成果としては、その異常が先天性筋ジストロフィー症の原因となるタンパク質 FKRP の結晶構造に基づいて FKRP による糖鎖合成機構を解明し、筋ジストロフィー症の新たな発症メカニズムを明らかにした研究が挙げられる [1]。これらに加え、GTP エネルギー代謝や酵素の光学利用に関する分野における論文も発表している [2, 3]。また、日本医療研究開発機構 (AMED) の創薬等先端技術支援基盤プラットフォーム (BINDS) 事業に参画し、国内のライフサイエンス研究者の支援をタンパク質の発現から生体高分子の立体構造決定までをサポートしている。

また、2019年度には、2017年度末に導入されたクライオ電子顕微鏡 (Thermo Fisher Scientific, Talos Arctica) の共用を軌道に乗せると共に、クライオ電子顕微鏡の運営資金とするために、クライオ電顕の利用に対する課金制度を4月から開始している。2018年度に AMED の BINDS 事業を通じて共用を開始して以来、アカデミア 39 グループ、企業 15 社のサポートを行ってきた。これまでに 200 種

類以上の試料の解析に関わり、20以上のタンパク質に関して 5Å を超える分解能で解析がなされている。グリッド作成装置や解析手法の開発など、手法面での研究も進めている。

小角散乱を利用した研究は、結晶構造解析などと組み合わせられた相関構造解析としてこの数年で多くの成果を上げてきた。2019年度は、tRNA の修飾酵素 Trm7-Trm734 の複合体構造や、EF ハンド型 Ca²⁺ 結合 S100 タンパク質ファミリーの S10A3 タンパク質などに関する研究が結晶構造との組み合わせによる成果として発表されており、結晶構造解析だけでは到達できない溶液中の構造に対する貴重な情報を得ている [4, 5]。

3. 今後の展望

現在は、一つのタンパク質を多面的に研究する必要性が高まっており、相関構造解析の手法が欠かすことができない。例えば、結晶構造だけでなく溶液中の構造情報を得るために小角散乱との併用をするような解析をするなどして、その結果をタンパク質の構造と機能の関係の研究にまで発展させることが必要である。自動化に関しても、精製タンパク質の溶液散乱、結晶化、回折データ測定のためのデータベースの統合や AI 利用による利便性の向上だけでなく、相関構造解析サポートするという観点でも開発を進める必要がある。

構造生物学の研究においては、引き続き主要分野での研究を行っていくとともに、物構研で開発している測定と解析の自動化を最大限に利用した研究を進めることで、全自動解析技術のアピールと普及も行う。また、構造データと生物学的な機能を細胞内の過程を経て繋げていくためには、立体構造データをゲノムデータ、代謝産物、脂質等を網羅的に解析する OMICS データと組み合わせながら研究を進め、生体内ネットワークの構造解明の方向へ研究展開を行うとともに、バイオインフォマティクス分野などとの共同作業を積極的に進めたい。

引用文献

- [1] N. Kuwabara *et al. Nat. Commun.* **11**, 303 (2019).
- [2] R. Naffouje *et al. Cancers* **11**, 1346 (2019).
- [3] A. Koesoema *et al. Appl. Microbiol. Biotechnol.* **103**, 9543 (2019).
- [4] A. Hirata *et al. Nucl. Acid Res.* **47**, 10942 (2019)
- [5] Ite K. *et al. ACS Omega*, **5**, 4032 (2020)

材料科学研究部門

木村 正雄

物質構造科学研究所放射光科学第二研究系

総合研究大学院大学高エネルギー加速器科学研究科物質構造科学専攻

1. 概要

【グループのミッション】

我々は、人々の生活を豊かにする、材料の創製やプロセス開発、物質の機能発現の理解、に資するサイエンスを目指し、物構研のメンバーはもちろん、国内外の産官学のユーザーと連携して研究を進めている。そのために必要となる観察技術を、関連する部門と協力して研究・開発し、それを活用した研究および共同利用を展開している。具体的には、X線吸収分光 (XAFS)、顕微分光法を軸に、(a) 材料の不均一 (heterogeneity), (b) 反応の時分割計測 (dynamics), (c) 表面 / 界面現象 (surface/interface), の3つの視点から、高度の観察技術を用いた研究を進めている (図1) [1]。

【ビームラインの高度化視点】

ビームラインの高度化を進めるに際して、特に以下の四点を重点項目としている。

- (1) 材料の不均一性を明らかにすること (heterogeneity),
- (2) 材料の時間変化を明らかにすること (dynamics),
- (3) 表面 / 界面の現象を明らかにすること (surface/interface),
- (4) 計測基盤技術の高度化 (自動化, 標準化を含む)

