2-3-2 理研ビームライン

理化学研究所・放射光科学総合研究センターでは SPring-8のビームライン利用技術や利用システムの開発 高度化、SACLAの新規利用技術に向けた様々なR&Dに 対応し、また理研内の物質科学や生命科学での放射光利 用研究を推進するために、現在9本の理研ビームライン を設置している。稼働中の理研ビームラインには、膜タ ンパク質の微小結晶構造解析で成果を挙げているターゲ ットタンパクビームライン(BL32XU)や、コヒーレン トX線による走査型回折顕微法(タイコグラフィー法) で奥行き方向の情報を得る新しい手法を開発した物理科 学ビームラインI(BL29XU)など、それぞれ独自の特徴 を持った構造生物学関連4本、物理科学関連4本の理研 ビームラインが順調に技術開発と利用実験を進めている。

また、X線非弾性散乱研究用の量子ナノダイナミクス ビームライン (BL43LXU) は2016年度からユーザー利 用を開始した。

以下では、ビームライン基盤研究部のユニット毎 に運用中のビームライン (BL26B1&B2、BL32XU、 BL45XU、BL19LXU、BL44B2、BL17SU、BL29XU) 及び立上げ調整中のビームライン (BL43LXU)の現状に ついて報告する。

(山本 雅貴)

 構造ゲノムビームライン I & II (BL26B1、BL26B2) BL26B1、BL26B2は、広範なエネルギー領域で安定し たX線ビームが利用可能な偏向電磁石光源および標準光 学系のビームライン構成と、大量の結晶試料のスクリー ニングおよび回折データ収集の効率化に特化した実験ス テーションからなる、タンパク質結晶解析データ収集用 ビームラインである。利用者は自動サンプルチェンジャ - SPACE^[1]、および制御インターフェースBSS^[2]により、 自動測定による効率的な実験を行うことができる。また 遠隔地からWebデータベースD-Cha^[3]を介して実施す るメールイン・データ収集や、研究室から結晶センタリ ング等の操作が可能な遠隔実験システム^[4]の利用によ り、SPring-8を訪れることなく回折データセットの取得 を行うことができる。SPACEはUni-Puckの場合最大128 個の凍結結晶を設置可能で、ロボットアームのアタッチ メントを交換する事により、従来より実施している専用 ネジ式ピンを利用した、オペレータの介助による自動デ ータ収集への対応も可能である(最大試料数306個)。

現在、さらなる利用支援拡大を目指して結晶試料凍結 条件の探索や常温回折データ収集に向けたオンライン試 料調湿装置^[5]や、紫外吸収、ラマン分光測定への対応も 可能なオンライン分光装置等、新規実験手法の導入を進 めるとともに、試料スクリーニングやデータ収集のさら なる効率化を目指している。2016年度には両ビームライ ンの二次元検出器の更新を行った。BL26B1では、EIGER X 4M (DECTRIS)を導入し、自動切り替えステージに より大型IP検出器R-AXIS V (RIGAKU)または高感度 CCD検出器MX225HE (RAYONIX)との併用が可能で ある。またBL26B2にはMX225HS (RAYONIX)を導入 した (図1)。いずれも外部トリガー信号による高フレー ムレートの撮像が可能であり、fine-slicing法によるデー



図1 高速二次元検出器 左) EIGER X 4M (BL26B1)、右) MX225HS (BL26B2)



図2 EIGER検出器を利用したFine-slicing法によるデータ精度の向上。Thaumatin結晶の構造解析(a. PHE173付近の電子密度図、 b. fine-slicing解析データ統計値)において、角度当りの露光時間を一定にして異なる振動角(1度と0.1度)で取得したデータの 統計値CC1/2およびR-mergeの比較(c、d)。いずれもFine-slice法で精度の向上が見られた(図中青プロット)。

タ精度の向上(図2)や、結晶探索のためのラスタースキ ャンやデータ収集の高速化に貢献している。

参考文献

- [1] H. Murakami, et al.: J. Appl. Cryst. **45** (2012) 234-238.
- [2] G. Ueno, et al.: J. Struct. Funct. Genomics. 7 (2006) 15-22.
- [3] N. Okazaki, et al.: J. Synchrotron Rad. **15** (2008) 288-291.
- [4] G. Ueno, *et al.*: AIP Conference Proceedings **1741**(2016) 050021.
- [5] S. Baba, et al.: Acta Cryst. D 69, (2013)1839-1849.

