

3-3-2 理研ビームライン

理研ではビームライン技術の研究開発と理研での放射光利用研究の推進を目標に、1997年のSPring-8供用開始当初から、構造生物学ビームライン I (BL45XU) 及び構造生物学ビームライン II (BL44B2) を運用している。それ以降、物理科学ビームライン I (BL29XU) の蓄積リング棟内部、1 km 実験ステーション (BL29XUL) 及び 27 m アンジュレータビームライン (BL19LXU)、構造ゲノムビームライン (BL26B1&B2) の建設を進め、2004 年秋から物理科学ビームライン III (BL17SU) の本格運用を開始している。2007 年より文部科学省ターゲットタンパク研究プログラムのタンパク質微小結晶構造解析ビームラインとして、BL32XU の建設を進め、2009 年 11 月末には 1 μm の集光ビームサイズを達成して 2010 年度からユーザー利用を開始した。2010 年度現在、構造生物学関連 4 本、物理科学関連 4 本の理研ビームラインで順調に利用実験を行ってきた。また、量子ナノダイナミクスビームラインとして、X 線非弾性散乱用ビームラインを計画中で、2012 年度の利用開始を目指して建設を進めている。

2010 年度からは基盤研究部に属するユニットとして、生命系放射光利用システム開発ユニット、物質系放射光利用システム開発ユニット、軟 X 線分光利用システム開発ユニットに加えて新たに X 線イメージング利用システム開発ユニットを立ち上げた。X 線イメージング利用システム開発ユニットは、BL29XU を担当して X 線イメージングに関連したビームライン技術開発や利用研究支援を行う。以下では、ユニット毎に運用中のビームライン (BL26B1&B2、BL32XU、BL45XU、BL19LXU、BL44B2、BL17SU、BL29XU) 及び建設中のビームライン (BL43LXU) について報告する。

(山本 雅貴)

1. 構造ゲノムビームライン I & II (BL26B1、BL26B2)

BL26B1、BL26B2 は構造ゲノム研究や基質複合体解析など膨大な数のタンパク質結晶からの、迅速かつ簡便な X 線回折強度測定を目的としている。そのためタンパク質結晶サンプルの自動マウント装置を開発して、回折強度チェック、連続データ収集を含めたビームラインの自動運転を行っている。両ビームラインとも SPring-8 標準の偏向電磁石ビームライン光学系を採用し、光学系・実験ステーションを含めたビームライン全体の制御には、ネットワークを介したクライアント/サーバ型の実験スケジュール管理ソフトウェア BSS (Beamline Scheduling Software) ^[1] を開発して、測定の自動化及びユーザーインターフェースの標準化

を図っている。これらのシステムを活用し BL26B2 では 2003 年よりサンプルチェンジャー SPACE (SPring-8 Precise Automatic Cryo-sample Exchanger) ^[2] を利用したビームライン自動運転を継続して行っている。また Web インターフェースを備えたデータベース D-Cha (Database for Crystallography with Home-lab. Arrangement) ^[3] を開発し、2005 年より SPring-8 外から宅配便で送付された凍結結晶試料を受け付ける、メールイン・データ測定を行っている。

2010 年度は BL26B1 の二次元 CCD 検出器を RIGAKU 製 SaturnA200 へ更新し、5 月よりユーザー利用へ供した。SaturnA200 は低縮小率の TFO (Tapered Fiber Optics) 及び 2 インチ CCD 素子 (2 \times 2 モザイク配置) を採用した高感度検出器で、標準試料を用いた性能評価では従来に比べて 5 分の 1 程度の短時間露光の実験で、同等の回折強度データが得られる事を確認した。また回折画像一枚あたりの取得に掛るデッドタイムも短縮され、データ収集の迅速化に貢献している。