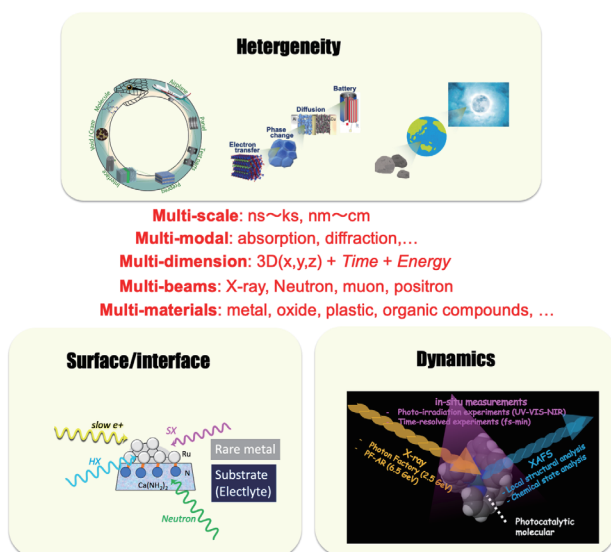


図1 材料科学研究部門の研究ターゲット

2. 活動内容

【ビームライン整備】

当グループが管理するビームラインは、産官学の様々な研究者が無機 / 有機の多様な材料を持ち込んで実験を行い、実験環境に対するニーズも年々多様化している。それに応えるべく様々なビームラインの環境整備を実施している。XAFS 実験の効率化のため、*in situ* ガス自動化システム (@BL-9C, AR-NW10A), ハイスループット XAFS 実験ステーションの自動測定 (@BL-12C) が順調に稼働している。BL-15A1 ではアンジュレータからの高輝度セミアイクロビーム (20 μm 径) を用いて X線吸収分光 (XAS), X線蛍光分析 (XRF), X線回折 (XRD) の同視野観察が可能である。

ここ数年特に X線顕微鏡の整備に力をいれてきた。上述した BL-15A1 での「XAS/XRF /XRD mapping」, BL-19A/B での「走査型透過 X線顕微鏡 (STXM)」, NW2A での「X線吸収分光顕微鏡 (XAFS-CT)」, を整備してきた (図2)。さらに、*in house* X線を用いた X-CT も合わせて、広いエネルギー域 (硬軟 X線), マルチスケール ([視野; 空間分解能] = [μm ; 数 10nm] ~ [10mm; 数 μm]), マルチモード (吸収分光, 回折) での顕微鏡が、ひとつのグループで利用できるユニークな体制となっている。そうした特徴を活かして、産学公の様々なニーズに対応して、構造材料, 電池, 有機材料, 金属材料, 地球惑星関連物質, 環境科学, 等の分野で研究を展開している。

ハイスループット化とユーザーの対応のためにビームラインの遠隔化を進めた。特に、BL-12C では、試料自動交換ロボットにより、透過法での標準的な測定の完全自動化

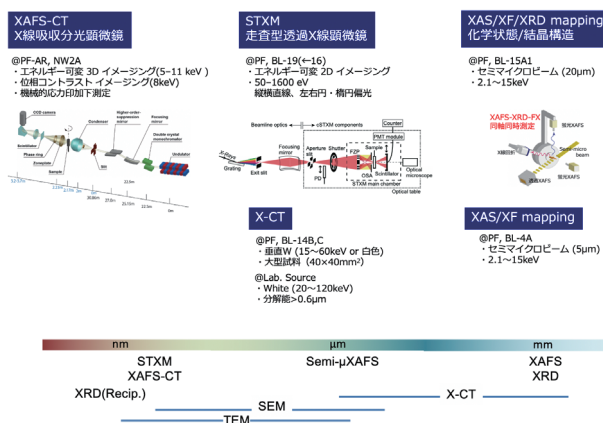


図2 材料科学研究部門が管理・関係している主な X線顕微鏡

を実現している。

NW14A では、衝撃波による試料の変形の時間変化を計測するためのレーザー速度干渉計を設置した。これにより、時間分解 XRD で計測される材料の高圧相転移過程や破壊のトリガーサイトについて、圧力履歴を追跡して精密解析することが可能になった。また、NW2A と NW14A の相補利用により、XAFS & XRD のマルチモーダル測定の実環境整備を行った。

BL-27B は、2019 年度より放射線生物 UG と原子力基盤研究 UG の共同での UG 運営ステーションとなった。非密封 RI (核燃料物質を含む) の XAFS が測定できる実験ステーションとして、福島第一原発事故後の環境修復や廃炉に関する課題が実施されている。また、XAFS 測定のための制御システムを、他の XAFS ビームラインと共通のものに更新し、ユーザーの利便性を高めた。

【グループ内活動】

必要に応じてグループミーティングを開催し、情報交換、活動報告、研究報告、今後の方針等の議論を行った。

【学会等対外活動】

日本 XAFS 研究会庶務幹事、国際 XAFS 学会 (IXAS) Executive Committee、日本放射光学会評議員会等、XAFS 分光分野の発展のための活動を実施した。今後の PF を利用した研究展開を活性化するため、「XAFS・X線顕微鏡分光分析分野での IMSS、PF 戦略的利用に関する研究会」(2019.12.17-12.18)、「量子ビームを活用した食品科学」(2020.1.28-1.29) の PF 研究会を開催した。