(上野 剛)

2. ターゲットタンパクビームライン (BL32XU)

BL32XUは2010年度より高フラックス微小ビームを 用いたタンパク質の結晶構造解析に特化したビームライ ンとして運用している。このビームラインで利用できる ビームサイズは1ミクロン~10ミクロンであり、10ミ クロン以下の小さなタンパク質結晶からも高いシグナル-ノイズ比で回折データ収集を行うことができる。

2016年度も昨年度から継続して脂質メソフェーズ法を 用いた膜タンパク質結晶からのデータ収集を多く行なっ た^[6,7,8]。2015年から開発を進めて行きた自動データ収 集システムZOOの運用方法について検討を進めるととも に、脂質メソフェーズ法を用いた膜タンパク質結晶から 効率よくデータ収集を行うことを目指し新規結晶マウン ト方法(結晶化からX線を照射するまでの工程)を検討 した。

2016年当初から高速読出しが可能な光子計数型検出 器であるDectris社製EIGER X 9Mを用いた測定系の立 ち上げを行った。BL32XUの測定では、主に連続した回 折像取得にX線シャッターを利用しないいわゆるシャッ ターレス測定を行っていたが、この手法ではゴニオメー タの並進軸や回転軸、それと合わせて検出器の読出しを 高い時間分解能での同期が必要である。そこでSPring-8 で開発されたモジュールBlancを用いて駆動軸とEIGER の高速同期制御を可能にした。またEIGERは238 Hzで の高速読み出しが行えるため、その性能評価も行った。



20 µm大Lysozyme LCP結晶を延伸して光学顕微鏡で確認

図3 窒化シリコン膜(二枚)を用いた大量結晶マウント法の概略図

BL32XUで利用可能な高フラックスビームを用いて標準 タンパク質の凍結結晶から1秒未満で構造解析可能な完 全なデータ収集が可能であること、またそのデータ精度 にも問題がないことを確認した。

脂質メソフェーズ法で結晶化した膜タンパク質結晶に はX線に照射するまでに多くの技術的障壁があり、不慣 れな実験者には大きなストレスであるとともに回折実験 をより困難なものとしている。脂質メソフェーズ法では 多くの場合、ガラスサンドイッチと呼ばれるプレートを 用いて結晶化を行う。文字通り二枚のガラスの間に穴の 開いた両面のガラス接着も兼ねたスペーサを挟んで結晶 化条件を保持する特殊なプレートである。スペーサの穴 のあいた部分で結晶化するため、顕微鏡で結晶を確認し たのちその部分のガラスに取り除いて結晶を掬い取る。 この工程は非常に難易度が高い手技が要求され、不慣れ な実験者の場合、回折実験に利用する凍結結晶が「結晶 化した時点の回折能を示している」のか「掬い取る時に 損壊した状態」なのか判断することが難しい場合が多い。 これはガラスサンドイッチから結晶をループで掬い取り 凍結するまでの時間が短く制限されていることも大きな 要因である。結晶化条件を保持しているガラスプレート を割ってから15秒程度で掬い取らなければ種々の結晶環 境が変化し、結晶の品質が著しく損なわれることが多い。 実験者の熟練度によっては結晶化で得られた結晶の20~ 30%程度の数しか回折実験に用いることができない(凍 結以前にやむなく捨てられてしまう)。この大きな問題を 解決するために今年度、ワイヤ法(理研・南後らによる: unpublished)による結晶化方法と組み合わせた新規結

