

5. ビームライン

フォトンファクトリー（PF）には、2.5 GeV の PF リングと 6.5 GeV/5.0 GeV の PF-AR の 2 つの放射光源加速器があり、真空紫外線から硬 X 線まで幅広いエネルギー領域の放射光を利用することが可能である。図に示すように、2022 年度末現在では PF リングに 39、PF-AR に 8 の実験ステーションがあり、それぞれの実験に最適化された装置や制御系が整備されている。これらのビームラインは 10 の測定手法グループと、それらを束ねた 6 のビームライン群に分類されており、放射光共同利用実験審査委員会では、2021 年度に申請された実験課題より、ビームライン群に対応した審査分科で審査されることになった。

実験ステーションのうち、BL-11A、BL-11B、BL-11D は 2022 年度末で閉鎖されることとなった（BL-11 には「開発研究多機能ビームライン」が新たに建設される予定である）。また、PF-AR の SE2A に素粒子原子核研究所が「測定器開発テストビームライン」（AR-TBL）を建設・立ち上げ中である。AR-TBL は放射光ではなく、PF-AR 内に挿入するターゲットから発生する電子ビームを導いて測定器の開発に利用するビームラインである。共同利用実験課題は素粒子原子核研究所に設置される課題審査委員会で審査されるが、立ち上がった後は、放射光共同利用実験課題審査委員会経由でも物質科学の課題を受け付けるようになる予定である。

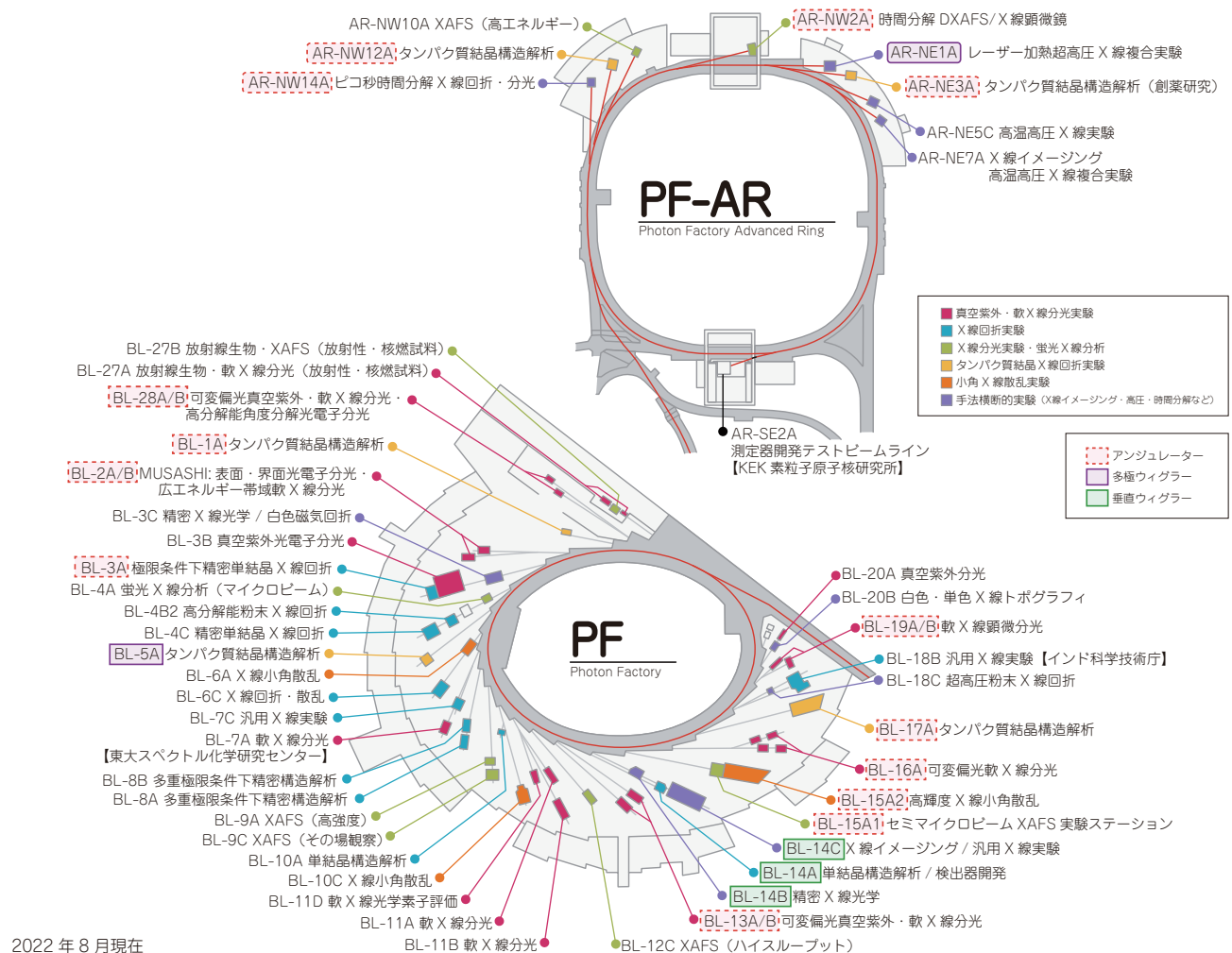


図 PF/AR のビームラインマップ

第1分科

主なサイエンス分野・キーワード：表面科学，原子分子科学，構造物性学，放射線生物学，材料科学，地球惑星科学，環境科学，電子物性学，磁性材料学，触媒化学，分析化学，軟X線光学，医学利用，検出器開発，光学素子評価

主な手法：光電子分光，軟X線吸収分光，軟X線顕微鏡，共鳴軟X線散乱，軟X線反射率，陽電子回折，ポジトロニウム飛行時間

BL	光源	ステーション名
光電子分光		
BL-2A/B	U	MUSASHI: 表面・界面光電子分光，広エネルギー帯域軟X線分光
BL-28A/B	U	可変偏光 VUV・SX 不等間隔平面回折格子分光器 高分解能角度分解光電子分光実験ステーション
BL-3B	BM	真空紫外光電子分光ステーション
BL-11D	BM	軟X線光学素子評価装置用ステーション
BL-13A/B	U	表面化学研究用真空紫外軟X線分光ステーション
軟X線吸収分光		
BL-16A	U	可変偏光軟X線分光ステーション
BL-7A (東大・スペクトル)	BM	軟X線分光 (XAFS, XPS) ステーション
BL-11A	BM	軟X線斜入射回折格子分光ステーション
BL-11B	BM	軟X線 2 結晶分光ステーション
BL-20A	BM	3m 直入射型分光器
BL-27A	BM	放射性試料用軟X線実験ステーション
軟X線顕微鏡		
BL-19A/B	U	軟X線顕微・分光実験ステーション

第2分科

主なサイエンス分野・キーワード：固体物理学，構造物性学，物質物理学，電子物性学，表面科学，磁性材料学，物質化学，材料科学，地球惑星科学，検出器開発

主な手法：粉末X線回折，単結晶X線回折・散乱，共鳴X線散乱

BL	光源	ステーション名
回折・散乱		
BL-3A	SGU	極限条件下精密単結晶X線回折ステーション
BL-4B2	BM	多連装粉末X線回折装置
BL-4C	BM	精密単結晶X線回折ステーション
BL-6C	BM	X線回折・散乱ステーション
BL-7C	BM	汎用X線ステーション
BL-8A	BM	多目的極限条件下ワイセンベルグカメラ
BL-8B	BM	多目的極限条件下ワイセンベルグカメラ
BL-10A	BM	単結晶構造解析ステーション
BL-14A	VW	単結晶構造解析／検出器開発ステーション
BL-18B (インド DST)	BM	Multipurpose Monochromatic Hard X-ray Station

第3分科

主なサイエンス分野・キーワード：物質化学，材料科学，触媒化学，地球惑星科学，環境科学，磁性材料学，放射線生物学，構造物性学，食品科学，エネルギー科学，原子力基盤研究

主な手法：硬X線吸収分光，硬X線顕微鏡，X線反射率

BL	光源	ステーション名
X線吸収分光		
BL-4A	BM	蛍光X線分析 / マイクロビーム分析
BL-9A	BM	XAFS（高強度）ステーション
BL-9C	BM	XAFS（その場観察）ステーション
BL-12C	BM	XAFS（ハイスループット）ステーション
BL-15A1	SGU	XAFS（セミマイクロビーム）実験ステーション
BL-27B	BM	放射性試料用X線実験ステーション
AR-NW2A	U	時間分解 DXAFS / X線顕微鏡
AR-NW10A	BM	XAFS（高エネルギー）ステーション

第4分科

主なサイエンス分野・キーワード：構造生物学，生物物理学，生化学，創薬科学，分子生物学，農芸化学，無機 / 有機化学，ナノ構造科学，放射線物理化学

主な手法：タンパク質結晶X線回折

BL	光源	ステーション名
タンパク質結晶解析		
BL-1A	SGU	タンパク質結晶構造解析ステーション
BL-5A	MPW	タンパク質結晶構造解析ステーション
BL-17A	SGU	タンパク質結晶構造解析ステーション
AR-NE3A	U	タンパク質結晶構造解析ステーション
AR-NW12A	U	タンパク質結晶構造解析ステーション

第5分科

主なサイエンス分野・キーワード：高分子科学，繊維科学，脂質科学，液晶科学，材料科学，食品科学，無機 / 有機化学，ナノ構造科学，構造生物学，生物物理学，生化学，分子生物学

主な手法：小角X線散乱

BL	光源	ステーション名
小角散乱		
BL-6A	BM	X線小角散乱ステーション
BL-10C	BM	X線小角散乱ステーション
BL-15A2	SGU	高輝度X線小角散乱実験ステーション

第6分科

主なサイエンス分野・キーワード：高圧科学，構造物性学，地球惑星科学，電子物性学，物質化学，材料科学，X線光学，医学利用

主な手法：高圧環境下計測，核共鳴散乱，X線トポグラフィー，X線吸収・位相イメージング，CT，時間分解計測

BL	光源	ステーション名
高圧		
BL-18C	BM	超高压粉末X線回折計
AR-NE1A	EMPW	レーザー加熱超高压実験ステーション
AR-NE5C	BM	高温高压実験ステーション /MAX80
AR-NE7A	BM	X線イメージングおよび高温高压実験ステーション /MAX-III
超高速時間分解		
AR-NW14A	U	ピコ秒時間分解X線回折・散乱・分光
X線光学・イメージング		
BL-3C	BM	X線光学素子評価／白色磁気回折ステーション
BL-14B	VW	精密X線光学ステーション
BL-14C	VW	X線イメージングおよび汎用X線実験ステーション
BL-20B	BM	白色・単色X線トポグラフィ / X線回折実験ステーション
AR-NE7A	BM	X線イメージングおよび高温高压実験ステーション

光源の種別

BM：偏向電磁石 通常の放射光

U：アンジュレーター 真空紫外線・軟X線領域の高輝度光が利用できる

SGU：短周期アンジュレーター X線領域の高輝度光が利用できる

(E)MPW：(楕円)多極ウィグラー X線領域の高輝度光が利用できる

VW：垂直ウィグラー 縦偏光で高エネルギー（短波長）X線が利用できる

SP：低速陽電子

BL-2A/B MUSASHI：表面・界面光電子分光，広エネルギー帯域軟 X 線分光

大東 琢治¹，小澤 健一¹，北村 未歩²

¹ 物質構造科学研究所 放射光実験施設，² 物質構造科学研究所 放射光科学第一研究系

1. 概要

BL-2 MUSASHI (Multiple Undulator beamline for Spectroscopic Analysis of Surface and HeteroInterface) は，真空紫外光用と軟 X 線用の 2 台のアンジュレータをタンデム配置して排他的に利用することにより，同一のポートで 35-2000 eV の広範囲に渡って高エネルギー分解能かつ高フラックスな放射光ビームを供給できるビームラインである。

BL-2A ブランチにはエンドステーションとして *in situ* 角度分解光電子分光装置が常設されており，レーザー分子線エピタキシー法等で作製した酸化物薄膜表面やヘテロ界面に対して，偏光可変真空紫外光を用いた角度分解光電子分光や，軟 X 線を用いた内殻光電子分光や共鳴光電子分光等の様々な表面・界面光電子分光測定を同一試料で行うことが可能である。

BL-2B ブランチでは，通常の斜入射回折格子分光器の他に 2 結晶分光器を用いることで，更に広いエネルギー範囲の 35-2000 eV の放射光を同一のポートで利用できる。現在下流側の集光点は，フリーポート (BL-2BF) として持ち込み装置による共同利用実験が可能である。

2. 整備開発および運用状況

2016 年までに，斜入射回折格子分光器と真空紫外光・軟 X 線用アンジュレータの調整が終了し，A/B ブランチともに 35-2000 eV の範囲において設計通りの放射光ビームを利用することが可能となっている。現在 A/B ブランチともに，斜入射回折格子分光器からの真空紫外光・軟 X 線を利用した実験への供用を行っている。

BL-2A ブランチの角度分解光電子分光装置は順調に稼働中である。

BL-2B ブランチでは，下流側のフリーポートにおいて持ち込み装置による共同利用実験を行っている。MB モードでは，デバイスの動作状態での電子状態評価を可能とするオペランド軟 X 線吸収分光の開発とそれを利用した共同利用実験が主に行われている。HB モードでは PF で開発されたパルスセクターを用いた共同利用実験も行われている。

3. ビームタイム利用状況

BL-2 MUSASHI の共同利用実験としては，特に本ビームラインの他にはない特長である，真空紫外光・軟 X 線の相互利用や広エネルギー範囲を生かした利用課題を推奨して，ビームタイム配分を行っている。具体的には，以下のような利用目的が挙げられる。

- (1) 軟 X 線内殻光電子分光と真空紫外角度分解光電子分光の相互利用による化学結合状態とバンド構造の理解
- (2) 軟 X 線角度分解光電子分光と真空紫外角度分解光電子分光の相互利用によるバルク電子状態と表面電子状態の理解
- (3) Li から Al までの *K* 端，*3d* 遷移金属 *L* 端等の軟 X 線吸収分光測定による機能性複合材料の全元素選択的電子状態解析

ユーザー利用としては，BL-2A ブランチの角度分解光電子分光装置では，BL-28 と差別化した高エネルギーの軟 X 線を使用した角度分解光電子分光実験がよく実施されている。特に，元素選択的なバンド構造解明のための軟 X 線共鳴角度分解光電子分光実験の利用が多い。

BL-2 における 2022 年度の代表的な成果として，下記 2 報を挙げる。

S. Kaneta-Takada, M. Kitamura, S. Arai, T. Arai, R. Okano, L. D. Anh, T. Endo, K. Horiba, H. Kumigashira, M. Kobayashi, M. Seki, H. Tabata, M. Tanaka and S. Ohya, Nat. Commun. **13**, 5631, (2022).

T. Kanda, D. Shiga, A. Wada, R. Hayasaka, Y. Masutake, N. Hasegawa, M. Kitamura, K. Yoshimatsu and H. Kumigashira, Commun. Mater. **4**, 27, (2023).

4. 今後の展望

現在，利用を停止している 2 結晶分光器について，4000 eV までの利用が可能になるように再調整を行なっている。

BL-28A/B：可変偏光 VUV・SX 不等間隔平面回折格子分光器 高分解能角度分解光電子分光実験ステーション

小澤 健一¹, 北村 未歩²,

¹ 物質構造科学研究所 放射光実験施設, ² 物質構造科学研究所 放射光科学第一研究系

1. 概要

BL-28A/B は可変偏光アンジュレータと不等間隔平面回折格子を用いた可変偏角 Monk-Gillieson 型分光器を備えたビームラインであり、30-300 eV の真空紫外光、軟X線で、左右円偏光、垂直・水平直線偏光を用いた研究が行われている。ビームラインは2つのブランチからなり、分岐ミラーの切り替えにより排他的な利用を行っている。BL-28A は高分解能角度分解光電子分光 (ARPES) ビームラインである。2016 年度から 2020 年度にかけて光電子分光アナライザーと後置集光鏡の更新を順次進め、マイクロメートルサイズにまで集光したビームを利用した ARPES 測定が可能なシステムとして運用が開始されている。BL-28B ブランチはユーザー装置の持ち込みが可能なフリーポートとしての運用を行っている。

2. 整備開発および運用状況

BL-28A では国際的競争の激しい新物質の電子構造研究において主導権を握ることができるよう、高分解能・高精度の ARPES 実験が可能なビームラインとして整備している。経年に伴うビームラインの老朽化があるものの、ARPES 測定の共同利用実験では順調に成果を上げてきた。そのような中で、2016 年度からは偏向電子レンズ走査による新しい ARPES 装置 (Scienta Omicron, DA30) の整備を進め、2019 年度から運用を開始した。さらに 2020 年度には、CREST「ナノスピン ARPES によるハイブリッドト

ポロジカル材料創製」の競争的資金を得て、トロイダル集光鏡から Kirkpatrick-Baez (K-B) ミラーに光学系を更新した (図 1) [1]。これにより、これまでのトロイダルミラーの使用で 300 μm (H: 水平方向) $\times$ 200 μm (V: 垂直方向) であったスポットサイズを 10 μm (H) $\times$ 12 μm (V) にまで集光できるようになり、マイクロビームを使った ARPES 実験 (μ -ARPES 実験) が可能になった。

BL-28B はフリーポートであり、ユーザー装置の持ち込み利用を想定している。分岐ミラーによる反射でブランチ B に光を導入し、トロイダル鏡を使った集光によりビームサイズ 100 μm (H) $\times$ 40 μm (V) の光を供給している。

COVID-19 により大きく進んだりリモート化に関しては、BL-28A/B では NoMachine を介した測定環境が整い、2022 年度を通じて運用している。ただし、試料トランスファーなどは現場で行う必要があるため、完全なリモート化はできていないのが現状である。

3. ビームタイム利用状況

BL-28A/B の共同利用実験では、本ビームラインの特長である低エネルギー (特に 30-100 eV) で高分解能の偏光可変真空紫外・軟X線放射光を活かした利用課題に重点を置いてビームタイム配分を行っている。2022 年度は、延べ数で S2 課題 5 件、G 課題 27 件にビームタイムを配分した。ブランチ A の利用が 85%、ブランチ B が 15% であった。

2022 年度に発表された BL-28A/B を利用した研究成果と

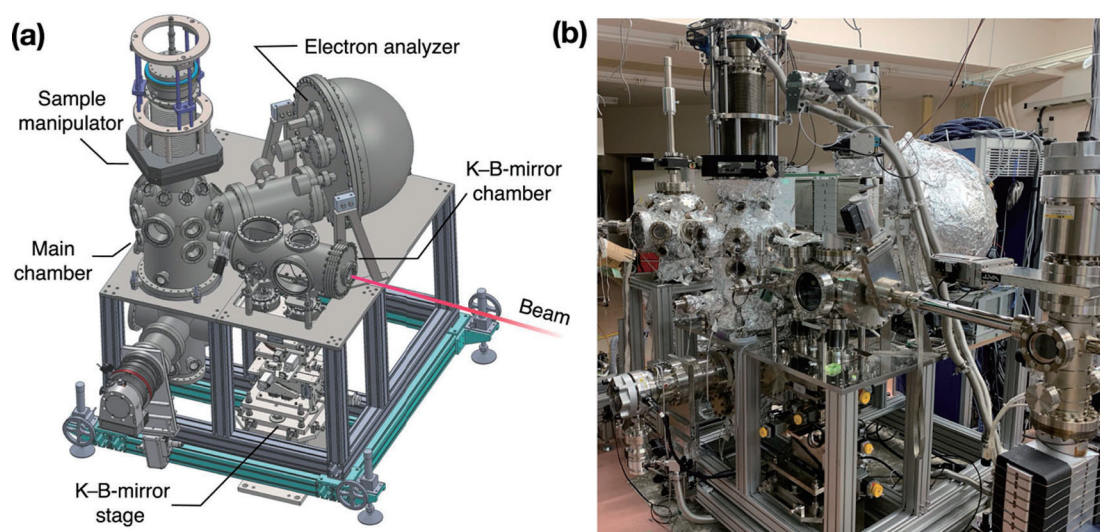


図 1 BL-28A の μ -ARPES 測定システム [1]

しては、カゴメ格子金属 CsV_3Sb_5 の ARPES 測定による価電子バンド構造解析で超伝導の発現機構の一端を明らかにした研究 [2]、マイクロメートルサイズの微小な硫化ホウ素結晶の価電子バンド構造を μ -ARPES 測定で決定した研究 [3] などが挙げられる。

4. 今後の展望

今後も BL-28A の ARPES システムを用いて、第3世代放射光源での実験に匹敵するユーザー利用実験を進めていく。特に、大きな結晶試料が得られない新規物質群の電子構造解析に、マイクロビームを利用することでいち早く取り組むことが可能なため、プライオリティ競争にも積極的に参加できるだろう。フリーポートである BL-28B ブランチの利用が徐々に増えており、ユーザーからのリクエストに応えた測定環境整備も進める予定である。

引用文献

- [1] M. Kitamura *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **93**, 033906 (2022).
- [2] T. Kato *et al.*, Phys. Rev. Lett. **129**, 206402 (2022).
- [3] K. Sugawara *et al.*, Nano Lett. **23**, 1673 (2023).

BL-3B：真空紫外光電子分光ステーション

櫻井 岳暁¹, 前島 尚行², 枝元 一之², 吉信 淳³, 山田 洋一¹,
奥平 幸司⁴, 小澤 健一⁵, 間瀬 一彦⁵
¹筑波大学 数理物質科学研究科, ²立教大学 理学部化学科, ³東京大学 物性研究所,
⁴千葉大学 大学院工学研究科, ⁵物質構造科学研究所 放射光実験施設

1. 概要

BL-3B は, 2015 年度に PF と表面科学ユーザーグループ (UG) との間で結ばれた協定に基づき, UG 運営ステーションとして運営されている。

ベンディングマグネットからの光を利用する BL-3B は, 定偏角分光器を主体とする光学系を備え (図 1) [1], 10-300 eV の真空紫外 (VUV) から軟 X 線 (SX) 領域をカバーするビームラインである (図 2)。エンドステーションには, マイクロチャンネルプレートにより光電子検出感度を高めた VSW 社製 HA54 エネルギー分析器を備えた角度分解光電子分光 (ARPES) 装置—ARPES II—が常設され, 固体表面・界面の電子構造解析を目的とした研究が行われている。BL-3B は現在の PF では貴重な 100 eV 以下の

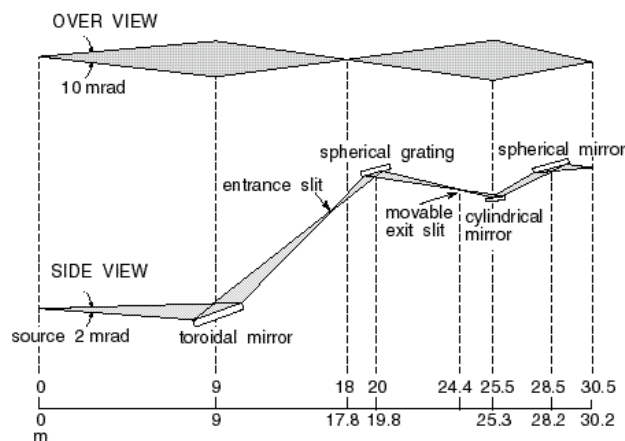


図 1 BL-3B の光学系の概略 [1]

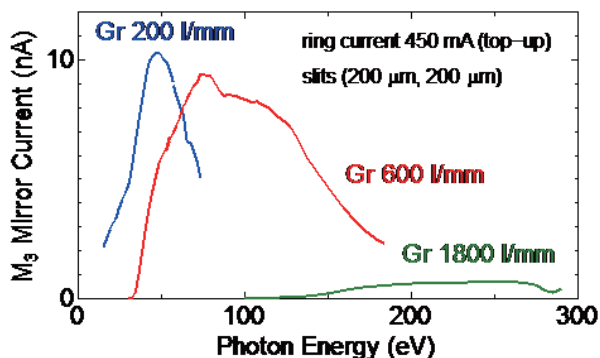


図 2 光強度のエネルギー依存性。3 枚のグレーティングで 10-300 eV をカバーする。

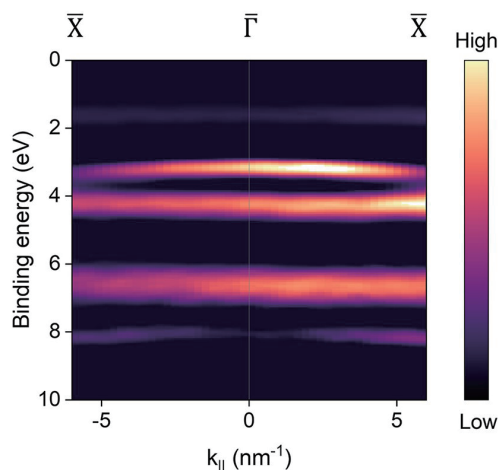
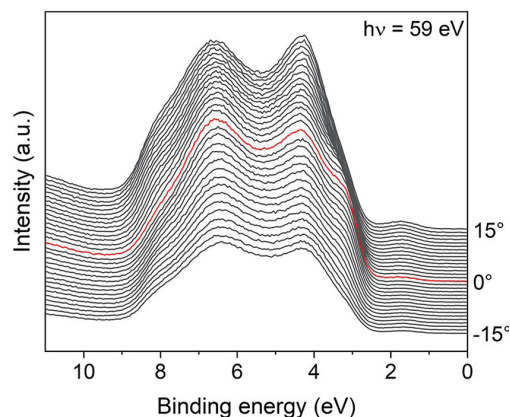


図 3 水分解光触媒 $\text{Bi}_4\text{V}_2\text{O}_{11}$ 単結晶薄膜の価電子帯 ARPES スペクトル (上) と二階微分強度をプロットして作成したバンド分散図 [2]。

VUV 光を利用できるビームラインであり, 価電子帯, および浅い内殻準位に対して表面敏感な ARPES 測定を高エネルギー分解能で行うことができる (図 3)。ARPES II にはオージェ電子分光器と低速電子回折 (LEED) 光学系が設置されており, 固体表面研究に欠かせない表面元素分析や表面結晶方位といった情報も得られるようになっている。

測定試料はロードロックから搬入でき, ロードロックへの試料設置から最短 1 時間で ARPES 測定ができる。測定時に試料は Vacuum Generators 社製の 5 軸 Omniax マニピュレータに設置するが, このマニピュレータには, 試料加熱機構 (電子衝撃加熱と通電加熱) と液体窒素冷却機構が

備わっており、 -100°C から 1200°C までの温度制御ができる。ARPES II には、12 時間ベーキングで 10^{-8} Pa の超高真空を作れる試料準備槽が接続されており、蒸着銃の設置等によりユーザーごとに試料作製環境を整えることが可能である。

以上のようなビームラインとエンドステーションの特性を活かし、光触媒材料の電子状態研究 (図 3) [2], 超薄膜の電子物性研究 [3], 貴金属単結晶 (111) 表面での Shockley 準位の分子吸着に対する応答研究 [4], 金属リン化合物触媒表面の原子組成と電子構造の相関研究 [5], 有機半導体の電子物性研究 [6, 7] などが実施され、成果を挙げている。

BL-3B のユーザーは、48 – 2000eV の VUV-SX 領域のアンジュレータ光を用いた高分解能光電子分光測定が可能な BL-13B の SES200 装置のユーザーである場合が多い。BL-3B のビームタイムは BL-13B に比べて比較的長く配分されるため、このようなユーザーは、試料調製の最適条件を決めるような時間のかかる実験や、放射光実験の経験が浅い学生の教育を兼ねた実験を BL-3B で行った上で BL-13B での測定に臨むといった使い方をしている。

2. 整備開発および運用状況

ビームラインおよび ARPES II 装置の保守・整備・運用は、所内光電子分光グループ担当者と協議の上、表面科学 UG の代表者および若干名からなる運営ワーキンググループ (以下運営 WG) が行っている。運営 WG の主な実務は以下の通りである。

- ・施設担当者と協力して分光器、実験装置の維持管理を行う。
- ・ビームタイム配分原案を作成し、施設の確認、修正、承認を得る。
- ・新規ユーザーの教育を行う。

2010 年度以降、継続的に行ってきたビームライン / ARPES II 装置の整備開発は以下の通りである。

- (1) 排気系改良によるビームライン最下流チャンバーの超高真空化
- (2) トランスファーによる試料搬送機構の設置と SES200 装置との試料ホルダーの共通化 (2010 年 1 月)
- (3) 試料準備槽の設置 (2011 年 11 月)
- (4) 分光器プログラムの更新 (STARS 利用) (2014 年 11 月)
- (5) Omniax マニピュレータへの通電加熱システムの設置 (2015 年 8 月)
- (6) 試料ロードロックの設置 (2016 年 8 月)
- (7) 電子エネルギー分析器 (CMA) と試料マニピュレータの衝突防止装置の設置 (2017 年 8 月)
- (8) LEED 光学装置 (OCI Microengineering 社製) の更新 (2022 年 4 月)

これらの整備開発作業と、装置故障への対処は全て表面科学 UG により行ってきた。

3. ビームタイム利用状況

2022 年度は、延べ数で G 型課題 7 件, S 型課題 7 件 (S2 課題 1 件で延べ 7 グループ) の利用があった。ビームタイムを希望する全グループが利用できることを配分方針としており、2022 年度もその方針に沿ったビームタイム配分を行った。

また、2022 年度には初めて加速器科学インターンシップに参加し、学部 4 年生 2 名が 2 日間のビームタイムを利用して光電子分光実験を行った。これらの学部生は、2023 年度以降は修士課程の学生として PF を利用する予定である。

4. 今後の展望

BL-3B と ARPES II 装置は、ともに運用開始からかなりの時間が経過した非常に古い装置であり、老朽化に伴う様々な不具合が頻発してきた。そのため、現状の性能を維持することが最優先となっている。一方で、ユーザーの要望に応じて試料調製のような利用環境の整備を随時進めている。今後も、この方針に沿って運用する予定である。また、2023 年度も加速器科学インターンシップに参加する予定である。

引用文献

- [1] A. Yagishita, T. Hayaishi, T. Kikuchi, and E. Shigemasa, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **306**, 578 (1991).
- [2] J. Liu, K. Ozawa, N. Uezono, A. A. Pawar, S. Suzuki, A. Traoré, M. M. Islam, K. Mase, and T. Sakurai, J. Phys. Chem. C, submitted (2023).
- [3] Y. Sugizaki, H. Motoyama, K. Edamoto, and K. Ozawa, e-J. Surf. Sci. Nanotechnol. **16**, 236 (2018).
- [4] H. Mizushima, H. Koike, K. Kuroda, Y. Ishida, M. Nakayama, K. Mase, T. Kondo, S. Shin, and K. Kanai, Phys. Chem. Chem. Phys. **19**, 18646 (2017).
- [5] Y. Sugizaki, Y. Shimato, T. Yoshida, R. Sugimoto, N. Maejima, and K. Edamoto, Jpn. J. Appl. Phys. **58**, SIIC02 (2019).
- [6] K. Ozawa, S. Yamamoto, M. D'angelo, Y. Natsui, N. Terashima, K. Mase, and I. Matsuda, J. Phys. Chem. C **123**, 4388 (2019).
- [7] A. L. Foggiatto, H. Suga, Y. Takeichi, K. Ono, Y. Takahashi, K. Kutsukake, T. Ueba, S. Kera, and T. Sakurai, Jan. J. Appl. Phys. **58**, SBBG06 (2019).
- [8] T. Miyazawa, Y. Kano, Y. Nakayama, K. Ozawa, T. Iga, M. Yamanaka, A. Hashimoto, T. Kikuchi, and K. Mase, J. Vac. Sci. Technol. A **37**, 02160 (2019).