さらに 2010B 期には、従来から JASRI 制御・情報部門及び構造生物グループと共同で開発を進めていたリモート実験システムを BL26B1 に導入し、理研ユーザーを対象とした試験利用を開始した。外部からの接続は、SPring-8 ビームラインの共通基盤として開発された、ビームラインインターロック及び利用課題データベースと連動するセキュリティシステムにより、安全性を確保している。BL26B1 では、ビームライン自動化システム及び D-Cha をリモート実験に応用し、新たにクライアント用ソフトウェアを開発することにより、サイト外ユーザーの遠隔操作による回折データ収集を実現した (図 1)。2011 年度より本格的な運用を開始し、共用ビームラインへの導入を目指してシステムの高度化開発を進める予定である。

また、2009 年度に引き続き偏向電磁石ビームライン光学系の高度化を目指したサジタル集光光学系の R&D を JASRI、原子力機構、理研共同で実施した。サジタル集光は二結晶分光器の第二結晶を光軸に直交する方向 (サジタル方向) に円筒状に湾曲させて集光を行う。サジタル結晶を湾曲させた時に光軸方向に発生するアンチクラスティックベンディング効果が集光精度を低下させる問題点が指摘されていた。今回、有限要素法及びレイトレースシミュレーションを用いてアンチクラスティックベンディング効果を低減できる Si(111) サジタル結晶を新たに設計・制作し、BL26B1 においてその性能評価実験を行った。得られた結果から、従来のサジタル結晶と比較してフラックスゲイン

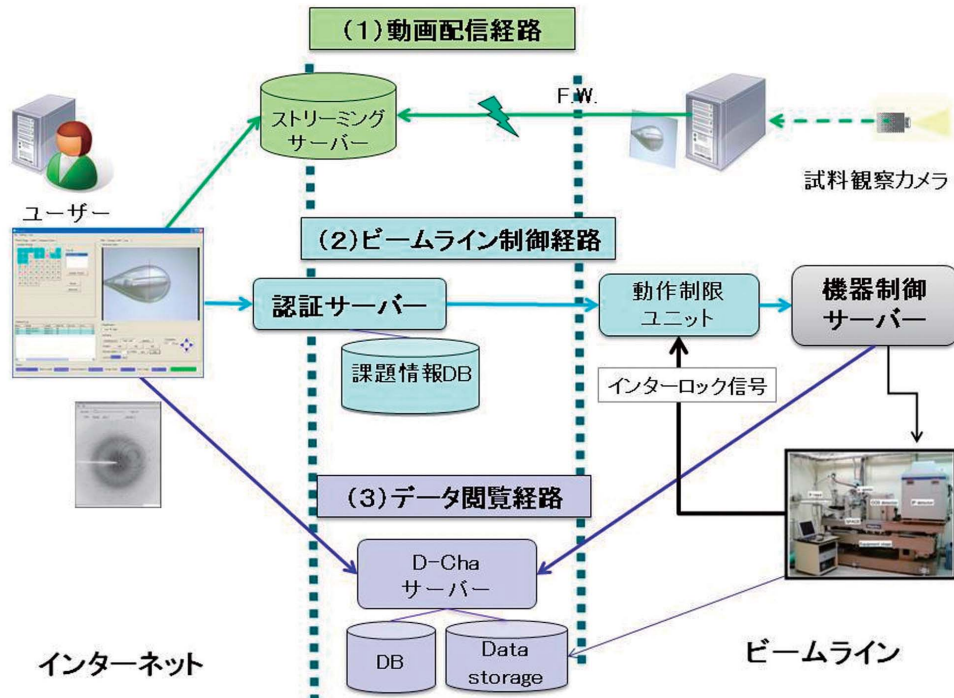


図1 SPring-8リモート実験システムの構成

の向上が見られ、シミュレーションから予測される通り新サジタル結晶によりアンチクラスティックベンディング効果が低減されていることが確認された。また、バンド機構及びサジタル結晶の冷却を強化することで、集光性能の安定化が実現できた。今後は、利用実験への適用を進めて行くとともに、同デザインのSi (311) 結晶による可変傾斜配置光学系によるサジタル集光の性能評価を継続して行く予定である。

参考文献

[1] G. Ueno, H. Kanda, T. Kumasaka and M. Yamamoto: J. Synchrotron Rad. **12** (2005) 380-384.
 [2] G. Ueno, R. Hirose, K. Ida, K. Kumasaka and M. Yamamoto: J. App. Cryst. **37** (2004) 867-873.
 [3] N. Okazaki, K. Hasegawa, G. Ueno, H. Murakami, T. Kumasaka and M. Yamamoto: J. Synchrotron Rad. **15** (2008) 288-291.