晶マウント手法の開発を進めた(図3)。ワイヤ法では従 来の結晶化プレートではなくワイヤに刺した脂質および タンパク質の混合物をエッペンドルフ中のリザーバ溶液 に浸すことで結晶化を行う。メリットとしては結晶がで きた後にワイヤをリザーバから引き上げれば容易に結晶 を取り出すことができることである。結晶を取り出した 後に粘度が高い脂質に含まれている結晶を2 mm角の窒 化シリコン薄膜(1 μm厚)にのせて、もう一枚の薄膜で 上から押さえ込むようにマウントし凍結することを試み た。これによって脂質と結晶を引き伸ばす(延伸する) ことが可能で、また結晶の数密度(単位あたりの結晶の数) を制御できることも確認した。データ収集時は窒化シリ コン窓(2mm角)に対して垂直にX線を入射するため、 結晶の数密度制御により光軸方向の複数結晶にX線が当 たってしまい有用な回折像が得られない問題を解決でき る。図3のように二枚の膜に挟んで延伸したLysozyme の微小結晶をそのまま凍結し、NC加工機で製作した窒 化シリコン膜ホルダーと組み合わせて回折実験を行った。 その結果、1ホルダー上の300以上の結晶から連続デー タ収集を行うことが可能で、各結晶から5°分ずつ集めた データをマージすることで構造解析に有用な構造因子を 得ることに成功した。新規マウント法では、従来法の数 十倍の個数の結晶を1ホルダーに保持し、回折実験に用 いることができるため、試料交換の回数を大幅に減らし、 各結晶をより近い条件で凍結することが可能である。

参考文献

[6] X.Jiang, et al.: Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.,

133(44),(2016) 12420-12425.

- [7] W.Shihoya, et al.: Nature., 537(7620), (2016) 363-368.
- [8] H.Tsuchiya, et al.: Nature., 534(7607),(2016)417-420.

(平田 邦生、河野 能顕、山下 恵太郎)

3. 構造生物学ビームライン I (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(SAXS: Small-Angle X-ray Scattering)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、SAXSステーション及びSWAXS(Small and Wide- Angle X-ray Scattering)ステーションにて 同時に実験が可能な特徴を持つ。SAXSステーションの 全ビームタイムの20%をJASRI共同利用課題に供出し、 10%を創薬等支援技術基盤プラットフォーム事業にて解 析支援、残りの70%を理研内プロジェクト研究とビーム ライン高度化および調整に利用している。

2016年度は、長時間測定時の入射X線のドリフト を低減するために、モノクロメーターの水冷式冷却 系にアキュムレーターを設置し、モノクロメーター の低振動化を進めた。また、サンプルから2次元検 出器 (PILATUS3X 2M) の間を真空に保つ真空パイ プの大口径化を行い、2次元検出器前面の真空窓を Φ 300 mm からΦ 350 mm に拡大した(図4)。併 せて、強度モニタ内蔵のダイレクトビームストッ パーをΦ4 mm からΦ3 mm に小径化することによ り、より広い q レンジの測定が可能となった。波長 1 Å、カメラ長2.0 mのSAXS測定では測定可能 q レンジ が0.008 Å⁻¹ < q < 0.44 Å⁻¹ から0.005 Å⁻¹ < q < 0.50 Å⁻¹ へ、WAXS/D測定では最大測定分解能が2.8 Åから1.8 Å へと拡大した。真空パイプの大口径化に併せて、真空異 常時には試料前X線シャッターと検出器前保護カバーを 自動閉とするインターロックを設け、X線誤照射による サンプルの損失と機器保護の対策を行った。さらに、精 密測定向上のために、実験ステーションのエアコン空調 ロにソックダクトを設置し、実験ステーション内の温度 安定化を進めた。

測定制御・解析系では長時間連続間欠測定中の試料の 放射線損傷を評価するためにシャッター、検出器の制御 システム "DataCollector"(図5)の改良を行った。従来 は1回の露光当たりに1枚の散乱画像を取得していたが、 1 露光当たり複数枚のフレームに散乱回折像を分割取得 し、画像データ処理プログラム "DataProcess"にて放射 線損傷評価とともに自動的にマージする機能を組み込ん だ。散乱画像の取得枚数は大幅に増加したが、実験デー タのデータベース化と画像データの自動処理によって、 ビームラインでのデータ解析の迅速化・簡便化を実現し ている。

サンプルでの局所構造解析の迅速化のためにX線同軸 試料観察カメラの高解像度化を行ったほか、オンライン



図4 大口径真空パイプ



図5 測定制御・自動分析プログラム



図6 オンラインFPLCシステム(左)とオンタイム解析システム(右)