BL-11D：軟 X 線光学素子評価装置用ステーション

間瀬 一彦, 菊地 貴司
物質構造科学研究所 放射光実験施設

1. 概要

BL-11D は 2010 年から光学素子評価用ステーションとして利用されている。本ステーションは等間隔直線刻線の球面回折格子を用いた可変偏角型分光器を備えており (図 1), 60 ~ 900 eV の水平直線偏光を利用できる [1]。焦点位置には回折格子や多層膜の反射率などを測定できる光学素子評価装置 (図 2) が常設されており, 入射角 5° から 89° までの反射率測定が可能である。検出器の回転アームは 200 mm と比較的長いので, 入射ビームを絞ること, 細い検出器スリットを用いることにより, 0.1° 以下の角度分解能での測定が可能である。試料台には最大直径 200 mm の試料あるいは小さな試料を複数個載せることができ, パソコン制御により一度の試料設置で一連の測定を行うことができる。本装置には 1 台の 500 L/s のターボ分子ポンプが設置されており, 到達圧力は 1×10^{-5} Pa 以下, 排気開始から測定開始までは数時間である。光学素子評価用装置の下流には持ち込み装置用スペースが用意されている。このスペースに表面コインシデンス分光装置 (図 3) [2] を設置してオージェ電子-光電子コインシデンス分光, 電子-イオンコインシデンス分光を用いた表面局所電子状態, 内殻正孔緩和ダイナミクス等の研究が行われている。

2. 整備開発および運用状況

ビームラインの調整および光学素子評価装置の整備はユーザーである羽多野忠氏 (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) と協力して行っている。また, 表面コインシデンス分光装置もユーザーと協力して整備している。その結果, 1 年間にわたり安定して使用できる状況を維持できた。

反射率計の仕組

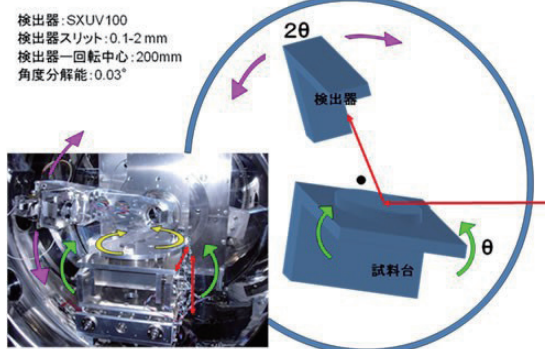


図 2 光学素子評価装置の概念図

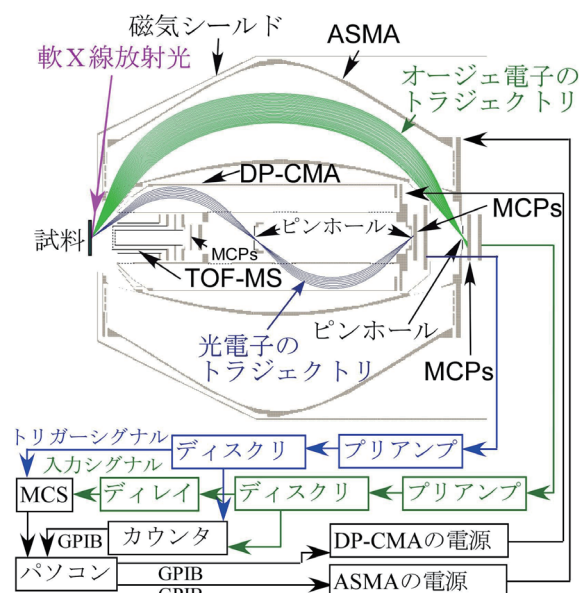


図 3 表面コインシデンス分光装置の模式図

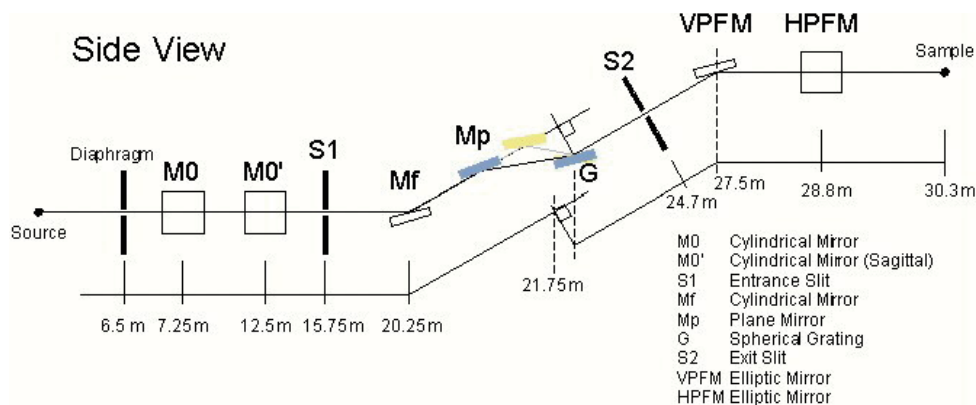


図 1 BL-11D の光学系の概略図。数値は光源からの距離。

3. ビームタイム利用状況

2022 年度の装置別、期別ビームタイム配分結果を表 1 に示す。ビームタイムを希望する全グループが利用できることを配分方針としており、2022 年度もその方針に沿ったビームタイム配分を行った。2022 年度は新型コロナウイルス感染症流行の影響で表面コインシデンス分光装置利用研究は行われなかった。また、産業利用としては、一般施設利用ビームタイムとして第 1 期 26 時間、第 2 期 26 時間、第 3 期 16 時間の合計 68 時間を配分した。

表 1 2022 年度の装置別、期別ビームタイム配分結果。産業利用促進用留保ビームタイムの再配分も含む。単位は日。

	調整	反射率 測定	表面コイン シデンス 分光	持込み 装置	未配分	合計
第 1 期	0.0	15.08	0.0	16	22.92	54
第 2 期	0.0	14.08	0.0	18	42.33	74.33
第 3 期	0.0	4.67	0.0	1	16.67	22.33
合計	0.0	33.83	0.0	35	81.92	155.67
割合	0.0%	22.45%	0.0%	23.23%	54.37%	100%

4. 今後の展望

PF では新放射光源建設に向けた開発研究多機能ビームラインの建設スペースを確保するために、BL-11D は 2022 年度末で閉鎖された。BL-11D のアクティビティを可能な限り継続するために、BL-12A に新しい BL 1 本を建設して、BL-7A、27A 等を含めた軟 X 線 BL 群で BL-11D のユーザーを受け入れる予定である。

引用文献

- [1] Photon Factory activity Report 1997 **15A**, 101 (1997).
- [2] K. Mase, K. Hiraga, S. Arae, R. Kanemura, Y. Takano, K. Yanase, Y. Ogashiwa, N. Shohata, N. Kanayama, T. Kakiuchi, S. Ohno, D. Sekiba, K. K. Okudaira, M. Okusawa, and M. Tanaka, J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 094704 (2014).

BL-13A/B：表面化学研究用真空紫外軟 X 線分光ステーション

間瀬 一彦, 小澤 健一, 豊島 章雄, 菊地 貴司, 田中 宏和
物質構造科学研究所 放射光実験施設

1. 概要

可変偏光真空紫外・軟 X 線分光ステーション BL-13A/B の目的は角度分解紫外光電子分光, 内殻光電子分光, 軟 X 線吸収分光などを用いて表面化学および有機薄膜, 物質科学研究等を推進することである。本ステーションは APPLE-II 型可変偏光アンジュレータと不等刻線間隔平面回折格子を用いた斜入射分光器 [1-3] を備えており, 48 ~ 2,000 eV の水平直線偏光, 102 ~ 2,000 eV の垂直直線偏光, 74 ~ 700 eV の左右円偏光, 59 ~ 2,000 eV の左右楕円偏光を利用できる。本ステーションの配置図を図 1 に示す。振り分け鏡を抜いた状態で 13A が使用でき, 振り分け鏡を入ると 13B が使用できる。振り分け鏡は Au, Ni, Cr の金属コート面で構成されており, Ni コート面, Cr コート面を利用すると効率よく高次光を除去できる [4]。13A の第一焦点位置には 2018 年度第 1 期までユーザー持込みのコンパクト走査型透過 X 線顕微鏡 (cSTXM) [5,6] が設置されていたが, 2018 年夏に BL-19A に移動した。cSTXM 移動後の 13A 第一焦点位置は軟 X 線発光分光, 軟 X 線散乱, 大気圧軟 X 線吸収分光, 軟 X 線小角散乱, 軟 X 線時間分解測定などのユーザー持ち込み装置用のスペースとして利用している。一方, 13B の第一焦点位置には光電子分光装置 (SES200, Gamma/Scienta, 図 2) が常設され, 高分解能角度分解光電子分光, 高分解能内殻光電子分光, 高分解能軟 X 線吸収分光が行われている [7]。13B の第二焦点位置にはユーザー持込みの準大気圧 X 線光電子分光装置 (AP-XPS) が設置されていて, 貴金属触媒表面上での化学反応の研究などが行われている [8]。さらに, 第一焦点と第二焦点の中間位置には低温領域でも試料温度を精密に制御できるユーザー持込みの光電子分光装置 (Phoibos100, SPECS) が設置されており, 表面上に吸着した分子の化学状態等の研究が行われている [9]。

2. 整備開発および運用状況

2014 年 2 月に BL-13 用挿入光源として APPLE-II 型可変偏光アンジュレータが導入されたことに伴い, 放射線遮蔽

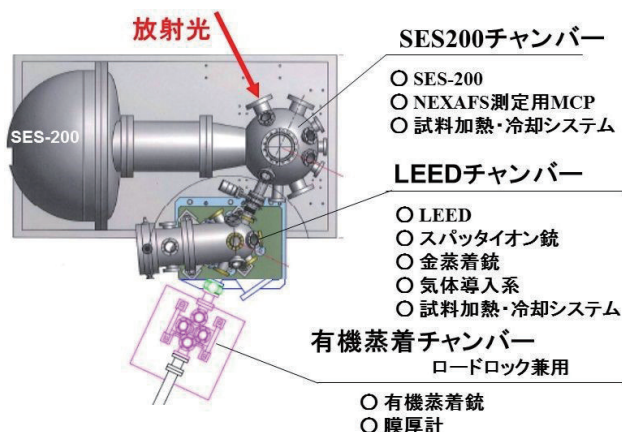


図 2 光電子分光装置 (SES200, Gamma/Scienta) の構成

を増強するとともに, 出射スリットを最適位置に移動して, ビームラインの再調整を行った。その結果, 水平直線偏光, 光エネルギー 401 eV, 光強度 2.3×10^{11} 光子 / 秒において最高分解能 $E/\Delta E = 10,000$ を達成するとともに, 50 eV 以上での光強度を 1 桁程度改善した (図 3)。また, 13A の第一焦点位置でのスポットサイズは (水平) $220 \mu\text{m} \times$ (垂直) $49 \mu\text{m}$ であった。酸素を導入しながら非分光光を照射して振り分け鏡の Cr コート面の炭素汚染を除去することにより, 炭素 K 吸収端領域において 13B に高次光の少ない高強度の光を供給できるようにした [4]。また, 年数回ユーザーに協力してもらって SES200 光電子分光装置の保守を行ない安定して使用できる状況を維持している。2020 年度夏には高精度 $xyz\theta$ ステージを導入した [10]。また, BL-13B の後置鏡チェンバーに 2 m:0.8 m のトロイダルミラーを設置し, このミラーの焦点位置に SES200 光電子分光装置を移動して, 低温冷却機構と面内回転機構, 傾き調整機構を備えたゴニオメーターを導入した。2021 年度には BL-13B の第一焦点位置での放射光スポットサイズを約 $80 \mu\text{m}$ (水平) $\times$ $15 \mu\text{m}$ (垂直) まで縮小するとともに, 高精度 $xyz\theta$ ステージと, 面内回転機構, 傾き調整機構を備えたゴニオ

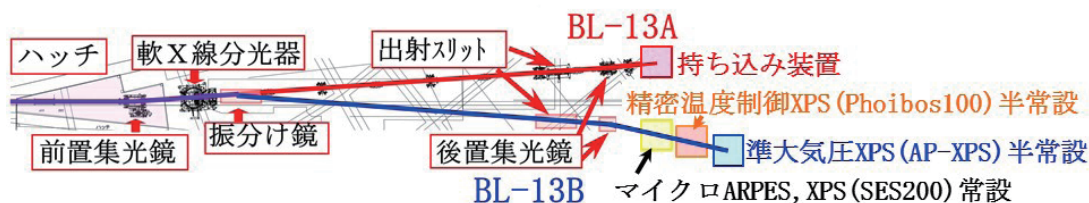


図 1 BL-13A/B の配置図

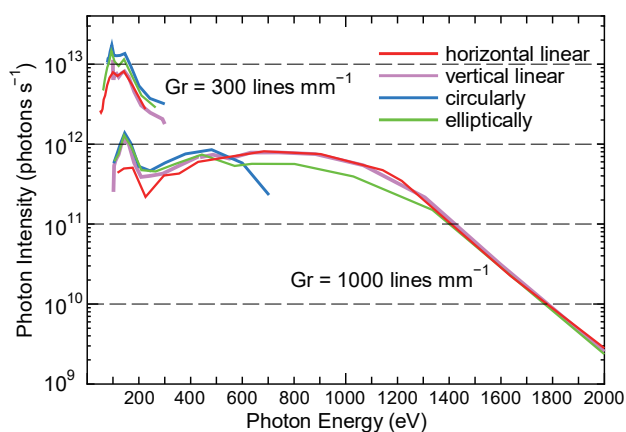


図3 BL-13Aにおける光強度の光エネルギー依存性。赤は水平直線偏光、ピンクは垂直直線偏光、青は円偏光、緑は楕円偏光。Grは回折格子を表す。

メーターを活用してマイクロ光電子分光，マイクロ軟X線吸収分光，マイクロ角度分解光電子分光測定を開始した[11]。

3. ビームタイム利用状況

2022年度の装置別，期別ビームタイム配分結果を表1に示す。有償利用，評点の高い課題を優先するとともに，13Aと13Bを交互に使用することで，試料作製，装置調整時間を確保し効率よく実験できるように配分した。また，産業利用としては，一般施設利用ビームタイムとして第1期6時間，第2期27時間，第3期0時間の合計33時間を配分した。

4. 今後の展望

2014年に可変偏光アンジュレータを導入した結果，世界的競争力が増してユーザーと課題，有償利用が増え，質の高い研究と人材育成ができるようになった。2021年度にはマイクロ光電子分光，マイクロ軟X線吸収分光，マイクロ角度分解光電子分光測定を開始し，また試料を液体ヘリウムで20 Kまで冷却して測定できるようにもなり，こ

れまで以上に競争力の高い研究を行える環境を整えた。今後は既存の装置を改良しつつ新規ユーザーを開拓するとともに，持ち込み装置を用いた興味深い研究に取り組むユーザーを呼び込む。また，学会等で本ビームラインの研究成果を報告し，民間研究者の利用を呼びかけるなどして産業利用を促進する。

引用文献

- [1] K. Amemiya and T. Ohta, J. Synchrotron Rad. **11**, 171 (2004).
- [2] K. Mase, A. Toyoshima, T. Kikuchi, H. Tanaka, K. Amemiya and K. Ito, AIP conference proceedings **1234**, 703 (2010).
- [3] A. Toyoshima, H. Tanaka, T. Kikuchi, K. Amemiya and K. Mase, J. Vac. Soc. Jpn. **54**, 580 (2011).
- [4] A. Toyoshima, T. Kikuchi, H. Tanaka, K. Mase and K. Amemiya, J. Synchrotron Rad. **22**, 1359 (2015).
- [5] Y. Takeichi, N. Inami, H. Suga, K. Ono and Y. Takahashi, Chem. Lett. **43**, 373 (2014).
- [6] Y. Takeichi, N. Inami, H. Suga, C. Miyamoto, T. Ueno, K. Mase, Y. Takahashi and K. Ono, Rev. Sci. Instrum. **87**, 013704 (2016).
- [7] A. Toyoshima, T. Kikuchi, H. Tanaka, K. Mase, K. Amemiya and K. Ozawa, J. Phys.: Conf. Ser. **425**, 152019 (2013).
- [8] R. Toyoshima, M. Yoshida, Y. Monya, Y. Kousa, K. Suzuki, H. Abe, B. Mun, K. Mase, K. Amemiya and H. Kondoh, J. Phys. Chem. C **116**, 18691 (2012).
- [9] S. Shimizu, H. Noritake, T. Koitaya, K. Mukai, S. Yoshimoto and J. Yoshinobu, Surf. Sci. **608**, 220 (2013).
- [10] Y. Aiura, K. Ozawa, K. Mase, M. Minohara and S. Suzuki, J. Synchrotron Rad. **27**, 923 (2020).
- [11] K. Ozawa, Y. Aiura, D. Wakabayashi, H. Tanaka, T. Kikuchi, A. Toyoshima and K. Mase, J. Synchrotron Rad. **29**, 400 (2022).

表1 2022年度の装置別，期別ビームタイム配分結果。産業利用促進用留保ビームタイムの再配分も含む。単位は日。

	調整	SES200	Phoibos 100	AP-XPS	軟X線発光	軟X線散乱	大気圧軟X線吸収	軟X線小角散乱	軟X線時間分解計測	光学素子評価	合計
第1期	0.5	21.5	1.5	7	10	0	1.5	3.5	8.5	0	51.7
第2期	0.5	33.3	0.5	11	15	0	5.5	0	8	0	73.8
第3期	0	13	0	5	0	0	2	0	2.3	0	22.3
合計	1	67.8	2	23	25	0	9	3.5	18.8	0	150
割合	0.7%	45.2%	1.3%	15.3%	16.7%	0%	6%	2.3%	12.5%	0%	100%

BL-16A：可変偏光軟 X 線分光ステーション

雨宮 健太

物質構造科学研究所 放射光科学第一研究系

1. 概要

APPLE-II 型アンジュレータを光源とし、円偏光、垂直・水平直線偏光など、軟 X 線領域の各種偏光が利用できるビームラインである。2 台のタンデム配置アンジュレータとキッカー電磁石を組み合わせることで 10 Hz の偏光スイッチングが可能である [1]。不等刻線間隔平面回折格子を用いた斜入射分光器により、250-1500 eV 程度の単色軟 X 線を利用することができる [2]。また、高いフラックスや偏光スイッチングを活かした先端的な測定手法の開発にも力を入れている [3-7]。ビームラインとして管理・運用している装置 (1.2T-XMCD, 5T-XMCD, および深さ分解 XAFS/XMCD) は、いずれも X 線吸収分光法 (XAFS) に関するものであり、Fe, Co, Ni などの 3d 遷移金属の L 吸収端および希土類金属の M 吸収端における磁気円二色性 (MCD) や磁気線二色性 (MLD) の測定を行うことができる。これらのうち 1.2T-XMCD と 5T-XMCD は常設装置で、その他に持ち込み装置等のためのフリーポートが準備されている (図 1)。

2. 整備開発および運用状況

ビームライン担当者として整備・運用している装置の状況は以下の通りである。

・1.2T-XMCD および 5T-XMCD 装置

引き続き、多くのユーザーによる利用実験に供されている。5T-XMCD 装置については、連続的に磁場掃引をしながらヒステリシス曲線の測定を行うモードも整備されている。2020 年度から測定のリモート化を推進し、入射角を含めた試料位置および磁場の値を外部から制御できるようになっている。また、これらの値を次々に変えながら自動的に測定を行うことも可能である。

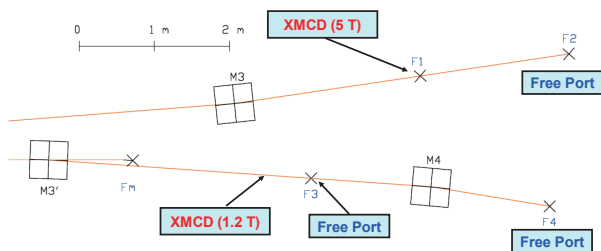


図 1 BL-16A における実験装置の配置

・蛍光収量深さ分解 XAFS (XMCD) 装置

軟 X 線 CCD カメラを用いた蛍光収量法による深さ分解 XAFS (XMCD) 測定 [4,5] を実現しており、回折格子による蛍光 X 線のエネルギー分解を組み合わせ、着目する元素からの蛍光 X 線のみを取り込むことで、バックグラウンドを大幅に軽減させることも可能である [6]。また、1.2T-XMCD 装置に軟 X 線 CCD カメラを取り付け、0-1.2 T の任意の磁場中での深さ分解 XMCD 測定を行うこともできる。

3. ビームタイム利用状況

2022 年度のビームタイム配分率は、54% (第 1 期)、61% (第 2 期)、46% (第 3 期) であった。なお、いずれの期も産業利用促進運転を含むため、留保ビームタイムをユーザー利用に開放した後の実質的な配分率は、もう少し高くなる。S2 課題を始め、評点の高い課題が複数あるため、それらの研究のアクティビティを確保しつつ、過度のビームタイム集中を防ぐ意味から、比較的評点の高い課題に対して最低限必要なビームタイムをなるべく確保した上で、比較的評点の低い課題に対しては、希望の 1/2 から 1/3 程度のビームタイムを、運転時間の許す範囲で評点順に配分した。また、2 つのブランチに複数の装置が設置されている利点を活かし、一方で測定をしている間に他方で準備作業ができるように配分を工夫した。

4. 今後の展望

最近、BL-2 や BL-13, BL-19 など、偏光可変の軟 X 線ビームラインが相次いで稼働したが、偏光スイッチングが行えるのは BL-16 のみである。偏光スイッチングは、時間とともに変化する試料や、バックグラウンドが安定しない測定に対して特に有効なので、波長分散 XAFS 法と垂直・水平偏光のスイッチングを組み合わせた表面化学反応中の配向変化のその場観察 [3] など、BL-16 ならではの手法の開発を進める予定である。一方、様々な XMCD 測定が行える実験装置が整備されている強みを活かし、多くのユーザーが簡便に磁性試料の測定を行い、多くの成果を挙げられる環境を維持していく。また、偏光スイッチングが不要な実験については、他の軟 X 線ビームラインとの間で柔軟にビームタイムの調整を行い、特定のビームラインに負担が集中しないように工夫したい。

引用文献

- [1] K. Amemiya, M. Sakamaki, T. Koide, K. Ito, K. Tsuchiya, K. Harada, T. Aoto, T. Shioya, T. Obina, S. Yamamoto and

- Y. Kobayashi, J. Phys.: Conf. Ser. **425**, 152015 (2013).
- [2] K. Amemiya, A. Toyoshima, T. Kikuchi, T. Kosuge, K. Nigorikawa, R. Sumii and K. Ito, AIP Conf. Proc. **1234**, 295 (2010).
- [3] K. Amemiya, M. Sakamaki, S. Nakamoto, M. Yoshida, K. Suzuki, H. Kondoh, T. Koide, K. Ito, K. Tsuchiya, K. Harada, H. Sasaki, T. Aoto, T. Shioya, T. Obina, S. Yamamoto and Y. Kobayashi, Appl. Phys. Lett. **101**, 161601 (2012).
- [4] M. Sakamaki and K. Amemiya, Rev. Sci. Instrum. **88**, 083901(2017).
- [5] M. Sakamaki and K. Amemiya, Phys. Chem. Chem. Phys. **20**, 20004 (2018).
- [6] M. Suzuki-Sakamaki and K. Amemiya, Jpn. J. Appl. Phys. **57**, 120308 (2018).
- [7] K. Amemiya, K. Sakata and M. Suzuki-Sakamaki, Rev. Sci. Instrum. **91**, 093104 (2020).

BL-7A：軟 X 線分光（XAFS, XPS）ステーション

雨宮 健太

物質構造科学研究所 放射光科学第一研究系

1. 概要

本ビームラインは東京大学大学院理学系研究科附属スペクトル化学研究センター所属であるが、運営は PF の一般のビームラインと同様に行っており、雨宮が担当している。偏向電磁石を光源とし、不等刻線間隔平面回折格子を用いた斜入射分光器により、50-1300 eV の単色軟 X 線を利用することができる [1]。炭素、窒素、酸素など軽元素の K 吸収端、鉄、コバルト、ニッケルなど 3d 遷移金属の L 吸収端における X 線吸収分光法（XAFS）、X 線磁気円二色性（XMCD）、および各種元素の内殻光電子分光（XPS）を行うことを主な目的としており、特に炭素 K 吸収端においても光強度が極端には減少しないことが特長である。偏光としては水平直線偏光の他に、電子軌道面から 0.4 mrad 程度上または下の光を取り込むことで楕円偏光を利用することもできる。

2. 整備開発および運用状況

基本的にはすでに完成したビームラインであるため、光学系については現状を維持するための整備のみを行っている。焦点位置は一つだけであるが、その 0.7 m 程度上流に常伝導電磁石を用いた XMCD 測定装置（東京大学所有）を常設し、下流の装置を必要に応じて入れ替えて実験を行っている。ビームラインとして管理・運用している実験装置は、上流の XMCD 測定装置と、下流の小型深さ分解 XAFS 装置である。その他のユーザー持ち込み装置等は、下流のポートで受け入れている。2020 年度からリモート測定への対応を進め、小型深さ分解 XAFS 装置の試料マニピュレータの上下方向と左右方向の位置を、ビームラインの測定用 PC から制御できる。また、試料位置を次々に変えながらの自動測定も行える。2022 年度には小型深さ分解 XAFS 装置に設置するための蛍光検出器（SDD）を購入し、電子収量、蛍光収量、深さ分解の 3 モード同時 XAFS 測定が可能になった。

3. ビームタイム利用状況

2022 年度のビームタイム配分率は、100%（第 1 期）、100%（第 2 期）、73%（第 3 期）であった。なお、いずれの期も産業利用促進運転を含むため、留保ビームタイムをユーザー利用に開放した後の実質的な配分率は、もう少し高くなる。配分率が 100% に満たない第 3 期については、評点が高い課題を優先しながら、原則として利用を希望するユーザー全員にビームタイムを配分した。また、上流に XMCD 測定装置が常設されていて、そのまま下流にビームを抜くことができるため、上流で測定をしている間に下

流で準備作業ができるように、配分を工夫した。

4. 今後の展望

ビームライン自体は特に改造等は予定していない。カバーするエネルギー領域が重なっている BL-11A、11D が 2022 年度末で閉鎖となるため、少なくとも BL-12A が定常的に利用できるようになるまでの間、それらのビームラインのユーザーの一部を受け入れることになると思われる。BL-12A は二結晶分光領域も含めた広いエネルギー範囲をカバーするビームラインなので、その特色を活かした実験を優先し、1300 eV 以下のみを必要とする実験は BL-7A で行うなどの使い分けも有効であろう。また、BL-7A と同程度のエネルギー領域をカバーするアンジュレータビームラインとして、BL-2、BL-13、BL-16、BL-19 があるので、それらとうまく使い分けていくことも有効であると考えている。特に最近、BL-7A で予備的（開発的）な実験を行い、目途が立ったところで BL-2 や BL-16 で本実験をして結果を出すというケースが増えてきており、引き続きこのような使い方を推進していきたい。ただし、光電子分光については、通常の測定であればアンジュレータビームラインの方が圧倒的に質の良いデータが短時間で得られるので、ユーザー持ち込み装置などを用いた特殊な実験のみを行うようにしていきたい。一方、吸収分光については、特に炭素、窒素、酸素のような比較的低いエネルギーに吸収端をもつ元素の場合、高いエネルギー分解能やフラックスを必要としない試料ならば、アンジュレータビームラインと遜色ないデータが得られるので、むやみにアンジュレータビームラインを利用せずに、BL-7A でできる実験は BL-7A で行うようにビームタイムをアレンジしていく予定である。

引用文献

- [1] K. Amemiya, H. Kondoh, T. Yokoyama and T. Ohta, J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. **124**, 151 (2002).