(上野 剛)

2. ターゲットタンパクビームライン (BL32XU)

近年の医学、生命科学では、構造解析がより困難である疾病や重要な生命現象に関わるタンパク質群に重点が置かれ、超高輝度マイクロビームを用いた難構造解析サンプルに対応したX線結晶構造解析が望まれている。そこで、文部科学省『ターゲットタンパク研究プログラム』の解析課題として、理研ターゲットタンパクビームラインBL32XUの研究開発を進めている。2010年度は、4月中旬に

タンパク質標準結晶を用いたビームライン最終性能評価を行い、5月より高輝度マイクロビームビームラインのユーザー利用運転を開始した。その後、ターゲットタンパク研究プログラムのポータルサイトを通じビームタイム配分及びユーザー実験の利用支援を行っている。

年度初期にユーザー実験の安定化、データの高精度化を目的として二結晶分光器内部の液体窒素流路配管の変更を行いマイクロビーム位置・強度安定化に精力的に取り組んだ。最終的に改善前に比べてミラー直前でのビーム位置変動量を1/3に抑えこむことに成功した。

ユーザー運転開始以降、微小タンパク質試料結晶の放射線損傷について、実験結果からもその損傷量を十分考慮した測定が必要であることが明らかとなった。我々は初期ユーザー利用実験を通してヘリカルデータ収集法による放射線損傷効果の低減が有効であるを見出し、その測定法をBL32XUに特化した回折実験戦略として採用した(図2)。ヘリカルデータ収集法では回折データ測定中に結晶のビーム露光位置を逐次変更する。この際、結晶のサイズに応じて、ビームサイズ、フラックス密度、露光位置変更の際のステップ距離などを最適化することにより、実験中単位結晶体積あたりの吸収線量が一定になるよう制御する。構築した測定方法により高精度なデータ収集が実現可能なことを評価実験及びユーザー利用実験において証明した。現在、さらに正確にヘリカルデータ収集時の損傷量を定量化する手法開発を進めており、その知見を後述の自動測定条件提案システムに反映する予定である。

BL32XUでは、高精度データ収集だけでなく微小結晶試

料の高速スクリーニングのためにX線CCD検出器と並行して利用できるCMOS検出器を導入した。CMOS検出器は1秒間に最大3枚の回折イメージを記録可能で、これは既設のX線CCD検出器の約10倍の速度である。特に視認が困難な微小結晶試料の測定では、ゴニオメータを並進させながら撮影した回折イメージから不可視結晶を探索するラスタースキャンによるセンタリングが必要である。ラスタースキャンにCMOS検出器を用いることで結晶センタリングの効率を5倍程度向上することに成功した。また、試料周辺をHeで充填するチャンバを用いた低バックグラウンドの高精度回折強度データ収集システム、結晶ハンドリングに困難を伴う10 μm以下の微小結晶を超高倍率顕微鏡により可視化し、レーザー光ピンセットによるハンドリング、凍結を行うシステムの開発を進め、ビームライン利用環境の整備を進めている。

参考文献

[4] K. Hirata, G. Ueno, A. Nisawa, Y. Kawano, T. Hikima, N. Shimizu, T. Kumasaka, H. Yumoto, T. Tanaka, S. Takahashi, K. Takeshita, H. Ohashi, S. Goto, H. Kitamura and M. Yamamoto: AIP Conf. Proc. **1234** (SRI2009) pp. 901-904.
(平田 邦生、河野 能顕)