FPLCシステム(図6)の改良も進めた。真空封入型フロ ーセルの改良を行いセルの耐久性を向上させるとともに、 6種類までのバッファー置換を自動化する交換バルブの 設置、セルの自動洗浄と乾燥機能を追加し連続測定時の 省力化と測定精度の向上を進めた。ハードウェアの改良 に並行して、多種タンパク試料に対するゲルろ過カラム の最適化を精査し、20~500 μLのタンパク質試料量で 効率的な散乱測定プロトコルの構築を進めた。

記のように新規散乱回折測定法への展開を進めつつ、 運用面では構造生物学や物質科学分野など広い研究領域 での利用支援を展開している^[9-11]。

参考文献

- [9] K. Maeshima, et al.: EMBO Journal 35(10), (2016) 1115-1132.
- [10] AD. Nalay, et al.: Scientific Reports 6, (2016) 27573.
- [11] M. Oide, et al.: J. Biological Chemistry 291(38)
 (2016) 199750-19984.

(引間 孝明)

4. 物理科学ビームラインII (BL19LXU)

BL19LXUは、27 m長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年度に実験ハッチ 1~3の供用を開始し、2001年度に実験ハッチ4が拡張 された。これまで光学ハッチでは、MOSTAB(分光器安 定化システム)や縦集光ミラーの設置(2004年度)とそ の直下流位置での4象限スリット設置(2010年度)などの 高度化を進めてきた。一方で2012年度頃には分光器全体 に老朽化によると思われる機械的、熱的な不安定要素が 目立つようになってきた。このため2013年度末に分光器 のオーバーホールを行いチャンバーの内部のほぼ全ての 部品を新規格のものに更新した。その後も液体窒素配管 の更新(2015年度)など継続的に改良が続けられ、高安定 なビームが供給できている。実験ハッチの高度化・維持 管理に関しては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)、KBミラーによる100 nm 集光(実験ハッチ4、2010年度)、実験ハッチ3へのKB ミラーの常設化(2014年度)と横集光ミラーの変更(視射 角1.5 mrad→3 mrad、2015年度)、ダイヤモンド薄膜 を使ったインラインビームモニタの設置(実験ハッチ2、 2015年度)、ハッチ内照明をLEDにして低発熱・低消費 電力化(2015年度)が行われてきた。

2016年度初頭に、フェムト秒パルスレーザーシステム のオシレータ用励起レーザーが故障したため、オシレー タ以外のレーザーシステムを更新した。特に、再生増幅 器の繰り返し周波数をこれまでの1 kHzから10 kHzに アップグレードした。これによってポンププローブ実験 のスループットが10倍に増強され、統計精度の高いデー タ取得が可能となった。また、SPring-8のH-modeに合 わせて、9.49 kHzのX線チョッパーを新たに開発した。

2014年度より開発を進めてきたダイヤモンド薄膜を使 ったインラインビームモニタは、実験ハッチでの使用で 十分な実績が蓄積された。そこで、2016年度は光学ハッ チ内に設置されていたスクリーンモニタ(SCM5)を、新 たに製作したダイヤモンド薄膜のビームモニタで置き換 えた。このビームモニタは関連機器の変更なく置き換え られるように、従来のスクリーンモニタと寸法・制御と もに完全互換としてある。新SCM5の導入により、ビー ムイメージだけでなく、その強度もモニタできるように なった。SCM5は下流シャッタ(DSS)の直上流にあるため、 実験ハッチで作業中でもビーム調整可能となり、より効 率的なビームライン調整が可能となった。

ハッチなどの付帯設備に関しては、老朽化したハッチ 自動扉の改修と精密空調装置の更新を行った。自動扉は 圧縮空気駆動からモーター駆動に変更した。実験ハッチ



図7 BL19LXUの実験ハッチ2に設置された10 kHzの高繰り返 しフェムト秒レーザーシステム。

1と3の精密空調装置は、ハッチ外に設置するタイプとした。これによって実験スペースが拡大され、また、空調装置による振動がなくなった。実験ハッチ3では発熱の大きい大型装置が使われるので、数百W程度の熱源に対応できるよう大容量の空調装置を導入した。

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、X線自由電子レーザー(SACLA)利用のための 新手法の開発が進められている。以下に2016年度に行 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、 核共鳴散乱による酵素反応の研究、未発見素粒子の探索 実験、X線磁気回折実験が行われた。大型機器が持込で きる実験ハッチ3では円偏光を使った時分割硬X線光電 子分光(HAXPES)実験、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、検出器の評価実験が行われ た。実験ハッチ4では100 nmビームを用いたX線磁気 散乱マッピング、強磁場下でのX線回折実験が行われた。 SACLA利用課題の予備実験としてX線磁気2色性の時分 割測定や真空回折実験のR&Dが行われた。