BL-11A：軟 X 線斜入射回折格子分光ステーション（2022 年度で閉鎖）

北島 義典

物質構造科学研究所 放射光実験施設

1. 概要

BL-11A は、斜入射回折格子分光器を用いて単色軟 X 線を利用することができる汎用実験ステーションとして運用されてきたが、2022 年度末をもって閉鎖され、光学系は新しい BL-12A に移設されることとなった。ここでは最終年度の記録として、「軟 X 線斜入射回折格子分光ステーション」としての BL-11A [1] を総括する。

2. 整備開発および運用状況

放射光実験施設の PF リングの創成期には、真空紫外線・軟 X 線を利用するビームラインでは、BL-11 と BL-12 に併せて 7 つの実験ステーションが整備された。そのうち、斜入射回折格子分光器を用いて数百 eV のエネルギー領域（炭素、窒素、酸素等の K 吸収端）をカバーするステーションとして整備されたのが BL-11A である。

最初は、アメリカ Baker 社製の「2m Grasshopper 分光器 (2GM)」を購入した [2]。製品として販売されていたことから判るように、2GM は「よくできた」分光器であったが、斜入射回折格子分光器の進歩は様々に行われ、1990 年代になると他施設に新設された軟 X 線ステーションに比べて性能的に見劣りするようになってきた。このため、1994 年 3 月 14 日に「ビームライン BL11 の更新に関する研究会」を開催し、1995 年度に光学系の全面更新が行われた。この時に新たに設計・製作された不等間隔平面回折格子斜入射分光光学系 [3] は、その後に製作された斜入射回折格子分光器の原型となっている。

この更新前の BL-11A (2GM) では 80 – 1000 eV をカバーするとされていたが、新しい BL-11A の光学系では 200 – 1200 eV をカバーする設計とした。1996 年春から立ち上げ・調整を始めたが、翌年には 1200 eV を超えるエネルギー領域（例えば 1550 eV 付近の Al K 吸収端）でも迷光の少ない高純度の軟 X 線が利用可能であることが判明した [4]。この頃までは、InSb(111) 結晶分光で到達可能な最低エネルギーである 1724 eV より低いエネルギー領域は、回折格子分光と結晶分光の狭間として (PF では) 利用が困難であった「できの良い」回折格子は高次光（エネルギーが 2 倍、3 倍…の光）も反射するので、そのような高次光を低減するためにミラーの反射角を少し大きめに設定していたことが悔やまれた。

2013 年度の補正予算で光学系の一部を更新する機会を得て、第 2 ミラーの入射角変更等による高エネルギー領域の強度増大及び回折格子水冷によるビーム安定化を図ることができた。近年に建設された斜入射回折格子分光ビームラインでは、2000 eV（以上）までのエネルギー範囲をカ

バーするように設計・製作されており、回折格子分光と結晶分光の狭間は埋められた。

3. ビームタイム利用状況

斜入射回折格子分光光学系は、アンジュレータ光源で多く作られており、偏向電磁石光源の BL-11A としてはエネルギー分解能やスポットサイズでは競争できない。このため「軟 X 線分光ステーション」と名乗っているが、実際には分光実験に限らず、軟 X 線回折・散乱や検出器の評価等、少し長めのビームタイムで新しい装置や方法論の開拓を行うような実験も行われる汎用ステーションである（末端の装置は「持ち込み」が原則である）。多種多様な実験が行われ、近年のビームタイム配分率は 7 割～9 割くらいであった。出版された論文は 1996 年以降 2023 年 5 月までで 161 報（2GM 時代を含めると約 280）となっている [1]。

4. 今後の展望

冒頭に記したように、「軟 X 線斜入射回折格子分光ステーション」としての BL-11A は 2022 年度末（2023 年 3 月 11 日）で一区切りとなった。更地となった BL-11 には「開発研究多機能ビームライン」が建設されることになっている。一方、従来 BL-11 で行われていた実験を継続できるように、BL-12A として「広波長域軟 X 線ビームライン」の建設が 2023 年夏から始まっている。BL-12A では、2022 年度まで BL-11A で使用されていた斜入射回折格子分光器と BL-11B で使用されていた 2 結晶分光器をミラーによる光路の切り替えで使用するにより、1 つの実験ステーションで 50 eV ～ 5000 eV が利用可能となる予定である。

引用文献

- [1] <https://pfwww.kek.jp/sxspec/sx/bl11a.html>
- [2] M. Yanagihara *et al.*, KEK Report 84-17 (1984). <https://lib-extopc.kek.jp/preprints/PDF/1984/8424/8424017.pdf>
- [3] “BL11 再構築デザインレポート” KEK Report 95-4 (1995) : <https://lib-extopc.kek.jp/preprints/PDF/1995/9524/9524004.pdf>
K. Amemiya *et al.*, J. Synchrotron Rad., **3**, 282 (1996).
K. Amemiya *et al.*, Proc. SPIE, **3150**, 171 (1997).
Y. Kitajima *et al.*, J. Synchrotron Rad., **5**, 729 (1998).
- [4] 北島 義典, PHOTON FACTORY NEWS 15(4), 10 (1998).
Y. Kitajima *et al.*, J. Elec. Spectrosc. Relat. Phenom., **101-103**, 927 (1999).

BL-11B：軟 X 線 2 結晶分光ステーション（2022 年度で閉鎖）

北島 義典

物質構造科学研究所 放射光実験施設

1. 概要

BL-11B は、2 結晶分光器を用いて単色軟 X 線を利用することができる汎用実験ステーションとして運用されてきたが、2022 年度末をもって閉鎖され、光学系は新しい BL-12A に移設されることとなった。ここでは最終年度の記録として、「軟 X 線 2 結晶分光ステーション」としての BL-11B [1] を総括する。

2. 整備開発および運用状況

放射光実験施設の PF リングの創成期には、真空紫外線・軟 X 線を利用するビームラインでは、BL-11 が「固体分光」、BL-12 が「気体分光」として、エネルギー領域ごとに直入射回折格子分光器、斜入射回折格子分光器、結晶分光器を備えた合計 7 つの実験ステーションが整備された。そのうち、結晶分光器を用いて「真空紫外線・軟 X 線」としては最も高いエネルギー領域をカバーするステーションとして整備されたのが BL-11B である。

初代の分光器は、アメリカ Stanford Synchrotron Radiation Laboratory で製作された軟 X 線用 2 結晶分光器 JUMBO をコンパクトにした設計で、JUMBO junior と名付けられていた [2]。超高真空チェンバーの中で 4 種類の分光結晶を交換して使用できるようになっていたのは、硬 X 線領域で使用される Si(111) 以外に、より反射面間隔が広く、低エネルギー領域まで分光できる結晶を様々な利用したいという考えからであった（実用として使われた Ge(111) や InSb(111) のほか、当初は Beryl(10 $\bar{1}$ 0) や KTP(110), YB₆ など試された）。集光系も縦横を 1 枚のトロイダル鏡で 1:1 集光するという単純な設計であった。当時は、回折格子分光器では 1 keV 以下のエネルギーしか利用できず、Be 窓で蓄積リングと真空的に仕切ることが常識だった X 線ビームラインでは、おおむね 4 keV 以上の利用が考えられており、その狭間を埋めるステーションとして建設された。

1983 年の稼働開始当初（分光器設置後の最初の調整で NaCl の Cl K 吸収端スペクトルの測定が行われたのは 1983 年 7 月 13 日の末明だったようである）から、このエネルギー領域にある Si, P, S, Cl などの K 吸収端の XAFS 分光など、他では行えない測定による研究が進められていたが、PF リングの蓄積電流が増加すると熱負荷による問題が顕になり、分光器の第 1 結晶の水冷化改造が 1986 年～1988 年に実施された（後付けだったため冷却水の流量を大きくすることが困難で、また真空中での分光結晶の切り替えはできなくなった）[3]。

その後、1994 年夏に前置鏡を水冷できるものに更新（表面コート材も利用エネルギー領域に吸収端のある Pt から

吸収端のない Ni に変更し、臨界エネルギーを同程度とするために反射角を変更してビームライン全体を下げるよう改造）した [4]。

2009 年夏には、改造前の BL-28B で 1993 年から 2004 年まで使用されていた軟 X 線まで分光できる 2 結晶分光器（愛称 DUMBO）[5] を譲り受け、JUMBO junior を置き換えた。これにより、Si(111) 分光で 2057 eV ～ 5000 eV、InSb(111) 分光で 1724 eV ～ 3700 eV を安定して利用可能な実験ステーションの最終形となった。

3. ビームタイム利用状況

「軟 X 線分光ステーション」と名乗っているが、このエネルギー領域を利用できるステーションが他には少ないので、実際には分光実験に限らず、軟 X 線回折・散乱や検出器の評価等の実験も行われている汎用ステーションである。多種多様な実験が行われ、近年のビームタイム配分率は 7 割～9 割くらいであった。出版された論文は 1984 年以来、2023 年 5 月までで 307 報となっている [1]。

4. 今後の展望

冒頭に記したように、「軟 X 線 2 結晶分光ステーション」としての BL-11B は 2022 年度末（2023 年 3 月 11 日）で一区切りとなった。更地となった BL-11 には「開発研究多機能ビームライン」が建設されることになっている。一方、従来 BL-11 で行われていた実験を継続できるように、BL-12A として「広波長域軟 X 線ビームライン」の建設が 2023 年夏から始まっている。BL-12A では、2022 年度まで BL-11B で使用されていた 2 結晶分光器と BL-11A で使用されていた斜入射回折格子分光器をミラーによる光路の切り替えで使用するにより、1 つの実験ステーションで 50 eV ～ 5000 eV が利用可能となる予定である。

引用文献

- [1] <https://pfwww.kek.jp/sxspec/sx/bl11b.html>
- [2] T. Ohta, P.M. Stefan, M. Nomura, and H. Sekiyama, Nucl. Instrum. Meth. **A246**, 373 (1986).
- [3] M. Funabashi, M. Nomura, Y. Kitajima, T. Yokoyama, T. Ohta, and H. Kuroda, Rev. Sci. Instrum. **60**, 1983 (1989). 北島義典, PHOTON FACTORY NEWS **6(2)**, 5 (1988).
- [4] Y. Kitajima, J. Elec. Spec. Relat. Phenom. **80**, 405 (1996). 北島義典, PHOTON FACTORY NEWS **12(3)**, 9 (1994).
- [5] T. Iwazumi, A. Koyama, Y. Sakurai, Rev. Sci. Instrum. **66**, 1691 (1995). 岩住俊明, PHOTON FACTORY NEWS **11(1)**, 9 (1993).

BL-20A：3 m 直入射型分光器

北島 昌史¹，足立 純一²，菊地 貴司²

¹ 東京工業大学 理学院化学系，² 物質構造科学研究所 放射光実験施設

1. 概要

BL-20A は、偏向電磁石部からの放射光を直入射分光器で分光し、エネルギー 6 eV から 40 eV の比較的強い光を供給できるフリーポートのビームラインであり、30 eV 以下の放射光がフリーポート利用できる、PF で唯一のビームラインである。フリーポート端には、全ての持ち込み装置で使用可能な差動排気システムが設置されており、様々な気体試料を安心して（ビームライン上流部へ与える影響を心配することなく）、使用できるようになっている。本ビームラインで有効な光エネルギー領域は分光学的な研究分野では非常に重要であり、現在も様々な唯一無二の研究の光源として活用されている。

なお、本ビームラインは教育用ビームラインとして位置づけられている。2009 年 4 月に物質構造科学研究所放射光科学研究施設(当時)は東京工業大学理工学研究科(理系)化学専攻(現：理学院化学系)と、放射光科学の教育・研究推進についての合意書及び付随する覚書を交わした。この協定は、3 年ごとの評価を受けながら、現在も続いており、その下で教育用ビームラインとして活動している。また大学等運営ステーションとして、東京工業大学理学院化学系北島研究室が、その運営に参画している。

2. 整備開発および運用状況

BL-20A は、フリーポートビームラインであり、常置の実験装置は準備されていない。ただし、真空紫外発光測定装置が東京工業大学運営グループ側により、整備されている。真空紫外発光測定装置では、東京工業大学運営グループにより時間デジタル変換器が整備され、共同利用実験および東京工業大学理学院化学系化学コースおよびエネルギーコースでの大学院実習で利用に供されている。また、2022 年度は、新たに真空紫外蛍光発光分光器を開発し、大学院実習で試用した。今後、共同利用実験への供用も検討している。

分光器の保守は所内スタッフが対応し、東京工業大学運営グループおよび上智大学の関係研究室（小田切教授・星野教授）が協力して運営を行なっている。また、真空立ち上げ作業は、業務委託スタッフの支援により行われている。

2022 年度は、第 2 期にビームライン最上流部にある第一前置鏡の位置調整用モーターに不具合を生じ、ユーザービームタイムを一旦中断する事態となった。しかし加速器のメンテナンスのタイミングで修復することに成功し、当該ユーザーのビームタイムを再開することが出来た。その後は、第一前置鏡の位置調整可能範囲に制限があるものの、各ユーザーの共同利用実験は順調に進められている。

なお、2022 年度に行なった応急処置の結果、2021 年度に問題になった差動排気システムのターボポンプの異常停止は、2022 年度には見られない様になった。また、2019 年度より代替機で運用している、BL-20A 分光器の制御・DAQ 系の回路クレートの更新は、引き続き検討事項のままととなっている。BL-20A の分光器の外部制御およびユーザー持ち込み装置との協調制御についても継続的に検討を行なっている。

3. ビームタイム利用状況

ビームタイムの配分は運営グループである東京工業大学の北島研究室スタッフが担当した。ビームタイムは、ユーザーからの希望と課題の評点を基に決めた。自前の装置を持ち込むユーザーが比較的多いので、装置の入れ替えの頻度ができるだけ少なくなるように配慮した。また、ユーザーの切り替え日をマシンスタディーの前日に設定するなどの工夫をした。これにより、マシンスタディーの時間を真空引きなどの準備に当てることができ、ビームタイムの有効利用に資することができた。なお、2022 年度は第 3 期の運転状況が不明であったため、第 2 期にユーザーのビームタイム希望が集中した。

また、本ビームラインは、教育用ビームラインとの位置づけであり、2022 年度も修士課程・博士課程学生を対象とした実習を行なった（科目名：放射光科学実習 [1]）。2022 年度は、一泊二日の実習を第 2 期に 3 回、第 3 期に 4 回実施し、計 10 名の学生を受け入れた。なお、本実習に当たっては、KEK 加速器科学総合育成事業からの援助を受けた。

4. 今後の展望

BL-20A は、PF で比較的高分解能の VUV 光を安定して供給できる、ほぼ唯一のステーションである。今後も多くの研究が期待される原子分子の光ダイナミクスの研究を中心に、幅広い分野の実験課題を受け入れるとともに、ユーザーのニーズに対応するべく、分光器制御システムの改良やユーザー共通の測定システムの改良などを行なっていく。また、10 eV 以下の低エネルギー側の利用の要望があるため、このエネルギー領域でも定常的に利用できるようにするための種々の検討を進める。

引用文献

- [1] 北島昌史，穂坂綱一，河内宣之，足立純一，放射光 34, 251 (2021).

BL-27A：放射性試料用軟X線実験ステーション

宇佐美 徳子¹, 横谷 明德², 岡本 芳浩³, 本田 充紀³, 馬場 祐治³

¹物質構造科学研究所 放射光実験施設, ²量子科学技術研究開発機構 (QST),

³日本原子力研究開発機構 (JAEA)

1. 概要

BL-27A は、偏向電磁石を光源とする軟X線ビームラインであり、ブランチのX線ビームライン BL-27B とともに非密封 RI 管理区域（放射光アイソトープ実験施設）内に設置され、放射性同位元素（RI）および核燃料物質を試料として用いることができる。分光結晶として InSb(111) を備えた二結晶分光器により、1.8 ～ 5 keV 程度の軟X線が利用できる設計であるが、分光器の不具合とその応急処置のため（詳細は 2021 年度年報参照）、現在は 1.8 ～ 3 keV の範囲での利用に制限している。非密封 RI 管理区域と通常の放射線管理区域（実験ホール）との境界として、ビームライン内にメッシュで裏打ちされたカプトン（ポリイミド膜）があるため、1.8 keV より低いエネルギーの軟X線は実用的な強度では得られない。

日本原子力研究開発機構 JAEA（当時は日本原子力研究所）と高エネルギー加速器研究機構 KEK（当時は高エネルギー物理学研究所）の共同で建設され、1992 年度から運用が開始された。ビームラインコンポーネントの多くは JAEA 所有であったが、KEK に譲渡され、2019 年度からは、放射線生物ユーザーグループおよび原子力基盤研究ユーザーグループによって運営されるユーザーグループ運営ステーションとなった。

上流側には生物用単色軟X線照射装置、下流側には光電子分光装置と、2つの装置（実験ポート）がタンデムに設置されていて、切り替えて使用している。上流の生物用単色軟X線照射装置は、軟X線ビームを空気中に取り出して使うことができる差動排気系、カプトン窓、放射線シールド（ハッチに準ずる）を持ち、真空中に入れることのできない生物試料や溶液試料に単色軟X線を照射することができる。ビームサイズより広い面積の試料にも均一に照射できるように試料スキャン機構を有している。また、このポートを利用して、He ガス置換が可能なグローブボックスを設置し、大気圧で溶液試料の軟X線蛍光 XAFS 実験が可能である（JAEA 所有装置）[1]。下流側では、光電子分光（XPS）実験の他、XAFS、PEEM 実験が可能である。

2. 整備開発および運用状況

ビームラインとして新たな整備開発はしていない。機器の故障には応急的に対処している状況だが、運用開始から 30 年近くが経過しており、老朽化による不具合が多発している。2022 年度第 3 期には光電子分光装置の故障が生じ、修理中は光電子分光装置を利用しない実験に限って実施した。

3. ビームタイム利用状況

ビームタイムは、上流側と下流側の切り替えをなるべく少なくなるように調整しているため、実験が可能な時期が制限されるという状況はあるが、ほぼユーザーの希望どおり配分できている。上記の光電子分光装置の故障のため、第 3 期後半の一部の実験にキャンセルや内容変更が生じた。

4. 今後の展望

廃棄物処理、汚染土壌の減容化・再利用、原子炉材料など、原子力関係の課題が 2/3 以上を占める。今後も、大気圧下での軟X線分光・照射実験、放射性試料（環境試料も含めて）など、このビームラインの特徴を活かした研究を中心に共同利用を推進する。放射線生物分野では、従来のリンやイオウなど細胞内元素の K 吸収端を狙った照射実験に加え、2020 年度より開始された光・量子飛躍フラッグシッププログラム（Q-LEAP）の一貫として、DNA など生体分子の電子状態分析に取り組む。

引用文献

[1] M. Honda *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **86**, 035103 (2015).

BL-19A/B：軟 X 線顕微・分光実験ステーション

山下 翔平¹, 若林 大佑¹, 武市 泰男², 木村 正雄³

¹物質構造科学研究所 放射光実験施設, ²大阪大学大学院 工学研究科,

³物質構造科学研究所 放射光科学第二研究系

1. 概要

軟 X 線領域の走査型透過 X 線顕微鏡 (Scanning Transmission X-ray Microscopy: STXM) は、炭素の官能基や鉄の価数を識別した二次元ナノ構造を可視化することができる強力な手法である [1]。軟 X 線をフレネルゾーンプレートと呼ばれる集光素子で数十ナノメートルに集光し、試料に照射する。試料を透過した X 線の強度を計測しながら試料位置を走査することで二次元のイメージングの手法に X 線吸収分光の原理を組み合わせた X 線顕微分光を可能とする。

BL-19 は、STXM を常設する 19A ブランチと、持ち込み装置に対応したバルク分光実験ステーションである 19B ブランチからなる。B ブランチにはバルク軟 X 線 XAS 実験装置を整備し、STXM の解析に使用する多数の標準試料スペクトルをクイックスキャンモードによって迅速に測定することを可能としている。このような単一ビームラインで顕微・バルク両方の分析機能を有する組み合わせは世界でも例がなく、STXM 実験結果から有益な情報を効率よく引き出すための環境を構築している。

BL-19 の STXM が対象とする測定系は自然界から採掘した石炭・鉄鉱石などの有機資源ベースの材料や人工的に合成された樹脂材料など多種多様である。最近では、隕石や宇宙からのリターンサンプルなどの未知の物質への研究利用も多く、STXM によって物質の持つ化学状態とそ

の空間的な分布に関する情報を基に、宇宙や地球に密接に関わる物質がこれまでに辿ってきた温度、圧力などの環境条件を推定し、物質の成り立ち (履歴) をはじめ生命の起源に関する研究にも展開されている。例えば、時間経過により物質が風化や空気酸化の影響を受けた場合には、物質本来の化学状態を保持していない可能性が残る。そこで、BL-19 では大気非暴露での試料投入・分析を可能にするシステムを開発し、酸素濃度や露点を常時モニターし、酸素や水による酸化の可能性を排除した状態での測定を展開している (図 1)。

2. 整備開発および運用状況

2018 年度に建設し、2019 年度より共同利用実験課題の募集を開始し、2019 年 5 月末よりビームライン調整と並行して共同利用実験を開始し現在に至る。その間、フレネルゾーンプレートの改良更新や大気非暴露での試料導入機構の開発、感染症対策を機にリモート制御のためのハード及びソフト面の改良、操作性と安全性に配慮した制御ソフトウェアの更新など、より高いユーザビリティを目指すとともに効率的で新たな成果創出のための開発・改良を継続して行っている。

最近では、従来の透過法による STXM に新たに蛍光収量法と転換電子収量法を採用した。元々の透過法では、測定エネルギーに応じて適した試料厚みを用意する必要があり、それには集束イオンビームやマイクロームなどの加工法を用いて数十～数百 nm 厚の薄片化の作業を要していた。加工時の労力は勿論のこと、加工自体が難しいケースや加工の際のダメージなど、一部試料においては測定が困難なケースが存在していた。測定原理については割愛するが、新たな計測手法によって軟 X 線領域における微量元素・極表面の顕微分光分析が可能となった。分析感度が異なるため、それぞれの手法ごとに測定時間は変わるが、手法を組み合わせると同時に測定することも可能となった。

3. ビームタイム利用状況

2022 年度のビームライン調整を除く配分内訳は、BL-19 建設のために多額の予算を投入した新学術領域「水惑星学」に関連した S1 課題での利用が全体の 40%、その他の共同利用実験が 40%、施設利用や共同研究などの産業利用が 20% となっている。ここ数年にかけて共同利用課題及び産業利用の需要が増加傾向にあり、2022 年度は総配分希望に対して 70% 程度の配分率となった (2021 年度は 80% 程度)。比較的占有率の高い S1 課題が 2022 年度で終了す

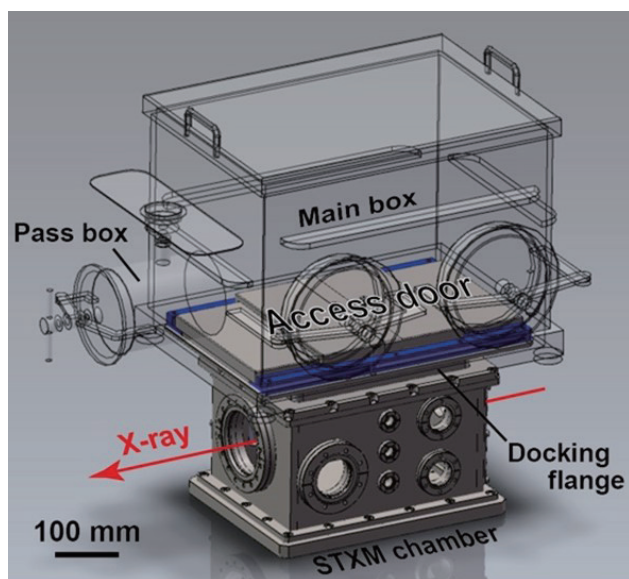


図 1 大気非暴露システム

ることから、今後はより多くの共同利用実験や産業利用にビームタイムを供することを期待する。

4. 今後の展望

これまでに STXM を利用した研究成果などが各所で発信されてその有用性が認知されてきており、利用に関する問い合わせが産学問わず増加傾向にあるとともに、バルク分光実験ステーションである 19B の需要も増加傾向にある。新学術領域「水惑星学」及び関連する S1 課題が 2022 年度で終了を迎えるが、産業利用によるイノベーション創出を目的とした建設経緯から、BL-19 では向こう数年程度にわたって産業利用を推進する方針をとる。限られたビームタイムで最大限の成果を創出するには試料準備や実験の予備検討、実験中の測定条件の最適化が重要であり、利用ユーザーへの継続的なサポートは勿論のこと、ユーザーの多様なニーズやその実験に合わせて STXM と XAS 共に試料周りの高度化を進める。

引用文献

[1] Y. Takeichi *et al.* Rev. Sci. Instrum. **87**, 013704 (2016).

BL-3A：極限条件下精密単結晶 X 線回折ステーション

中尾 裕則

物質構造科学研究所 放射光科学第一研究系

1. 概要

本ビームラインでは 4 軸回折計 (HUBER) を用いて、物性変化に伴う僅かな結晶・電子構造の変化を捉え、その物性の起源を解明する「構造物性研究」をメインに進められている。このような物性変化に伴う構造変化を反映した微弱な信号を捉えるために、回折計・検出器等は整備されてきている。また、様々な外場下で多彩な物性を示す系がターゲットであり、以下のような温度・磁場といった外場下での実験用付帯設備が整備されている。特に BL-3A は、図 1 にある超伝導磁石搭載型 He フロー型クライオスタットが常設状態で回折実験が出来る国内唯一のビームラインであり、多くの磁場下構造物性研究が展開されている。

温度：He 循環型冷凍機 (4-320 K)，

広範囲温度実験用 He 循環型冷凍機 (10-600 K)，
電気炉 (300-1000 K)

磁場環境：超伝導磁石搭載型 He フロー型クライオスタット
(磁場 $\leq 7.5\text{T}$, 2-300 K)

専用の 2 軸回折計上に設置して利用。

また物性変化に対応した電荷・軌道・スピンの秩序状態を X 線の偏光を利用した「共鳴 X 線散乱手法」により調べる研究が数多く行われている。そのため、ダイヤモンド移相子を利用した入射 X 線の偏光制御や、回折光の偏光解析が行えるよう整備されている。また対象とする系は多種多様であり、ビームラインとして用意している装置に加え、ユーザーが自由な装置を組み付けることで、他にはない実験条件での実験が実施できるのも特徴である。このように

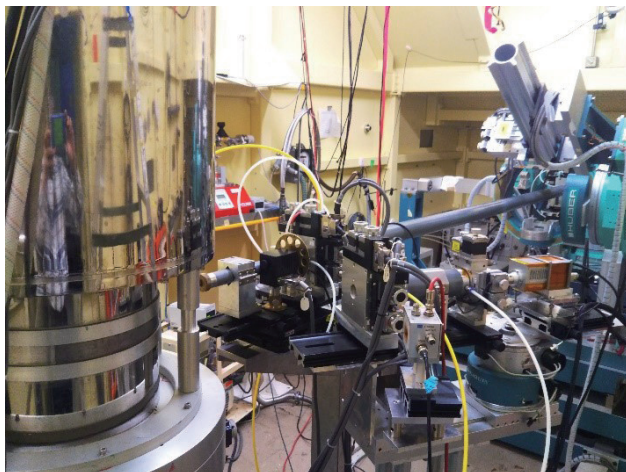


図 1 2 軸回折計上の超伝導磁石搭載型 He フロー型クライオスタット (左手) と 4 軸回折計 (右手奥)

多彩な実験環境 (Do it yourself な環境) を維持するのは、ビームライン担当だけでは難しく、ユーザーと協力することで初めて可能となっている。

さらに BL-3A は挿入光源ビームラインであり、構造物性ビームラインの中でも輝度が高く、構造物性研究だけでなく地球惑星科学、表面・界面化学などの利用研究も行われている。

2. 整備開発および運用状況

4 軸回折計の実験は、上述にあるような測定対象に応じた多彩な実験環境に対応することで常に新しい研究が行われているが、測定に関するハード的な部分は長年同じである。一方、ユーザーと装置をつなぐソフト的な部分は、改良の余地がある。例えば、任意の配置で回折計上の各種機器を設置できるように光学ベンチの整備を行うことで、実験の自由度を格段に向上させた。また、回折計・ビームラインの制御ソフトウェア SPEC の維持管理の改善、実験時の各種パラメータのロガーシステムの整備を進めてきた。パルス検出型 2 次元 X 線カメラは、ピーク位置の精密測定や S/N の向上など、大変有用であり、利用するユーザーが増加している。また 2022 年度初めよりヘリウムガスの利用の制限が始まったため、これまで利用してきた He パスの真空パス化を進めた。当初、色々と問題が出たが、以前と同じレベルで実験に応じて自由に真空パスを組み上げられるようになってきた。ただし、真空パス化に伴って、今までより厚いカプトンを窓材として利用している。そのため低エネルギー側の実験は、窓材の X 線吸収の影響が気になるようになった。加えて、2022 年度より NoMachine でのユーザーによる遠隔操作の運用が開始した。Nextcloud によるデータの共有などを組み合わせた、新たな実験環境の利用を進めているところである。

BL-3A は、挿入光源ビームラインとして 2007 年より運用が開始されたビームラインである。しかしながら、ビームラインのコンポーネントは、前身の BL-16A から移設された機器が多く、老朽化に伴う故障が相次いでいる。2021 年度は、主力の X 線検出器であるシリコンドリフト型 X 線検出器が不調となり、新しいものへの更新を進めている。また、X 線検出器からのパルス信号を確認するためのアナログのオシロスコープが故障した。現在、アナログオシロスコープは販売されておらず、製造元ではない会社に修理をしてもらった状況である。

3. ビームタイム利用状況

挿入光源ビームラインである BL-3A は、構造物性グル

ープのビームラインの中で輝度も高く、大強度のX線が利用できる。一方、同じく4軸回折計を用いた構造物性研究が実施可能なBL-4Cは、バンディングマグネットのビームラインである。そこで、BL-3A、4Cのビームタイム配分は、希望、研究内容を精査の上、BL-3Aでないとできない研究（大強度、超伝導磁石の利用など）を優先してBL-3Aでビームタイム配分し、初めての実験の予備の実験や、時間をかければ実施可能なものは、BL-4Cでビームタイム配分するように調整の上、課題評点を加味し決定している。またビームタイム希望調査では、希望配分日数と、実験を実施する上で最低限の日数を伺い、可能な限り広いユーザー層に使ってもらえるようにしている。しかしながら、最近のビームタイムの減少の影響もあり、評点の低い課題に配分できないことも生じている。ただし最低限、年1回の実験は可能な状況を維持している。

4. 今後の展望

現在アクティビティの高い、磁性体を中心とした構造物性研究をメインに、微弱信号を効果的に検出できるように、今後も整備する。また、上述のように老朽化に伴う故障に備えた対応を、可能な限り行っていく予定である。特に、長年利用している4軸回折計は、1998年より利用され、全面的なオーバーホールが必要な時期となっている。

謝辞

Heパスの真空パス化に伴って、機械工学センターに大変お世話になった。

BL-4B2：多連装粉末 X 線回折装置

井田 隆¹, 石橋 広記², 植草 秀裕³, 籠宮 功⁴, 西村 真一⁵, 藤井 孝太郎³,
堀部 陽一⁶, 三宅 亮⁷, 八島 正知³

¹名古屋工業大学 先進セラミックス研究センター, ²大阪公立大学 理学研究科, ³東京工業大学 理学院,
⁴名古屋工業大学 大学院工学研究科, ⁵東京大学 工学系研究科, ⁶九州工業大学 工学部, ⁷京都大学 理学研究科

1. 概要

BL-4B2 は「粉末回折ユーザーグループ」運営ステーションである。放射光の高輝度・高平行性を活かし、正確で高精度・高分解能な粉末結晶放射光回折データを実用的な時間内で測定することができる。このような高品質回折強度データは、結晶学や鉱物学、物性科学、構造化学などの基礎分野から、応用物理、応用化学、無機材料工学、薬学など広い応用分野で必須のものである。特に材料分野ではエネルギー・二次電池・燃料電池・エネルギー変換合金やセラミックスの構造と材料特性の研究が行われおり、高精度データを利用した熱振動による原子位置のゆらぎ、電子密度分布に基づく化学結合の評価まで可能となっている。また、高分解能データを利用して、粉末結晶の回折データから結晶構造を決める粉末未知結晶構造解析を行うことができる。例えば、温度変化等の外部環境変化による相転移で単結晶状態が崩壊し粉末結晶となる系や、材料・物質合成上の理由で粉末結晶しか得られない系でも、結晶構造を明らかにすることができる。この手法は固体物理分野の基礎研究から、実用材料の評価、医薬品原薬結晶の構造解析にも活かされている。

