

SPring-8 シンポジウム 2022 講演要旨 目次

セッションⅡ 施設報告

O-2-1	近況と展望 矢橋 牧名（理化学研究所、高輝度光科学研究センター）……………	1
O-2-2	利用制度の改正 木村 滋（高輝度光科学研究センター）……………	2
O-2-3	共用 BL 再編の現状 坂田 修身（高輝度光科学研究センター）……………	3
O-2-4	SACLA 共用開始 10 年のサマリー 簀内 俊毅（高輝度光科学研究センター、理化学研究所）……………	4

セッションⅢ（東大がつむぐ学術と社会のリンケージ）

O-3-1	イントロダクション 原田 慈久（東京大学）……………	5
O-3-2	SPring-8 を利用した高分子の強靱化研究 伊藤 耕三（東京大学）……………	6
O-3-3	高速 X 線撮像が拓く精密加工学 三村 秀和（東京大学）……………	7

セッションⅤ 利用トピックス

O-5-1	SACLA における高強度 XFEL sub-10 nm 集光 山田 純平（大阪大学）……………	8
O-5-2	放射光 X 線マイクロ CT を用いたデボン紀脊椎動物化石の骨格形態および組織構造の精密観察 平沢 達矢（東京大学）……………	9
O-5-3	テンダー X 線タイコグラフィを用いたリチウム硫黄電池の化学状態の可視化 金子 房恵（住友ゴム工業）……………	10
O-5-4	～多元素ナノ合金触媒の開発と Spring-8 への期待～ 北川 宏（京都大学）……………	11

セッションⅥ データサイエンスと放射光

O-6-1	Spring-8 データセンター構想 初井 宇記（理化学研究所）……………	12
O-6-2	AlphaFold、襲来 服部 素之（復旦大学）……………	13
O-6-3	大型研究施設における MI と DX 庄司 哲也（トヨタ自動車）……………	14

セッションⅦ YSA 受賞講演

- O-7-1 **ユニークな XFEL モードの開発と高強度 X 線科学への応用**
井上 伊知郎（理化学研究所）…………… 15
- O-7-2 **放射光 X 線で照らす時計タンパク質 KaiC の概日振動メカニズム**
古池 美彦（自然科学研究機構・分子科学研究所）…………… 16

近況と展望

理化学研究所 放射光科学研究センター

矢橋 牧名

本年は、SPring-8 と SACLA の共用開始から、それぞれ 25 周年、10 周年という節目にあたる。この間、SPring-8/SACLA に対する社会からの期待や要請は大きく変化してきた。個々のサイエンスにおける成果の創出とともに、社会全体の大きな課題 —SDGs・カーボンニュートラル目標、半導体戦略、社会インフラ老朽化、人口減少社会、等— の解決を促進する重要なツールとして、一層の活用が期待されている。

国内外の放射光施設でも大きな動きが続いている。国内では、仙台にて 2024 年度に 3GeV 施設ナノテラスが稼働する。軟 X 線領域の高輝度放射光が、ようやく我が国でも利用可能となる。一方で、海外では、硬 X 線放射光源のアップグレード (欧州 ESRF、米国 APS、ドイツ PETRA) や新設 (中国 HEPS、韓国 OASIS) が進む。各国とも、最先端の分析能力の確保が国際競争力を維持するための必要条件との認識にたつて、国を挙げて整備に取り組んでいる。

SPring-8 は、加速器・インフラの老朽化が進むとともに、昨今の電気代の高騰を受け、運転時間の確保にも支障がでてきている。早期に SPring-8-II へのアップグレードを行ない、性能のジャンプとともに、施設全体の省エネ化を実現すべく、関係各所と協議を行なっている。一方で、現時点で着手可能な改革については、遅滞なく取り組んでいる。以下に代表的な項目を示す。

0) 加速器入射器系の更新 —SPring-8-II に向けた重要なステップ—

- ・ 2021 年度から旧入射器系に代えて「SACLA 入射」を開始。トップアップ運転を含め安定に稼働中。(New SUBARU の専用入射器も整備済み)

1) SPring-8 データセンターの整備: —データ創出基盤としての役割の強化— (詳細は初井宇記氏の講演を参照)

- ・ 2021 年度の補正予算によって、SPring-8 データセンターを整備中。早期に試験利用を開始予定。

2) ビームラインの再編・更新 —最新テクノロジーの導入と利用機会の拡大— (詳細は坂田修身氏の講演と各ポスター発表を参照)

- ・ 共用ビームラインを中心に、2018 年から 7 本のビームライン・エンドステーションについて大規模なアップグレードを完了。さらに、2024 年度までに、少なくとも 5 本の大規模更新を計画。
- ・ 2020 年度の補正予算等により、試料の自動調製システムを整備し、試験運用を開始。(XAFS、粉末 XRD、溶液 SAXS、等)
- ・ 基幹光学系の開発と導入。(広帯域の多層膜分光器、超安定 Wolter 集光ミラー、新型液体窒素冷却システム、等)
- ・ CITIUS 検出器の開発と導入。
- ・ 新型アンジュレータ(IVU-II)の開発と量産体制の確立。
- ・ 新しいビームライン制御プラットフォーム(BL-774)の開発と導入。
- ・ 高エネルギー X 線活用のユースケースの開拓。
- ・ SACLA/SPring-8 基盤開発プログラムによる装置開発。利用者の新たなアイデアを迅速にかたちにする。

3) 利用制度の改変 —最新のニーズへの対応— (詳細は木村滋氏の講演を参照)

- ・ 多様な利用主体(大学・国研、国プロ、大企業、スタートアップ・中小企業、国際共同研究、等)が、それぞれのニーズを満足できるよう、利用制度の改革を順次実施中。
- ・ 理研ビームラインにおける外部利用制度の充実。
- ・

本シンポジウムを通して、SPRUC 会員の皆様からのフィードバックを頂きながら、今後の SPring-8/SACLA の方向性について議論を深めたい。

利用制度の改正

JASRI 利用推進部

木村 滋

SPring-8 は、供用開始から 20 年以上が経過し、利用者層も当初の専門家から産業界を含む幅広い層へ拡大した。これに伴い、SPring-8 の利用制度についても、利用者層の多様なニーズに応えるべく、新しい利用課題を次々と追加する形で拡充され、当初 2 課題であった利用課題種が細かい差異を含めると 26 種類にまでなっていた。

このような状況で 2018 年度に行われた国の大型放射光施設 (SPring-8) 及び X 線自由電子レーザー施設 (SACLA) の中間評価では、利用制度に対しても改正に関する提言がなされた。これを受け、理研、JASRI では両機関のメンバーで構成する「利用制度改正作業部会」を設置し、利用制度の分析、及び、利用制度の改正に関する検討がなされた。

同作業部会の検討結果を踏まえ、2022A 期から 2023A 期にかけて以下の利用制度改正を実施済み、もしくは、実施予定である。

【フェーズ 1】2022A 期から導入済 (第 34 回 SPring-8 選定委員会 [2021/8/2] 審議事項)

- ・緊急課題の改正⇒対象事項を拡大し、「緊急・特別課題」に改称

緊急・特別課題へと名称を変更。緊急かつ極めて重要と思われる利用提案に加え、国民の関心が極めて高く、当該科学技術分野、社会・経済への寄与度が極めて高い研究で、即時利用の必要性が認められる利用提案についても、「緊急・特別課題」として随時募集し、迅速に選定する。

- ・時期指定課題の改正⇒「時間単位利用」の設定

新しいニーズの開拓を目的として、産業利用ビームラインでのみ行っていた「産業利用準備課題」に相当する制度として対象ビームラインを共用全体（一部を除く）に拡大し、測定の可否判断、測定条件の検討等を目的として時期指定課題を時間単位で利用できるようにする。利用後の追加データの取得にも活用可とする。