さらに、TIA かけはし課題への参加やその Workshop 等に参加・発表する等して、X線吸収分光を新たな分野へ展開する活動を進めた。

一方、X線吸収分光を軸に、国内の放射光施設連携にも積極的に取り組んでおり、光ビームプラットフォーム事業 [3] での HX-XAFS のラウンドロビン実験、他の放射光施設での実験、等、を進めた。国際的な活動も精力的に進めており、国際会議の発表や国内外の施設の XAFS 関係者との連携をすすめている。こうした活動が契機となり International XAFS Round Robin の話が具体化している。PF で XAFS 分光実験を進めるのに必要な各種情報はじめとして当該分野の研究コミュニティに対する情報発信として、ホームページ [1,4] を整備し様々な情報を提供している。

こうした活動を客観的に評価し今後の展開に役立てるため、the Photon Factory Science Advisory Committee (PF-SAC) の材料科学分野の国際評価委員会開催のための準備を進めた (開催は 2020.3 月予定であったが、コロナ禍のために開催は 2020 年度にずれ込み、オンラインで実施することとなった)。

【グループとして推進している研究】

産学公の様々な研究者がユーザーにとって魅力的なビームラインおよび実験環境の整備を行うためには、自らが魅力ある研究を行うことが必要と考え、国家プロジェクトや企業との共同研究をグループとして積極的に推進している。SIP「革新的構造材料」[5]、ACCEL「エレクトライドの物質科学と応用展開」[6]、新学術「水惑星の創成」[7]等の国家プロジェクトでは研究推進の中心母体とし参画し、関連するビームラインの整備を進めている。

Heterogeneity の分野：マルチスケール、マルチモーダルでの顕微鏡法が、ひとつのグループで利用できるという特徴を活かして、産官学の様々なニーズに対応した研究を展開している。具体的には、構造材料のき裂観察、電池の operando 観察、有機材料の微細組織観察、金属材料の微細組織観察、地球惑星関連物質や環境科学での化学状態観察、等の研究を展開している。

Dynamics の分野としては、PF-AR NW2A で CW レーザーを放射光と組み合わせ、数 10 ns の時間スケールでの急昇降温に伴う構造変化を観察する計測法の高度化を進めている。これにより鉄鋼や金属の相変態を利用した材料設計の指針となる研究を進めている。

Surface/interface の分野：in situ XAFS により、触媒と担体の相互作用、新たな触媒の機能発現メカニズムの解明に取り組んでいる。さらに、表面/界面の反応を XAFS 分光を用いて捉える新しい測定手法である Total REflection X-ray Spectroscopy (TREXS) の開発を進め、金属表面の酸化等の動的反応観察に展開している。また、マルチビームを使った触媒の表面反応の研究、食品科学分野への展開、等も進めている。

学術研究を進める一方、産官学連携の拠点となるべく企業の放射光利用推進のための活動にも力をいれている。2019 年度は、8 社の民間企業と共同研究、8 社の施設利用があった。特に、共同研究では、新たなニーズに答えるための計測技術の高度化を進めることにより、企業のイノベーションにつながるフィードバックだけでなく、学術的成果 (学会発表や論文) の創出にもつながっている。

これらのプロジェクトや産業利用で得られた外部資金はそれぞれの研究活動に使われるが、その結果進められた環境整備 (新たな計測設備の設置、検出器更新や光学系の整備) は、共通基盤的なビームラインの整備につながり、大学共同利用機関としての研究環境の充実に大きく貢献している。PF に対する運交金が大幅に削減されたために大幅に不足しているビームラインの整備に必要な経費を補うとともに、不足する PF 運転時間を延ばすための経費を少しでも確保する一助となっている。

3. 今後の展望

今後も、特に以下の点を念頭において、ビームラインや関連設備の環境整備を進めていく。

- (1) 材料の不均一性を明らかにすること (heterogeneity),
- (2) 材料の時間変化を明らかにすること (dynamics),

- (3) 表面 / 界面の現象を明らかにすること (surface/
interface),
- (4) 計測基盤技術の高度化
そして、材料関連の研究の拠点のひとつとして機能することを目指していきたい。

引用文献

- [1] <https://www2.kek.jp/imss/pf/section/material/>, <http://sip-sm4i.kek.jp/>
- [2] <https://pfxafs.kek.jp/beamlines/xafs-beamlines/>
- [3] <http://photonbeam.jp/>
- [4] <https://pfxafs.kek.jp/>
- [5] <http://www.jst.go.jp/sip/k03.html>
- [6] http://www.jst.go.jp/kisoken/accel/research_project/ongoing/h25_01.html
- [7] <http://www.aquaplanetology.jp/>