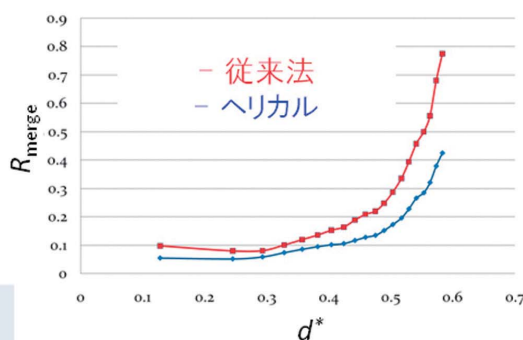
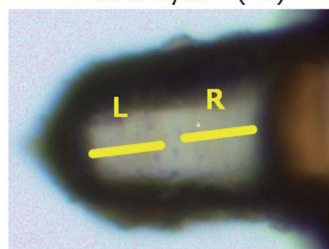
3. 構造生物学ビームライン (BL45XU)

BL45XUは、タンパク質の溶液中の構造やその動的変化、高分子材料の構造と機能・物性などのナノスケールの構造解析をX線小角散乱測定により進めている。ビームラインの構成は垂直偏光のタンデムアンジュレータを光源とし、合成ダイヤモンド結晶を分光素子としたビーム分岐・単色化機構を備え、実験ハッチA及びBにて同時に実験が可能な特徴を持つ。実験ハッチAはX線小角散乱実験装置が設置されている。実験ハッチBはタンパク質結晶回折測定からX線中広角測定用に改修し、運用試験を行っている。

実験ハッチAに設置されているX線小角散乱実験装置は、高輝度であると同時に単色性が高くかつ寄生散乱を抑えた光学系設計により高い小角散乱分解能を実現している。全ビームタイムの20%をJASRI共同利用課題に供出し、80%を理研として利用している。しかし、建設から10年が経過し、部分的に放射線損傷などによる機械的劣化が著しく、所期の性能を発揮することが困難になってきていたため、2006年度にはダイヤモンド二結晶分光器の改修、2007年度には結晶固定方法及び熱負荷の最適化、2008年度は分光器の定位置出射調整及び回折計などの更新を行ってきた。

2010年度は、小角散乱測定での低角分解能の向上、各種実験系セットアップの向上を目的として、Ge単結晶をブレードとして用いた無散乱スリットを実験ハッチAに導入した。無散乱スリットの導入により、従来、2スリット+

Thermolysine (Zn)



二つのデータの差

- スケール統計値は「ヘリカル」が良い
- 「ヘリカル」のみSADによる位相決定成功

Data collection	Conventional	Helical
Crystal length	60 μm (L)	60 μm (R)
Exp. Pts	5	120
Beam[μm]	1(H) x 10(V)	1(H) x 10 (V)
Frame	120	
Frame/pts	24	1
Exp [sec]	1	
Step[μm]	12	0.5
Dose/pts	48 MGy	~4 MGy

図2 ヘリカルデータ収集法による損傷具合の比較

(左上) 標準結晶試料サーモライシンを用いて全く同じ露光時間で (L) で照射点を5点、(R) で120点から回折データ収集を行った。
(右上) ヘリカルデータ収集法では損傷によるデータの劣化が低減されており位相決定に成功した。

1ピンホールで構成されていた実験ハッチ内光学系を、1スリット+1ピンホールへと簡略化し、セットアップ時間の短縮を実現した。また、スリット位置の最適化による低角分解能の向上を目指している。さらに、高速時分割測定及び希薄系からの微弱散乱高精度測定を目的としてフォトンカウンティング型二次元検出器PILATUS300K-Wを導入した。既設の大面积・高ダイナミックレンジのイメージングプレート検出器、高感度のイメージンテンシファイア+CCD検出器と排他利用可能でハッチ外からのリモート操作で検出器の交換が可能である。また、ユーザー利用環境整備として、外部接続ネットワークを1 Gbit/secへと増強し、データストレージの増強を図った。