- ・大学院生提案型課題の改正⇒「長期型」の設定

大学院生が自由な発想でテーマ設定を行う大学院生提案型課題において、有効期間を博士後期課程の期間と連動する 1 年～3 年間とするカテゴリを新たに設定し、学生教育のための計画的かつ安定的なビームタイムを確保する機会を提供し、施設利用を通じた人材育成の推進に資する。

【フェーズ 2】2022B 期から導入済 (第 35 回 SPring-8 選定委員会 [2022/2/8] 審議事項)

- ・課題募集の頻度拡大⇒「年 6 回募集」の拡大

産業利用ビームラインでのみ実施していた年 6 回募集を他の共用ビームラインの一部にも展開。

- ・産業利用ビームライン I・II・III の運用変更⇒「学術」のグループにも利用開放

実験責任者または共同実験者に「民間企業」もしくは「産業界に準ずる機関」に属する方を含まない、学術機関のグループからも産業利用ビームラインを利用できるように運用方法を変更。

【フェーズ 3】2023A 期から導入を予定 (第 36 回 SPring-8 選定委員会 [2022/7/28] 審議事項)

- ・有償利用による 1 年課題の設定

既存の成果公開優先利用課題について、有効期間を 1 年とするカテゴリを設置。成果専有利用を希望する場合は、事後（利用後 60 日以内）に成果専有利用への変更可。競争的研究資金の有無は問わないこととする（競争的研究資金を有する場合も申請可）。計画的かつ安定的利用ニーズに対応する。

本シンポジウムでは、上記の利用制度改正について説明するとともに、検討の経緯、改正の趣旨、等も合わせて報告する。

共用 BL 再編の現状

高輝度光科学研究センター

坂田修身、為則雄祐、玉作賢治、登野健介、佐藤眞直

分光、回折・散乱、SAXS・イメージングの共用 BL について、2022 年 3 月 14 日の BLs アップグレード検討ワークショップで提案された再編計画に関する進捗を含め、現状や予定について報告する。

分光関連のビームラインでは、2023 年 1 月より BL46XU が、また同年 7 月からは BL39XU が、シャットダウンとなり、改修を行う計画である。BL46XU は B09XU と同様に HAXPES 専用ビームラインとして再整備され、BL09XU とほぼ同様の光学系が配備されるほか、全自動 HAXPES ならびに大気圧 HAXPES 装置が配備される。BL39XU では X 線発光分光器の専用ハッチが増設されるほか、集光光学系や高次光除去ミラーなどの光学系がアップデートされる。

回折・散乱関連では、BL13XU を皮切りに 2021 年度より再編を開始した。まず、BL13XU は in-situ/operando の X 線回折・散乱計測をターゲットに据え、輸送チャンネル機器の改良、多目的回折計の移設・整備し、ロボットアームを利用した回折汎用フレームと高度に自動化された高分解能粉末構造解析装置を新規に導入した。これに伴いビームラインの名称は「表面・界面構造解析」から「X 線回折・散乱 I」に変更された。2022 年度は BL04B2 にて 2 次元 CdTe 検出器を用いたハイスループット PDF 測定装置の開発、および BL08W の効率的な運用のために実験ハッチの改造を進めている。

X 線イメージングと SAXS 関連のビームラインでは、今後の利用状況を見据えた装置群の配置最適化を進める中で、先進的測定手法の高度化と汎用的手法の効率向上の取組みを行っている。イメージングビームラインでは、マルチモード・マルチスケール CT 計測の高度化を継続するとともに、高エネルギー X 線を利用したイメージング計測の強化を進めている。この取組みの一環として、BL28B2 の高エネルギー白色 X 線を利用した自動 CT 測定システムの整備を行っている。SAXS ビームラインについては、BL40XU を SAXS 専用の ID ビームラインとして改造する計画をはじめとして、サイト内の SAXS 装置群の再編を検討している。

産業利用に関しては、これまで産業利用ビームラインにおいて整備してきた、産業ユーザーのニーズ（事業に合わせた柔軟な利用スケジュール）に適した利用制度：年 6 回募集、産業利用準備課題（成果専有時期指定課題（時間単位利用）に改変）を他のビームラインにも展開した。これにより、産業利用ビームライン以外のビームラインの利用を希望する産業ユーザーの声に応えることでさらに産業利用を促進する環境の整備を進めた。この利用制度の改変の詳細については木村 JASRI 利用推進部長の報告をご参照ください。

引き続き、関連する SPRUC 研究会からのご意見・ご提言を頂きたい。口頭報告では概略の紹介となるため、詳細はポスター発表をご参照ください。

SACLA 共用開始 10 年のサマリー

高輝度光科学研究センター/理化学研究所

藪内俊毅

SACLA は SPring-8 キャンパス内に建設された X 線自由電子レーザー (XFEL) 施設であり、2022 年 3 月には 2012 年 3 月の共用開始から 10 年の節目を迎えた。当初は 1 つの硬 X 線 FEL ビームライン (BL3) を中心に利用実験が行われていたが、この 10 年の間に 2 つ目の硬 X 線 FEL ビームラインとして BL2 が増設され、また、BL1 は広帯域自発放射から軟 X 線 FEL ビームラインへのアップグレードがなされた。なお、BL3 と BL2 では、SACLA 加速器から発生する最大 60 Hz の電子ビームを高速な振り分け電磁石によってパルス毎に振り分けることで、各々 30 Hz での並行利用が可能である。一方、BL1 には旧 SCSS 試験加速器を移設・増強したものが専用加速器として用いられており、最大 60 Hz で FEL の利用が可能である。その結果、現在はこれら 3 つのビームラインで並行して利用実験が行われている。ビームラインの増設と並行利用の実現によって、当初 3000 時間程度であった年間の共用課題利用時間は近年 6000 時間を超える程度まで増加しており、利用機会の拡大という利用者コミュニティからの強い要望に応えてきた。また、従来の自己増幅自発放射 (SASE) 方式の発振手法に加えて、反射型セルフシード方式による単色性に優れた FEL の利用が BL3 で可能になるなど、XFEL の光源性能の向上も進めてきた。

SACLA では、建設期・立ち上げ期から共用後を見据えて、XFEL 利用推進研究課題及び利用装置提案課題が実施された。これらは、共用開始後に直ちに本格的な利用研究を推進するとともに、革新的な成果の創出と新規分野の開拓を目的としたもので、国内の幅広い研究グループとの協力のもと行われた。共用が開始された後には一部が XFEL 重点戦略研究課題に引き継がれた。利用者と施設が密接に連携しながら利用技術や装置の開発に取り組むこのような体制は、SACLA の利用研究の促進と利用環境の高度化に重要な役割を果たしてきた。このアプローチは、2018 年度から開始された「SACLA 基盤開発プログラム」(2021 年度より「SACLA/SPring-8 基盤開発プログラム」に拡張) にも引き継がれており、現在も利用者と施設が一体となって利用環境の高度化が迅速に進められている。実際、これらの連携を通じて、例えば軟 X 線の汎用型実験装置や硬 X 線の極限集光装置、ハイパワーレーザー利用実験基盤などが整備・開発されて共用されている。SPRUC の XFEL 研究会が開催している SACLA ユーザー会議は、利用者と施設、および、利用者間で SACLA の利用技術の最新情報が共有される場であると同時に、施設の高度化の方向性について参加者が活発に議論する場となっている。

SACLA の共用開始当初、世界をみても XFEL 施設は先行して利用運転を開始したアメリカ LCLS のみであり、長らくは 2 極体制であった。現在では、ドイツ European XFEL の他、韓国 PAL-XFEL、スイス SwissFEL が稼働を開始し、XFEL 施設を取り巻く世界的な情勢は大きく変化している。SACLA の更なる発展のためには、今後も継続して利用技術と実験装置の高度化に取り組みつつ、利用研究の新たな展開を推進していくことが強く求められる。