このような高精度・高分解能データを測定するために、検出器多連装型軌道放射光粉末回折計 MDS (Multiple Detector System) [1] を設置している。この装置は 1994 年に虎谷秀穂氏らが、放射光粉末回折実験のために、世界で初めて独自に開発したものであり、2θ 軸上に 25° 間隔で配置された単結晶 Ge(111) アナライザー付シンチレーションカウンタ検出器系を 6 系統備えた平行法型粉末回折計である。なおこの MDS のアイデアは海外の放射光施設でも採用された。ユーザーグループでは、回折計の性能評価や光学系の調整、実際的な使用経験を重ね、さらにデータ解析のための実用的なソフトウェアを開発している [2,3]。

回折計は θ 軸、2θ 軸を持ち、平板回転型試料台を使った反射型測定を行うことができる。サンプル量に応じて面積や深さの異なった円盤型試料ホルダーを用い、測定時にはホルダーを面内回転させ回折に寄与する粒子数を増やし、選択配向効果を減少させることができる。またキャピラリー回転試料台を θ 軸に設置した透過型測定も可能である。サンプル量に制限がある場合、選択配向効果を回避する場合に有効である。環境制御測定については、ユーザーにより 1500°C 以上の温度での測定を可能にする高温炉アタッチメントが開発されており、セラミックス材料の測定で利用されている。キャピラリーサンプルについては、吹

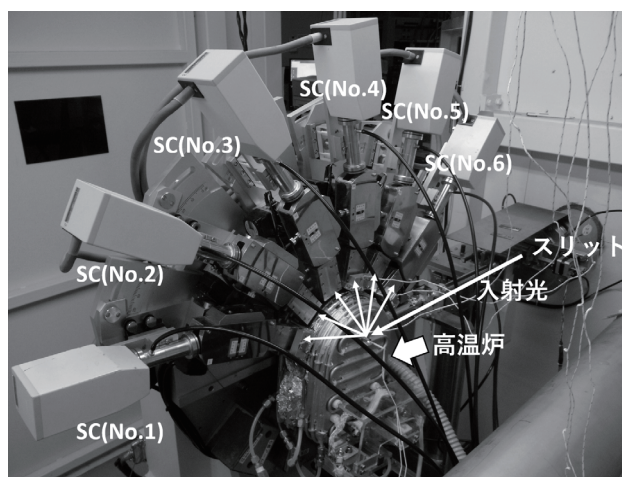


図 1 検出器多連装型軌道放射光粉末回折計 MDS (Multiple Detector System) 高温炉を使った平板試料台反射型測定設定

付け型低温装置による窒素温度までの低温測定が可能である。

前述の多連装シンチレーションカウンタは 2θ 軸上にあり (図 1), 最小 0.004° ステップのステップスキャンが可能である。多連装であるため全測定領域が 2θ で 125° であっても、検出器 1 台当たりの測定角度範囲を 25° 程度にすることができる。1 ステップ当たりの露光時間を 1 秒とした場合、3 時間程度の測定になり、実用的な時間での回折測定が可能となる。なお、波長は PF の放射光特性から 1.2 Å が多用されているが、ビームラインのモノクロメータ調整により、試料に含まれる元素にフォーカスした波長に変更しての測定も行われている。

2. 整備開発および運用状況

MDS は長期間に渡り安定して稼働している。2015 年度には測定を高速化するために、高速 8ch カウンタの設置を行った。制御・測定用の PC を更新し、測定の高速度・安定化を行った。これらの効果で測定時間が 10% 程度短縮され、長時間の連続測定時にも安定して測定が可能となった。2016 年度には回転試料台の整備を行った。また、単結晶解析の BL を併用した課題、中性子回折データと合わせた高度な解析を行う課題も実施されている。25% 程度の測定は高温炉を利用した高温測定となっている。ユーザー持ち込みの電気炉は、粉末試料や平板試料を空气中

1500°C 以上の高温で測定できることが特徴である。放射光と高温炉アタッチメントの利点を活かした最近の研究例として、高圧合成した γ - Si_3N_4 の熱膨張挙動を空气中で最大 1460°C まで研究したものが [4]。高圧合成で得られた直径 2 mm 程度の微小なペレットをそのまま使って加熱と測定を実施している。また、最近では、高分解能データの特徴を活かした有機結晶の粉末未知構造解析による医薬品結晶の研究 [5] から、電池材料に応用が可能なセラミックスイオン伝導体の研究 [6-7] など幅広い分野で活用されていることも特徴である。

2022 年度は、Ge を主要な構成元素として含む新しい酸化物イオン伝導体を発見した研究 [8]、Nb の一部を W に置換し $\text{Ba}_7\text{Nb}_4\text{MoO}_{20}$ のプロトン伝導の抑制と酸化物イオン伝導度の向上を達成した研究 [9]、室温で 30 mS cm^{-1} を超える Na イオン伝導度をもつ $\text{Na}_{3-x}\text{Sb}_{1-x}\text{W}_x\text{S}_4$ の高イオン伝導の要因を調べた研究 [10]、スパークプラズマ法で合成した Mg 添加 $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ の構造物性研究 [11] などが MDS を利用した成果として報告されている。

ユーザーグループでは、ユーザー支援を行っており、サンプル調製、測定、解析まで支援しているため、装置に慣れないユーザーでも実験が可能である。

3. ビームタイム利用状況

ビームタイムは比較的余裕があり、ユーザーからの希望にほぼ応えることができている。このため、充分に実験を行うことができおり、例えば、ビームタイム割当を分割し、データや試料の検討期間を置くことによって、測定戦略を柔軟に変更する配分が可能である。

4. 今後の展望

引き続き、高速測定により測定時間を短縮化する試みを行っている。前述の 8ch カウンターの設置はその一部である。連続スキャン方式への転換も検討しており、大幅な高速化を達成できる。一方、現在では一次元・二次元検出器による短時間測定が一般的であり、現状の高分解能測定との併用が検討されている。また、他の放射光施設との情報交換も行っており、回折強度・スペクトル同時測定や、キャピラリー試料測定におけるサンプル交換の自動化などの基礎検討を行っている。余裕を持った測定による高精度データによる高精度解析、高温炉による稼働条件下での測定など、4B2 の特徴を生かした研究のさらなる展開が期待される。

引用文献

- [1] H. Toraya, H. Hibino and K. Ohsumi, *J. Synchrotron Rad.* **3**, 75 (1996).
- [2] T. Ida, H. Hibino and H. Toraya, *J. Appl. Cryst.* **34**, 144 (2001).
- [3] T. Ida and H. Hibino, *J. Appl. Cryst.* **39**, 90 (2006).
- [4] N. Nishiyama, K. Fujii, E. Kulik, M. Shiraiwa, N. A. Gaida, Y. Higo, Y. Tange, A. Holzheid, M. Yashima, F. Wakai, *J. Euro. Ceram. Soc.* **39**, 3627 (2019).
- [5] O. D. Putra, A. Patterson, E. Yonemochi, H. Uekusa, *CrystEngComm* **22**, 7272 (2020).
- [6] K. Kawai, D. Asakura, S. Nishimura, A. Yamada, *Chem. Mater.* **33**, 1373 (2021).
- [7] H. Yaguchi, K. Fujii, Y. Tsuchiya, H. Ogino, Y. Tsujimoto, M. Yashima, *ACS Appl. Energy Mater.* **5**, 295 (2022).
- [8] M. Matsui, K. Fujii, M. Shiraiwa, M. Yashima, *Inorg. Chem.* **61**, 12327 (2022).
- [9] Y. Suzuki, T. Murakami, K. Fujii, J. R. Hester, Y. Yasui, M. Yashima, *Inorg. Chem.* **61**, 7537 (2022).
- [10] S. Nishimura, A. Hayashi, A. Sakuda, A. Yamada, *ACS Appl. Energy Mater.* **5**, 14053 (2022).
- [11] M.S. Alam, I. Kagomiya, K. Kakimoto, *J. Solid State Chem.* **309**, 122976 (2022).

BL-4C：精密単結晶 X 線回折ステーション

中尾 裕則

物質構造科学研究所 放射光科学第一研究系

1. 概要

本ビームラインは、4 軸回折計（HUBER）を用いた精密 X 線回折ステーションとして、PF 建設当初より運用されてきている [1]。そのため各種ビームラインコンポーネント・実験機器は老朽化し、心臓部である回折計はすでに 30 歳を超えている。しかしながら、物性変化に伴う僅かな結晶・電子構造の変化を捉え、その物性の起源を解明する「構造物性研究」が、現在も盛んに行われている。このような物性変化に伴う構造変化を反映した微弱な信号を捉えるために、回折計・検出器等は老朽化対策とともに整備してきた。また、様々な外場下で多彩な物性を示す系がターゲットであり、以下のような温度・磁場といった外場下での実験用付帯設備が整備されている。

温度：He 循環型冷凍機（4-320 K），
広範囲温度実験用 He 循環型冷凍機（10-600 K），
電気炉（300-1000 K）

また X 線の偏光を利用した「共鳴 X 線散乱手法」を用いて、物性変化に対応した電荷・軌道・スピンの秩序状態を調べる研究が数多く行われている。そのため、散乱光の偏光状態を調べることが重要であり、偏光解析装置が整備されている。また対象とする系は多種多様であり、ビームラインとして用意している各種機器に加え、ユーザーが自由な装置を組み付けることで、他にはない実験条件での実験が実施できるのも特徴である。このように多彩な実験環境（Do it yourself な環境）を維持するのは、ビームライン担当だけでは難しく、ユーザーと協力することで初めて可能となっている。

2. 整備開発および運用状況

4 軸回折計の実験は、上述にあるような測定対象に応じた多彩な実験環境に対応することで常に新しい研究が行われているが、測定に関するハード的な部分は長年同じである。一方、ユーザーと装置をつなぐソフト的な部分は、改良の余地がある。例えば、任意の配置で回折計上の各種機器を設置できるように光学ベンチの整備を行うことで、実験の自由度を格段に向上させた。また、回折計・ビームラインの制御ソフトウェア SPEC の維持管理の改善、実験時の各種パラメータのロガーシステムの整備を進めてきた。最近では、ユーザー独自の機器の持ち込みも増えてきているが、持ち込み機器に対しても SPEC からの制御が自由に行われている。パルス検出型 2 次元 X 線カメラ（図 1）は、ピーク位置の精密測定や S/N の向上など、大変有用であ

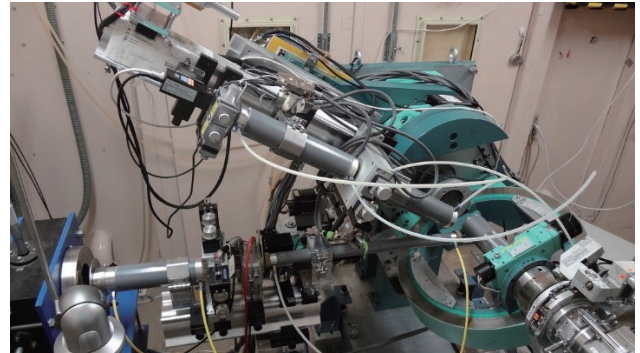


図 1 4 軸回折計に He 循環型冷凍機を搭載している。20 アーム上に、2 次元 X 線検出器が搭載され、精密な格子定数測定が行われている様子。

り、利用するユーザーが増加している。また 2022 年度初めよりヘリウムガスの利用の制限が始まったため、これまで利用してきた He パスの真空パス化を進めた。当初、色々と問題が出たが、以前と同じレベルで実験に応じて自由に真空パスを組み上げられるようになってきた。ただし、真空パス化に伴って、今までより厚いカプトンを窓材として利用している。そのため低エネルギー側の実験は、窓材の X 線吸収の影響が気になるようになった。加えて、2022 年度より NoMachine でのユーザーによる遠隔操作の運用が開始した。Nextcloud によるデータの共有などを組み合わせた、新たな実験環境の利用を進めているところである。

BL-4C は、PF 建設当時より運用が開始された古いビームラインということもあり、毎年老朽化に伴う作業を行っている。2022 年度は、主力の X 線検出器であるシリコンドリフト型 X 線検出器の故障による新しいものへの更新及びハッチの換気扇の交換を実施した。

3. ビームタイム利用状況

ベンディングマグネットビームラインである BL-4C は、汎用的な構造物性研究を展開するビームラインとして利用されている。また BL-3A は、同様の実験が実施可能でかつ、挿入光源ビームラインであり、輝度が高く、大強度の X 線が利用できる。そこで、BL-3A、4C のビームタイム配分は、希望、研究内容を精査の上、BL-3A でないといけない研究（大強度、超伝導磁石の利用など）を優先して BL-3A でビームタイム配分し、初めての実験の予備的実験や、時間をかければ実施可能なものは、BL-4C でのビームタイム配分するように調整の上、課題評点を加味し決定している。またビームタイム希望調査では、希望配分日数と、実験を実施する上で最低限の日数を伺い、可能な限り広いユ

ーザー層に使ってもらえるようにしている。しかしながら、最近のビームタイムの減少の影響もあり、評点の低い課題に配分できないことも生じている。ただし最低限、年1回の実験は可能な状況を維持している。

謝辞

Heパスの真空パス化に伴って、機械工学センターに大変お世話になった。

引用文献

[1] H. Iwasaki *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **60**, 2406 (1989).

BL-6C：X線回折・散乱実験ステーション

八方 直久¹，杉山 和正²，福田 勝利³，村尾 玲子⁴，林 好一⁵，木村 正雄⁶，
大田 浩正⁷，中尾 裕則⁸

¹ 広島市立大学 情報科学研究科，² 東北大学 金属材料研究所，³ 京都大学 産官学連携本部，

⁴ 日本製鉄（株）先端技術研究所，⁵ 名古屋工業大学 工学研究科，

⁶ 物質構造科学研究所 放射光科学第二研究系，

⁷ 三菱電機システムサービス（株）加速器技術センター，⁸ 物質構造科学研究所 放射光科学第一研究系

1. 概要

BL-6C では、物質の構造・物性や機能を解明することを目的とした硬X線領域の回折・散乱・吸収実験を行っている。精密構造解析用4軸回折計、薄膜評価用表面回折計、動的構造解析用多軸回折計の3つの回折計が常設されている。また、蛍光X線ホログラフィー測定装置や、吸収分光実験のセットアップを行う事もできる。実験ごとにハッチ内の装置レイアウトを変更することで、X線異常散乱、X線共鳴磁気散乱、表面回折、in-situ X線回折、蛍光X線ホログラフィー、X線吸収スペクトル測定など、多様な実験が可能となっている。2結晶分光器と集光ミラーのレイアウト変更により、2014年5月から集光可能なX線エネルギー領域が18 keVまで拡大したことで、ユーザーのアクティビティが向上している。また、2020年に、これまで長らく使用してきた大型の3軸4円回折計を、装置老朽化のために撤去した。撤去後のスペースを利用することで、X線吸収スペクトル測定装置などの設置が簡便になっている。

2. 整備開発および運用状況

BL-6CはUG運営ステーションであり、物質物理UGとPF所内担当で協力してビームラインの保守・管理に当たっている。2022年度は、老朽化により故障した、V/Fコンバータの更新を行なった。その他の実験装置は、測定手法別に小グループを組織し、保守や改良を行っている。本年度は、コロナウイルスの影響も、ほぼなくなり、蛍光X

線ホログラフィー（代表：八方直久）、精密構造解析（代表：杉山和正）、表面回折（代表：福田勝利）、動的構造解析（代表：村尾玲子）の4グループ全てが活動することができた。

3. ビームタイム利用状況

実験手法ごとに用いる実験装置が異なり、装置や実験レイアウトの切り替えが発生する際には実験の立上げに時間を要する。そこで、立上げにかかる時間を減らし効率的に実験を行うため、BL-6Cでは同じ実験手法を用いて行う課題のビームタイムは連続した日程での配分を行っている。測定手法別の小グループごとに、代表を中心にWGメンバーで実験セットアップや小グループ内の新規ユーザーの実験支援を行っている。2022年度第1期は17課題（計54日）、第2期は19課題（計74.3日）、第3期は9課題（計22.3日）のビームタイムを実施することができた。第3期は当初、電気料金高騰により運転されないと案内されていたが、関係者の努力により運転されることになった。しかし、急遽決まったため、スケジュールが合わず、配分を辞退されるグループが多く、9課題だけの配分となった。2022年度前期より2組、後期より2組、計4組の新規ユーザーが参加している。

4. 今後の展望

効率的で新規ユーザーにも使いやすい実験システムの構築を目指すとともに、昨今の事情を鑑みて、可能な限りのオンライン化、自動化を進める予定である。

BL-7C：汎用X線ステーション

杉山 弘

物質構造科学研究所 放射光実験施設

1. 概要

本ビームラインは2013年秋にXAFS優先ステーションからX線汎用ステーションに運用方法を変更し、現時点では特定・優先の使用目的を設けずに運用されている唯一のX線汎用ステーションである。ビームラインの特徴としては比較的大型の実験装置を課題に応じて自由に搬出入可能、高調波除去全反射ミラー、サジタル結晶による集光などの特徴がある。

2. 整備開発および運用状況

PF建設初期から使用されている数少ないビームラインであるため、現状の機能を可能な限り維持することに努めた。各種機器の老朽化も進み、真空機器や圧空機器などを中心に毎年いずれかの機器の修理、保守などを実施している。各種機器の保守・修理を早期実施することによりビームタイム日程に影響しないようにしている。

2022年夏期停止期間中にはモノクロメータ結晶と真空排気系の保守・変更を実施した。モノクロメータ第一結晶については結晶表面に堆積したカーボンをエキシマランプ洗浄により除去した。また第二結晶であるサジタル集光用結晶については集光性能が悪化したため新しいサジタル集光用結晶に交換した。今後は第一、第二結晶ともに2年程度毎にカーボン除去洗浄を実施していく予定である。

また老朽化した真空ポンプを交換し、真空排気系統を変更した。

これまで使用していたドライテル（1025型）からターボ分子ポンプ（TMP，STP-iX455）＋ドライポンプ（NeoDry15E）の組合せに交換した。これに伴い排気系統を変更して、ドライポンプ1台だけで全て粗排気を実行できるようにし、これまで粗排気用に使用していた油回転ポンプを全て廃止した。

3. ビームタイム利用状況

汎用ステーションであるため、実験装置の入替が頻繁に行われる。したがって可能な限り同一装置の課題をまとめて実施することにより、立上・調整や搬出入の回数を減らし、ビームタイムを有効活用して多くの課題が実施できるようにした。実験手法は多岐にわたり2022年度は薄膜回折、二次X線分光、異常散乱、溶液表面全反射XAFSといった手法による実験が実施された。

4. 今後の展望

汎用ステーションであるがゆえにユーザ側からビームラインに特別な機能を追加する要望はほぼ無い。専用化される予定は今のところ無いため、基本的には現状機能を可能な限り維持する。また反射効率および集光性能を維持するために、モノクロメータ第一、第二結晶ともに2年程度毎にカーボン除去洗浄を実施していく予定である。

BL-8A/8B：多目的極限条件下ワイセンベルグカメラ

奥山 大輔

物質構造科学研究所 放射光実験施設

1. 概要

BL-8A と 8B にはそれぞれに大型二次元 Imaging Plate (IP) 検出器を用いた汎用回折計が設置されている。IP の面積が異なる等の若干の違いはあるものの、アタッチメントの規格を共有してほぼ同等の測定環境を実現し、二つのビームラインを一元化して管理運営を行っている。回折計は RIGAKU が市販する X 線回折計 RAPID と概ね共通のシステムを用いて操作できるため、ラボ機と同様の簡便さで放射光 X 線回折実験を行うことができる。IP は高いダイナミックレンジで広い Q 空間を測定できるため汎用性が高く、粉末結晶試料、単結晶試料を主として、ナノ粒子、カーボンナノチューブ、液体等の非晶質試料の測定も行われている。輝度の高い放射光 X 線と IP の高ダイナミックレンジを利用した精密構造解析を得意としていて、例えば、電子密度解析により物質中の水素の電子状態やその位置を精度よく決定する、微小な超格子反射やわずかな反射のスプリットをとらえて結晶対称性を決定する、等の高い精度が要求される実験が行われている。入射 X 線のエネルギーを選択し (5~21 keV)、逆空間の測定範囲や X 線吸収の大小等の測定条件を最適化することができる。また、異常散乱項を積極的に利用することも可能である。

試料環境について汎用性の高いことも特徴の一つであり、高圧、低温、高温、等の極端条件下での測定を簡便に行うことができる環境が整っている。そのため初心者のユーザーの利用が比較的多く、放射光を用いた回折実験の入り口として機能している。はじめに IP を用いた広範囲測定で回折像の全体像を把握し、他のビームラインで特定の領域をゼロ次元ディテクターで詳細に測定することで、効率よく研究を進めることができる。

2. 整備開発および運用状況

測定試料は単結晶、粉末結晶、非晶質試料と多岐にわたる。それぞれの測定によりニーズが異なるため、いずれの実験においても精度の高いデータが得られるよう、安定したビームと散乱強度測定を提供できるように整備を行っている。低温、高温、高圧、電場下といった極限環境下での測定のニーズが高いため、これらの測定を簡便かつ低バックグラウンドで行えるよう、付属装置を開発し測定環境の拡充を継続的に行っている。具体的には、ダイヤモンドアンビルセル、ピストンシリンダー型圧力セル (高圧下 (~1 GPa) で単結晶構造解析が可能)、He 循環型冷凍機 (室温 ~ 4 K)、電気炉 (室温 ~ 1000 K)、ガス吹き付け型冷凍機 (400 K ~ 30 K)、高温窒素ガス吹き付け装置 (室温 ~ 700 K)、粉末試料用スピナーが使用可能である。

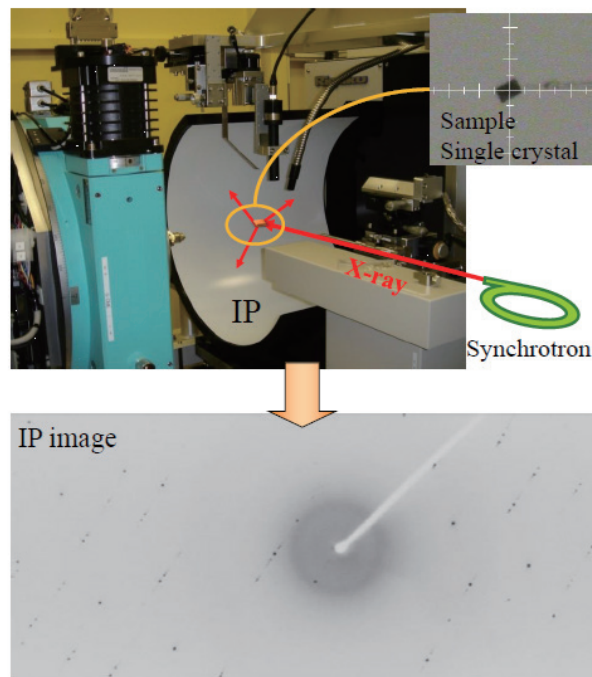


図1 BL-8A に設置されている IP 回折計

また、バルク試料や重い元素の入った試料を用いた回折実験のために、より短い波長の X 線を用いた回折実験のニーズが高まっており、AR-NE1A にて 35 keV の X 線を用いて同様の実験が可能になるようサポート体制をとっている。

3. ビームタイム利用状況

2022 年度は概ね予定通り稼働した。トラブルによるビームタイムの損失はほとんど無い。

4. 今後の展望

汎用性が高く簡便に高精度の放射光回折実験ができる環境を安定して供給することを第一に運営する。BL-8B の He 循環型冷凍機の更新を行い、温度計の表示温度ではあるが (室温 ~ 3 K) での実験が BL-8B でも可能となった。

BL-10A：鉱物・合成複雑単結晶構造解析

栗林 貴弘¹, 山根 峻², 杉山 和正², 吉朝 朗³, 熊井 玲児⁴

¹ 東北大学 大学院理学研究科, ² 東北大学 金属材料研究所, ³ 熊本大学 先端科学研究部,

⁴ 物質構造科学研究所 放射光科学第一研究系

1. 概要

BL-10A は、途切れの無いチューナブルな波長と極めて高い回折角度精度を特徴とする放射光X線に対し、四軸型回折計とシンチレーション検出器を用いた単結晶X線回折法の優位性を利用した逆空間での空間分解能に秀でたビームラインである。複雑な化学組成をもつ天然の鉱物や、優れた物性を発現する素子材料物質の結晶構造の詳細（構造中の特定元素の位置特定や変調構造解析などを含む）を解明することを目的とした実験が行われている。近年では、圧力誘起相転移機構の解明とその相転移後の空間群（構造）の決定、Debye-Waller 因子による格子振動解析、対称中心存在の有無やキラリティーの決定、電子密度分布解析、欠陥構造解析など物質現象の本質を結晶構造の観点から明らかにすることを目指している。

BL-10A では、前述の目的のために通常の回折実験だけでなく、ダイヤモンドアンビルセルによる超高圧実験、低温・高温実験、強磁場・電場印加実験等の各種物理条件を変えた測定が可能であり、また波長可変を活用した異常散乱実験などが行われている。放射光X線とシンチレーション検出器を用いた単結晶X線回折法の特性を最大限引き出した固有の研究ステーションとして、深化をはかりつつ、次世代の研究者の育成も含めた運用を行っている。しかしながら、PF 開設最初期から運用されている BL のため、垂直型四軸回折計とその計測系の老朽化が進んでおり、現状のシステムの更新が不可欠となっている。そのため 10A の特徴を活かした新たな測定システム（同一微小試料の X 線回折実験と X 線分光測定）の構築・改善を進めている。

2. 整備開発および運用状況

BL-10A は、UG 運営ステーションであり、鉱物・合成単結晶 UG と所内担当者が協力してビームラインの保守・運営管理にあたっている。

BL-10A では精密構造解析が主体であり、そのためには強度データを如何に精密に測定できるかが重要である。これまでに多くのユーザーの多様な実験に活用され成果を上げてきた装置であるが老朽化してきている。そのため、架台や回転部のメンテナンスには細心の注意を払って角度精度を維持している。ユーザー側にも、強度データの同価点測定による精度の確認、実験室では取得できない高角度領域の強度データの取得等を行ってもらうことで、放射光データによる高精度の精密構造解析を行っている。また、高圧実験では、高圧実験用の専用プログラムが用意されており、合わせて四軸型回折計の ϕ 軸部にダイヤモンドアンビ

ルのような重量物をゴニオメーターに搭載するため、保持強度を高めており、これ以外にも各種実験に合わせて対応できるよう装置周辺環境を整えている。

現状、本装置を利用するにあたり、ある程度専門的な結晶学的知識が必要なため、誰でも容易に使用できるユーザーフレンドリーな状態ではないが、使いこなすにあたって学生等への教育効果が大変大きいといったプラス面もある。実際、BL-10A での実験をベースに報告された文献 [1] は 2022 年 9 月開催の日本鉱物科学会総会において学生論文賞を受賞しており、BL-10A の有する研究上ならびに教育上のポテンシャルを示している。しかしながら、古いシステムであるため、多様な実験をより容易に行える高度化を伴ったシステムへの更新は不可欠であり、それを実現すべく努力している現状である。また、BL-10A のユーザーグループメンバーで広く情報交換、意見交換を行い、多様な実験環境の維持を協力して行い、更新に向けた協議と改善作業を行っている。

3. ビームタイム利用状況と成果の例

BL-10A はベンディングマグネットビームラインであり、短波長から長波長までの波長可変性を活かした結晶構造解析を主体とする研究に活用されている。近年では、異常分散効果を積極的に活用した結晶構造解析（AXS）、日本産新鉱物の高精度結晶学的データ測定、ダイヤモンドアンビルセルによる高圧下での測定、超重力を印加した新物質の測定、機能性結晶の精密解析に向けた測定、温度変化に伴う Debye-Waller 因子の変化による格子振動解析等の課題申請が行われ、採択されている。ビームタイムの配分は、放射光共同利用実験審査委員会（PF-PAC）の取得点数によって時間傾斜配分を行っており、3 点以上の課題に関して配分を行っている。その際のビームタイム希望調査では、希望配分日数と、実験を実施するために必要な最低限の日数を調査し、可能な限り広いユーザー層に使ってもらえるように対応している。

4. 今後の展望

単結晶X線回折実験は、測定時間短縮の恩恵が大きい二次元検出器による実験が主流となっているが、BL-10A での放射光X線の特長とシンチレーション検出器を用いた四軸型回折計による精密測定装置の存在意義は大きく、回折計を有する BL-10A の特性をフル活用した実験結果から、多様な重要成果が得られており [1-3 など]、加えて BL-10A ステーションでは、広い選択波長領域を活用し

た異常分散散乱法とその XAFS 測定が可能であり、同時測定まではできないが、X線回折法とX線分光法を切り替えて同一領域を測定できる利点がある。こうした利点を新たに活用し、周期表上で隣接する元素が含まれる物質の構造中における各元素の席選択性を精査するなど、BL-10Aの特徴を活かした測定ステーションを目指している。日本における本装置の存在価値をさらに高め、本装置により築かれたノウハウを基に温故知新で日本先導の先端装置の開発を進めたい。

引用文献

- [1] K. Okamoto, T. Kuribayashi and T. Nagase, *J. Mineral. Petrol. Sci.* **116**, 251 (2021).
- [2] G. Kitahara, A. Yoshiasa, M. Tokuda, M. Nespolo, H. Hongu, K. Momma, R. Miyawaki and K. Sugiyama, *Acta Cryst. B* **78**, 117 (2022).
- [3] T. Kuribayashi, T. Nagase, T. Nozaki, J. Ishibashi, K. Shimada, M. Shimizu and K. Momma, *Mineral. Mag.* **83**, 733 (2019).