運用面では、構造生物学や材料科学の利用研究の支援を進めるとともに、XFEL利用研究に向けた装置開発の評価実験を進めている。加えて、タンパク質機能・構造相関研究へのX線溶液散乱実験の利用促進及び新規ユーザー開拓を目指した利用支援を展開している。

(引間 孝明)

4. 物理科学ビームラインII (BL19LXU)

BL19LXUは、27 m真空封止アンジュレータを光源とするX線ビームラインである。2000年度にビーム導入、実験ハッチ1～3の立ち上げが完了、2001年度には実験ハッチ4の利用が開始された。以来、ビームラインでは、MOSTAB(分光器安定化システム)や縦集光ミラーの設置(2004年度)、シングルパルス利用のための高速回転シャッターの導入(2009年度)、及び振動対策など、整備・高度化が進められてきた。2010年度は、フロントエンドスリット位置調整に加え可動マスクの位置調整を行い、放射光ビームの中心軸が確実に実験ハッチに導入できるよう再調整を行った。また、光学ハッチ内のミラー系の直下流位置に4象限スリットを設置した(図3)。さらに、実験ハッチ4ではK-Bミラーによる100 nmサイズの集光を達成した(図4)。本ビームラインでは、実験ごとに装置を入れ替える頻度が高いため、迅速かつ正確な装置コンポーネントの設置方法の確立が求められている。そのため、各実験ハッチの上流上部に放射光ビームの位置と一致するようにレーザーマーカーを整備し、装置設置の際の粗調と真空パスの設置が迅速に行えるようになった。また、縦集光ミラーの調整により、実験ハッチ1の上流部のビームパイプの高さを調整する必要があるが、これを再現性よく設定できる機構を構築した。

各実験ステーションでは高輝度光源を有効利用した実験の他、次世代光源に向けた新しい測定法の開発が進められている。2007年度よりX線自由電子レーザー(XFEL)利用推進研究にも利用されることになり、2010年度もその一部の課題が実行された。以下に2010年度行われた主な研究項目を実験ステーションごとに示す。実験ハッチ1では、

X線パラメトリック変換過程の基礎実験、硬X線光電子分光実験、磁気散乱実験が行われた。実験ハッチ2では放射光パルスに時間同期させた超短パルスレーザーを用いてピコ秒時間分解X線回折実験が行われた。実験ハッチ3は天井高さ4.5 mのオープンハッチで大型機器の導入が可能となっており、X線励起下での走査型トンネル顕微鏡による表面物性研究、シングルパルスを使ったXFEL用検出器の性能評価、XFEL利用推進研究課題が進められた。また、実験ハッチ1～3を使って、コヒーレンスを利用したX線