(玉作 賢治)

5. 物質科学ビームライン (BL44B2)

理研ビームラインBL44B2 は当初、構造生物学IIビー ムラインであったが、2009年度から物質科学ビームライ ンとして運用されている^[12]。現在、全ユーザータイム の最大10%を共用枠として受け入れている。

近年、物質科学の対象とする材料は、複雑かつ不均質 な系へと拡大している。このような多様性に対応するた めここ数年、ビームラインでの主たる実験解析手法を、 Bragg回折のみを考慮した粉末結晶構造解析から散漫散 乱を含む全てのコヒーレント散乱を一緒くたに扱う全散 乱実空間解析へと転換するべく、計測システムの開発を 行ってきた。特に、シャープなBragg回折とブロードな 散漫散乱を同時に精度良く計測し、広い空間スケールに おいて高い空間分解能でシームレスな構造情報を得るた めに、ハードとソフト両面から検出器システムを構築し てきた。2016年度は、DECTRIS製MYTHENモジュー ルを隙間なく湾曲状に並べた従来の8Kおよび12Kシス テムでのノウハウを活かして、一度に20~150°をカバ ーする15Kシステムへとアップグレードした。全散乱実 験で一般に使われるエネルギーの1/3程度の30 keVを使 うことで、散乱ベクトルQの最大値として必要十分と言 われる30 Å⁻¹のデータが10⁻⁴ Å⁻¹オーダーのQ分解能を 維持したまま得られるようになった。これら15個のセン サーそれぞれの入射側には、Ta製のブレードが備わって いる。これは、センサーとマイクロストリップをつなぐ ワイヤーボンディングへのX線照射によるノイズの低減 と、低角における回折プロファイルの非対称化を軽減す るためものである。12Kシステム時において統計精度を 上げていくと、このブレードのセンサーに対する傾きが 散乱強度に影響を及ぼすことがわかったため、アップグ レードを機に平行精度を一桁向上させるとともに、ブレ ードエッジに平坦処理を施した。その結果、10⁶カウン トの全散乱データにおいて、ブレードがない場合と比べ ても遜色のない全散乱データが得られようになった。ま た、回折計の中心からそれぞれのセンサー表面までの距 離のばらつきを10 μm以内に収めるために、レーザー変 位計によるアライメントを採用した。各センサーの最終 的な位置決めは、吸収端を利用した10⁻⁴ Å 精度の較正波 長を使って、格子定数が10⁻⁵ Å 精度で定まっている標準 試料の粉末回折データを解析することにより行った。以 上のように、全散乱本来の特徴であるマルチスケール実 空間解析を行う環境が整いつつある。

参考文献

[12] K. Kato and H. Tanaka: *Advances in Physics: X*1, (2016) 55-80.

(加藤 健一)

6. 物理科学ビームラインIII(BL17SU)

軟X線ビームラインであるBL17SUは、軟X線領域の 各種の分光法や計測技術において新機軸を打ち出すこと、 先端的な物質科学研究や光科学研究を推進することなど を主な目的として運営されている。2003年度に運転を開 始し、各種調整運転の後、2004年度の秋から理研ユーザ ーによる利用研究が開始され、2005年度の秋からは全ビ ームタイムの20%をJASRI共同利用課題に供出している。 研究を多角的且つ効率的に推進するため、ビームライン は排他的利用形態のブランチa、ブランチbに分岐した構 成となっており、それぞれのブランチには恒温ブースに よって精密に温度調節された超高分解能回折格子分光器 を整備し、エネルギー的に安定した高輝度軟X線ビーム を各実験ステーションに供給している。