本講演では、SACLA の共用開始から現在に至るまでの 10 年間に行われた利用研究や装置の高度化を振り返るとともに、今後の利用研究や高度化の展開に期待されることを紹介する。SACLA のこれまでの発展は、利用者コミュニティと施設の緊密な連携により達成されてきた。引き続き、SPRUC の皆様からのご意見、ご提言をいただきたい。

東大がつむぐ学術と社会のリンケージ「イントロダクション」

東京大学物性研究所

原田慈久

産学連携研究には基礎物性研究から応用・実用研究まで様々な段階があり、分析ツールの「一つ」としていずれかの研究段階で SPring-8 が利用されるが、SPring-8 が真価を発揮するためには、産学双方の研究者・開発者が、全体を見渡した検討の中で、SPring-8 でしか得られない計測はなにかを見極める必要がある。しかし現実には、「SPring-8 ならでは」の成果を示すことは容易ではない。その根底には、文化を異にする産・学・施設の各視点で求めるものが違うという問題があり、それを乗り越えて産学連携研究を完遂するためには、それに関わる人々の知見はもちろんのこと、相互理解と忍耐が成否を決めると言っても過言ではない。

セッションⅢでは、シンポジウムのテーマである『学術と社会のリンケージ』を東大で実践する2人の先生方に、SPring-8 を利用した産学連携研究の実施例を示していただき、それを踏まえて、セッションⅣ パネルディスカッションにおいて、産・学・施設のそれぞれに求められることや相互理解の方法などを、関わる人々、これから関わろうとする人々が共有することで、産学連携研究の質をより高めて行くことを目指す。

SPring-8 を利用した高分子の強靱化研究

東京大学大学院新領域創成科学研究科

伊藤 耕三

高分子は金属、セラミックと並び3大材料と呼ばれており、特に軽量であることから他の材料を次々と置き換えてきた結果、現在では我々の身の回りで盛んに利用されている。高分子という概念が提唱されてからまだ100年しか経っていないことを考えると、驚べき進展と言わざるを得ない。一方で最近、増え続ける高分子のサーキュラーエコノミーが大きな課題となっている。高分子の強靱化は3Rの中のReduceとReuseの両方に大きな効果をもたらすことから、高分子のサーキュラーエコノミーの中でも最も重要な課題とされている。

演者は環動高分子と呼ばれる架橋点が自由に動く構造を発明し¹⁾、強靱なゲル、ゴム、プラスチックの開発に従事してきた。たとえば、伸長によって強靱化する自己補強ゲルを開発し、SPring-8を用いることでその分子的機構の解明に成功した。具体的には図1のように伸長時に結晶化が生じ、これが強靱性の原因となっている²⁾。ゲルで伸長誘起結晶化が発見されたのはこれが初めてである。伸長誘起結晶化は天然ゴムの強靱化機構として有名であり、合成ゴムが強靱性という点で天然ゴムを未だに上回ることができないこと、飛行機のタイヤに天然ゴムが未だに利用されているのは、これが主要な理由と言われている。

演者は2014年に始まった内閣府 革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) の中で、PM (プログラクマネージャー) として自動車用タフポリマーの開発に産学連携で取り組んできた。SPring-8は、本研究開発プロジェクトの共通基盤技術として様々なタフポリマーの研究開発に重要な役割を果たしてきた。たとえば、東レ株式会社が環動高分子を用いて開発した自動車構造材料タフポリマーでは、SPring-8を用いることで伸長時にポリアミドの結晶構造が壊れずに維持されることが明らかになった。高分子材料では10~100nm程度の高次構造が力学物性を支配する場合が多いことから、特に力学的刺激を与えながらリアルタイムで高次構造の変化を追跡できる放射光は、きわめて重要な測定手法となっている。

ImPACT 終了後に演者が現在参画している JST 未来社会創造事業/大規模プロジェクト型「Society5.0の実現をもたらす革新的接着技術の開発」(PMは田中敬二 九大教授)や、演者自身が現在PMを務めるNEDO ムーンショット型研究開発事業「非可食性バイオマスを原料とした海洋分解可能なマルチロック型バイオポリマーの研究開発」においても、SPring-8は数多くの成果をもたらしている。

参考文献

- 1) Y. Okumura and K. Ito, Adv. Mater., 13, 485 (2001).
- 2) C. Liu, N. Morimoto, L. Jiang, S. Kawahara, T. Noritomi, H. Yokoyama, K. Mayumi, K. Ito, Science, 372(6546), 1078(2021).

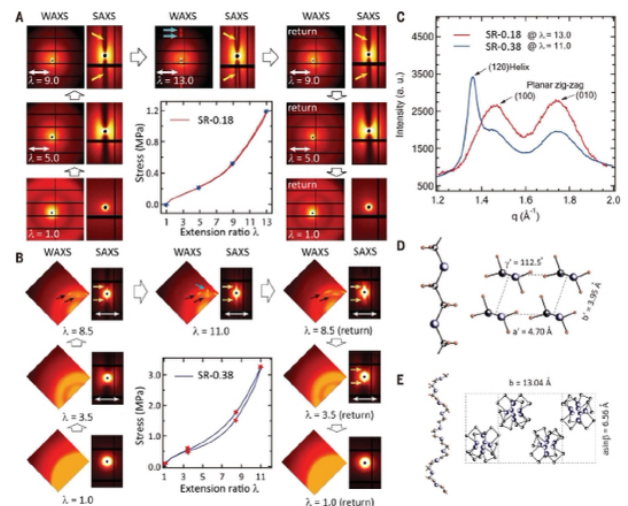


図1 環動ゲルの伸長誘起結晶化。

～高速 X 線撮像が拓く精密加工学～

東京大学大学院工学系研究科

三村秀和

切削、研削、研磨、放電加工、レーザー加工、鍍金、溶接、射出成型など、材料の切断、変形、接合を伴う様々なマテリアルプロセッシングは、ものづくりの基礎となる技術である。家電や PC などの最終製品については、他国にリードしているものが多いが、実は家電や PC などの最終製品の中を構成する部品の製造装置の多くについては日本がリードしている。

この中で、主として切削により金属材料を様々な形に加工を行う工作機械は「機械を作る機械」マザーマシンと呼ばれている。工作機械産業は我が国を代表する産業分野の一つであり生産台数、売り上げともに日本は高い世界シェアを維持し続けている。切削では、硬く鋭利な切削工具により金属の切断除去を行い、目的とする形状に合わせて工具の軌跡を制御する。切削は加工の中心であるため、理論的な研究が戦前から長年にわたって精力的に行われているが、加工条件、工具形状の最適化のほとんどは、加工前後の比較に基づく試行的な開発スタイルが主である。切削シミュレータの開発も行われているが、実際にそれがどの程度正しいかは検証できないため、高速ビデオカメラによる加工現象の観察が試みられている。可視光による高速撮像は様々な情報をもたらしているが、オイルや冷却液をかけながらの実際の現場環境下での測定は難しい。また、ドリル加工などにおける金属内部での加工の観察も不可能である。

X 線は物質を透過し内部を観察することができるが、SPring-8 で多く用いられている数 10 keV 以下の X 線では貫通できる金属の厚さは 1 mm 以下であるため、切削加工の観察に適応すること不可能である。一方で 100 keV レベルの高エネルギー X 線であれば、数 mm の厚さの金属も貫通する。そこで、工業で主となる材料である鉄などの金属加工の高速撮像が可能であると考えた。

本発表では、100 keV の高エネルギー X 線による、「金属」の加工現象の高速撮像について報告をしたい。現在、0.1 ms の時間分解能で、鉄、銅などの金属の切削加工をしている様子の高速撮像に成功し、興味深い加工現象の撮影に成功している。例えば、切削液中におけるドリル加工や、フライス加工、放電加工などの観察を行った。切削で問題となるバリの発生の様子についても観察している。