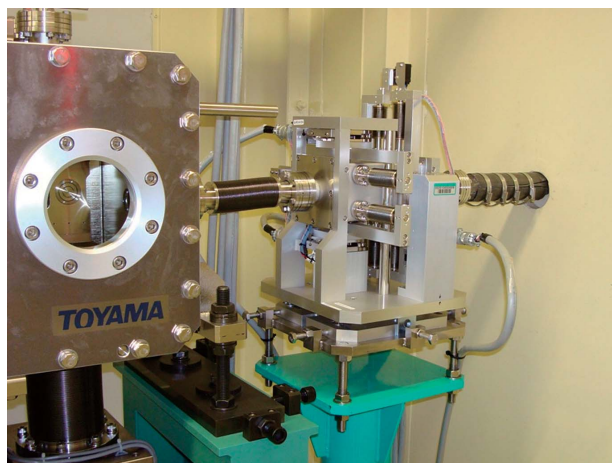


図3 光学ハッチに設置されたTCスリット

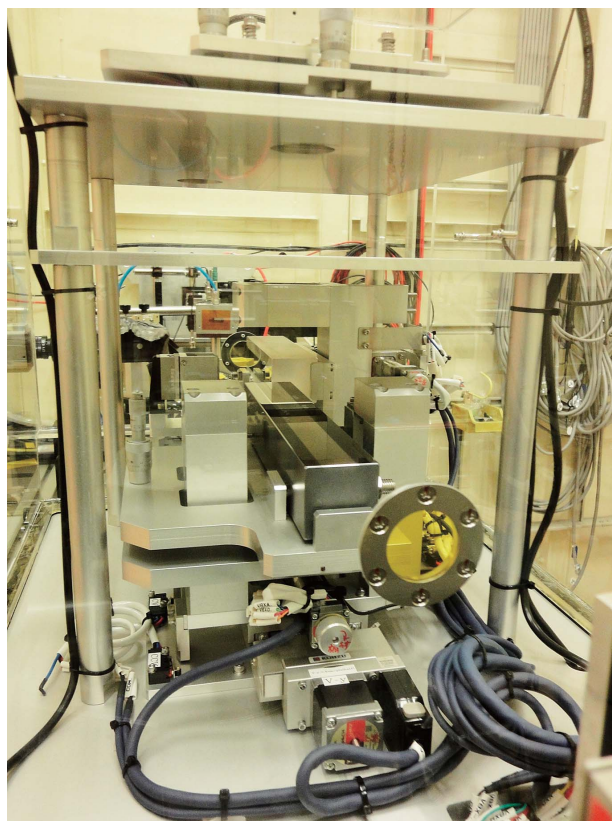


図4 実験ハッチ4に設置されたK-Bミラー

光子相関分光法によるソフト界面のダイナミクス研究が行われた。実験ハッチ4では達成した100 nmビームを用いたX線磁気散乱マッピングの予備実験が進められた。

(田中 義人、伊藤 基巳紀、玉作 賢治)

5. 物質科学ビームライン (BL44B2)

BL44B2では、サイエンスの方向性の一つとして、粉末回折法による電子レベルでの構造物性研究の対象を機能性有機物質まで拡張し、さらにその分子内及び分子間に働く静電相互作用を可視化することを目指している。設置されている粉末回折計は、粉末結晶構造解析ビームラインBL02B2で培った高精度計測技術を結集するとともに、対象とするサイエンスに応じて高度化可能な自由度を持たせていることが一つの特色となっている。具体的に計測の必要となるX線検出器について言えば、時間分解能と角度分解能の向上の観点から装置開発を進め、4種類の検出器が標準イメージングプレート (IP) カメラと併設可能となっている。その一つが、有機分子系の粉末解析で特に問題となる高角領域におけるブラッグ反射の重なり合いを改善するために開発した、カメラ半径573 mmの大型湾曲IPカメラ (図5) である。また、様々な*in-situ*回折実験に対応すべく、CCDアレイからCMOSフラットパネル、Si半導体検出器までを必要な時間分解能と位置分解能に応じて使い分けることが可能な設計となっている。物質科学研究で不