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おいて先端物質科学 の実験的研究が行われ、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、各種液体試料を 観察対象とし、溶液中の分子の電子状態や固液界面にお ける固体の電子状態を観察するため、吸収・発光分光実 験が2015年度に引き続いて進められた。これらの主要 ステーションの間にある実験ステーションでは、主に JASRI共同利用課題として、エネルギー分光型光電子顕 微鏡 (SPELEEM) を用いた実験が行われており、結像型 の顕微XAFS・XMCD・XMLDのツールとして先端物質 科学・表面科学の分野で着実に成果を挙げている。S2a 出射スリット直下流のフリーポートでは、希ガスや重元 素含有多原子分子(例えば、CH₃IやCF₃Iなど)を気相 標的分子として光電子分光実験装置のガスセルに導入し、 高輝度軟X線による内殻励起/脱励起過程で放出される 光電子やオージェ電子の精密分光研究が兵庫県立大学や 仏・ソルボンヌ大学との共同研究として2016年度から 開始されている。

ブランチbでは、常設の実験ステーションの一つであ る軟X線回折実験装置による長周期秩序物質の電子状態 の直接観測などが2015年度に引き続いて行われ、2016 年度からは共鳴軟X線回折による磁気および軌道カイラ ルドメインの研究などが進められている。またS2b出射 スリット直下流のフリーポートでは、XFEL施設での研 究の展開を想定し、東北大学多元物質科学研究所・産業 技術総合研究所・京都大学などとの共同研究として、分 子イメージングの開発研究を2013年度より推進してい る。2016年度は、2種類の希ガス原子(Ne、Kr)を混 合ガスとして装置に導入し、異核Ne-Krクラスターの内 殻光イオン化とその後の緩和過程で放出される低エネル ギー電子放出過程の解明を目指し、電子・イオン対の3 次元運動量多重同時計測実験による研究が行われている。 この他、2016年度末には、持ち込み装置用フリーステ ーションに静電レンズ型の光電子顕微鏡が導入されてい る。aブランチのSPELEEM程の空間分解能(~22 nm) はないが、レーザーや電気的外場を用いた時分割観察が 100 nm以下程度の空間分解能で実施できるようなシス テムとなっている。外場との同期実験が行えるよう、本 装置の上流部に軟X線チョッパーが併せて導入されてい る。2017年度から調整運転を開始し、2018年度からの ユーザー利用実験に公開する予定となっている。また、 このフリーステーションには装置切替用のレールが敷設 されており、フレネルゾーンプレート (FZP) による集

光システムを持った大気圧下ナノ顕微分光システムが設 置され、立上げ調整運転が2015年度に続いて行われて いる。FZPによる集光調整は未完であるが、システムと しての動作確認等は順次行われている。FZPにより軟X 線ビームを200~300 nmまで絞り、薄膜窓を通して大 気圧中の(He 置換された環境下にある)試料にサブミク ロンスケールの軟X線ビームを導入し、蛍光収量法によ り二次元顕微XAFS測定を行なう予定である。これによ り試料表面で起こる不均一な現象(触媒反応など)の顕 微分光による反応過程の観察や、動作中のデバイスの電 子状態の観察などを目指している。また、最下流では、 エネルギー・波数・深さ・時間・実空間といった多元的 な電子構造可視化を可能とする超高効率の光電子分光装 置を用いた先端物質科学の研究が2016年度より進められ ている。

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 が利用されており、偏光特性を積極的に利用した先端的 研究が鋭意進められている。

(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4つの実験ハッチを有する。2012年 度にTCセクションの分光器内部の駆動ステージや液体 窒素配管類を低振動型に刷新した。2013年度には、分光 器の性能評価が行われ、従来型から劇的に振動が低減さ れている事が確認された。その後も、最新の低振動化技 術を、逐次、導入している。TCセクションには、原子レ ベルで研磨されロジウム蒸着されたJTEC社製のX線ミ ラーが、2012年度に導入された。第2ミラーのミラー表 面には、焦点距離48 mの放物面領域が帯状に成形され ている。48 mは、このミラーと光源との距離に一致す るので、放物面領域に当たったX線は、ミラー下流で究 極的に平行度の高いビームとして出射させることができ、 干渉計応用などで新展開が期待されている^[13]。