BL-14A：単結晶構造解析／検出器開発ステーション

佐賀山 基

物質構造科学研究所 放射光科学第一研究系

1. 概要

BL-14A は単結晶構造解析／検出器開発ステーションとして運用している。世界的にもユニークな垂直偏光を発生させ、しかも 5T の超伝導磁石による強力な磁場により放射光のエネルギーを高エネルギー側へと押し上げる垂直ウィグラーを光源とするビームラインである。垂直 (ω) 回転軸の 4 軸 X 線回折計はおもに無機結晶の精密構造解析に利用されている。90 年代半ばにはシリコン・アバランシェフォトダイオード (Si-APD) 検出器と組み合わせた精密測定法が確立され、主として汎用自動測定に利用されてきた。近年は高速 4 軸回折計 + APD 検出器 + 多重回折回避プログラムを組み合わせた精密構造解析法の特長を意識した利用を進めている。

また、広いエネルギー範囲 (5-80 keV) および縦偏光と 10^{10} phs/mm² 程度までの X 線ビーム強度を利用して検出器開発研究が展開されている。

2. 整備開発および運用状況

BL-14A の光学系パルスモータ制御および 4 軸 X 線回折計測定システムでは GP-IB 通信によるパルスモータコントローラおよび高速パルス計測系 (CAMAC) が使われていたが、20~30 年経過していること、制御機器の仕様が更

新されてより高度な制御・計測が可能となっていることから、今後の継続性・汎用性の点を考慮しイーサネット通信による制御・計測システムへ移行するべく作業を進めている。2023 年度よりピクセルアレイ型二次元検出器 (PILATUS3S 1M) が利用できるよう環境整備を行う予定である。

3. ビームタイム利用状況

超伝導垂直ウィグラーの光を使って順調にユーザー利用を進めている。回折計利用課題のビームタイムについては 6 日間程度 (最短で 4 日間)、検出器開発については 3 日間程度を基準に配分している。

4. 今後の展望

Si-APD 検出器など独自の検出器開発と垂直偏光を利用した高速 X 線回折計の組み合わせにより精密・高効率測定の手法開発をさらに進める。光学系多軸同時駆動を実現し、高速駆動 4 軸 X 線回折計と高速パルス検出器による高精度・高計数率測定を効率よく行うシステムの整備を進める。さらに 2 次元ピクセルアレイ型検出器 (PILATUS3S 1M) の導入に向けて電動検出器移動ステージ等を開発整備し、微弱な超格子反射などの精密観測を可能にする。

BL-18B : Multipurpose Monochromatic Hard X-ray Station

熊井 玲児¹, Mrinmay K Mukhopadhyay², Saha Pinku³, Vishnu Kumar³, Ananya Chattarj³

¹物質構造科学研究所 放射光科学第一研究系, ²Saha Institute of Nuclear Physics (SINP),

³Jawaharlal Nehru Centre for Advanced Scientific Research (JNCASR)

1. 概要

BL-18B (インドビームライン) は 2008 年に締結されたインド DST (科学技術省) と KEK の協定に基づき設置された汎用 X 線実験のためのビームラインとして、インド人研究者による運営が行われている。インド側プロジェクトによるインド国内研究者向けの利用に加え、放射光共同利用実験課題審査委員会 (PF-PAC) による課題選定を通じた一般の共同利用も受け入れている。ハッチ内には 2 台の回折計が導入され、利用できる実験手法は、(a) 高分解能粉末 X 線回折, (b) 低温 ($T > 10$ K) 粉末 X 線回折, (c) 高温 ($T < 1200$ K) 粉末 X 線回折, (d) 単結晶およびエピタキシャル薄膜回折, (e) 固体表面・界面の反射率・散漫散乱測定, (f) 斜入射及び透過配置による X 線小角散乱, (g) 液体表面の斜入射 X 線回折及び X 線反射率測定, (h) 高圧 X 線回折である。

2009 年度よりビームラインの貸与が開始され、コミッショニングを行った後、2011 年 10 月よりユーザー実験が開始された。まずインド人一般ユーザーからの公募による実験課題を実施し、その後 2014 年度より PF-PAC 課題による日本人を含む一般ユーザーの利用が開始された。インドビームラインプロジェクトは、インド科学技術省 (DST) の後援による資金提供を受けており、第一期はコルカタの Saha Institute of Nuclear Physics (SINP) によって実施され、2016 年度から開始された第二期はバンガロールの Jawaharlal Nehru Centre for Advanced Scientific Research (JNCASR) によって運営実施されている。

2022 年度 5-7 月期は、新型コロナウイルス感染症拡大の影響で、インド人ユーザーによる実験のうち、一部となる 4 課題はメールインサンプルモードで実施したが、残りの 31 課題ではユーザーが来所してオンサイトで実験を実施

した。特に 10 月以降はすべての課題をオンサイトで実施した。メールインサンプルモードでは、ユーザーがサンプルを送付し、ビームラインに常駐するインド人研究者とユーザーが相談しながら実験を進めた。

2. 整備開発および運用状況

本ビームラインの運営およびユーザーサポートは PF スタッフの協力を得て常駐インド人研究者により行われている。ビームライン設置以降、各種測定装置は主に SINP により開発が行われ、現在は JNCASR が主に調整を行っている。2022 年度も大きなトラブルはなく、順調にユーザー実験が行われた。インド側プロジェクトによる課題審査を経てビームタイムを配分された課題にはインド DST からユーザー実験に必要な経費が全額補助されている。

3. ビームタイム利用状況

BL-18B では、全ビームタイムの 50% まで PF-PAC を通じて申請された一般課題を受け入れており、残りのビームタイムはインド側プロジェクトを通じて募集したインド国内研究者向けに配分している。インド人ユーザーからの課題は年に 2 回 (6/15, 12/15 締切) 募集を行い、インドビームライン運営委員会により選定された国際評価委員会による審査を行い、ビームタイム配分を行っている。PF-PAC を通じて採択された一般課題については、PF のビームタイム配分委員会による配分を行っている。2022 年度は新型コロナウイルス感染症の影響による入国規制の緩和が進んだことにより、7 月までに常駐研究者 2 名を含む 8 名が来所し、10 月以降はさらにインド国内の 38 名の研究者が来所して実験を行った。インドプロジェクトにより採択され、2022 年度に実施した課題はのべ 35 課題 (うち PF-PAC 課題 2 件を含む) であり、来所ユーザー数、実施課題数ともに順調に増加している。2022 年度に発表されたインド BL を利用した論文数は 30 報であった。

4. 今後の展望

プロジェクト第二期で導入を予定していたすべての装置の設置が完了し、一般ユーザーに開放された。2023 年度以降に新たなプロジェクトの開始を目指している。

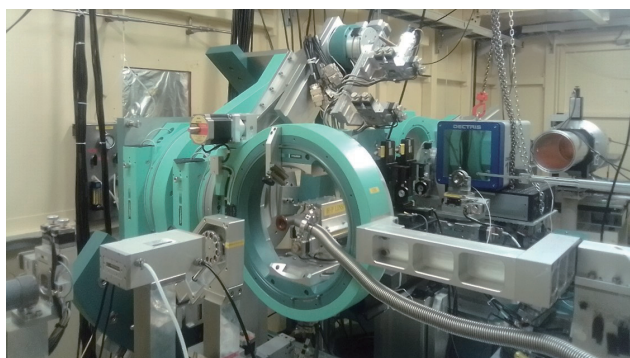


図 1 BL-18B 実験ハッチ内の装置

BL-4A：蛍光X線分析／マイクロビーム分析

宇尾 基弘¹，光延 聖²，高橋 嘉夫³，木村 正雄⁴，丹羽 尉博⁵，飯田 厚夫⁶

¹ 東京医科歯科大学 医歯学総合研究科，² 愛媛大学 農学部，³ 東京大学 大学院理学系研究科，

⁴ 物質構造科学研究所 放射光科学第二研究系，⁵ 物質構造科学研究所 放射光実験施設，⁶ 高エネルギー加速器研究機構

1. 概要

本ステーションでは放射光X線集光ビームによる放射光蛍光X線分析を主に行っている。放射光蛍光X線分析法は低バックグラウンドのため検出下限が低く、しかも信号強度が高いため感度の高い元素分析の手法である。特にX線集光ビームを用いた局所領域の非破壊元素分析法にその特徴がある。生物学・医学応用試料や岩石などの地球物理学試料・各種環境試料の分析、さまざまな物質科学の材料評価に使われている。

放射光蛍光X線分析は元素分析のみならず、蛍光X線強度の入射エネルギー依存性測定（XAFS）による化学状態分析も同じ装置で実現できるため応用領域が広い。

本ステーションは、放射光源として偏向電磁石を利用し、ビーム射出位置固定型2結晶分光器（DCM）により単色化したX線領域の放射光を利用している。実験ハッチは光源からは13 mの位置にあり、X線集光光学系はハッチ内に設置されている。本ステーションでは、Kirkpatrick-Baez（K-B）集光光学系（KB実験）を用いたX線マイクロビーム（ビームサイズ約5 μm角）、およびPoly-Capillaryレンズを用いたセミ・マイクロビーム（ビームサイズ約30 μm径；PC実験）が利用でき、上記蛍光X線分析・XANES測定などが定常的に行われている。

2. 整備開発および運用状況

本ステーションは蛍光X線分析関連ステーションとしてPF初期から利用されてきたが、2014年度よりユーザーグループ運営ステーションとして測定手法をマイクロビームとセミ・マイクロビームに特化し再出発した。2022年度の整備状況と関連する活動について以下に記す。

- (1) 2022年度も引き続きユーザーグループ運営ステーションとして調整方法定型化を図り、運営ワーキンググループメンバーのみによる調整が可能な状況になっている。調整作業の負担軽減と安定運用に向けた検討を進めている。
- (2) 2022年度第Ⅰ期はKB実験のみとし、第Ⅱ期はKB実験からスタートして、期中でPC実験への切り替えを行って後半約1/3をPC実験とし、第Ⅲ期は前半をPC実験、期中でKB実験に切り替えて実験を終えている。

3. ビームタイム利用状況

ビームタイムは、ユーザーからの「ビームタイム要求書」による要求希望時間および利用可能な時期についての要望に従い配分している。ユーザーグループ運営ステーション

化以後は利用ユーザーの数が絞られた状態にあり、2022年度の新規課題は9課題（BL-4Aを併用する課題も含む）あり、活発に利用されている。2022年度は要求ビームタイムが配分可能ビームタイムをやや上回る程度のため、調整の困難は生じていない。

4. 今後の展望

本ステーションは、ビームサイズやX線強度などの点で実験室系分析装置とナノビーム放射光分析ステーションの中間位置を占める装置として、またユーザーフレンドリーな放射光X線分析装置としてユーザーに利用され研究成果も出ている。また例年、継続申請が多いとはいえ、いくつかの新規課題申請もある。このことから本ステーションは放射光マイクロビーム蛍光X線分析ステーションとしての性能は先端的とは言えないが、適切な運営のもとで存在意義は十分にあると考えられる。この考えのもとユーザーグループ運営ステーションとして9年間運用してきており、その間の管理運営の実績を検討するとステーションとして定常状態に入りつつあると思われる。今後、さらにユーザーグループがより自立的に長期に安定して運営できるよう検討を進めている。ユーザーの要望としてKB実験の希望が多いため、2019年度からは、PC実験とKB実験の切り替えを第Ⅱ期と第Ⅲ期の年間で2回だけにして運営の負担を軽減する工夫を行っている。さらに長期的には施設の将来計画との整合性を含めて、検討を行う必要がある。

BL-9A：XAFS（高強度）実験ステーション

阿部 仁^{1,3}, 丹羽 尉博², 仁谷 浩明², 松岡 亜衣², 木村 正雄¹

¹物質構造科学研究所 放射光科学第二研究系, ²物質構造科学研究所 放射光実験施設

³茨城大学 大学院理工学研究科

1. 概要

高強度X線と7素子シリコンドリフト検出器(7SDD)を利用した希薄試料測定に適したXAFS実験ステーションである。また、セットアップの変更により、He雰囲気下で軟X線(~2.1–4 keV)領域(SX-mode)も利用可能である。モノクロメーターの上流に平行化ミラーが設置してあることによりエネルギー分解能を損ねることなく、高強度(high flux)のX線が得られる。また、軟X線(~2.1–4 keV)領域で抜群の強度を持つことも特徴で、P, S, Clなどの軽元素に加え、K, Caなどの測定に威力を発揮する。一方で、高エネルギー側のcut offは低く、~15 keVとなっている。高強度であることを活かし、7SDDでのQuick scan測定(MSSD-QXAFS)が可能なシステムも導入されている。

上記特性を活かした実験として、ユーザー所有装置の実験ハッチ内持込み、XAFS定盤上への設置による課題も多く行われている。

2. 整備開発および運用状況

高強度X線が得られ、7SDDが設置されていることから、希薄試料測定、微弱信号検出測定を行う課題を中心に運用した。

I0およびI測定に用いる2台のアンプの更新により、ゲイン変更等は測定用PCから行う設定としている。これらは、従来のような、アンプを直接操作してのゲイン変更はできない設定となっている。一方、I2測定用アンプについては従来のままであり、I2を利用の場合は、アンプを直接操作する必要がある。

また、SX-modeでのP, S, Clなどの軽元素の測定を行う課題の実施も推進した。

物構研スタッフによる研究として、XAFSを用いた食品中のCaの化学状態分析に関するテーマが科研費やロッテ財団(2021.4-2022.3)の支援を得て進められている。「量子ビームを用いた食品科学」として他の量子ビーム研究者との連携も含めて量子ビーム連携研究センター(CIQuS)のプロジェクトとしても発展している。複合測定環境の構築も含め、9Aの特徴でもある比較的低エネルギーのXAFS利用研究の推進に繋げたい。

3. ビームタイム利用状況

材料科学部門のXAFS関係BLは一元化してビームタイム配分を行っている。希薄試料測定、微弱信号検出測定を行う課題からの需要が多い。また、CaやTiなどの4–5 keV程度の測定の需要に加え、ランタノイドのL吸収端測定、軟X線(Tender x-ray)領域のP, Sの測定希望も一定程度ある。例えば、金属錯体の配位子に含まれるSのXANES測定から電子状態について考察するような実験が行われている。特に、9Aを利用した3件のT型課題でこれらの実験が積極的に行われてきた。高強度X線で7SDD測定が出来ることから、需要の多い実験ステーションとなっている。

4. 今後の展望

引き続き高強度X線と7SDDを活かした希薄試料測定、微弱信号検出測定が実施可能な実験ステーションとして運用して行く。

SX-modeでP, S, Clなどの軽元素の測定が可能であり、生体関連物質やその模倣錯体をはじめとして、これらの測定に関する潜在的需要は少なくないと考えている。一層の需要を喚起できるよう、宣伝していきたい。

BL-9C : XAFS (その場) 実験ステーション

阿部 仁^{1,3}, 丹羽 尉博², 仁谷 浩明², 松岡 亜衣², 木村 正雄¹

¹物質構造科学研究所 放射光科学第二研究系, ²物質構造科学研究所 放射光実験施設

³茨城大学 大学院理工学研究科

1. 概要

各種ガス雰囲気下でのその場 (*in situ*) 観察 XAFS 測定を容易に実施可能な XAFS 実験ステーションとして整備している。高次光除去ミラーや多素子半導体検出器を持たないことなどから、主に透過法あるいは Lytle 検出器を用いた蛍光法による汎用 XAFS 実験ステーションという位置付けであった。XAFS 実験ステーションの全体構成において、主な役割の明確化という方針のもと、温度制御された試料の各種可燃性および支燃性ガス雰囲気下での *in situ* XAFS 測定に最適な実験ステーションとして整備を進め、可燃性および支燃性ガスのシリンダーキャビネット、ガス無害化用の触媒燃焼器が常設となった。各種ガスの流量や切替の制御、専用 *in situ* cell での温度制御等は、専用 PC から行える。この整備により、従来よりさらに *in situ* 実験に取り組みやすくなり、安全性も格段に向上した。また、蛍光収量モードでの測定が可能で反応ガスを流通することができる蛍光 XAFS 用フローセルも導入された。

測定プログラムも、様々なリクエストに応える形で拡張され、QXAFS での多元素連続測定、外部機器との連携、などが可能となってきている。

ハードウェアおよびソフトウェア両面の進化により、多様なリクエストに対応できる *in situ* XAFS 測定環境が構築されつつある。比較的容易に多様な *in situ* XAFS 測定が実施可能な実験ステーションとして整備及び高度化を進めていく。

2. 整備開発および運用状況

各種ガス雰囲気下での *in situ* XAFS 測定を容易に実施可能な XAFS 実験ステーションとして、整備している。*in situ* 実験の利便性、安全性を向上させるべく、細かなアップデートを随時実施している。

以前の 9C には希薄試料測定に適した半導体検出器が設置されていなかったが、2021 年度に 3 素子 SDD が設置された。この筐体には拡張スロットがあり、2022 年度に 7 素子 SDD へアップグレードを行った。これにより、9C においても蛍光法での測定が 9A, 12C と同様に行うことができるようになった。

I0 および I 測定に用いる 2 台のアンプの更新により、ゲイン変更等は測定用 PC から行う設定としている。これらは、従来のような、アンプを直接操作してのゲイン変更はできない設定となっている。一方、I2 測定用アンプについては従来のままであり、I2 を利用の場合は、アンプを直接操作する必要がある。

光学系では、高次光除去ミラーの導入を希望しているが、残念ながら必要な予算の確保には至っていない。

物構研スタッフによる手法開発として、Kramers-Kronig 変換を用いた表面敏感な XAFS 測定手法の開発を行ってきた (科研費若手 B, 若手 A)。種々の表面現象の XAFS 解析に応用可能で、通常、表面では困難な各種ガス雰囲気下での *in situ* XAFS 測定を可能にする手法である。この手法は全反射 X 線分光法 TREXS (Total REflection X-ray Spectroscopy) と名付け、更なる高度化を目指し、赤外反射吸収分光法 IRRAS (Infrared Reflection Absorption Spectroscopy) と組み合わせた実験環境の開発などを進めている。

3. ビームタイム利用状況

材料科学部門の XAFS 関係 BL は一元化してビームタイム配分を行っている。多素子半導体検出器や高次光除去ミラーがないことなどの理由により、従来は 9A, 12C に比べて需要が低かったが、*in situ* XAFS 測定環境を整備したことにより、需要が急増した。この結果、希望時間数通りのビームタイムが配分可能な課題の評点は概ね同等程度となった。企業ユーザーからの要望も増加している。

4. 今後の展望

各種ガス雰囲気下での *in situ* XAFS 測定環境の一層の充実、高度化を目指す。適切に宣伝を行い、潜在的需要を喚起したい。また、2021 年度に設置した 3 素子 SDD を、7 素子 SDD へとアップグレードできたことにより、微量元素や希薄試料の蛍光収量法での測定需要にも対応できるようになったため、幅広い需要を取り込みたい。

BL-12C : XAFS (ハイスループット) 実験ステーション

仁谷 浩明

物質構造科学研究所 放射光実験施設

1. 概要

BL-12C はハイスループット XAFS 実験ステーションとして整備しており、自動測定システムの導入により効率よくデータ収集を行える。このシステムを用いたメールイン測定サービスを運用している。2022 年度は BL-12A 建設のために BL-12C コンポーネントの再配置を行った。光学素子の構成に変更は無いが、再アライメントを実施したことによりビーム強度及び形状が改善している。引き続き XAFS データ収集データベースの構築と AI 技術による自動解析システムの構築を進めており、今後も利便性向上のための開発を行う。

2. 整備開発および運用状況

現状はハイスループット XAFS 実験ステーションとしてユーザー不在でも実験が可能なシステムと、BL-9A, BL-9C, AR-NW10A と互換性のある XAFS 測定システムを維持するための保守作業がメインとなっている。常設設備として、

- ・ 100 連装自動試料交換装置
- ・ 電離箱ガス自動混合フロー装置
- ・ リモート制御対応型 X 線検出系
- ・ 高速パルスカウント測定対応 7 素子 SDD システムを整備している。

3. ビームタイム利用状況

ビームタイム配分は他の XAFS 実験ステーション群と一括して配分を行っている。BL-12C は多素子半導体検出器と高調波抑制ミラーを備え、利用可能エネルギー範囲も 4 ~ 23 keV と広いため、ほぼ全ての XAFS 実験を受入れ可能である。企業ユーザーの割合も多く、ステーションの利用率はほぼ 100% となっている。

4. 今後の展望

放射光実験施設基盤技術部門が進めている PF 基盤ネットワーク強化と連携し、高度なデータハンドリングシステムの整備を行う。

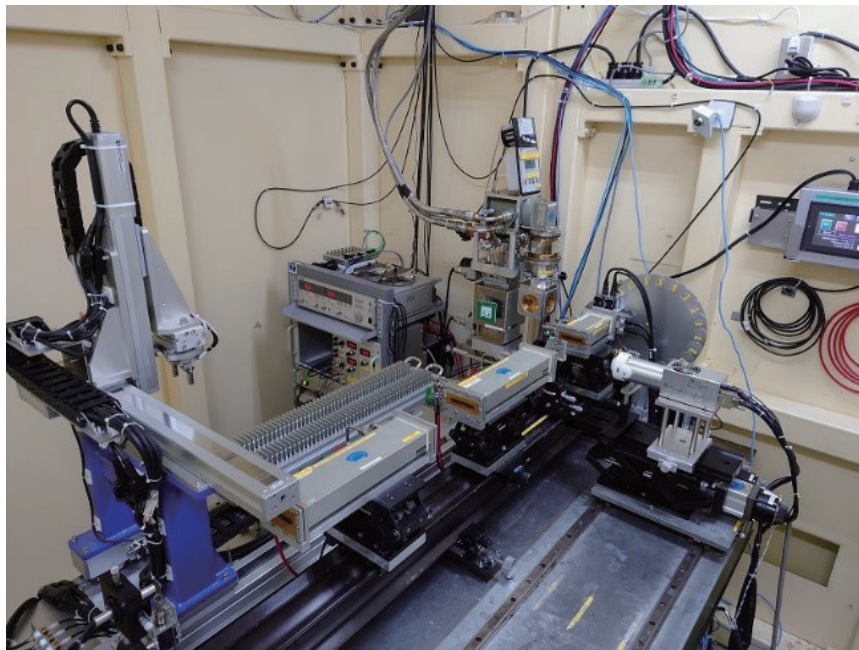


図1 BL-12C 実験ハッチ内

BL-15A1 : XAFS (セミマイクロビーム) 実験ステーション

丹羽 尉博¹, 仁谷 浩明¹, 阿部 仁^{2,3}, 木村 正雄²

¹ 物質構造科学研究所 放射光実験施設, ² 物質構造科学研究所 放射光科学第二研究系,

³ 茨城大学 大学院理工学研究科

1. 概要

BL-15A1 のビームライン光学系は、短周期アンジュレーターから供給される光エネルギー 2.1 ~ 15 keV の大強度 X 線を各種ミラーで 20 μm に集光して供給する [1]。このエネルギー領域には 3d 遷移金属元素 K 端や希土類元素 L 端など材料科学で基礎となる元素、P (リン) や S (硫黄) といった環境科学や高分子材料で重要な元素が含まれ、さまざまな元素に着目した分析を行うことができる。BL-15A1 は図 1 に示すような多彩な検出器群を備えており、透過 X 線、蛍光 X 線、X 線回折パターンの同時測定が可能である。試料中の特定の領域の X 線吸収 (XAFS) スペクトルを測定したり、試料位置をスキャンして試料に含まれる微量元素の分布を観察したりすることができる。また試料位置と光エネルギーの両方をスキャン、あるいは回折パターンのスキャンをすることで、元素分布だけでは判別できない化学状態や結晶構造を識別し、その分布を可視化することができる (図 1 右)。

そのほか全反射 XAFS 法や分光結晶を用いた高分解能蛍光 X 線測定など、20 μm に集光された大強度 X 線を利用することで可能になる先鋭的な測定法の実施にも対応している。

2. 整備開発および運用状況

BL-15A1 は、2014 年度秋からユーザー供用を開始した。大強度 X 線を室温や光エネルギーなどによらず常に試料上の同じ場所に照射するには、ビームライン光学系にさまざまな工夫が必要となる。これまで二結晶分光器の定位置出射性や集光ミラー調整方法の再検討を中心に、ユーザー供用と並行してビームライン調整を継続してきた。その結果、図 2 に示すように 20 μm サイズに X 線が集光できていることを確認し、DECTRIS RIGI によるビーム位置検出とフィードバック処理によって、測定範囲のエネルギーを変化させた際のビーム位置ずれを垂直、水平とも 10 μm 未満に抑えることを可能にした。また、二結晶分光器駆動コン

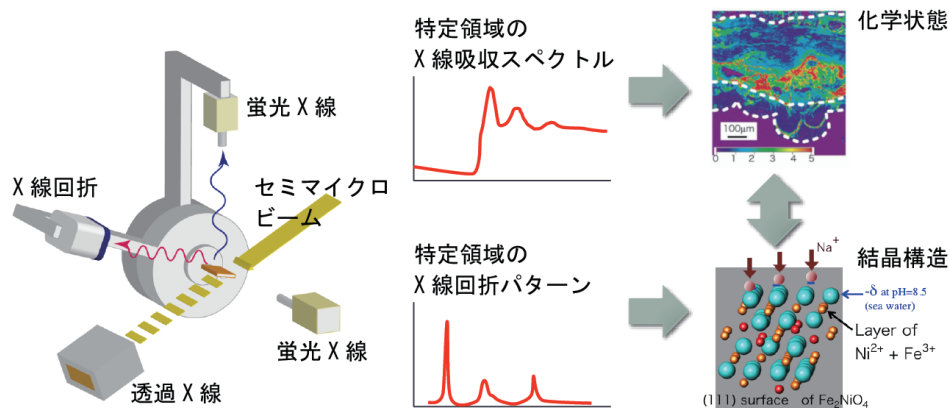


図 1 BL-15A1 で行われる測定の模式図。透過・蛍光・回折 X 線の測定が同時にでき、特定領域の X 線吸収スペクトルや回折パターンが得られ、化学状態や結晶構造の分布を可視化することができる。

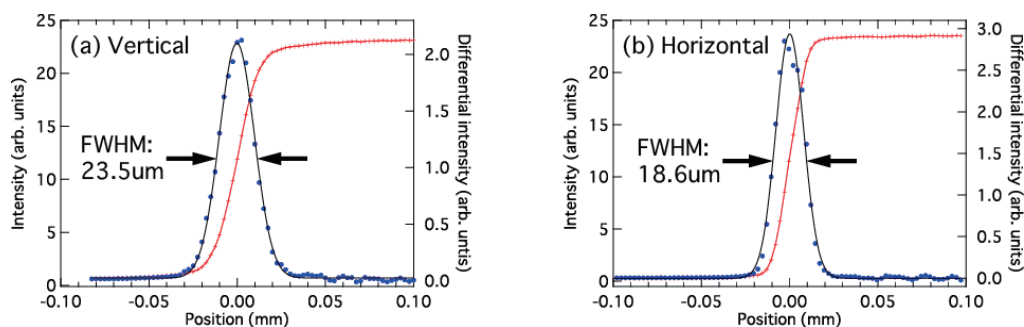


図 2 BL-15A1 試料位置で測定した、(a) 垂直方向、(b) 水平方向の X 線ビームサイズ。

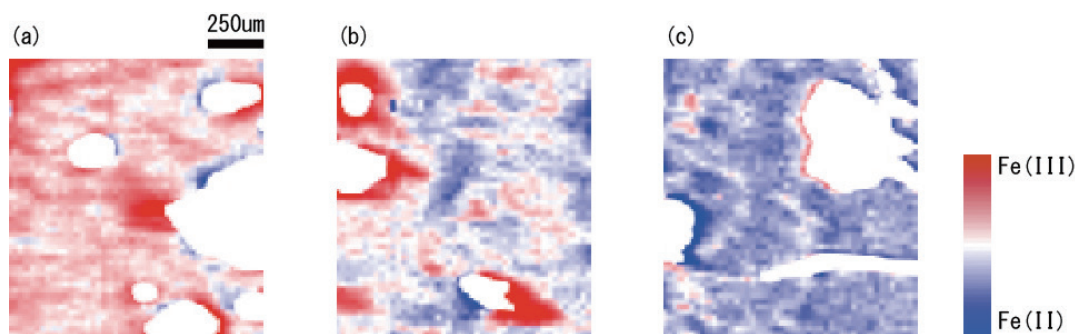


図3 BL-15A1でのマッピング測定により得られた、鉄焼結鉱の還元反応におけるFeの価数分布。(a)から(c)へ向かって、FeのIII価からII価への還元が進行している。

トローラの更新により動作を高速化するなどの技術開発も行っている。

測定に関わる制御ソフトウェア、解析技術の更新も継続して行っている。これまでに、高速に空間分布を取得するオン・ザ・フライ試料走査、高速にXAFSスペクトルを測定する分光器クイックスキャンを実装した。また、フリーの画像解析ソフトウェアに独自開発のプラグインを組み合わせ、XAFSや蛍光X線のマッピングデータ、X線回折像などの画像データの解析を可能にし、公開している。

このような解析の事例を、図3に示す[2]。ここで測定された試料は、鉄鋼の製造過程において溶鉱炉内部で還元される鉄焼結鉱である。蛍光X線を検出し、試料位置をスキャンするマッピングに加えて光エネルギーをFe K端のまわりで変化させることで、鉄の価数分布を得ることに成功した。焼結鉱全体でIII価からII価への還元反応が進行していることに加え、還元反応の進行度合いは空孔・亀裂の分布に応じて局所的に異なっている様子が可視化されており、これまで「想像」で語られてきた溶鉱炉内部の化学反応の分布に直接的な描像を与える結果が得られた。なお、本ビームラインの整備の一部、上記研究の一部(図3)は、内閣府戦略的イノベーション創造プログラム(SIP)革新的構造材料(SM4I)のユニットD66(SIP-IMASM)での研究推進の一環として実施された。

また、環境科学・地球化学物質の微量元素の分布を捉え、さらにXAFSやXRDによって元素の吸着状況を分析するといった、BL-15A1の大強度と複合分析を生かした研究も行われている[3]。

3. ビームタイム利用状況

現在のユーザー層は、BL建設当初から深く関わってきた大学共同利用ユーザー、これまでBL-9Aほか旧物質化学グループビームラインでのXAFS実験や、BL-4Aでのマイクロビーム分析実験の経験があるユーザーが中心である。従来のビームラインのビームサイズ・強度では困難であった実験や、XAFSという単独の分析手法で解決できなかった課題を、BL-15A1のアプローチ(multi-scale, multi-modal)で取り組みたいとするニーズが高まっていると考えられる。

BL-15A1の複合アプローチは、実材料開発の面でもニーズが高い。事実、株式会社日立製作所によるLiイオン電池セルの充放電状態の分析[4]、新日鐵住金株式会社(現日本製鉄株式会社)による鉄鉱石の還元反応過程の分析、JXTGエネルギー株式会社(現ENEOS株式会社)による潤滑材料の化学状態分布解析、といった企業研究者の利用が活発に行われてきている。

4. 今後の展望

BL-15A1の利用研究が学会などで報告されるにつれ、新規の利用申請や問い合わせが増加している。今後も測定の効率化、X線ビームのさらなる安定化による調整負担の軽減を行い、増加する需要に応えていく。一方で、BL-4Aの多層膜ミラーで得られる30 μmのビームを用いたアクティビティの移行がなかなか進んでいない。BL-4Aで通常使用される5 μmよりも多少ビームサイズは大きくなってもフラックスが欲しいユーザー向けのモードが多層膜ミラーを使った実験であり、BL-15A1はさらにその上位互換の位置づけとなるためメリットが多いと考えられる。継続的に多層膜ミラーを用いたユーザーに声をかけ、BL-15A1への移行を促したい。

引用文献

- [1] N. Igarashi, N. Shimizu, A. Koyama, T. Mori, H. Ohta, Y. Niwa, H. Nitani, H. Abe, M. Nomura, T. Shioya, K. Tsuchiya and K. Ito, J. Phys.: Conf. Ser. **425**, 072016 (2013).
- [2] M. Kimura, R. Murao, N. Ohta, K. Noami, Y. Uemura, Y. Niwa, K. Kimijima, Y. Takeichi and H. Nitani, J. Phys.: Conf. Ser. **712**, 012077 (2016).
- [3] H.-B. Qin, Y. Takeichi, H. Nitani, Y. Terada, and Y. Takahashi, Environ. Sci. Technol. **51**, 6027 (2017).
- [4] H. Konishi, T. Hirano, D. Takamatsu, A. Gunji, X. Feng, S. Furutsuki, T. Okumura, S. Terada, and K. Tamura, J. Solid State Chem. **258**, 225 (2018).
- [5] M. Kimura, I. Obayashi, Y. Takeichi, R. Murao, and Y. Hiraoka, Sci. Rep. **8**, 3553 (2018).