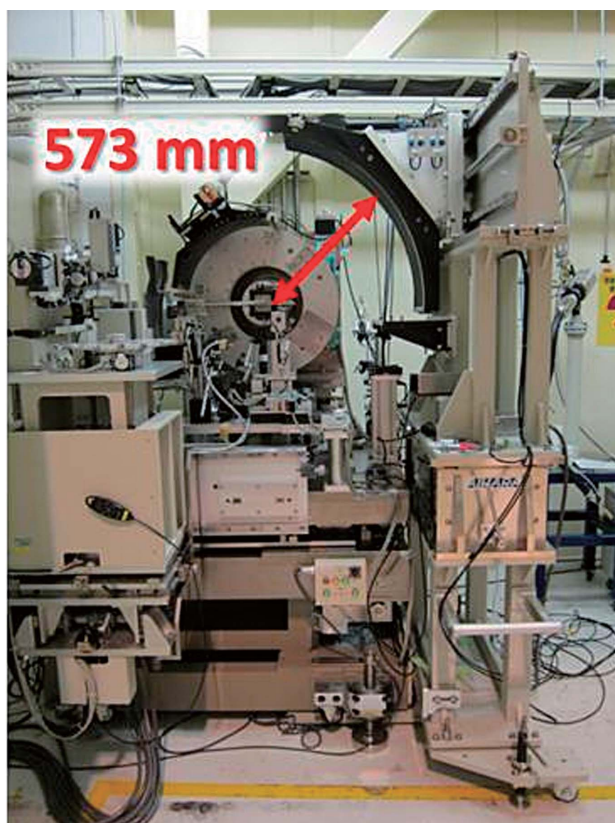


図5 カメラ半径573 mmの大型湾曲IPカメラ

可欠な温度変化に関しては、室温データの質に匹敵するデータが液体窒素温度以下でも得られるよう、元々単結晶用に作られたOpen-flow Heクライオシステムを導入し、ガラスキャピラリー用に最適化を行った。これを利用すれば、15 Kまで窓材からの散乱のない高品質なデータが得られるだけでなく、液体窒素温度以下でのみ起こる光誘起相転移現象や水素ガス吸着現象の観察が可能となる。さらに、吹き付け装置では到達不可能な極低温領域 (~3 K) をカバーするClose-flow He クライオを組み込んだ回折計を粉末回折計とドッキング可能のように設計を施し、超伝導物質の研究に寄与するだけでなく、薄膜試料の電場印加の実験も可能となっている。

以上の装置開発と並行して、電荷秩序型分子性結晶への応用研究も進められており、静電ポテンシャルの観点から電荷秩序構造が明らかにされつつある。また、2010年10月からは、BL44B2を活用したJST/CRESTプロジェクトが開始された。

(加藤 健一)

6. 物理科学ビームライン III (BL17SU)

BL17SUは、軟X線領域の各種分光・計測技術やビームライン要素技術の高度化を図るとともに、先端的な光科学研究、物質科学研究の推進を主な目的とし、理化学研究所専用の軟X線アンジュレータビームラインとして建設された。研究を多角的且つ効率的に推進するため、ビームラインは排他的利用形態となるブランチa、ブランチbに分岐した構成となっている。それぞれのブランチには恒温ブースによって温度調節された超高分解能の回折格子分光器が整備され、各ブランチに配備された実験ステーションにエネルギー的に安定した高輝度軟X線ビームを供給している。各種調整運転の後、2004年の秋から本格的な運用を開始しており、2005年の秋からは全ビームタイムの20%をJASRI共同利用課題にも供出している。

ブランチaでは、主要実験ステーションの一つである高分解能光電子分光ステーションに於いて先端物質科学の実験的研究が行われ、そしてもう一つの主要装置である高効率軟X線発光ステーションにおいては、各種溶液系試料の電子状態を観察するための軟X線発光分光実験が2009年度に引き続いて進められている。ユーザー持ち込みエリアでは、JASRI共同利用課題として、分光型光電子・低エネルギー電子顕微鏡 (SPELEEM) を利用した実験が行われており、現在は先端磁性材料を始めとするスピントロニクス分野から、グラフェンなどの電子物性分野、隕石などの惑星科学分野まで幅広い領域に亘って活発に研究が行われている。

ブランチbでは、出射スリット直下流にR&Dのために配備された時間分解型軟X線発光分光器とフェムト秒レーザーシステムからの超短パルスレーザーを用いた時間分解分



図6 持ち込み装置用の実験ステーションに集光するKB配置の後置集光鏡

光の予備的な実験が行われた。この他、常設の実験ステーションに於いては、軟X線回折実験装置による長周期秩序物質の電子状態の直接観測や、カイラリティを持つ鏡像異性体を標的とした円偏光軟X線と螺旋構造が影響しあう回折原理についての研究などが2009年度に引き続いて行われている。ブランチbの末端にある表面科学実験ステーションでは、表面科学に関する研究が高分解能光電子分光法や軟X線発光分光法などにより2009年度同様精力的に行われている。