SPring-8 の高エネルギー X 線は強力であるため、現状でも高い空間分解能と高い時間分解能を実現しており、さらに強度が増加すると両分解能が向上でき、観察視野も大きくすることができる。また、金属を対象としているため X 線による材料損傷を気にする必要がない。まさに、SPring-8 の X 線の特徴を活かした研究であると言える。本研究成果は、上述するすべてのマテリアルプロセッシングの観察に応用できるため本研究成果の波及効果は大きい。ぜひ多くの方々に興味を持って頂ければ幸いである。

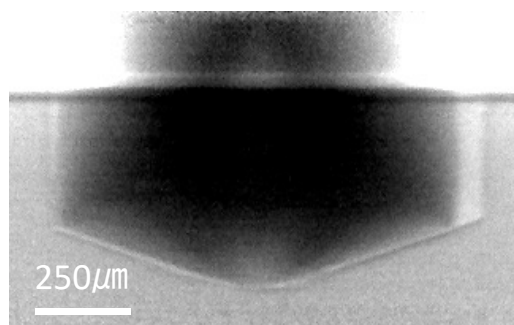


図 鉄の内部をドリル加工している様子 (ビーム進行方向の鉄の厚さ 5 mm)

～SACLA における高強度 XFEL sub-10 nm 集光～

大阪大学大学院工学研究科附属精密工学研究センター

山田 純平

日本の X 線自由電子レーザー(XFEL)である SPRing-8 Angstrom Compact Free-electron Laser (SACLA)では、独自の熱電子銃、C バンド加速器、ギャップ可変真空封止アンジュレータといった技術の導入により、超高ピーク輝度 XFEL パルスが恒常的に供給されている[1]。特に空間プロファイルとパルス幅(約 7 fs)[2]の安定性に優れており、これら特徴と日本がリードする X 線集光ミラー技術を組み合わせることで、高強度 1 μ m–100nm 集光 XFEL の利用環境が確立されている。さらに XFEL の 2 色発振[3]やセルフシーディング[4]といったユニークな XFEL モードを用いることで、これまでに可飽和吸収、2 光子吸収、原子準位 X 線レーザー発振などの新しい硬 X 線非線形光学現象[5]が探索されてきた。我々は、このような高強度 X 線科学分野での研究をさらに促進するために、スポットサイズ 10nm 以下、ピーク強度 10²² W/cm²を達成する硬 X 線集光光学系の開発を実施してきた。

SACLA における sub-10 nm 集光光学系には大きく 2 つの特性が求められる。1: ショット毎の変動を有する XFEL 光を安定して集光すること、2: 光源サイズ(約 60 μ m 半値幅)を十分小さく縮小結像する大倍率を有すること、である。1 は従来の X 線ナノ集光ミラー光学系である Kirkpatrick-Baez ミラーの場合に大きな問題となる。KB 光学系においてよく知られている軸外コマ収差に対する入射角調整の難易度もさることながら、sub-10nm 集光のために必要で大開口数の条件では焦点深度が著しく狭小化し、数十 nrad 程度のショット毎の角度振動であってもデフォーカスにより試料位置での集光径が変動してしまう。2 ではビームライン長さの制約の下、実用的な作動距離(ワーキングディスタンス)と大倍率の確保の両立が課題となる。120~200m 長さの SACLA ビームラインで十分な大倍率を実現するためには焦点距離 5~10mm が求められるが、これでは実試料の走査に十分なスペースは確保できない。

本研究では、真に実用に足る硬 X 線 FEL sub-10nm ビーム形成を目的とし、高い安定性およびシステムとしての利便性を有するナノ集光光学系として、Wolter III 型 advanced Kirkpatrick-Baez (KB)ミラー[6]の開発を行った。結像特性を有する光学系の採用により高い入射角誤差許容度を達成し、ショット毎の角度・光源位置・光源サイズの変動を有する XFEL パルスにおいても高安定な sub-10nm 集光を実現できる。また、1 次元方向には凸面と凹面の組み合わせである Wolter-III 型光学系にて構成され、光学系の主面をシフトすることで 6000 倍の大きな縮小倍率が達成可能となっている。

SACLA の BL3 EH4c に開発した sub-10nm 集光システムを導入し、光子エネルギー 9.1keV にて集光評価実験を実施した。真空チャンバ内に設置した advanced KB ミラーの集光波面誤差は $\lambda/15$ rms 以下と計測され、ほとんど回折限界の集光性能を確認した。また、同波面誤差は 10 時間ほぼ変化することがなく高い安定性を有することが示された。ショット毎の波面計測を実施したところ、デフォーカスと非点収差に関して、ショット毎の振動は PV2 μ m 以下と焦点深度内に抑えられていることが確認された。タイコグラフィ法により約 2 万ショットの平均プローブ径を計測し、波動伝搬計算により集光径を見積もったところ、水平・鉛直両方向にて 7nm の集光径が示された。

参考文献

- 1) T. Ishikawa *et al.*, *Nat. Photon.* **6**, (2012).
- 2) 例えば I. Inoue *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **127**, (2021). T. Osaka *et al.*, *Phys. Rev. Research* **4**, (2022).
- 3) T. Hara *et al.*, *Nat. Commun.* **4**, (2013).
- 4) I. Inoue, T. Osaka *et al.*, *Nat. Photon.* **13**, (2019).
- 5) H. Yoneda *et al.*, *Nat. Commun.* **5** (2014). K. Tamasaku *et al.* *Nat. Photon.* **8** (2014). H. Yoneda *et al.*, *Nature* **524** (2015).
- 6) J. Yamada *et al.*, *Appl. Opt.* **56** (2017). J. Yamada *et al.*, *Opt. Express* **3** (2019).

放射光 X 線マイクロ CT を用いた

デボン紀脊椎動物化石の骨格形態および組織構造の精密観察

東京大学大学院理学系研究科

平沢達矢

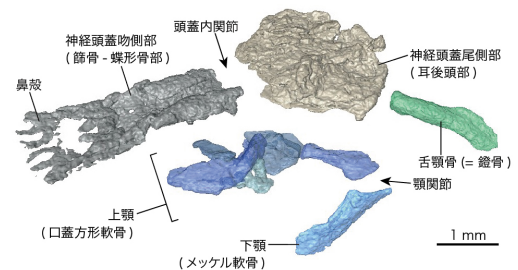
私たちヒトを含む脊椎動物は、骨格が化石として保存されるため、地質学的時間スケールにおける生物進化を理解していく上で重要な研究対象である。だが、その基本的な解剖学的構造が出揃ったデボン紀末までの初期進化過程（5.2～3.6 億年前）については未解明の部分が多い。

その中で、今回私たちの研究グループは、およそ 3.9 億年前（中期デボン紀）に生息していたパレオスポンディルスという化石種に注目した。全長約 5 cm ほどのこの動物は、非常に奇妙な形態の骨格を持つことが知られていて、その系統的位置は長年謎であった。従来の研究では、パレオスポンディルスの骨格を構成する骨格要素の形態、配置パターンを明瞭に観察することができず、他の脊椎動物との比較が困難であったからである。この問題に対して、私たちは母岩の中に埋まった頭骨の化石を SPring-8 におけるシンクロトロン放射光 X 線マイクロ CT（SRX μ CT）により撮影し、ほぼ完全に保存された頭骨の骨格形態と骨格内部組織の微細構造を観察することで、個々の骨格要素の形態や配置パターン、関節の構造を解明することに成功した¹⁾。

パレオスポンディルス化石の骨格組織は、硬骨魚類の肥大軟骨（軟骨が骨に置き換わる過程で生じる組織）に類似しており、現生の硬骨魚類の肥大軟骨の SRX μ CT 断層像との比較を通して、類骨（鉱物化していない骨組織）や細胞小腔（軟骨細胞が収まっていた腔所）、軟骨膜骨（軟骨周囲の鉱物化した骨組織）など骨格組織の微細な特徴を観察することができる。断層像でこれらの微細組織レベルまで観察し、それぞれの骨格要素の境界を明らかにすることで、各骨格要素の 3D モデルを作成することができた（図 1）。さらに、この 3D モデルにおける配置パターンから各骨格要素の同定もでき、他の脊椎動物との比較が初めて可能となった。