BL-27B：放射性試料用X線実験ステーション

宇佐美 徳子¹, 横谷 明德², 岡本 芳浩³

¹ 物質構造科学研究所 放射光実験施設, ² 量子科学技術研究開発機構 (QST) 量子生命科学研究領域,

³ 日本原子力研究開発機構 (JAEA) 物質科学研究センター

1. 概要

BL-27B は、偏向電磁石を光源とするX線ビームラインであり、ブランチの軟X線ビームラインBL-27Aとともに非密封RI管理区域（放射光アイソトープ実験施設）内に設置され、放射性同位元素（RI）および核燃料物質を試料として用いることができる。日本原子力研究開発機構JAEA（当時は日本原子力研究所）と高エネルギー加速器研究機構KEK（当時は高エネルギー物理学研究所）の共同で建設され、1992年度から運用が開始された。ビームラインコンポーネントの多くはJAEA所有であったが、KEKに譲渡され、2019年度からは、放射線生物ユーザーグループおよび原子力基盤研究ユーザーグループによって運営されるユーザーグループ運営ステーションとなった。

実験ハッチ内には上流側にXAFS測定装置、下流側にマイクロビームX線細胞照射装置が常設されており、簡単な作業で装置を切り替えて使用することができる。上流のXAFS測定装置は、透過法および多素子SSDによる蛍光XAFSの測定が可能である。下流のマイクロビームX線細胞照射装置は、シリコン結晶の(311)面を利用して5.35 keVのX線を上方にはね上げ、蛍光顕微鏡自動ステージ上の細胞試料に下方から照射する。マイクロビームは、精密スリットでビームを成形することにより作成しているため、任意のサイズの矩形のビームが得られる。また、遮蔽用X線マスクを併用することにより、細胞核の部分を遮蔽し細胞質にのみ照射できるビームを作ることができる。

この他に定盤上や下流側の装置のすぐ上流の空いたスペースに任意の装置を設置することが比較的簡単にできる。BL-27Bは、エネルギー可変マイクロビーム細胞照射装置、単色X線照射装置などを保有しており、これらの装置の利用も可能である。

2. 整備開発および運用状況

BL-27はビームライン建設から20年以上を経過し、老朽化による機器の故障が増えてきている。2022年度は第2期にマイクロビームX線細胞照射装置の制御系に故障が生じ、いくつかの課題がキャンセルになったが、第2期の終わりには修理が完了して、その後は問題なく利用できている。

3. ビームタイム利用状況

全ビームタイムのうち、マイクロビーム細胞照射実験が約1/3で、残りの2/3がXAFS実験である。どちらのカテゴリーの課題にもほぼ希望どおり配分できている。XAFS

課題の90%が原子力分野（除染・環境修復なども含む）であり、ビームラインの特色を活かした利用がされていると言える。RI・核燃料物質の利用実験は、4課題により合計528時間実施された。上述したマイクロビームX線細胞照射装置の故障によってキャンセルしたビームタイムは、留保枠で補填することができた。

4. 今後の展望

BL-27Bに常設のマイクロビームX線細胞照射装置は、X線によるエネルギー付与の空間分布を任意に設定することが可能であり、最近では空間的に不均一な照射を受けた細胞の生物応答など、がんの放射線治療や不均一被ばくのリスク評価の基礎となる研究にも広がっている。またCREST「独創的原理に基づく革新的光科学技術の創成」に採択された「光を用いたヒト生体深部での分子制御」に関わる課題が2021年度から開始され、新たに脱離イオン分光装置を導入した実験が開始した。引き続き多様なニーズに対応できるように実験環境を整備して行きたい。

XAFS分野では、福島第一原子力発電所事故後に多くの課題を抱える我が国にとって、社会的ニーズの高いテーマが多く実施されている。現在の有効課題のほとんどが、核燃料、放射性廃棄物（模擬試料を含む）、原子炉材料、セシウムの化学状態分析など、環境回復や廃炉に直結するテーマとなっている。英国シェフィールド大による模擬デブリの分析[1]など、多くの成果が得られている。ビームラインの特徴を活かした実験として、原子力関連研究を引き続き推進する。

引用文献

[1] S. T. Barlow *et al.*, npj Mater. Degrad., 4, 3 (2020).

AR-NW2A：時間分解 DXAFS/X 線顕微鏡

丹羽 尉博¹, 阿部 仁^{2,3}, 森 文晴¹, 仁谷 浩明¹, 木村 正雄²

¹ 物質構造科学研究所 放射光実験施設, ² 物質構造科学研究所 放射光科学第二研究系,

³ 茨城大学 大学院理工学研究科,

1. 概要

AR-NW2A はアンジュレーター光源から得られる大強度の単色および白色 X 線を自由に利用できるビームラインである。ビームラインで整備しているユーザー共用装置としては波長分散型 XAFS (Dispersive XAFS : DXAFS) および通常の XAFS があり、特に時間分解 DXAFS に関する研究に注力している。DXAFS を用いた時分割 XAFS 測定ではミリ秒からマイクロ秒の時間分解能での連続測定の他に、パルスレーザーなどの外的刺激と DXAFS とを組み合わせ PF-AR から得られる X 線パルスの時間構造を利用したナノ秒からサブナノ秒での超高速時間分解 XAFS 測定が可能である。前者は不均一触媒のガス反応メカニズムの解明など Quick XAFS の時間分解能では不十分だが比較的遅い反応系に適用される。後者は繰り返し可能な系を対象として光触媒、錯体などの光励起化学種の状態解明などに使用される一方で、材料の破壊や衝撃圧縮などの不可逆な過程の反応ダイナミクス解明にも力を発揮している [1-3]。本ビームラインではユーザーの持ち込み装置にも柔軟に対応している。このため汎用的な XAFS 測定以外の特殊な実験が多いのが特徴である。ユーザーは自身の実験装置を持ち込むことによって測定手法を縛られることなく大強度の単色もしくは白色 X 線を自由に使用することができる。2021 年 5-6 月期の運転をもってユーザー持込装置として実験が行われていた X 線回折のアクティビティが全てタンパク質結晶構造解析ビームライン群に移行された。

2. 整備開発および運用状況

AR-NW2A では PF スタッフが中心となってナノ秒からサブナノ秒で進展する構造変化を解明するためのシングルショット DXAFS システムと、マイクロメートルからナノメートルオーダーの X 線顕微分光システムの整備を進めている [4-7]。時間分解 DXAFS では、パルスレーザー、CW レーザーと DXAFS システムを組み合わせた不可逆反応の観察を行うための環境整備を進めており、炭素鋼の焼入れ過程の反応メカニズムや金属の破壊の起点解明などの分野で成果を上げている [2, 3]。

X 線顕微分光では、2021 年度第二期より投影型二次元イメージング XAFS システムを導入し運用を開始した。これは非集光の幅広ビームを試料に照射し、透過した X 線を二次元検出器で一度に検出する手法であり、8 mm × 3 mm 程度の視野の X 線吸収マップを 10 μm 以下の空間分解能で一度に取得できるようになった。この手法は原理的に透過法に限定されるが、試料を走査することなくビーム照射

領域のイメージを一度に取得するため測定時間を大幅に短縮できる。例えば、0.5 mm × 2 mm の視野の二次元 XAFS イメージを BL-15A1 の試料走査型システムで測定すると約 12 時間を要するが、AR-NW2A のシステムでは約 8 分で終了する。2022 年度には制御システムの最適化により更に測定時間が短縮し、約 5 分で二次元 XAFS イメージングデータを取得できるようになった。また、学術変革領域研究「データ記述科学」[8] での X 線顕微法の高度化の一環として、将来のサブミクロンスケールへの展開を見据え、微小空間分解計測の根幹となる X 線顕微鏡用の高精度かつ高剛性（高安定）な多機能定盤を導入した。

2016 年度末に戦略的イノベーション創造プログラム（内閣府、Cross-ministerial Strategic Innovation Promotion Program : SIP, KEK 機関代表者：木村正雄教授）革新的構造材料分野の先端計測拠点構築の一環として導入された最高 50 nm の空間分解能を持つ X 線顕微鏡（XAFS-CT）[4-7] は 2018 年度でプロジェクトでの使用期間を終え、S2 型、G 型課題での共同利用実験および民間企業との共同研究が展開されている。

3. ビームタイム利用状況

本ビームラインでは既述のとおり持込装置と光学系モード（白色、単色、集光、非集光など）が多いため装置入替とビームライン光学系調整の頻度が非常に高く、これに費やされるビームタイムが多いという問題点がある。また、いずれの実験においても、特殊なセットアップや in situ 環境の構築に時間を要するため各課題からの 1 回の要求ビームタイムが長いのが特徴である。そのため、本ビームラインで有効な課題（S2 型 1 件を含む）は、他の XAFS ビームラインと較べて高評価の課題が多いにもかかわらず配分できない課題が存在するという厳しい状況が続いている。これは汎用性の高い high-flux ビームラインへの潜在的なニーズの高さを示していると考えている。近年では PF-AR の運転時間の減少のため、チャレンジングな研究課題にじっくりと取り組むことが困難になり、AR-NW2A の有効課題が減少し、結果として配分率が 100% に近い状況である。これは AR-NW2A での潜在的なニーズ、アクティビティを損なうものであり非常に危機感を感じている。チャレンジングな研究課題に取り組むことは将来の成果創出のためには不可欠であり、競争力のある課題が共存し成果創出できるための、ハード（ex. 測定のハイスループット化）およびソフト（ex. 重点領域テーマ制度）の両面での対策を検討中である。

4. 今後の展望

2021 年度に導入した二次元イメージング XAFS システムのさらなる高速化を図る。現在のシステムでは計算結合型の二結晶分光器の動作速度が律速になっており、分光器を連続掃引する on the fly システムを実装することでさらなる計測の高速化を実現したい。

ビームラインの競争力強化に関しては放射光施設スタッフが主導的に実施する研究の充実化を図る。導入された X 線顕微鏡を活用して航空機をターゲットとした構造材料の亀裂発生のメカニズムを解明する拠点としての役割も引き続き担っていきたい。さらに材料のみでなく、地球惑星学や岩石学といった分野での展開も進めていく。また X 線顕微鏡を用いた研究で得られるビッグデータを解析するための環境整備についても、材料科学研究部門等と連携して進めていく。時間分解 XAFS では CW レーザーを用いた鋼の温度誘起相転移の解明に関する研究をさらに進めることにより、鉄鋼材料の高付加価値化に不可欠な要因を明らかにする。AR-NW2A では X 線分光法をベースとして空間および時間のふたつの切り口から物質、材料の成り立ちや機能発現の起源を解明することに注力し、その分野をリードする土壌を創出する。

引用文献

- [1] Y. Niwa, T. Sato, K. Ichiyangi, K. Takahashi, M. Kimura, High Pressure Research, **36**, 471 (2016).
- [2] Y. Niwa, K. Takahashi, K. Ichiyangi, M. Kimura, Materials Transactions, **62**(2), 155 (2021).
- [3] Y. Niwa, K. Takahashi, T. Sato, K. Ichiyangi, H. Abe and M. Kimura, Materials Science and Engineering: A, **831**, 142199 (2022).
- [4] Y. Niwa, Y. Takeichi, T. Watanabe, M. Kimura, AIP Conference Proceedings, **2054**, 050003 (2019).
- [5] Y. Takeichi, T. Watanabe, Y. Niwa, S. Kitaoka, M. Kimura, Microsc. Microanal. **24**(S2), 484 (2018).
- [6] M. Kimura, T. Watanabe, Y. Takeichi, Y. Niwa, Sci. Rep. **9**, 19300 (2019).
- [7] T. Watanabe, Y. Takeichi, Y. Niwa, M. Hojo, M. Kimura, Compos. Sci. Technol. **197**, 108244 (2020).
- [8] <https://data-descriptive-science.org/>

AR-NW10A : XAFS (高エネルギー) 実験ステーション

仁谷 浩明

物質構造科学研究所 放射光実験施設

1. 概要

AR-NW10A は 6.5 GeV または 5 GeV で運転される PF-AR を光源とした XAFS 実験ステーションであり、2.5 GeV の PF リングにおける XAFS 実験ステーションよりも高い 20 keV 以上のエネルギー域での実験をターゲットにした実験ステーションである。PF/PF-AR において利用可能な唯一の高エネルギー域対応 XAFS 実験専用ステーションであるため、種々の XAFS 実験が可能な汎用 XAFS ビームラインとして整備している。他の XAFS ステーションの整備状況に合わせて AR-NW10A にも同様の装置を追加していくことで、低エネルギーから高エネルギーまでの XAFS 実験をシームレスに実施することが可能である。例えば、BL-9C と同様の in situ 実験支援用のガスフロー・試料セルコントロールシステムや、BL-12C と同等の多素子半導体検出器用高速信号処理システムなどが導入されている。これにより、他の XAFS 実験ステーションと同じ実験環境で、より高エネルギー域での XAFS 測定が可能になっている。

2. 整備開発および運用状況

ステーションでは PF 共通の XAFS 測定システムに加え

て、常設設備として以下のものを準備している。

- 21 素子ピクセルアレイ型 Ge-SSD
- 高速パルスカウンタ測定 (QXAFS) 対応 Ge-SSD 用 DSP
- in situ 実験支援用特ガス混合ガスフローおよび試料セル加熱システム

3. ビームタイム利用状況

ビームタイム配分は他の XAFS 実験ステーションとともに一括して割り当てを行っている。AR-NW10A は、利用可能エネルギー範囲である 8 ~ 42 keV (14 keV 以下は高調波抑制ミラー使用時) においてほぼ全ての XAFS 実験を受入れ可能である。企業ユーザーの割合も多く、ステーションの利用率はほぼ 100% となっている。

PF-AR の 5 GeV 運転時においても通常通りの実験が実施可能である。

4. 今後の展望

リモート測定システムの導入やメールイン代行測定サービスの運用などを検討している。

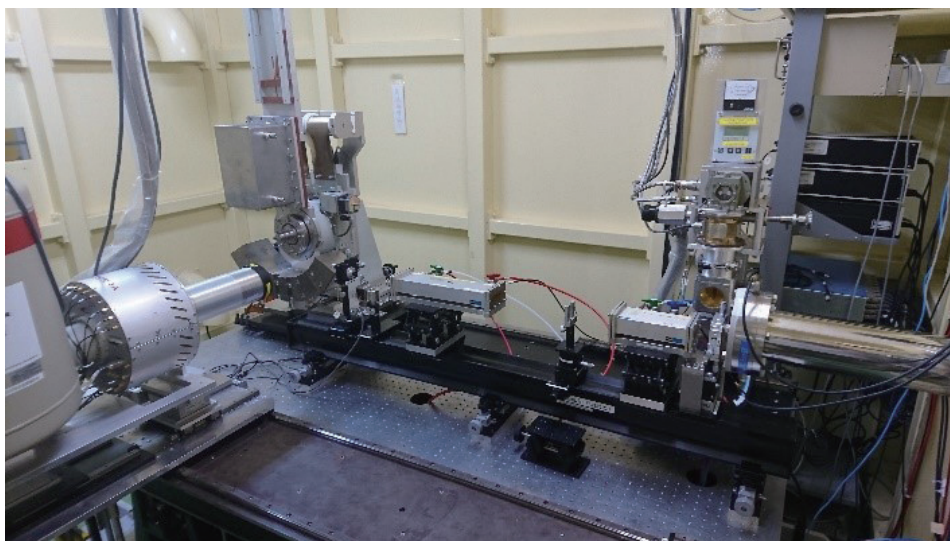


図 1 AR-NW10A 実験ハッチ内

BL-1A：タンパク質結晶構造解析ステーション

松垣 直宏¹, 山田 悠介², 平木 雅彦³, 引田 理英², 千田 俊哉²

¹ 物質構造科学研究所 放射光実験施設, ² 物質構造科学研究所 放射光科学第二研究系,

³ 共通基盤研究施設 機械工学センター

1. 概要

BL-1A は PF および PF-AR にある 5 本のタンパク質結晶構造解析ビームラインの一つである。ターゲットタンパク質研究プログラム (2007 – 2011) のもと建設され 2010 年よりユーザー公開されている。4 keV 近傍の低エネルギービームを利用した Native SAD 法による位相決定 (タンパク質に本来含まれるイオウ等の軽原子の異常散乱を利用した位相決定) を効率よく遂行できるビームラインとして整備・開発が行われている。短周期アンジュレータ光源と非球面集光光学系により試料位置で 10 ミクロン程度の大きさの高輝度ビームが利用可能であるため、微小結晶の回折実験に適したビームラインとなっている。また、測定を完全なヘリウム雰囲気で行えるなど、低エネルギービームを用いた実験に最適化されている。検出器は高いフレームレートを持つピクセルアレイ型検出器 (Dectris 社製 EIGER X 4M, 有効面積 155 × 163 mm, 2 台) で、2 台を V 字配置に切り替えることで高分解能データの収集も可能となっている。

2. 整備開発および運用状況

共同利用実験課題や BINDS プロジェクトなどの学術利用及び産業利用において、全自動測定やリモート実験といった非来所実験のサポートを行っている。ビームタイムやユーザーから発送される測定試料を管理する環境を整備し、実験スタイル毎のサポートスタッフの作業フローを確立することで、これら実験が円滑かつ安全に進むよう運用した。実験データは基本的にすべてダウンロードサーバーを利用したオンライン取得に切り替えた。PF の施設ネットワークが整備されたため、それまで独自の LAN で運用していたビームライン制御を施設ネットワークへ移行させた。

測定技術の整備開発としては、回折スキンの駆動方法を見直すことによる高速化を実現した。BL-1A のようにビームサイズが小さい場合には多数のスキンを実行する必要があり、高速化のメリットは大きい。

故障のため取り外していたミニカップパーゴニオのファイ軸が再設置され、利用可能となった。

3. ビームタイム利用状況

ビームタイム希望調査と配分は、5 本のタンパク質結晶構造解析ビームラインでまとめて行われ、BL-1A では主に微小ビームを必要とするユーザーに配分が行われた。低エネルギービームの利用に関しては、native SAD 実験は減

少し、結晶中の軽原子の同定測定がいくつか行われた。共同実験利用課題による利用、施設利用、民間共同研究による利用の他、創薬等先端技術支援基盤プラットフォーム (BINDS) 事業に他ビームラインよりも大きな割合 (30 ~ 40%) でビームタイムを配分した。ここでは支援のためのビームタイムに加え、低エネルギービームの手法開発等を目的とした高度化ビームタイムとしても利用された。実験スタイルに関しては、5 本のビームライン全体で、全自動測定、リモート実験、来訪実験がそれぞれ 1/3 程度を占めた。BL-1A ではサンプル交換にロボットの利用が必須であることもあり、ユーザー実験のほとんどが全自動測定またはリモート実験として行われた。

4. 今後の展望

ヘリウム環境による低バックグラウンド、低エネルギー X 線、微小ビームなど、BL-1A の特徴を生かした利用を広げていく。低エネルギー X 線による結晶中の軽金属原子の同定や、分子置換法と組み合わせた低エネルギー SAD 法による位相決定 (MR-native SAD) など、手軽に可能で有用な応用測定があるので、ユーザーへもっと周知していきたい。

BL-5A：タンパク質結晶構造解析ステーション

松垣 直宏¹, 山田 悠介², 平木 雅彦³, 引田 理英², 千田 俊哉²

¹ 物質構造科学研究所 放射光実験施設, ² 物質構造科学研究所 放射光科学第二研究系,

³ 共通基盤研究施設 機械工学センター

1. 概要

BL-5A は PF および PF-AR にある 5 本のタンパク質結晶構造解析ビームラインの一つである。文部科学省科学技術振興調整費、文部科学省新世紀重点創生研究プラン(RR2002) およびタンパク 3000 プロジェクトの予算により建設され、2004 年度よりユーザー公開されている。多極ウィグラーを光源とし、前置鏡、二結晶分光器、および擬似トロイダル鏡による光学系により 7~17 keV の幅広い波長範囲で 100~200 ミクロンサイズの高フラックスビームが利用できる。回折計横にはサンプルチェンジャーが常設されており、200~300 個の凍結試料を自動で交換することが出来る。様々な原子種からの多波長異常分散法による位相決定や、平均サイズのタンパク質結晶からのハイスループット測定等に適したビームラインである。当初から大面積の X 線 CCD 検出器 (ADSC 社製 Quantum 315, 有効面積 315 × 315 mm) や高精度のゴニオメータを備え、高分解能データ収集することにも利用されてきた。2017 年度に X 線検出器がピクセルアレイ検出器 (Dectris 社製 PILATUS3 S6M, 有効面積 423.6 mm × 434.6 mm) に更新されると同時に回折計も一新された。

2. 整備開発および運用状況

共同利用実験課題や BINDS プロジェクトなどの学術利用及び産業利用において、全自動測定やリモート実験といった非来所実験のサポートを行っている。ビームタイムやユーザーから発送される測定試料を管理する環境を整備し、実験スタイル毎のサポートスタッフの作業フローを確立することで、これら実験が円滑かつ安全に進むよう運用した。実験データは基本的にすべてダウンロードサーバーを利用したオンライン取得に切り替えた。PF の施設ネットワークが整備されたため、それまで独自の LAN で運用していたビームライン制御を施設ネットワークへ移行させた。

測定技術の整備開発としては、サンプルチェンジャーの動作改善を行い、ロボットアームの力の異常検知などによるエラー停止を激減させることができた。クライオ気流の温度を室温・低温以外の任意の温度にユーザーが変更できるようになり、温度依存測定をより簡便に行うことが可能になった。

BL-5A では精密湿度気流発生装置が回折計に常設され、調湿環境・常温下での回折データ収集が可能となっている。これまで気流の湿度変更は専用ソフトから行っていたが、これをビームライン制御ソフトからも変更できるように改造した。湿度の変更と X 線回折像の取得を組み合わせた実

験が自動で可能となり、最適湿度の発見など、いろいろな湿度での回折像が必要になる実験に有用と考えられる。

3. ビームタイム利用状況

ビームタイム希望調査と配分は、5 本のタンパク質結晶構造解析ビームラインでまとめて行われ、BL-5A では主に標準的な大きさ (100~200 ミクロン以上) の結晶を持つユーザーに配分が行われた。検出器の面積が大きく高分解能までデータが取れるため、中性子回折との相補実験に加え、最近では、低分子結晶や MOF 結晶などからの回折データ収集の利用が増加している。また、試料回りの自由度を生かし、キャピラリー封入した試料の室温測定や、試料を光励起させた状態での測定なども行われた。

共同利用実験課題による利用、施設利用・民間共同研究による利用の他、創薬等先端技術支援基盤プラットフォーム事業 (BINDS) の支援にもビームタイムが配分された。実験スタイルに関しては、5 本のビームライン全体で、全自動測定、リモート実験、来訪実験がそれぞれ 1/3 程度を占めた。BL-5A ではサンプル交換にロボットを利用しない実験 (低分子結晶、室温測定など) が比較的多く、4 割以上が来訪実験であった。

4. 今後の展望

標準的な試料のハイスループット測定の効率化を進めるとともに、大面積検出器による高分解能測定、湿度気流下での室温測定、特殊環境下での測定等、ビームラインの特徴を生かす測定を積極的にサポートしていく。

BL-17A：タンパク質結晶構造解析ステーション

山田 悠介¹, 松垣 直宏², 引田 理英¹, 平木 雅彦³, 千田 俊哉¹

¹ 物質構造科学研究所 放射光科学第二研究系, ² 物質構造科学研究所 放射光実験施設,

³ 共通基盤研究施設 機械工学センター

1. 概要

BL-17A は PF および PF-AR にある 5 本のタンパク質結晶構造解析ビームラインの一つである。短周期アンジュレータを光源とし、試料位置で 20 ~ 50 μm 角程度のサイズのビームを利用することが可能で、主に小さな結晶からのデータ収集を行うことを目的としたビームラインである。また、通常の水平方向のゴニオメータに加えて、鉛直方向の結晶化プレート専用のゴニオメータを備えており、結晶化プレート上の結晶に対して直接 X 線を照射して回折像を取得する in-situ 回折データ測定が可能である。

2. 整備開発および運用状況

共同利用実験課題や BINDS プロジェクトなどの学術利用及び産業利用において、全自動測定やリモート実験といった非来所実験のサポートを行っている。ビームタイムやユーザーから発送される測定試料を管理する環境を整備し、実験スタイル毎のサポートスタッフの作業フローを確立することで、これらの実験が円滑かつ安全に進むよう運用した。実験データは基本的にすべてダウンロードサーバーを利用したオンライン取得に切り替えた。PF の施設ネットワークが整備されたため、それまで独自の LAN で運用していたビームライン制御を施設ネットワークに移行させた。

In-situ 回折データ収集の需要が増してきたこともあり、より迅速かつ簡便にデータ収集が行えるよう自動化開発を続けている。そのなかで協働ロボットを用いて回折計上の結晶化プレートを交換する自動交換ロボットを開発した(図 1)。

3. ビームタイム利用状況

ビームタイム希望調査と配分は、5 本のタンパク質結晶構造解析ビームラインでまとめて行われ、その中で微小ビームが必要とするユーザーに配分が行われた。広範囲な波長が選択可能であることやより大面積の検出器を備えていること、さらに回折計へのアクセスが可能であることなどが、同様に微小ビームが利用可能なタンパク質結晶構造解析ビームラインである BL-1A と相補的で、施設全体でのタンパク質結晶構造解析実験の適用範囲を広げている。ビームタイムの利用形式としては大学・公的研究機関からの共同利用実験課題による利用のほか、創薬等先端技術支援基盤プラットフォーム事業の支援としての利用、および施設利用・民間共同研究制度を用いた民間企業による利用があった。実験スタイルは全自動測定、リモート実験、来訪実験がそれぞれ 1/3 程度を占めた。全自動測定システムを用いた随時ビームタイム利用制度による測定を毎週火曜日に実施した。

4. 今後の展望

回折データ測定の更なるスループット向上を目指して、結晶交換ロボットの高速化、回折データ測定的高速化、構造解析の自動化などがタンパク質結晶構造解析ビームライン全体で進められている。これらの技術を滞りなくビームラインへと実装する。また、In-situ データ収集の自動化を目指して、プレート交換ロボットの安定化・高速化や、AI 技術等を用いた画像解析による結晶の自動検出等の開発を行っていく。

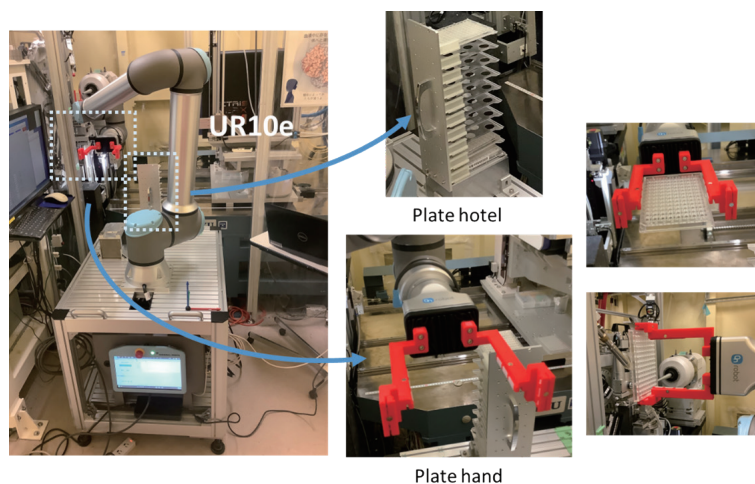


図 1 協働ロボットを利用した自動結晶化プレート交換システム。プレート交換システムは 10 枚の結晶化プレートを搭載可能なプレートホテルと 2 つの方向で結晶化プレートが保持可能なプレートハンドを備えている。

AR-NE3A：タンパク質結晶構造解析ステーション

山田 悠介¹, 松垣 直宏², 引田 理英¹, 平木 雅彦³, 千田 俊哉¹

¹ 物質構造科学研究所 放射光科学第二研究系, ² 物質構造科学研究所 放射光実験施設,

³ 共通基盤研究施設 機械工学センター

1. 概要

AR-NE3A は PF および PF-AR にある 5 本のタンパク質結晶構造解析ビームラインの一つである。2009 年にアステラス製薬株式会社（アステラス製薬）からの受託研究により建設された本ビームラインは、創薬研究のためのビームラインとして多量の試料からの回折データセットを全自動で取得することを目的として開発、運用がなされている。

2018 年度より開始した全自動測定システムを利用した随時ビームタイム利用制度はユーザー数が着実に増えてきており、今後タンパク質結晶構造解析ビームラインの利用における一つのスタンダードとなるよう、技術開発のみならず制度設計の改良にも取り組んでいく。