また2010年度末には、ブランチbのフリースペースを持ち込み装置用のステーションとして整備するため、新たな後置集光鏡システム(図6)を導入した。試料位置でのスポットサイズが ~ 30 (H) $\times 5$ (V) μm^2 程度の集光ビームが利用可能になると期待される。調整は2011年度に行われる予定であるが、2011年度には持ち込み装置の切り換えが円滑に行えるような切り替え機構等も整備していく予定である。

a、b両ブランチとも、挿入光源のヘリカルアンジュレータモードを用いた左右円偏光、擬似水平・擬似垂直の各アンジュレータモードによる水平・垂直の各直線偏光の利用がされており、偏光特性を積極的に利用した先端的研究の展開が鋭意図られている。

(大浦 正樹)

7. 物理科学ビームライン I (BL29XU)

BL29XUは全長が約1 kmの長尺ビームラインである。アンジュレータを光源とする硬X線ビームラインで、タンデムに配置された3つの実験ハッチを有する。1998年に実験ハッチ1(光源から52 m)までの部分が完成し利用が開始された。その後2000年に長尺部分への拡張が行われ、長尺棟内の実験ハッチ3(光源から987 m)の運用が始まった。さらに2004年度末に実験ハッチ2(光源から98 m)が蓄積リング棟内最下流部に完成し、2005年から利用が始まった。

本ビームラインでは、可干渉性X線(コヒーレントX線)を用いた利用研究が主に行われている。2010年度も、高感度のX線回折顕微鏡、高精度K-Bミラーによる回折限界集光、K-Bミラーを用いた走査型蛍光X線顕微鏡、X線磁気散乱、バルク敏感な硬X線光電子分光などの多岐にわたる研究が進められた。また、X線自由電子レーザーに向けた光学素子や検出器の評価・開発も精力的に行われた。

2010年度は、実験ハッチ2の上流側に設置されている生物・医学利用用の走査型蛍光X線顕微鏡のユーザーフレンドリー化を進めるため、制御ソフトを根本的に見直した。また、蛍光X線スペクトルの測定データに混在していた鉄のバックグラウンドを低減させるため、X線光軸に近い顕微鏡部品の多くを樹脂製に変更した。また、各種実験装置のドリフト低減のため、実験ハッチ2に加え、実験ハッチ3でも、ヒーターによるハッチ全体の温度安定化システムを導入した。実験ハッチ2内には、断熱材でカバーされたブースを建設し、これによって、0.05 K以下(P-V)の究極の温度安定性を達成した。このような温度安定性の向上によって、集光プローブを用いたタイコグラフィ法(走査型回折顕微鏡)実験など、低ドリフトを厳しく要求する実験を非常に高い精度で実施できる事が確認された。

(香村 芳樹、玉作 賢治)

8. 量子ナノダイナミクスビームライン/Quantum NanoDynamics Beamline (BL43LXU)

BL43LXU, the RIKEN Quantum NanoDynamics Beamline is designed to measure the dynamics of materials on meV to eV energy scales over correlations lengths from about 0.05 to 5 nm^[5].

This is a RIKEN directed project, carried out with assistance from JASRI. First light is expected in October of 2011 with first experiments expected during 2012. As of July of 2011, the progress at the beamline is in reasonable accordance with these expectations: tests of the require electron-beam lattice have been successful; the first 1/3 of the ID has been installed in the storage ring tunnel; the front-end components are nearly completely installed; the Hutches are on the floor; the majority of the transport channel components have been installed, including 3 mirrors, and the monochromator; the safety and interlock system has been nearly completely installed; the liquid nitrogen cooling system is nearly complete, etc. The largest outstanding item of equipment is the spectrometer mechanics, which is expected to be installed in October of 2011.

Reference

- [5] A. Q. R. Baron, SPring-8 情報 **15** (2010), 14 or [HYPERLINK "http://user.spring8.or.jp/sp8info/?p=3138" http://user.spring8.or.jp/sp8info/?p=3138](http://user.spring8.or.jp/sp8info/?p=3138)

(Alfred Q.R. Baron,)