他の脊椎動物との比較から、四肢動物型類という系統との骨格形態の共通性がパレオスポンディルスに見られることが分かった。そこで化石四肢動物型類とその姉妹群に当たる化石ハイギョ類のデータとともに系統解析を行なったところ、パレオスポンディルスはヒレから四肢への移行段階に当たる動物と近縁であり、肘関節や指の骨格をヒレの中に持っていた動物とそれらを持たない動物の間の系統的位置に当たると推定された。パレオスポンディルス独自の奇妙な特徴はこれまで四肢動物型類の化石種には知られていなかったものであり、脊椎動物の初期進化過程の全貌解明に向けて大きく前進することができたと言える。

また、私たちは、化石から調べられる進化過程だけでなく、胚発生の中で体の形態が形成されていく過程についてもさまざまな脊椎動物を用いて研究を進めており、そこでも SRX μ CT を駆使した観察を展開している²⁾。

図 1. パレオスポンディルスの頭骨 3D モデル¹⁾。

©理化学研究所

参考文献

- 1) Hirasawa T, Hu Y, Uesugi K, Hoshino M, Manabe M, Kuratani S. 2022. Morphology of *Palaeospondylus* shows affinity to tetrapod ancestors. *Nature* 606: 109–112.
- 2) Hirasawa T, Cupello C, Brito PM, Yabumoto Y, Isogai S, Hoshino M, Uesugi K. 2021. Development of the pectoral lobed fin in the Australian lungfish *Neoceratodus forsteri*. *Frontiers in Ecology and Evolution* 9: 679633.

テンダーX線タイコグラフィを用いたリチウム硫黄電池の化学状態の可視化

¹住友ゴム工業(株), ²東北大多元研, ³東北大院工, ⁴理研放射光センター, ⁵東北大SRIS, ⁶東北大金研, ⁷JASRI
金子房恵¹²、阿部真樹³⁴⁵、石黒志²⁴⁵、久保達也¹、中条文哉¹、工藤統吾⁷⁴、松本崇博⁷、初井宇記⁴⁷、為則雄祐⁷、岸本浩通¹、高橋幸生²⁴⁵⁶

近年、従来のリチウムイオン電池と比較して、高い理論容量を有する2次電池としてリチウム硫黄電池が注目されている。さらに硫黄が資源的に豊富かつ、CoやNiといったレアメタルを使用しないことから、SDGsの観点からも期待が寄せられている。リチウム硫黄電池は従来のリチウムイオン電池に比べ充放電サイクルが劣ることが大きな課題であり、世界中で研究がなされている。サイクル劣化の主な要因は、充放電過程においてリチウムイオンと反応した正極活物質中の硫黄成分が、元の構造(化学状態)に戻らないことと推定され、このメカニズムを解明するうえで、顕微分光法による硫黄の化学状態解析が非常に重要となる。

硫黄の化学状態についての顕微マッピング方法として電子エネルギー損失分光法(TEM-EELS)や走査型透過X線顕微鏡(STXM)が挙げられる。TEM-EELSは高空間分解能だが電子線による試料ダメージが大きいのに対し、STXMは試料ダメージを抑えて硫黄の化学状態解析が可能である。しかし、フレネルゾーンプレート加工精度の限界により空間分解能が制限される。

一方、X線タイコグラフィは、コヒーレントX線を試料に照射した際に観察される回折強度パターンに位相回復計算を実行することで試料像を再構成するレンズレス顕微鏡法であるため、高空間分解能が期待される。更にX線スペクトロタイコグラフィ法を用いれば化学状態の顕微マッピングが可能となる。しかし、高輝度かつ高コヒーレンスなテンダーX線が利用できるビームラインが世界的にも希少であるため、これまで実証例がなかった。

そこで我々は、SPring-8 BL27SU B ブランチにおいて、SOPHIAS-L 検出器を用いてテンダーX線領域におけるスペクトロタイコグラフィ法の開発を行い¹⁾、リチウム硫黄電池の正極活物質として開発した含硫黄高分子粒子²⁾を用いて、図1に示す様に硫黄の化学状態可視化の実証に成功した。本講演ではこの開発及び実証実験の詳細を述べると共に、充放電した正極活物質中の化学状態変化の可視化³⁾についても紹介する。

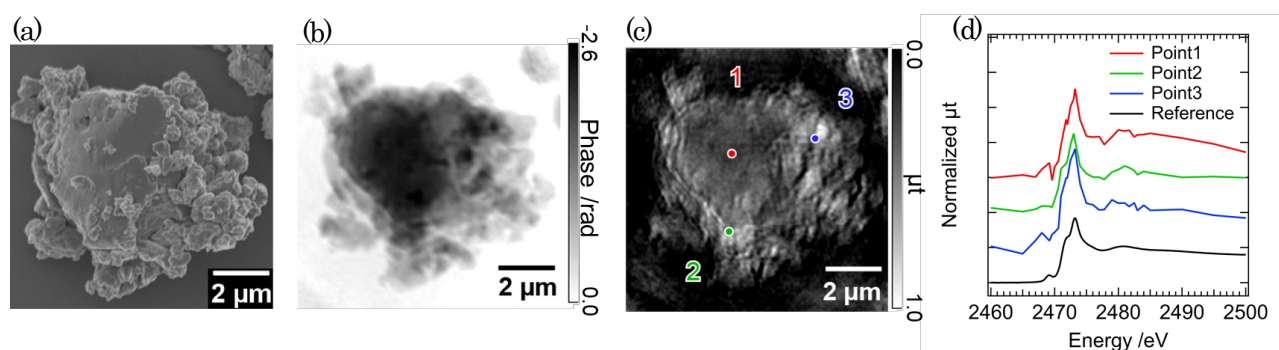


図1 (a)含硫黄高分子試料のSEM像。2500eVにおける(b)位相像及び(c)吸収像。

(d)吸収像で任意に選んだ3点における吸収スペクトル及びバレット測定した参照スペクトル

参考文献

- 1) M. Abe, F. Kaneko, N. Ishiguro, T. Kudo, T. Matsumoto, T. Hatsui, Y. Tamenori, H. Kishimoto, and Y. Takahashi, *J. Synchrotron Rad.* (2021). 28, 1610-1615.
- 2) Hochi, K.; Kubo, T.; Sakai, T.; Kojima, T. (Sumitomo Rubbers Industries Ltd. and National Institute of Advanced Industrial Science and Technology). Sulfur-Based Positive-Electro Active Material and Lithium-ion Secondary Battery. US-Patent 0293955 A1, 2016.
- 3) M. Abe, F. Kaneko, N. Ishiguro, T. Kubo, F. Chujo, Y. Tamenori, H. Kishimoto, and Y. Takahashi, *J. Phys. Chem. C* in press (DOI: 10.1021/acs.jpcc.2c02795).