2. 整備開発および運用状況

2020 年度から他のタンパク質結晶構造解析ビームラインと併せて、共同利用実験課題も含めた全ての利用形態において全自動測定やリモート実験といった非来所実験のサポートを開始した。それに伴い、タンパク質結晶構造解析ビームライン独自のビームタイム管理システムへの実験スタイル（全自動測定、リモート実験、来訪実験）情報の取り込みや、ユーザーからの発送される測定試料の管理システムの開発、実験スタイル毎の運用スタッフの作業フローの確立、リモートアクセス環境の構築、データダウンロードサーバーの立ち上げなど多岐に渡る環境整備を行った。これらの整備により日々到着する多量の実験試料を致命的なトラブルを発生させることなく取り扱うことが出来た。

3. ビームタイム利用状況

2009 年より開始したアステラス製薬との協定研究による同社の専有利用は本ビームラインを中心に行なわれた。しかしながら PF-AR は運転期間が短いため、PF-AR 運転停止期間中は PF の BL-17A にて行われた。残りのビームタイムは他の 4 本のタンパク質結晶構造解析ビームラインと同様に、まとめて利用希望調査および配分がなされた。ビームタイムの利用形態としては大学・公的研究機関からの共同利用実験課題による利用のほか、創薬等先端技術支援基盤プラットフォーム事業の支援による利用、および施設利用・民間共同研究制度を用いた民間企業による利用があった。元々全自動測定を目的としたビームラインであるため、ビームタイム希望時に全自動測定の実験スタイルを希望するユーザーを優先的に配分し、利用された。毎週金曜日は全自動ビームタイムとして、共同利用実験課題を対象に随時ビームタイム利用に用いられた。

4. 今後の展望

AR-NE3A では、今後も創薬研究のためのビームラインとして更なるハイスループット化を進めていく予定である。そのために全自動測定システムの開発を継続していく。

AR-NW12A：タンパク質結晶構造解析ステーション

引田 理英¹, 山田 悠介¹, 松垣 直宏², 平木 雅彦³, 千田 俊哉¹

¹物質構造科学研究所 放射光科学第二研究系, ²物質構造科学研究所 放射光実験施設,

³共通基盤研究施設 機械工学センター

1. 概要

AR-NW12A は PF および PF-AR にある 5 本のタンパク質結晶構造解析ビームラインの一つで、2003 年度から稼働しているビームラインである。試料位置では 100~200 ミクロンサイズの高フラックスビームが利用でき、回折計横にはサンプルチェンジャーが常設されており、200 ~ 300 個の凍結試料を自動で交換することが可能である。様々な原子種からの多波長異常分散法による位相決定や、平均サイズのタンパク質結晶からのハイスループット測定等に適したビームラインである。検出器は、2017 年度より、ピクセルアレイ型検出器（Dectris 社製 Pilatus3 S2M, 有効面積 253.7 mm × 288.8 mm）に更新されており、検出器の特性を活かした高速高精度な測定が可能となっている。

2. 整備開発および運用状況

一般課題や BINDS プロジェクトなどの学術利用及び産業利用において、全自動測定やリモート実験といった非来所実験のサポートを行っている。ビームタイムやユーザーから発送される測定試料を管理する環境を整備し、実験スタイル毎のサポートスタッフの作業フローを確立することで、これらの実験が円滑かつ安全に進むよう運用した。実験データは基本的にすべてダウンロードサーバーを利用したオンライン取得に切り替えた。PF の施設ネットワークが整備されたため、それまで独自の LAN で運用していたビームライン制御を施設ネットワークに移行させた。

ビームラインに併設されたレーザーブースに設置した深紫外レーザーを用いたタンパク質結晶加工機については、加工機制御ソフトウェアの改良を行い、これまでより自由度の高い結晶加工が可能となった。さらに、大型結晶の加工を迅速に行うため、結晶加工中に結晶を前後に並進移動させ、レーザーの集光位置が常に結晶に照射されるような機能を追加した。また、オフライン顕微分光装置については、ビームラインで使用している制御ソフトウェアの導入を行い、結晶位置の調整や結晶写真の撮影などを GUI 上から実行できるようにし、結晶の位置登録機能を追加した。これにより結晶内での吸収スペクトルの違いが容易に比較できるようになった。

3. ビームタイム利用状況

ビームタイム希望調査と配分は、5 本のタンパク質結晶構造解析ビームラインでまとめて行われ、主に標準的な大きさ（100~200 ミクロン以上）の結晶を持つユーザーへの配分が行われた。また、試料周りの自由度を活かし、特殊

セルやキャピラリー封入された試料の室温測定や、レーザー照射による結晶の時分割実験なども行われた。

共同利用実験課題による利用、施設利用・民間共同研究による利用の他、創薬等先端技術支援基盤プラットフォーム事業（BINDS）の支援にもビームタイムが配分された。実験スタイルに関しては、5 本のビームライン全体で、全自動測定、リモート実験、来訪実験がそれぞれ 1/3 程度を占めた。AR-NW12A では特殊セルの使用やレーザー照射実験といった結晶交換ロボットを使用しない実験が多く、8 割以上が来訪実験であった。

4. 今後の展望

標準的な試料のハイスループット測定の効率化を進めるとともに、特殊環境下での測定等、ビームラインの特徴を生かした測定を積極的にサポートしていく。

ビームライン側室のレーザーブースに設置された顕微分光装置やタンパク質結晶加工機について、オンライン化を進めていき、装置のシームレスな利用環境の整備を行っていく。

BL-6A：X線小角散乱ステーション

五十嵐 教之¹, 森 丈晴¹, 高木 秀彰¹, 永谷 康子¹, 谷田部 景子², 高橋 正剛²,
西條 慎也³, 中村 文俊³, 羽方 望³, 仁谷 浩明¹, 石井 晴乃¹, 小菅 隆¹, 清水 伸隆¹

¹ 物質構造科学研究所 放射光実験施設,

² 物質構造科学研究所 放射光科学第二研究系, ³ (株) 日本アクシス

1. 概要

BL-6A は偏向電磁石を光源とするX線小角散乱 (SAXS) ビームラインで、最大で 100 nm 程度までの構造情報を得ることができる。測定X線波長は 1.5 Å 固定で、カメラ長は 250, 500, 1000, 2000, 2500 mm から選択できるが、別途、広角散乱 (WAXS) 用のチャンバも利用できる。測定試料分野は生体試料を含むソフトマテリアルからハードマテリアルまで多岐に渡っているが、2022 年度では、ビームタイムの 59.7% が材料科学 (ソフト & ハードマテリアル)、24.6% が脂質・生体線維試料、3.3% が BioSAXS (タンパク質X線溶液散乱) での利用になっており、残り 12.4% は施設の調整時間であった。測定形態としては、材料科学系の試料に「加熱」や「冷却」といった外部変調を加えた in-situ 時分割測定が主に実施されている。ビーム性能に関して他の小角散乱ビームライン BL-15A2, BL-10C と比較した場合、輝度に関しては挿入光源ビームラインである BL-15A2 には及ばないが、BL-10C よりは 2 倍程度となっている。一方、光学系配置に依存してビームの発散度が大きいと、小角分解能に関してはカメラ長が長くなるにつれて他の 2 本よりもやや劣る性能となっている。性能の詳細は小角散乱ビームラインの HP (<https://pfwww.kek.jp/saxs/>) にて公開している [1-2]。

2. 整備開発および運用状況

BL-6A は他の 2 本の小角散乱ビームライン (BL-10C, BL-15A2) と共に共同運用されているため、各所の高度化などは共通で実施している。以下は、3 ビームライン共通の高度化・整備状況である。小角散乱ビームラインでは、試料によるビームの透過率を得るために Si PIN フォトダイオードを仕込んだビームストッパーを使用している。一方で、偏向電磁石光源の BL-6A・10C と挿入光源の 15A2 ではその計測方式が異なっており、6A と 10C はX線を直接計測し、15A2 ではセラミックシンチレータでX線を可視光に変換して計測していた。この処置は光源の違いによるビーム強度の差に対応するものだが、導入してから約 8 年間で、直接X線を受光する 6A・10C タイプの方が放射線損傷によりダイオードの故障率が高かった。そこで今回、15A2 より弱いビーム強度でも精度良く計測できるように計測系のノイズ対策を施した上で、6A・10C も 15A2 と同じタイプに変更した (BL-10C の図 1 を参照)。ストッパーサイズは、6A が 3×5, 4×5, 4×6, 5×6 mm の 4 種類、10C が 3×5, 4×5, 5×6 mm の 3 種類となっている。

3. ビームタイム利用状況

BL-6A のビームタイムは、他の 2 本の小角散乱ビームライン BL-10C, 15A2 と一体で日程配分を行なっている。基本的に評点に基づく傾斜配分を行っており時期によって異なるが、1 課題に対して最大で 72 時間、続いて 48, 24 時間の順でビームタイム時間を配分している。BL-6A に関しては混雑具合が改善しており、希望通りの時間配分が行なわれている。ビームタイム開始時のセットアップは、休日平日に関係無く基本的に施設スタッフが対応している。エキスパートユーザーに関しては、ビームタイム中のセットアップ変更などは、自身で行なうことも可能である。

4. 今後の展望

PF の 3 本の小角散乱ビームラインは一体で運用されており、その高度化・整備に関しても同様である。BL-6A は光学系やスペースの問題から、測定波長が固定など他の 2 本と比較して利用環境に幾つか制限がある。しかし、その性能に合せて構築された実験系・装置系では不都合は無く、また、トライアル、講習会利用などにも活用するなど、今後も高精度なデータを安定に計測できる測定環境を提供する計画である。

引用文献

- [1] N Shimizu, T Mori, N Igarashi, H Ohta, Y Nagatani, T Kosuge and K Ito. J. Phys.: Conf. Ser. **425**, 202008 (2013).
- [2] H. Takagi, N. Igarashi, T. Mori, S. Saijyo, H. Ohta, Y. Nagatani, T. Kosuge, N. Shimizu. AIP Conf. Proc. **1741**, 030018 (2016).

BL-10C：X線小角散乱ステーション

清水 伸隆¹, 永谷 康子¹, 高木 秀彰¹, 森 丈晴¹, 谷田部 景子², 高橋 正剛²,
西條 慎也³, 中村 文俊³, 羽方 望³, 仁谷 浩明¹, 石井 晴乃¹, 小菅 隆¹, 五十嵐 教之¹

¹ 物質構造科学研究所 放射光実験施設,

² 物質構造科学研究所 放射光科学第二研究系, ³ (株) 日本アクシス

1. 概要

BL-10Cは偏向電磁石を光源とするX線小角散乱(SAXS)ビームラインで、最大で150 nm程度までの構造情報を得ることができる。利用可能な測定X線波長は0.89～1.77 Åの範囲で、カメラ長は250, 500, 1000, 2000, 3000 mmから選択できるが、別途、広角散乱(WAXS)用のチャンバも利用できる。測定試料分野は生体試料を含むソフトマテリアルからハードマテリアルまで多岐に渡っているが、2022年度では、ビームタイムの41.8%が材料科学(ソフト&ハードマテリアル)、13.3%が脂質・生体線維試料、40.7%がBioSAXS(タンパク質X線溶液散乱)での利用になっており、残り4.2%は施設の調整時間であった。上記割合の通り、他の2本のビームラインと比較して特にBioSAXS利用に向けて測定装置や試料環境などが中心的に整備されている。ビーム性能に関して他の小角散乱ビームラインBL-15A2, BL-6Aと比較した場合、輝度に関しては挿入光源ビームラインであるBL-15A2はもちろん、BL-6Aにもやや劣っている(BL-6Aの1/2程度)。一方、2013年度末に実施したビームラインの大規模高度化によって波長変更が可能となり、ビームの発散度を抑えつつカメラ長を伸ばした効果で計測可能な小角分解能が1.5倍に増加し、またWAXS計測系も導入されている。従って、フルタイムで利用できないBL-15A2の状況から、PFの小角散乱ビームラインの中では最も汎用度が高いビームラインと位置づけられている。性能の詳細は小角散乱ビームラインのHP([https:// pfwww. kek.jp/saxs/](https://pfwww.kek.jp/saxs/))にて公開している[1]。

2. 整備開発および運用状況

BL-10Cは他の2本の小角散乱ビームライン(BL-6A, BL-15A2)と共に共同運用されているため、各所の高度化などは共通で実施している。以下は、3ビームライン共通の高度化・整備状況である。小角散乱ビームラインでは、試料によるビームの透過率を得るためにSi PINフォトダイオードを仕込んだビームストッパーを使用している。一方で、偏向電磁石光源のBL-6A・10Cと挿入光源の15A2ではその計測方式が異なっており、6Aと10CはX線を直接計測し、15A2ではセラミックシンチレータでX線を可視光に変換して計測していた。この処置は光源の違いによるビーム強度の差に対応するものだが、導入してから約8年間で、直接X線を受光する6A・10Cタイプの方が放射線損傷によりダイオードの故障率が高かった。そこで今回、15A2より弱いビーム強度でも精度良く計測できるよ

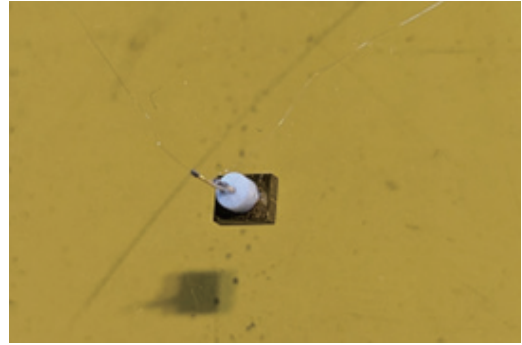


図1 5×6 mmサイズのビームストッパー。背面のφ3 mm フォトダイオード(白色)前のビームストッパー内部に1 mm角のシンチレータが配置されている。

うに計測系のノイズ対策を施した上で、6A・10Cも15A2と同じタイプに変更した(図1)。ストッパーサイズは、6Aが3×5, 4×5, 4×6, 5×6 mmの4種類、10Cが3×5, 4×5, 5×6 mmの3種類となっている。

3. ビームタイム利用状況

BL-10Cのビームタイムは、他の2本の小角散乱ビームラインBL-6A, 15A2と一体で日程配分を行なっている。基本的に評点に基づく傾斜配分を行なっており時期によって異なるが、1課題に対して最大で72時間、続いて48, 24時間の順でビームタイム時間を配分している。3本のビームラインの中でBL-10Cの利用希望が突出しているため、非常に混雑している。ビームタイム開始時のセットアップは、休日平日に関係無く基本的に施設スタッフが対応している。エキスパートユーザーに関しては、ビームタイム中のセットアップ変更などは、自身で行なうことも可能である。

4. 今後の展望

PFの3本の小角散乱ビームラインは一体で運用されており、その高度化・整備に関しても同様である。BL-10Cは最も汎用度が高く様々な試料分野に活用されているが、BioSAXSの利用割合が他よりも高く、SEC-SAXSシステム利用と相まって、今後もこの傾向が続くと推測される。

引用文献

- [1] N. Shimizu, T. Mori, Y. Nagatani, H. Ohta, S. Saijo, H. Takagi, M. Takahashi, K. Yatabe, T. Kosuge and N. Igarashi. AIP Conf. Proc. **2054**, 060041 (2019).

BL-15A2：高輝度 X 線小角散乱実験ステーション

高木 秀彰¹, 清水 伸隆¹, 永谷 康子¹, 森 丈晴¹, 谷田部 景子², 高橋 正剛²,
西條 慎也³, 中村 文俊³, 羽方 望³, 仁谷 浩明¹, 石井 晴乃¹, 小菅 隆¹, 五十嵐 教之¹

¹ 物質構造科学研究所 放射光実験施設,

² 物質構造科学研究所 放射光科学第二研究系, ³ (株) 日本アクシス

1. 概要

BL-15A2 は短周期アンジュレータを光源とする X 線小角散乱 (SAXS) ビームラインで, 最大で 300 nm を超える構造情報を得ることができる。実験ハッチ内には 2 つの測定系が直列に配置されており, 上流側には Tender 領域 (2.1 ~ 5.4 keV) の低エネルギー X 線を利用した斜入射小角散乱 (GISAXS) 装置, 下流側には汎用の X 線エネルギー (5.7 ~ 15 keV) を利用した SAXS, GISAXS 測定が可能な長尺実験定盤が設置されている。低エネルギー GISAXS 装置のカメラ長は 830 mm 固定だが, 2.4 keV の利用では 220 nm の小角分解能となる。一方で汎用長尺定盤では, カメラ長は 250, 500, 1000, 1500, 2500, 3500 mm から選択できるが, 別途, 広角散乱 (WAXS) 用のチャンバも利用できる。測定試料分野は生体試料を含むソフトマテリアルからハードマテリアルまで多岐に渡っているが, 2022 年度では, ビームタイムの 52.5% が材料科学 (ソフト & ハードマテリアル), 13.8% が脂質・生体試料, 22.1% が BioSAXS (タンパク質 X 線溶液散乱) での利用となっており, 残り 11.7% は施設の調整時間であった。PF の 3 本の小角散乱ビームラインでは最も高輝度なビームを利用可能である。また, ビームの平行度も高いため, 検出器面上での角度分解能も良好で, 他の 2 本では不可能な近接したピークを分離することができる。性能の詳細は小角散乱ビームラインの HP ([https:// pfwww.kek. jp/saxs/](https://pfwww.kek.jp/saxs/)) にて公開している [1-2]。

2. 整備開発および運用状況

BL-6A と 10C は既に更新済みだが, 15A2 も実験ハッチ内の 3 台の真空ポンプを静音・低振動タイプのドライ真空ポンプ (NeoDry15E, 桧山工業) に更新した (図 1)。以前 BL-6A で利用していた PILATUS 300K を 15A2 の WAXS 検出器に転用し, 既設の WAXS 検出器 PILATUS3 300K-W よりも広い方位角範囲, すなわち 2 次元で WAXS を計測できるように専用真空チャンバを開発した (図 2)。このチャンバは方位角で最大 80° の範囲を計測可能で, 自動ステージ制御により, 検出器の位置とカメラ長を変更することが可能である。また, 手動ではあるが, 検出器の設置角度も 0~90° の範囲で変更可能である。現在, SAXS 検出器

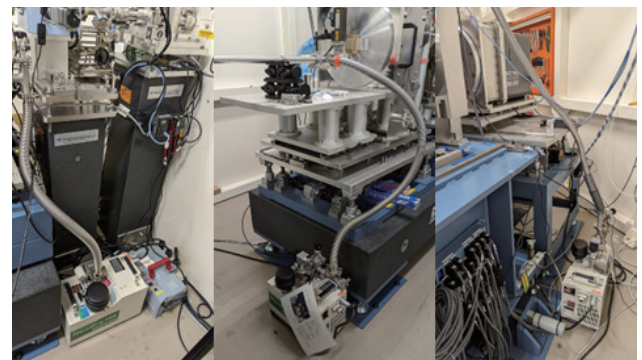


図 1 更新した 3 台の真空ポンプと設置状況

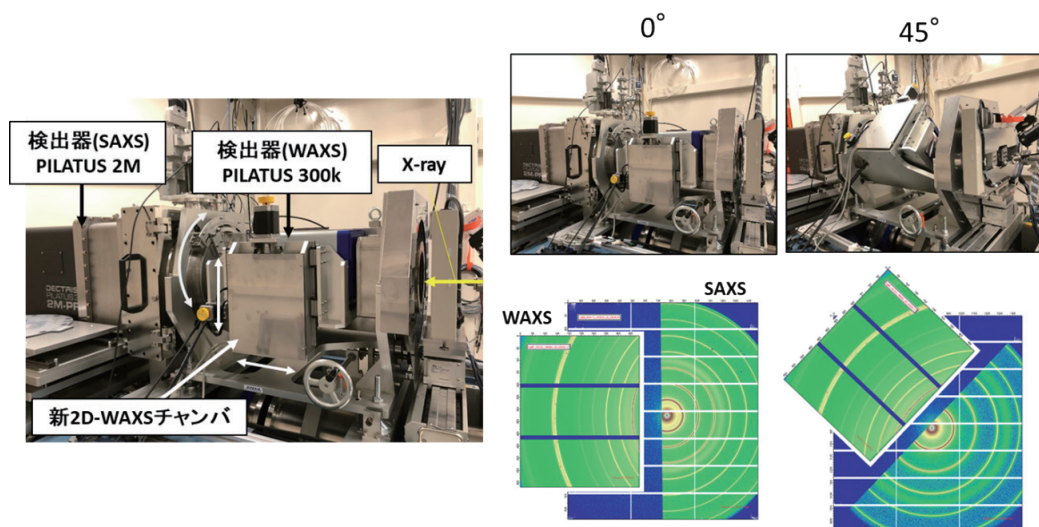


図 2 (左) 新 2 次元 WAXS チャンバ。(右) WAXS 検出器の角度を変更した様子。

と合わせた全自動測定制御を実現するためのシステム開発を進めており、2023 年度よりユーザー利用に供出する計画である。一方で、PILATUS3 300K-W 用のサーバーユニット（DCU）が不調になったため更新した。

BL-15A2 は他の 2 本の小角散乱ビームライン（BL-6A, BL-10C）と共に共同運用されているため、各所の高度化などは共通で実施している。以下は、3 ビームライン共通の高度化・整備状況である。小角散乱ビームラインでは、試料によるビームの透過率を得るために Si PIN フォトダイオードを仕込んだビームストッパーを使用している。一方で、偏向電磁石光源の BL-6A・10C と挿入光源の 15A2 ではその計測方式が異なっており、6A と 10C は X 線を直接計測し、15A2 ではセラミックスシンチレータで X 線を可視光に変換して計測していた。この処置は光源の違いによるビーム強度の差に対応するものだが、導入してから約 8 年間で、直接 X 線を受光する 6A・10C タイプの方が放射線損傷によりダイオードの故障率が高かった。そこで今回、15A2 より弱いビーム強度でも精度良く計測できるように計測系のノイズ対策を施した上で、6A・10C も 15A2 と同じタイプに変更した（BL-10C の図 1 を参照）。ストッパーサイズは、6A が 3×5, 4×5, 4×6, 5×6 mm の 4 種類、10C が 3×5, 4×5, 5×6 mm の 3 種類となっている。なお、15A2 の汎用長尺定盤では、φ3 mm のストッパーを利用している。

3. ビームタイム利用状況

BL-15A2 のビームタイムは、他の 2 本の小角散乱ビームライン BL-6A, 10C と一体で日程配分を行なっている。基本的に評点に基づく傾斜配分を行なっているが、BL-15A2 に関しては 1 課題で最大 48 時間、通常は 24 時間のビームタイム配分となっている。BL-15A1 との共同運用のため、15A2 側は 1 年間において 6 月の 3 週間、11 月後半～12 月半ばの 3 週間、2～3 月の 3 週間程度のビームタイム期間になっている。ビームタイム開始時のセットアップは、休日平日に関係無く基本的に施設スタッフが対応している。エキスパートユーザーに関しては、ビームタイム中のセットアップ変更などは、自身で行なうことも可能である。

4. 今後の展望

PF の 3 本の小角散乱ビームラインは一体で運用されており、その高度化・整備に関しても同様である。BL-15A2 は PF 小角散乱のフラグシップであり、特に Tender 領域の X 線を利用した GISAXS 測定に関しては国際的にも特色のある実験設備である。従って、学術、企業利用共に、今後も活発に利用されたいと考える。

引用文献

- [1] H. Takagi, N. Igarashi, Y. Nagatani, H. Ohta, T. Mori, T. Kosuge and N. Shimizu. AIP Conf. Proc. **2054**, 060038 (2019).
- [2] H. Takagi, N. Igarashi, T. Mori, S. Saijo, Y. Nagatani, H. Ohta, K. Yamamoto and N. Shimizu. J. Appl. Phys. **120**, 142119 (2016).

BL-18C：超高压下粉末 X 線回折計

鍵 裕之¹, 柴崎 裕樹², 亀卦川 卓美², 船守 展正², 渡邊 一樹³

¹ 東京大学 大学院理学系研究科, ² 物質構造科学研究所 放射光実験施設,

³ 三菱電機システムサービス (株) 加速器技術センター

1. 概要

本ステーションは、小型の高圧発生装置であるダイヤモンドアンビルセル (DAC) を利用し、放射光の特長を生かして超高压条件下での物質の構造をその場観察することを目的としている。主として単色 X 線とフラットパネル検出器を利用した室温高圧条件下での粉末 X 線回折の測定が行われており、高圧下での格子定数・原子座標の精密測定、結晶構造やガラスなどの非晶質物質の構造解析、高圧下での相転移の観察などの研究が展開されている。また、クライオスタットが装備されており、低温高圧条件下での X 線回折測定のほか、外熱式の DAC を用いた高温高圧条件下での実験や大気圧・高湿度条件下での結晶成長観察に関する実験も行われている。本ビームラインには低角測定用のチャンバーも整備されており、高圧条件下での低角測定 ($>0.1\text{\AA}^{-1}$) も可能である。本ステーションは外部ユーザーによって維持されているユーザーグループ運営ステーションの一つとなっている。

2. 整備開発および運用状況

2020 年度に先端研究設備整備費補助事業にてフラットパネル検出器を導入することができた。これにより、イメージングプレートでは困難であった X 線回折の短時間測定、連続測定が可能になり、測定時間を大幅に短縮することができた。また、フラットパネル検出器の導入に合わせ、ステージ等を PC にて制御できるように整備し、リモート測定環境の整備も行った。2021 年度からこれらシステムの本格的なユーザー利用が開始され、時分割測定やリモート測定が行われるようになっていく。2022 年度はフラットパネル検出器の利用が定着し、新規ユーザーの参加が増加し、P 型課題の申請も増加している。

BL-18C ではユーザーの外部資金によって導入された CCD 検出器付きシングルポリクロメーター (分光器) をルビー蛍光スペクトル測定による圧力計測のために供用している。多くのユーザーからルビー蛍光スペクトルのみならずラマンスペクトルの測定も行いたいという要望が寄せられている。現在使用中の励起レーザーの出力が 15 mW であるため、ラマンスペクトルの測定を行うためには出力が不十分である。100 mW クラスの高出力レーザーを新たに調達するか外部ユーザーから移管するなどして、ラマンスペクトルを定常的に測定できるビームラインの環境整備を検討したい。

3. ビームタイム利用状況

本ビームラインでは年間 20 件程度の有効課題にビームタイムを配分している。主として DAC を用いた室温条件下での X 線回折測定 (一部高温条件も含む) が行われているが、高圧下での低角測定の実験が増加傾向にある。また、現時点では 2 グループによってクライオスタットを用いた低温条件下での測定も行われている。これらの測定モードの切り替えと調整には半日以上時間を要するため、マシンスタディの時間を活用するなど切り替えが最小限ですむように工夫してビームタイムを配分した。また、AR-NE1A での高エネルギー (30 keV) による DAC を用いた高圧実験も同時にビームタイム申請しているユーザーもいるため、両者の重複がないようにビームタイムを調整することも必要である。

BL-18C のビームタイムは、2021 年度までと同様に実験計画を精査してビームタイムが適正に要求されているかを確認した後、課題申請書の評点に応じて 100% から 70% の係数をかけて配分し、結果的にビームタイムの充足率として 85% 程度を確保することができた。2022 年度に関してもビームタイム申請をしたにもかかわらずビームタイムが配分されなかった課題はなかったが、全てのユーザーに希望通りのビームタイムが配分されたとは言えない。

4. 今後の展望

今後も引き続き、光学系並びに周辺環境の細かな改良を進めていく予定である。室温・低温条件のみならず、抵抗加熱による高温高圧実験を行うユーザーもいる本ビームラインは、国内外の幅広いユーザーが利用できるポテンシャルをもつ。原則として、実験に必要な消耗品はユーザーが準備することになっているが、新規ユーザーの実験の立ち上げのために必要となる DAC ならびに消耗品の整備が定常的に必要である。また、レーザーなどの使用頻度と共通性の高い備品が老朽化によって寿命を迎える事例も発生しており、ユーザーグループとして外部資金を獲得するなどして更新を計画していきたい。

AR-NE1A：レーザー加熱超高压実験ステーション

柴崎 裕樹¹, 亀卦川 卓美¹, 若林 大佑¹, 船守 展正¹, 渡邊 一樹²

¹物質構造科学研究所 放射光実験施設, ²三菱電機システムサービス(株) 加速器技術センター

1. 概要

PF-AR の N 棟直線部に設置された多極ウイグラーを光源としている。微細溝加工された Si(111) 結晶で単色化し、K-B 多層膜ミラーによって 100 μm 程度に集光された 50 keV, 30 keV, 14.4 keV の 3 種類の単色光を使用できる。また PF-AR の単バンチ運転を活用したメスバウアー散乱実験のために、通常の光学系に高分解能分光器を挿入して 14.4 keV の光を準超単色化する仕組みが整備されている。実験装置としては、高压実験用ダイヤモンドアンビルセル (DAC) 実験ステージと高磁場下での高压実験ができるクライオスタットが整備されている。また、フレネルゾーンプレート (FZP) を用いた結像型 X 線顕微鏡 (ズームング顕微鏡) の整備も近年進めており、サブミクロン空間分解能でのイメージングも可能である。

2. 整備開発および運用状況

AR-NE1A の集光光学系の多層膜ミラーは、50 keV, 30 keV, 14.4 keV の 3 種類のエネルギー用に、3 種類の多層膜帯が長手方向に平行に並べて蒸着されており、光軸の位置に縦集光ミラーと横集光ミラーをスライドさせて所定の X 線を集光する。エネルギー変更に伴い集光位置が変わってしまう問題があったが、分光器、ミラーの条件を最適化することで、現在では、集光位置を変えずにエネルギーの変更が可能になっている。

メスバウアー実験は、高分解能光学系やマルチ APD 検出器・計測タイミング系など、調整の手順が複雑である。施設にメスバウアー実験の専門家がいなかったことから、兵庫県立大の池田修悟特任准教授を中心としたユーザーによってマニュアルが整備され、近年ではユーザーも増加傾向にある。

2020 年度より、放射光実験施設基盤技術部門 X 線光学チームが中心になり、FZP を用いた倍率可変 (ズームング) 結像型 X 線顕微鏡システムの開発が新たに行われている。本システムは、10 keV 程度の硬 X 線による高空間分解能イメージング (空間分解能: 数十 nm) に加え、カメラ、試料位置固定で拡大倍率を連続的に変更できる機能を有するイメージング装置である。これらに必要な光学系、チャンバー、ステージ、カメラ等が整備され、試験測定が行われている。2021 年度は、ズームング顕微鏡システムにマイクロビーム集光光学系を組み合わせ、ズームング顕微鏡による高空間分解能での試料観察とマイクロビームによる XRD 測定が可能な複合システムの開発を行った。XRD 測定用に新たにフラットパネル検出器 (FPD) も導入された。2022 年度に行った CT による 3 次元撮像試験やマイクロビ