～多元素ナノ合金触媒の開発と SPring-8 への期待～

京都大学 大学院理学研究科 化学専攻

北川 宏

世の中には、水と油の関係のように、どう工夫しても混ざらない組み合わせがある。例えば鉄と銅は原子レベルでは混じり合わない元素同士である。実は社会で使用されている合金の大部分は混じり合わない元素同士で構成されており、異なる金属元素間の相乗効果を最大限には引き出していない。安定な金属元素は60種程度あり、その組み合わせは2元素合金で1,800程度存在する。その内、任意の割合で原子レベルで混ぜられるのは3割以下であり、実は7割以上の合金の組み合わせを人類は未だ活用出来ていないことになる。

我々は、バルク状態では相分離する金属元素の組み合わせを、非平衡合成、ナノサイズ化、水素プロセス法などの手法により、原子レベルで固溶化させる研究を世界に先駆けて推進し、水と油の関係にある金属元素同士を原子レベルで混ぜ合わせ、新しい固溶ナノ合金を開発してきた。構成元素が原子レベルでランダムに一樣に混じりあう合金では、その組成比により連続的に電子状態、つまり、機能・物性を連続的に制御することが可能になることが特徴である。2014年には、天然ロジウムのNO_x還元触媒活性を凌ぐ人工擬ロジウム合金(Pd-Ru)の開発に成功した¹⁾。共同研究者のJASRI/SPring-8の

坂田修身らは、硬X線光電子分光やX線吸収分光、X線回折(PDF+RMC)などにより、固溶化にともなう電子状態変化や固溶状態について詳しく調べている²⁾。最近では、白金族原子を全て混ぜた6元素ナノ合金(Ru-Rh-Pd-Os-Ir-Pt)や貴金属原子を全て混ぜた8元素合金(Ru-Rh-Pd-Ag-Os-Ir-Pt-Au)の開発にも成功している³⁾。

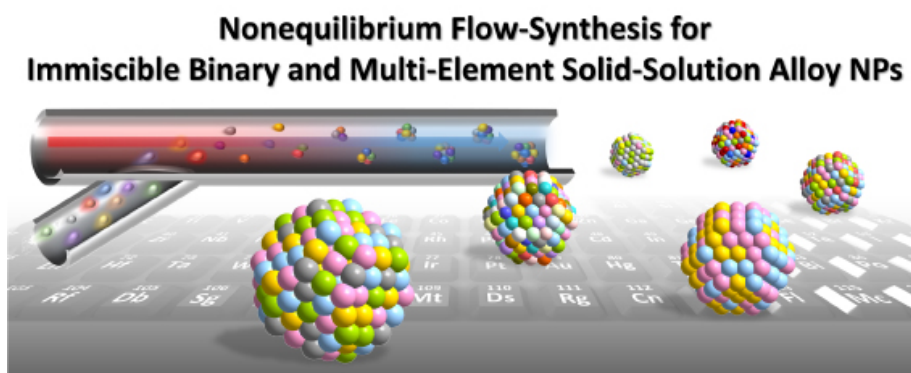


図 連続フロー型ソルボサーマル非平衡ナノ合金プロセス

近い将来、あらゆる元素を自在に混合して操る技術を構築できれば、目的の元素を他の元素の組み合わせで既存の元素を凌駕する新しい元素を生み出すことが可能となると考えられる。最近では、独自に開発した連続フロー型ソルボサーマル非平衡ナノ合金プロセス(上図)により、任意の元素を任意の割合で混ぜる多元素ナノ合金の開発が実現されようとしている。当該科学技術を基盤に、材料創製インフォマティクスとハイスループットスクリーニングにより、未踏探索空間における革新的物質の開発が可能になりつつある。政府が先導するGX戦略も本格化する中、我々がSPring-8と共に取り組む環境省の長期大型委託事業についても紹介する。

参考文献

- 1) K. Kusada *et al.*, J. Am. Chem. Soc., **136**, 1864-1871 (2014).
- 2) O. Sakata *et al.*, Applied Physics Letters, **105**, 153109 (2014); Scientific Reports, **6**, 31400 (2016); Scientific Reports, **7**, 14606 (2017); Scientific Reports, **7**, 41264 (2017); Applied Physics Letters, **113**, 071907 (2018); Nanoscale Advances, **1**, 546-553 (2019); Journal of Alloys and Compounds, **869**, 159268 (2021); ACS Applied Materials & Interfaces, **13**, 23502-23512 (2021); Journal of Physical Chemistry C, **125**, 20583-20591 (2021) など(坂田氏との共著論文は計45報)。
- 3) D. Wu *et al.*, J. Am. Chem. Soc., **142**, 13833-13838 (2020); D. Wu *et al.*, J. Am. Chem. Soc., **144**, 3365-3369 (2022).

SPring-8 データセンター構想

理化学研究所

初井宇記、城地保昌

海外の大型放射光施設では、データ基盤を提供することも施設の重要な役割となってきた。SPring-8 でも 2023 年夏の利用開始を目指してデータセンターの開発と整備を進めている。本講演では、我々が提案している「SPring-8 データセンター構想」とその進捗についてご報告させていただきたい。

「SPring-8 データセンター構想」を立案するに当たり、SPring-8 の今後のデータ量の動向について試算を行った。その結果、回折実験分野、およびイメージング分野でのデータが今後顕著に増大する可能性があることが明らかとなった。特に回折実験分野に CITIUS のような高速 X 線画像検出器[1]が常時稼働する検出器として導入された場合、画素数が少なくても創出データは 100 TB/hour、100 PB/year に到達する。このような大量の画像データは、科学分野でも非常にまれなレベルであり、データ関連技術・インフラの適切な開発と設計が必須となる。また、X 線画像検出器のデータ生成能力の進歩は、ネットワーク帯域の広帯域化トレンドよりも速いことに留意する必要がある。我々は理化学研究所・計算科学研究センターと共同で検討を進めた結果、検出器が生成したデータを検出器近傍 (edge) で圧縮等の前処理を行い、実験中に実験状況を確認するための演算を SPring-8 サイト内に新設するデータセンターで行い、最終的な解析を富岳等の HPCI スーパーコンピューター[2]で行う 3 階層のコンセプトを立案するに至った。図 1 に物理的な構成を示す。SACLA では全てのビームラインがデータセンターに直結しているのに対し、SPring-8 では、大量データを生成するビームラインにデータ圧縮専用の計算機群が設置される。SPring-8 サイトに新設されるデータセンターは、SINET6 の 100 Gbps ネットワークによって富岳等に接続され、シームレスな利活用が可能になる。これらの措置によりデータ基盤が整備されると、データ解析がボトルネックとなって成果創出が遅滞している利用分野について、解析律速の解消が実現できると考えている。

SPring-8 では試料あたりのデータが 10 MB 以下と小さいものの、1 日に 100 試料以上の高精度データが取得できる実験も多くある。このような事例ではデータ再利用が期待されている。実際、MDX や ARIM といった多くの事業が進められている。そこで「SPring-8 データセンター構想」ではデータ流通基盤 (SPring-8 Data Flow Service) を準備することとした。このサービスでは、一定期間データを保管し課題責任者と分担者、および課題責任者がアクセスを許可したユーザ(あるいは組織)に対してデータの閲覧、ダウンロードを可能とする機能を提供する。これにより、共同研究者間でのデータ利用が格段に容易になると考えられる。

SPring-8 のデータは、それ単独で利用されることよりも、試料準備時の実験データや実験室での計測データ、中性子実験データとともに利用されるケースがほとんどである。そこでデータマネジメントは、SPring-8 サイト外のサービスとの連携を行うこととしている。学術用としては、国立情報学研究所 (NII) が GakuNin RDM [3] というサービスを開始しているおり、NII と共同で連携機能の実装をおこなっている。

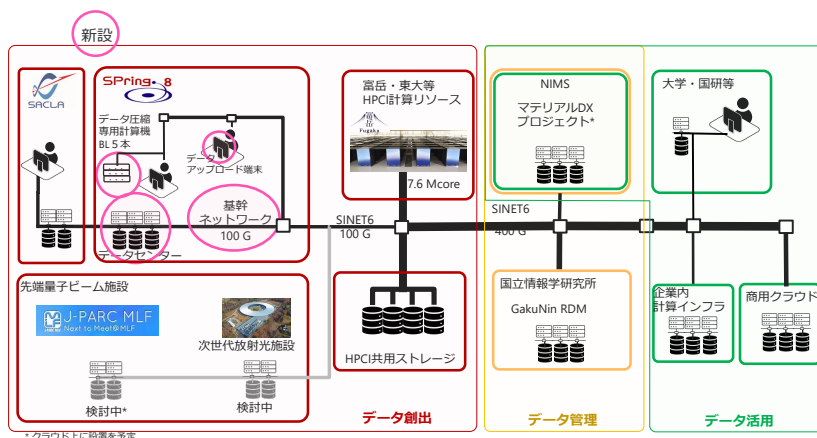


図 1. SPring-8 データセンター構想の物理的な構成。

(参考文献)

- 1 SPring-8 II Conceptual Design Report, <http://rsc.riken.jp/eng/pdf/SPring-8-II.pdf>
- 2 High Performance Computing Infrastructure (HPCI), <https://www.hpci-office.jp/>
- 3 GakuNin RDM (研究データ管理基盤) <https://rcos.nii.ac.jp/service/rdm/>

AlphaFold、襲来

復旦大学 生命科学学院

服部素之

時に、西暦 2021 年。兵庫県佐用郡佐用町光都。深層学習ベースのタンパク質立体構造予測プログラム AlphaFold2 (参考文献 1)が襲来した。構造生物学はもはやオワコンとの声も囁かれる中、世界最高水準の放射光施設 SPring-8 は、それに相対する。構造生物学者はその先に、何を見るのか。AlphaFold は構造生物学に終焉をもたらすものなのか。本発表では、AlphaFold による補完後の構造生物学のあり方を論じる。

参考文献

- 1) Highly accurate protein structure prediction with AlphaFold, Nature 2021 596(7873):583-589

大型研究施設における MI と DX

トヨタ自動車株式会社 プロジェクト領域 ADPT WAVEBASE プロジェクト

庄司 哲也

昨今、計算機パワーの急速な発展と AI 技術の発展・普及に伴い様々なデータからの情報抽出が簡便に行える状況になりつつある。AI 技術の活用はいわゆる機械学習を行うということに注目されがちであるが、より重要なことは良質なディスクリプタを如何に準備するか？という事である。特に物質・材料に係る計測データは量に変換することが難しい。さらに状況を難しくしているのは、物質・材料の特性、性能の発現には構造のマルチスケール性と多様なモダリティを持った情報が相互に係りあっていることである。材料の研究においてデータの扱いに関しては、これまで研究者の感覚によりなされてきたのが実態ではないかと思われる。そこで我々はマルチスケール性の統一的に記述と定量的な材料データの取り扱いについて検討を進めている。図 1 に示すように材料のマルチスケールな情報は q 空間表現（空間的な情報の波数空間への射影）を活用することで回折から小角領域の光の散乱へとシームレスに連結することができる。光の散乱は実空間構造のフーリエ変換により得られるパワースペクトルと同じ情報を持っていることから、極小角領域の散乱情報は SEM や光学顕微鏡の情報をパワースペクトルに変換することで補完することができ、原子レベルから mm 以下の情報まで一本の散乱曲線で記述することができるという事である。この事実踏まえると、各サイズ領域におけるスペクトルや画像のデータ群を適切に次元削減することで量にしばらないデータを定量的に扱う事ができる。この事実を踏まえて省 Nd 型の磁石のコアシェル構造の XRD データにどの程度の定量情報が含まれているかを次元削減を活用して検討したり。例として 35 種類の磁石母材とコアシェル化したサンプルの XRD データを取得し PCA (Principal Component Analysis) により次元削減を行った。XRD データに PCA を適用した場合、主成分の基底ベクトルをスペクトルとしてとらえ、散乱・回折の原理を使って解釈することができる (図 2)。得られた主成分の係数を記述子として磁石の性能に関して機械学習を実行すると極めて良い回帰モデルを得ることができる。この手法の汎用性を確認するためにカーボンや触媒、アルミなどの材料系においても同様の解析を行った。その結果、多様な構造を持つカーボンの構造を定量化したり触媒の熱劣化挙動の定量的な指標を得たり、アルミの加工硬化に係る転位密度に関連する情報を抽出したりと、これまで人間では難しかった構造表現を得ることができることを確認している。汎用的、かつ解釈性が高い手法であることから、こうした次元削減アルゴリズムを活用し可視化、機械学習ができる解析プラットフォーム “WAVEBASE”^③を AWS 上に構築した。WAVEBASE では解析すると同時にデータがストレージされる機能を併せ持つことから、研究開発により得られたデータを一元的に管理しつつ様々な解析・解釈を行うことができる DX システムとなっている。将来的には放射光施設のように数 1000 を超えるスペクトルデータが当たり前のように生み出される環境から SINET を介して接続することで実験をしながら解析を実行し露光時間の最適化^②、実験の推移のその場解析、オンサイトでの実験条件の意思決定などこれまでにできなかった実験の進め方が可能になると考えられる。

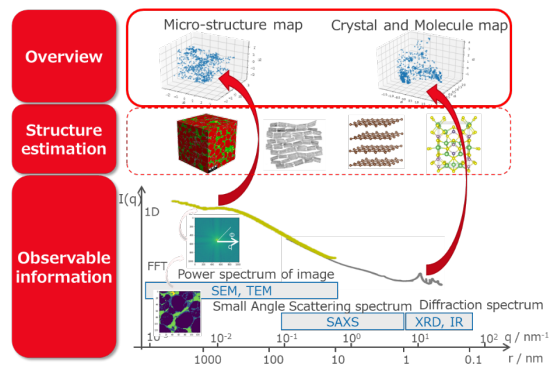


図1 マルチスケールな構造情報の q 空間表現と測定手法の関係

てきたのが実態ではないかと思われる。そこで我々はマルチスケール性の統一的に記述と定量的な材料データの取り扱いについて検討を進めている。図 1 に示すように材料のマルチスケールな情報は q 空間表現（空間的な情報の波数空間への射影）を活用することで回折から小角領域の光の散乱へとシームレスに連結することができる。光の散乱は実空間構造のフーリエ変換により得られるパワースペクトルと同じ情報を持っていることから、極小角領域の散乱情報は SEM や光学顕微鏡の情報をパワースペクトルに変換することで補完することができ、原子レベルから mm 以下の情報まで一本の散乱曲線で記述することができるという事である。この事実踏まえると、各サイズ領域におけるスペクトルや画像のデータ群を適切に次元削減することで量にしばらないデータを定量的に扱う事ができる。この事実を踏まえて省 Nd 型の磁石のコアシェル構造の XRD データにどの程度の定量情報が含まれているかを次元削減を活用して検討したり。例として 35 種類の磁石母材とコアシェル化したサンプルの XRD データを取得し PCA (Principal Component Analysis) により次元削減を行った。XRD データに PCA を適用した場合、主成分の基底ベクトルをスペクトルとしてとらえ、散乱・回折の原理を使って解釈することができる (図 2)。得られた主成分の係数を記述子として磁石の性能に関して機械学習を実行すると極めて良い回帰モデルを得ることができる。この手法の汎用性を確認するためにカーボンや触媒、アルミなどの材料系においても同様の解析を行った。その結果、多様な構造を持つカーボンの構造を定量化したり触媒の熱劣化挙動の定量的な指標を得たり、アルミの加工硬化に係る転位密度に関連する情報を抽出したりと、これまで人間では難しかった構造表現を得ることができることを確認している。汎用的、かつ解釈性が高い手法であることから、こうした次元削減アルゴリズムを活用し可視化、機械学習ができる解析プラットフォーム “WAVEBASE”^③を AWS 上に構築した。WAVEBASE では解析すると同時にデータがストレージされる機能を併せ持つことから、研究開発により得られたデータを一元的に管理しつつ様々な解析・解釈を行うことができる DX システムとなっている。将来的には放射光施設のように数 1000 を超えるスペクトルデータが当たり前のように生み出される環境から SINET を介して接続することで実験をしながら解析を実行し露光時間の最適化^②、実験の推移のその場解析、オンサイトでの実験条件の意思決定などこれまでにできなかった実験の進め方が可能になると考えられる。

- 1) A. Kato et al; Matere2 60(2021) 57-59
- 2) K. Saito et al; Scientific Reports, 9(2019), 1526.
- 3) URL : <https://www.toyota.co.jp/wavebase/>