ームを用いた XRD の試験測定は順調であり、今後は、実際のユーザー利用に向けた整備を行っていく予定である。

高压実験時に使用していた XRD 検出器 (R-AXIS IV) が電気基板部不具合により動作しなくなってしまった。メーカーによる修理も不可であったため、復旧を断念し、2022 年度第三期運転からは FPD と手差しのイメージングプレート (IP) を併用する形での運用に切り替えた。今後は、FPD と IP の切り替えをより簡便に行えるように整備し、測定の目的によってユーザー自身が検出器を切り替えられるようにする予定である。

3. ビームタイム利用状況

DAC による超高压下 X 線回折実験の他に、超伝導マグネットを用いた高压下メスバウアー実験、さらにズームング X 線顕微鏡開発など、実験手法・装置の異なる課題が混在している。基本的にユーザーの希望時間を実験課題の評点に準じて傾斜配分しているが、それだけで最適な配分を実現するのは難しい。例えば、回折実験のデータ取得に必要な時間は数分で十分であるが、メスバウアー実験では数時間も掛かるなど、それぞれの実験での測定時間がシグナル強度や温度圧力などの試料環境などに大きく依存するという、このステーション特有の問題があるためである。この様なことを考慮した結果、2022 年度は、80% 程度の配分率 (配分 / 希望) となった。また、30 keV の高エネルギーを必要とする超高压下 X 線回折実験は 6.5 GeV 加速器運転時にのみ配分し、14.4 keV, 10 keV での測定を行うメスバウアー実験、ズームング X 線顕微鏡は、5.0 GeV 加速器運転時と 6.5 GeV 加速器運転時両方に配分している。

4. 今後の展望

これまで行ってきた超高压下 X 線回折実験、メスバウアー実験を継続するとともに、ズームング X 線顕微鏡の本格利用に向けた試験測定、整備を引き続き進めていく。

AR-NE5C：高温高压実験ステーション /MAX80

柴崎 裕樹¹，亀卦川 卓美¹，若林 大佑¹，船守 展正¹，渡邊 一樹²

¹ 物質構造科学研究所 放射光実験施設，² 三菱電機システムサービス（株）加速器技術センター

1. 概要

PF-AR からの高エネルギー白色 X 線を用いた高温高压実験を行うことを目的としている。MAX80 と呼ばれる 500 トンの油圧プレス（図 1）に組み込まれたキュービック型アンビルにより、1,500°C・15 GPa 程度までの温度圧力に保持された様々な試料について、Ge 半導体検出器（Ge-SSD）によるエネルギー分散型の X 線回折（XRD）実験が行われている。また、X 線吸収微細構造（XAFS）分光測定のための二結晶分光器も実験ハッチ内に整備されている。

2. 整備開発および運用状況

2015 年度に XAFS 測定の整備が行われ、単色 X 線のエネルギーの変更や単色 X 線と白色 X 線の切り替えを短時間（数分）で、容易に行うことができるようになっていく。これにより、高温高压下その場 XAFS-XRD 複合測定が可能になっており、ユーザー利用も行われている。高エネルギー領域での XAFS 測定のための高分解能分光結晶 Si(311) も導入され、10-70 keV 領域での XAFS 測定が可能である。



図 1 AR-NE5C 実験ハッチに設置されている 500 トンプレス（MAX80）。中心部に DIA 型高压発生装置が組み込まれている。右上上流に放射光光源および二結晶分光器があり、白色 / 単色 X 線が実験ハッチに導かれる。白色 X 線を用いた XRD 測定のための Ge 半導体検出器や単色 X 線を用いた XAFS 測定のための電離箱が設置されている。

2022 年度は、装置の老朽化対応をいくつか行った。2020 年度から生じていた制御パネルの圧力設定の不具合を修理し、2022 年度第Ⅲ期運転からは正常に圧力設定が行えるようになった。また、低圧ポンプのインバーターが、動作保証期間からすでに 20 年以上経過していたため、新しいモデルに交換した。圧力制御のシーケンサも老朽化が進んでいるため、取り急ぎの対応としてデータの抽出を行った。完全に動作不良となった場合に備え、新しい制御装置の検討を進めている。

また、2022 年度第Ⅲ期運転時に、Ge-SSD と制御 PC の通信が行えない不具合が生じた。原因を調査したところ、AMP の動作不良が原因であることが分かり、予備品と交換することで通信を回復させることができた。これと前後する形で、Ge-SSD からの信号が揺らいでしまう不具合も発生した（チャンネルドリフト）。電気的なノイズが原因であると考えられるが、原因を特定することができないまま、2022 年度第Ⅲ期運転後半には症状が落ち着いたため一旦様子見とした。引き続き調査を行う予定である。

3. ビームタイム利用状況

ユーザーの希望時間と実験課題の評点に準じてビームタイムの配分を行っている。2022 年度は、90-100% 程度の配分率（配分 / 希望）であった。また、1 件の産業利用が行われた。

4. 今後の展望

AR-NE5C では、高温高压下その場 XAFS-XRD 複合測定システムが可能であり、微量元素に適用可能な蛍光法による XAFS 測定システムの整備に向けた準備（集光光学系、測定試験）も進めている。個々のシステムの利用環境の改善や、システムの切り替えの効率化、複合化を目指して整備を継続したい。

AR-NE7A：X線イメージングおよび高温高圧実験ステーション

平野 馨¹，柴崎 裕樹¹，船守 展正¹，久保 友明²，渡邊 一樹³

¹ 物質構造科学研究所 放射光実験施設，² 九州大学 大学院理学研究院，

³ 三菱電機システムサービス（株）加速器技術センター

1. 概要

本ステーションは、偏向電磁石から発生する放射光を利用できるステーションであり、必要に応じて白色X線、単色X線（20-60 keV 程度）を実験ハッチに導入することができる。実験ハッチの上流側には、図1に示すようにメインハッチが設置されていて、二結晶分光器、ビームシャッター等が設置されている。放射光使用時にはこのビームシャッターを閉じるだけで実験ハッチに入室できる設計になっていて、二結晶分光器の光学素子（Si(111) 結晶）に常時放射光が照射されることで光学素子が熱的に安定な状態で実験を遂行することができる。この光学素子表面は、画像データの目的とする空間分解能が確保される程度にSiCで研磨していて、得られる単色X線の積分反射強度を増大している。実験ハッチ内上流側には汎用定盤が設置されていて、吸収コントラストを用いたX線イメージング実験を中心に、位相コントラストを用いたX線イメージング実験、構造変化の時分割測定法の開発・応用実験、X線検出器の開発・評価実験などが実施されている。また、この汎用定盤は実験ハッチ外に搬出することも可能であり、ユーザー実験グループにより独自の実験定盤、実験装置を搬入、使用することも可能である。実験ハッチ内下流側には高温高圧実験装置（MAX-III）が常設されていて、高温高圧下でのX線回折実験、X線イメージング実験、岩石・鉱物の変形実験等が実施されている。

2. 整備開発および運用状況

白色X線を用いる実験では、最下流端に設置した真空封止用ベリリウム窓を保護するためにヘリウムガスを供給していて、ヘリウムガスを一時的にベリリウム窓周辺に封止するためにベリリウム窓下流側に設置した穴空きフランジにカプトン膜をアルミニウムフォイル（白色X線部分のみ）と共に貼付している。一定の実験時間が経過するとカプトン膜の放射光による損傷が生じるので、ヘリウムガスが漏れないように、2週間程度の頻度でカプトン膜の追加貼付



図2 AR-NE7A のハッチ

や張替えを実施している。2022年度は、カプトン膜の張替えをより容易にするために、新たな取り付けフランジの設計・製作を行った。また、昨今のヘリウムガスの供給不足による高騰を受けて、ヘリウムガスをビームラインに備え付けのボンベから供給する方式に切り替えた。

2016年度から高温高圧実験装置 MAX-III はユーザーグループ運営装置となり、外部ユーザーによって装置が維持されている。ユーザーの外部資金によって、D111 型変形実験装置やX線イメージング装置などが MAX-III に導入され、従来の装置では調べるのが困難であった高温高圧下での地球深部物質のレオロジー研究が進められている。

3. ビームタイム利用状況

本実験ステーションでは、放射光共同利用実験審査委員会（PF-PAC）の第6分科で審査され採択された実験課題の研究が実施されている。すべての実験課題に関して PF-PAC 評点に基づいてビームタイムを配分している。PF-AR で 2019 年度から 5.0 GeV 加速器運転が導入されてから、高エネルギーX線領域におけるX線強度を考慮して 6.5 GeV 加速器運転時は高圧関係実験課題を、5.0 GeV 加速器運転時はイメージング実験等の実験課題を実施している。

4. 今後の展望

引き続き、基本的に 6.5 GeV 加速器運転時は高圧関係実験課題を、5.0 GeV 加速器運転時はイメージング実験等の実験課題を実施していく予定である。

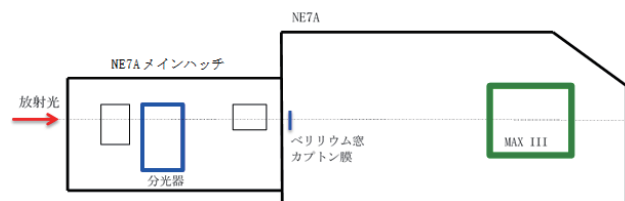


図1 AR-NE7A 平面図

AR-NW14A：ピコ秒時間分解 X 線回折・散乱・分光

野澤 俊介¹, 深谷 亮¹, 福本 恵紀¹, 足立 伸一²

¹ 物質構造科学研究所 放射光科学第二研究系, ² 高エネルギー加速器研究機構

1. 概要

・測定手法

ピコ秒時間分解 X 線測定 (回折・散乱・分光)

・使用目的の概要

定常測定では測定が困難なピコ秒～ミリ秒の時間スケールの過渡的な構造・電子状態変化を測定するために使用

れた。本レーザーシステムを利用することで、ユーザーは UV-VIS-IR-THz の幅広い波長域の中から励起波長を選択して以下のような励起ダイナミクスの情報を得ることが可能になる。

- ・ UV-VIS 域における精密な電子バンド選択励起
- ・ IR 域による格子・分子振動の励起
- ・ THz 域による強電場パルス励起

2. 整備開発および運用状況

AR-NW14A では光物性物理・光化学・生体物質における光反応といった様々な分野の光誘起ダイナミクス現象について、回折・散乱・分光といった従来の放射光測定法を時間分解測定に幅広く適用させることで利用研究が行われている。世界的にもユニークな時間分解 X 線実験専用ビームラインの性質を踏まえ、様々な分野のユーザーに対し、常に新規性のある動的情報が測定できるような実験環境を提供することを、基本的な運用方針としている。また、XFEL で展開されているフェムト秒ダイナミクス研究との相補利用を考慮し、PF-AR の高エネルギー性、白色性、高繰り返し性を有効に活用して、蓄積リング型放射光源としての特徴を生かした動的情報を引き出す整備も進めている。

2022 年度において、振動励起・パルス強電場励起等による光応答制御を目指し、時間分解 X 線溶液散乱や時間分解 XRD でサンプルを光励起する際に利用する高強度フェムト秒レーザーとして、Coherent 社製 Legend Elite 導入さ

3. ビームタイム利用状況

2022 年度における手法別のビームタイム利用率は、およそ回折：散乱：分光 = 0.4 : 0.3 : 0.3 であった。2022 年度における“ビームタイム配分率”は 78% であり、“ビームタイム配分があった課題の最低 PF-PAC 点数”は 3.3 であった。ビームタイム配分は PF-PAC 配点を基準に決定されている。

4. 今後の展望

シングルバンチ flux で比較すると PF-AR は PETRA-III, APS と同等であり、世界最高クラスの性能を持つため、PF-AR における時間分解 X 線測定は、現在でも非常に高い国際的な競争力を持つ。今後の整備予定としては、まず BL のアクティビティを上げる方向性として、引き続き測定システムの高効率化を中心に整備を進めて行く。加えて、XFEL との相補利用を意識し、AR-NW14A と XFEL を相補的に用いた研究が広く展開されていくよう、今後も整備を進めていく予定である。

BL-3C：X線光学素子評価／白色磁気回折ステーション

平野 馨一

物質構造科学研究所 放射光実験施設

1. 概要

BL-3Cは偏向電磁石を光源とする単色・白色X線実験ステーションであり、ハッチ内に水平多軸精密X線回折計と四軸X線回折計を常設している。水平多軸精密X線回折計の利用研究としては、シリコン格子定数の精密評価 [1] やパワーデバイス用半導体結晶の観察 [2] 等が行われている。また、四軸X線回折計を用いた研究としては、X線磁気回折による多層膜の磁性研究 [3] 等が行われている。この他にも、ユーザー持ち込み装置によるX線顕微鏡実験 [4] も行われている。

2. 整備開発および運用状況

2022年度は制御・測定用PCの更新（Windows 10 PC から Windows 11 PC への更新）を行った他、既存のビームライン機器及び測定装置の保守・整備を行った。

3. ビームタイム利用状況

2022年度の有効課題は、G型課題7件だった。有効課題の内訳は格子定数の精密測定の課題が1件、X線トポグラフィーの課題が3件、X線磁気回折の課題が1件、X線顕微鏡の課題が1件、その他が1件だった。新型コロナウイルスの影響で、海外からの研究者が来日できず、その影響で、格子定数の精密測定のビームタイムが減少状態にある。

4. 今後の展望

X線トポグラフィー実験では、原子核乾板が撮像のために長年利用されてきたが、最近入手するのが困難になりつつあるため、早急に代替案を検討する必要がある。最有力候補は高分解能のX線sCMOSカメラだが、導入するにはユーザーと協力して外部資金の獲得を目指す必要がある。

測定システムに関しては、今後も引き続き更新を行い、ユーザーフレンドリーな実験環境の構築を進める。

引用文献

- [1] 物構研ハイライト「国際単位系（SI）kg 再定義の舞台裏」（2018年11月9日）
<https://www2.kek.jp/imss/news/2018/highlight/1107SI-1kg/>
- [2] KEK プレスリリース「GaN の結晶欠陥を大面積且つ非破壊で検出・分類する方法を開発 ～青色 LED から電力制御素子まで、GaN 結晶の高品質化を加速～」（2018年7月9日）
https://www.kek.jp/ja/newsroom/attic/20180709pressrelease_imss.pdf
- [3] M. Ito *et al.*, J. Phys. : Conf. Ser. **502**, 012018 (2014).
- [4] N. Watanabe *et al.*, J. Phys. : Conf. Ser. **463**, 012011 (2013).

BL-14B：精密X線光学実験ステーション

平野 馨一

物質構造科学研究所 放射光実験施設

1. 概要

BL-14B は垂直ウィグラーを光源とする単色X線実験ステーションであり、精密なX線光学系を水平面内に比較的容易に構築できるという特徴を持っている（図1）。この特徴を活かして、BL-14B では先端的X線光学研究だけでなく、X線イメージング等の応用研究も行われている。

2. 整備開発および運用状況

2022年度は、X線吸収・位相イメージングやX線トポグラフィー等を中心として運用を行った。前者では各種工業材料や生体試料の観察、後者では GaN やダイヤモンド等の次世代パワーデバイス用結晶 [1] や高品質タンパク質結晶 [2] の評価等が行われた。

整備開発としては、X線吸収・位相・散乱 CT の開発に取り組んだ。従来のX線吸収・位相・散乱 CT には、検出器の視野よりも大きな試料の観察や平板状の試料の観察が困難という問題があるが、この問題を解決するべくラミノグラフィー [3] の導入を試みている。さらに、吸収・屈折・位相コントラストに加えて新たに散乱コントラストの断層像を取得するための解析プログラムの開発にも取り組んでいる。その他、X線 CCD カメラ制御用の PC の更新や、故障した測定装置の修理等を行った。

なお、PF-S 課題「3次元X線ズーム顕微鏡の開発」（2021PF-S001、課題責任者：平野馨一）を実施した [4]。BL-14B では大視野X線イメージング用のマルチコントラスト光学系の開発と評価が行われた [5]。

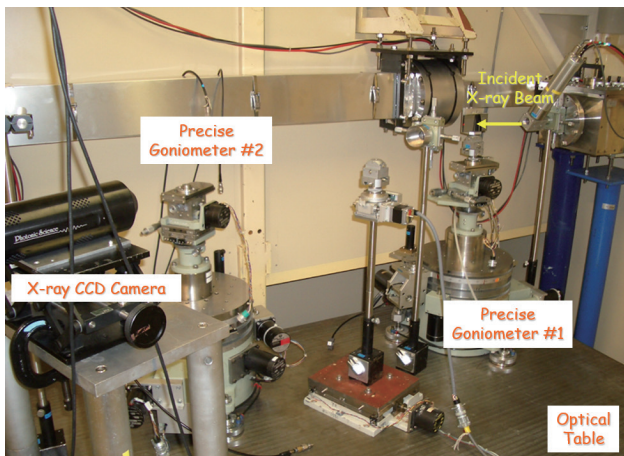


図1 BL-14B のハッチ内の写真。垂直回転軸の精密X線回折計や各種X線カメラなどを備えており、自由に精密X線光学系を構築することができる。

3. ビームタイム利用状況

2022年度の有効課題は、G型課題12件、P型課題1件、PF課題3件だった。全体的にビームタイムは不足しがちであるが、ビームタイム希望者には少なくとも最低希望日数が確保されるようにしつつ、放射光共同利用実験審査委員会（PF-PAC）の評点に従って傾斜配分を行っている。

4. 今後の展望

現在、BL-14B でユーザー実験に供している実験手法は、X線吸収型イメージング、回折強調X線イメージング、複画像ラジオグラフィー、斜入射X線トポグラフィー、二結晶平面波トポグラフィー等である。これに加えて、X線回折格子干渉計を用いた位相イメージングもユーザー実験に供するべく、画像処理プログラムの整備を進めている。さらに、倍率可変X線ブラッグ光学系とフォトンカウンティング二次元検出器とを組み合わせることにより、サブミリメートルからサブミクロンの間で空間分解能が可変な高速・高感度・高精細・広ダイナミックレンジのX線イメージングを開発し、各種試料の in situ マルチコントラスト・マルチスケール観察への道を拓くことにも引き続き取り組む [6]。

BL-14B では数台のX線 CCD カメラを使用しているが、そろそろ更新を考えるべき時期になりつつある。更新にあたっては、ユーザーと協力して外部資金の獲得を目指す。

引用文献

- [1] KEK プレスリリース「GaN の結晶欠陥を大面積且つ非破壊で検出・分類する方法を開発 ～青色 LED から電力制御素子まで、GaN 結晶の高品質化を加速～」(2018年7月9日) https://www.kek.jp/ja/newsroom/attic/20180709pressrelease_imss.pdf
- [2] M. Abe, R. Suzuki, K. Hirano, H. Koizumi, K. Kojima and M. Tachibana, PNAS **119**, 2120846119 (2022).
- [3] K. Hirano, Y. Takahashi, K. Hyodo and M. Kimura, J. Synchrotron Rad. **23**, 1484 (2016).
- [4] 船守展正, PHOTON FACTORY NEWS 39(3), 9 (2021).
- [5] K. Hirano, H. Sugiyama, R. Nishimura, D. Wakabayashi, Y. Suzuki, N. Igarashi and N. Funamori, J. Synchrotron Rad. **29**, 787 (2022).
- [6] K. Hirano, Y. Yamashita, Y. Takahashi and H. Sugiyama, J. Synchrotron Rad. **22**, 956 (2015).

BL-14C：X線イメージングおよび汎用X線実験ステーション

平野 馨一, 亀沢 知夏, 兵藤 一行
物質構造科学研究所 放射光実験施設

1. 概要

本ステーションは、垂直ウィグラー光源から発生する縦偏光放射光を利用でき、必要に応じて白色X線または単色X線を実験ハッチに導入することができる。実験ハッチの上流側には、図1、図2に示すように14Cメインハッチが設置されていて、縦偏光放射光に対応した二結晶分光器、DSS（Down Stream Shutter）が設置されている。単色X線利用時にはこのDSSを閉じるだけで実験ハッチに入室できる設計になっており、二結晶分光器の光学素子（Si(220)結晶）に常時放射光が照射されることで光学素子が熱的に安定な状態で実験を遂行することができる。単色X線は、8 keV程度から80 keV程度まで利用可能であり、17-50 keVの単色X線が多用されている。実験ハッチ内上流側には汎用定盤が設置されており、吸収コントラスト、位相コントラストを用いたX線イメージング実験、X線検出器やX線線量計の開発・評価実験などが実施されている。実験遂行に必要な精密ゴニオメータ、X線スリット、試料位置調整装置、パルスモータードライバー、制御系等の基本的実験機器は常備されているが、独自の実験機器を搬入して使用することも可能である。実験ハッチには、大型実験装置を出し入れするための搬入口が用意されている。実験ハッチ内上流側には汎用の実験スペース（図3）、実験ハッチ内下流側には大型の分離型X線干渉計（図4）が常設されており、位相コントラストを用いたX線イメージング実験が実施されている。本ステーションは、縦偏光、縦長の放射光を利用できることから、光学素子、実験機器の水平面内での展開が可能であり、X線イメージング実験、特に大型の分離型X線干渉計を用いた実験遂行に最適なステーションとなっている。実験ハッチは、実験に影響を与える環境温度変化を小さくするために内側全面に断熱材を貼っている。

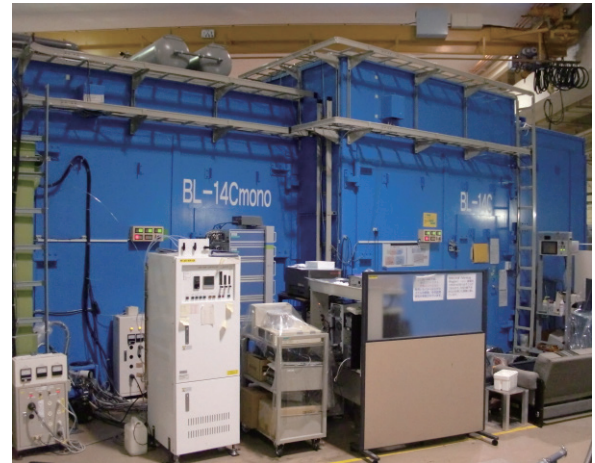


図2 BL-14C 外観

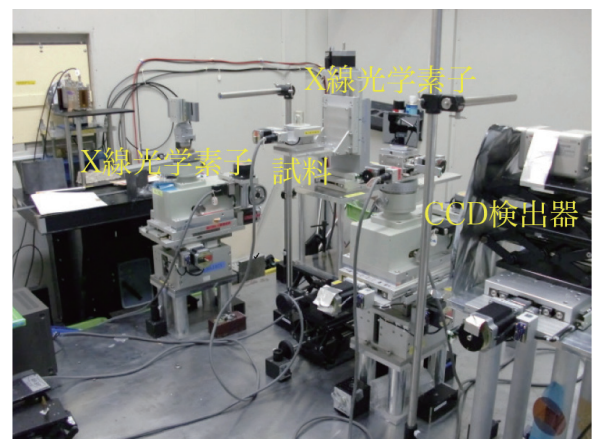


図3 X線イメージング用実験装置配置の一例。実験ハッチ上流側の様子。位相コントラストイメージングシステムの配置。写真の左側から単色X線が導入され、写真右側のCCD検出器でX線イメージを取得している。

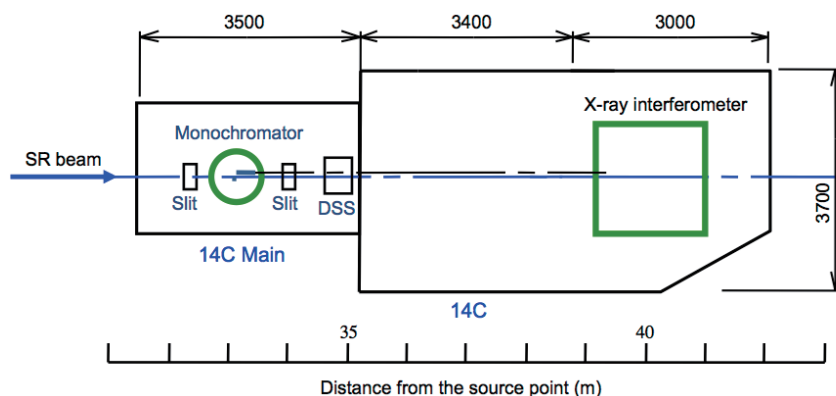


図1 BL-14C 平面図

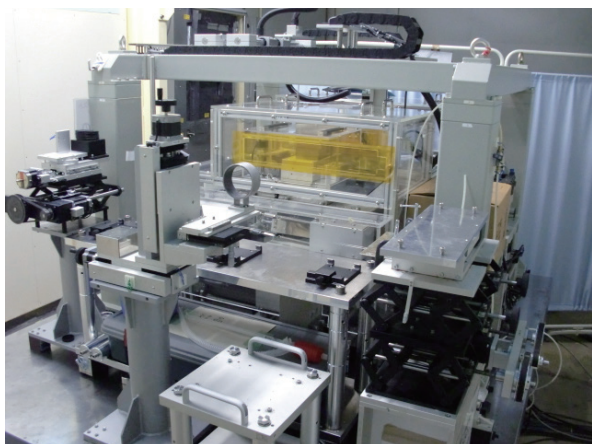


図4 大型X線干渉計

2. 整備開発および運用状況

2021年に更新した二結晶分光器用の水冷系（チラー等）は順調に稼働しており、ユーザー実験全般に利用されている。また、二結晶分光器（図1参照）から得られる単色X線強度の時間的安定化を目的としたピエゾ素子を用いた光学素子（Si(220)）間の角度調整（ $\Delta\theta$ ）用自動フィードバック機構は、引き続き、特に干渉計を用いたCT実験に有効に利用されている。

また、2020年に実験ハッチ上流側に導入した制御システム、ローカルエリアネットワーク、ネットワークカメラ2台は、これまでのところ順調に稼働しており、ユーザー実験に有効活用されている。今後、制御システム用の測定・解析ソフトウェアのさらなる開発と改良を行う予定である。

干渉計は周囲からの振動が画像に影響することを避けるために、装置を空気浮上させフィードバックをかけて安定性を維持している。2022年度は空気浮上のフィードバック機構の更新と調整を実施した。さらにX線強度向上のために干渉系上流に真空パイプを設置した。X線強度が30%程度向上し、測定時間の短縮や測定精度向上が可能となった。

単色X線利用と白色X線利用の実験ステーション切り替えは、引き続き、ビームタイムの有効利用を考慮しながらユーザー実験遂行に最適なタイミングで実施できるように、毎回、ユーザーと詳細な日時調整をして実施している。現在、白色X線を利用するユーザーグループは3グループである。

3. ビームタイム利用状況

本ステーションでは、常設の大型X線干渉計を用いたイメージング実験、位相コントラストを用いたイメージング実験（タルボ干渉計、小型X線干渉計、DEI、DFI）、吸収コントラストを用いたイメージング実験、X線検出器の開発・評価実験を遂行する実験グループがあり、ビームタイム配分は、実験課題の放射光共同利用実験審査委員会（PF-PAC）で付与された評点に対応した配分を実施してい

る。また、白色X線を利用できる数少ない実験ステーションの一つであり、時間分解能が必要なX線イメージング実験、通常のX線発生装置を用いたイメージング実験への知見の応用を目的とした実験や大線量の放射線照射が必要な実験などにも利用されている。また世界で唯一の Vertical wiggler 更新に向けて、Vertical wiggler から放出される放射光の評価を PF-G 課題にて実施し、結果を元に加速器グループとの検討を進めている。また結晶干渉計利用は 2022 年度だけでユーザーグループが 5 件増加した。

4. 今後の展望

今後も、世界的に貴重な縦偏光、縦長の白色放射光、高エネルギー単色X線の特徴を利用した共同利用研究を推進する予定である。大きなX線照射面を得ることができる分離型X線干渉計は、生体試料撮影の場合、軟部組織中の微小な変化を描出する能力が他のX線イメージング法に比較して特に優れており、生体試料に関する積極的な利用推進を予定している。また同様にX線干渉計イメージングの特長を利用したガスハイドレートや燃料電池などのエネルギー分野などの産業応用、微小な温度変化を撮像するサーモグラフィとしての応用実験、食品科学への展開などを、引き続き、実施する予定である。

BL-20B：白色・単色X線トポグラフィ / X線回折実験ステーション

杉山 弘

物質構造科学研究所 放射光実験施設

1. 概要

本ビームラインは白色・単色X線によるX線回折トポグラフィおよび関連するX線回折実験専用ステーションである。旧オーストラリアビームラインを改造し、2013年秋から旧BL-15B、15CなどX線トポグラフィ関連課題を統合して専用ビームラインとして運用を開始した。入替形式により白色X線トポグラフィ用垂直軸大型回折計および精密X線トポグラフィ用水平軸回折計が使用可能である。他のビームラインと共用ではあるが各種解像度のX線CCDカメラも標準使用可能である。

2. 整備開発および運用状況

X線トポグラフィ実験ステーションとしての整備がほぼ完了し安定してX線トポグラフィおよび関連実験が遂行されている。

モノクロメータ用Si単結晶上には主に白色放射光の影響によりカーボンが堆積する。堆積したカーボンはX線トポグラフィなどのイメージング実験の際には入射ビーム不均一性による画像のノイズとなり、6 keV程度以下の低エネルギーX線領域では反射強度の減衰としての影響も大きい。

そのため、2020年度から運転期間終了毎にモノクロメータ用Si単結晶の第一、第二結晶ともエキシマランプ洗

浄またはプラズマ洗浄により堆積カーボンを除去して、実験への影響を最低限に止めている。

3. ビームタイム利用状況

回折装置の入替作業は30分程度の作業ではあるが、立上・調整には最低でも1シフト程度必要になるため、可能な限り同一装置を使用する課題を連続して実行するようにしている。また、実験の性質上、1課題あたりの必要とする時間が4-6日間と長い場合が多く、本ステーションにおいて現実的に実行できる課題数は最大10課題程度であると考えている。

2022年度に実行された課題では、SiC、ダイヤモンド、卵白リゾチーム、有機伝導体単結晶を試料としてX線トポグラフィおよびロッキングカーブ法などで研究・評価が実施されている。さらにトポグラフィ装置を利用して多層膜回折格子の評価やビームスプリッタの開発も実施されている。

4. 今後の展望

現時点では規模の大きな改造や保守の予定はなく、ビームラインの安定運用に努めている。モノクロメータ用Si単結晶のカーボン除去洗浄については、今後も運転期間終了毎に実施していく。