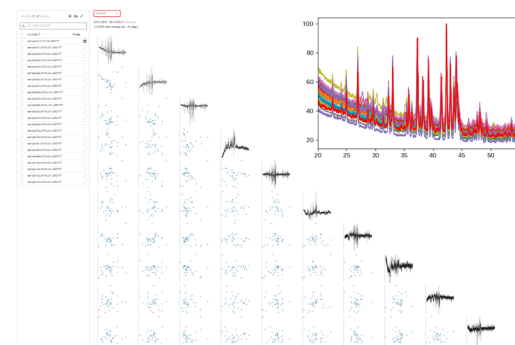


図2 省 Nd 磁石のコアシェル構造に係る XRD データの PCA 解析結果

ユニークな XFEL モードの開発と高強度 X 線科学への応用

理化学研究所 放射光科学研究センター

井上 伊知郎

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

我々は時間間隔を制御できるダブルパルス XFEL [1]や狭帯域 XFEL [2]、ピンクビームとモノクロビームからなる 2 色発振 XFEL [3]といったユニークな運転モードを考案し、SACLA において実現してきた。これらの XFEL モードは数多くのユーザー実験に提供され、非線形分光や量子光学効果の探索、特殊な X 線構造解析法などの特色ある実験を可能にしている [4]。

本発表では、これらの運転モードと SACLA の集光光学系とを組み合わせで行っている、高強度の XFEL と物質との相互作用の研究について紹介する [5-10]。高強度 XFEL が物質に照射されると、物質はフェムト秒の時間スケールでダイナミックに構造や電子状態を変化させる。状態変化のスピードやメカニズムを理解することは、XFEL を用いた構造解析法の信頼性や適用限界を考えるために重要である。発表の前半では、XFEL が引き起こす超高速な構造変化の過程をダブルパルス XFEL によって明らかにした研究事例について紹介し [5-8]、高強度 XFEL を用いた構造解析法の信頼性について議論する。

XFEL が引き起こす物質の状態変化は、X 線に対する物質の非線形な応答と捉えることもできる。発表の後半では、XFEL による物質の過渡的な状態変化を利用したセルフシード XFEL の光特性の制御 [9,10]について紹介するとともに、非線形な物質応答を利用した光制御や構造解析法の将来計画について議論したい。

参考文献

- 1) T. Hara *et al.*, *Nature Commun.* 4, 2919 (2013).
- 2) I. Inoue *et al.*, *Nature Photon.* 13, 319 (2019).
- 3) I. Inoue *et al.*, *J. Synchrotron Rad.* 27, 1720 (2020).
- 4) Y. Zhang *et al.*, *PNAS* 119, e2119616119 (2022), A. Ikeda *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 120, 142403 (2022), N. J. Hartley *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 126, 015703 (2021), Y. Shinohara, *Nature Commun.* 11, 6213 (2020), A. Gorel, *Nature Commun.* 8, 1170 (2017) など.
- 5) I. Inoue *et al.*, *PNAS* 113, 1492 (2016).
- 6) I. Inoue *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 126, 117403 (2021).
- 7) I. Inoue *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 128, 22303 (2022).
- 8) I. Inoue, V. Tkachenko, Y. Kubota *et al.*, in preparation.
- 9) I. Inoue *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 127, 163903 (2021).
- 10) I. Inoue, J. Yamada, K. Kapcia *et al.*, in preparation.

放射光 X 線で照らす時計タンパク質 KaiC の概日振動メカニズム

自然科学研究機構 分子科学研究所、総合研究大学院大学

古池 美彦

地球自転に伴う環境変化に対応するため、生命は体内の活動を時間的に制御する仕組みを発達させてきた。これは概日時計と呼ばれ、さまざまな生物に普遍的に存在し、計時機能をもつタンパク質（時計タンパク質）によって駆動されている。生物種によって時計タンパク質のアミノ酸配列や立体構造はそれぞれ異なるが、いずれの場合でも「どのように時計タンパク質は24時間周期の振動を生み出すのか」という共通の問題が私たちの目の前には立ちだかっている。

シアノバクテリアの概日時計は、時計タンパク質 KaiA, KaiB, KaiC によって構成される。これらをアデノシン三リン酸 (ATP) とともに混合するだけで、24時間周期のタンパク質離合集散サイクルを試験管内に再現できる。そのため、シアノバクテリア概日時計の研究は様々な分野・アプローチで進められてきた。

KaiC は自身の内部でリン酸化サイクルを進行させ、KaiA, KaiB の結合と解離を指揮している。KaiC 六量体は C1 と C2 という2つのリングが重なった構造をとる (図1右)。リン酸化サイクルは C2 の T432 のリン酸化によって開始し、S431 のリン酸化がつづくことによって KaiC の完全リン酸化状態に至る。T432, S431 が順に脱リン酸化することによって KaiC は脱リン酸化状態へと回帰し、次のサイクルが始まる (ST→SpT→pSpT→pST→ST, S は S431, T は T432, p はリン酸化した状態を示す)。KaiC のリン酸化サイクル反応がどのように進行し、その時刻情報がいかにして C1 へと伝播し、そして KaiA, KaiB の結合・解離がいかに制御されるのか、という概日時計システムの中核を成すメカニズムは長年謎に包まれていた。

本研究では KaiC のリン酸化サイクル全体をカバーする X 線結晶構造解析に取り組み、結晶試料を SPring-8 BL44XU にて測定・解析した。その結果、驚くべきことに4種の KaiC リン酸化状態は、S431 のリン酸化・脱リン酸化のみに依存するたった2種の構造に分類されることが分かった (図1赤色サイクル) (文献1)。実際に KaiC の S431 単一リン酸化変異体を用いても、溶液・細胞における概日振動がみられた。時計タンパク質の多くが複数箇所

のリン酸化部位をもつことから、概日時計には多重リン酸化反応が必須であるとされてきた。しかし本研究は、時計タンパク質内部の構造変化が残存する限り、単一のリン酸化で概日振動が生み出せることを示している。

さらにリン酸化サイクルが、水素結合の切り替えを介して C1 の構造変化と連動していること (図1青色サイクル)、C1 の構造変化が KaiA, KaiB との複合体形成と解離を決定していることを突き止めた (図1右上)。これにより活性

参考文献

- 1) Y. Furuike et al., *Science Advances*, eabm8990 (2022)
- 2) Y. Furuike et al., *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **119**, e2119627119 (2022)

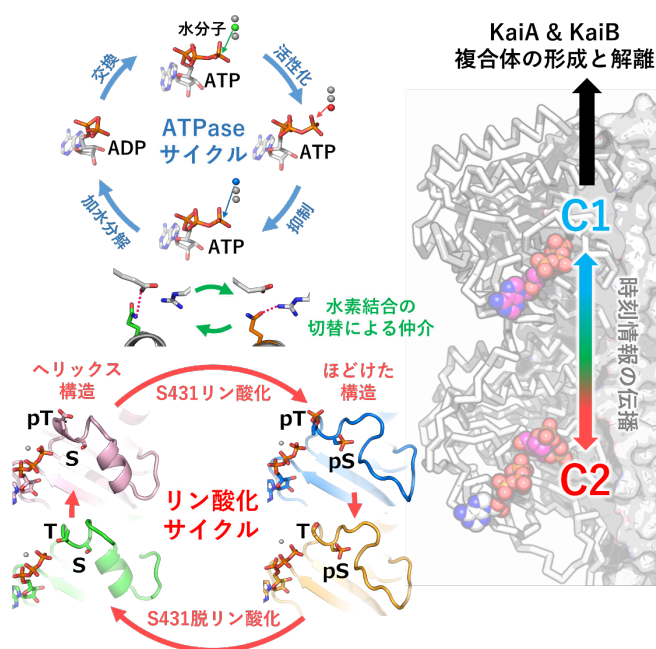


図1: 原子レベルで捉えた時計タンパク質KaiCの構造変化