本ビームラインでは、可干渉性X線(コヒーレントX線) を用いた利用研究を推進している。2016年度には、X線 光子相関分光法(XPCS)計測において、X線の試料照射密 度を上げるために、焦点距離が1mの一次元集光全反射 鏡を導入した。輸送チャンネルのTCスリットを仮想光 源とし、約50m下流の実験ハッチ3に全反射鏡を入れ、 このハッチで集光ビームを使って実験を行う仕様とした。 集光実験により、試料面で予定通りの半値全幅0.3ミク ロン程度の集光ビームが得られることが確認され、試料 観察も開始されている。一方、生きたマウスの肺胞の実 時間CT計測を行うため、2016年度に、実験ハッチ3横 のクリーンブース内に簡易手術室の整備が進められた。 実験手順を見直し、人が躓く事故を防止するため磁石で 保持されたマウス返しが製作され、安全性向上がなされ た。

本ビームラインでは、2016年度、最先端コヒーレン トX線イメージング実験、X線光学の分野で装置開発を 伴うユーザー研究の成果が出た。まず、X線全反射鏡を 利用し、50 nmの空間分解能を有する色収差のない結像 顕微鏡が開発された^[14]。X線を4回反射させる結像光学 系を構築することで、色収差のない結像顕微鏡を実現し、 結像面に、エネルギー弁別ができるX線画像検出器を置 き、スペクトル情報と画像を同時に取得した^[14]。続いて、 微小構造体からの散乱X線を参照光とするインラインホ ログラフィとX線タイコグラフィを組み合わせることで 回折強度パターンのダイナミックレンジを1000分の1程 度圧縮する新手法「暗視野X線タイコグラフィ」と、生 物試料の高空間分解能イメージングが実証された^[15]。こ の成果によって、比較的安価である光子計数率の小さい 二次元X線検出器により、X線タイコグラフィによる高 空間分解能・高感度イメージングが可能になり、手法の 普及が期待されると同時に、高性能な二次元X線検出器 を駆使することで世界最高性能の空間分解能・感度を実 現することが可能となった。さらに、脂肪酸への臭素の 1元素ラベルとBL29XUの走査型蛍光X線顕微鏡による 細胞内脂質イメージングにより、世界で初めて細胞内脂 質の高分解イメージングがなされた^[16]。細胞内脂質をオ ルガネラレベルの分解能で観察することにより、生命現 象や疾患研究の新しい展開を示した。最後に、X線自由 電子レーザー利用研究において、ビーム単色性を向上し、 電子ビームのセルフシーディングを誘導するための結晶 など光学素子評価実験や検出器の評価・開発も精力的に 行われた。

- [13] D. Takei, et al.: Journal of Synchrotron Radiation, 23,(2016) 158.
- [14] S. Matsuyama, et al.; S. Rep. 7, (2017) 46358.
- [15] A. Suzuki, et al.: S. Rep. 6,(2016) 35060.
- [16] M. Shimura, *et al.: FASEB Journal* **30**, (2016) 1. (香村 芳樹)

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

Commissioning of BL43LXU^[17] continued through 2016, but the bulk of the time was for user experiments, including some installation of new equipment (see below).



Figure8 XZ stage for the diamond quadrant BPM on CF114 beam pipe iust upstream of the highresolutinspectrmeter sample position.

The present report will, as usual, emphasize both the changes and the problems at the beamline, in an effort both to provide a record of progress and to provide useful information to others working to develop SR instrumentation.

Work at the experimental stations has largely been done by members of the Materials Dynamics Laboratory, with assistance on some projects by members of JASRI, and RIKEN, and, occasionally, members of the RIKEN beamline support group. Help from part timers included some for more general beamline tasks (Shibutani), some work on technical drawings (Taguchi), and some support for software (Nishimura), though the software person left SPring-8 unexpectedly, unfortunately before the break-even point of output relative to training invested. BL43 also began to have help from fulltime members of the engineering team (Nagare, Umezawa) on specific tasks including standard start-up of the LN2 cooling for the mirror and mono, and, sometimes, beam size measurement and setup of sample refrigerators. This is an ongoing process, and the break-even point (time saved for BL scientists greater than time invested in training) may be soon for simpler tasks.

Beam Position Monitoring: Two diamond quadrant transmission beam position monitors (DQBPMs) were



Figure9 Scans of the RIGI through a small (~0.05x0.05mm²) beam after a burn-in period.The plot shows total current in pA vs x-position (mm) for several different z's (see text). The radiation damage is evident. See text.

installed in the beamline. One was put just upstream of the high-resolution (HR) spectrometer sample position. After that one performed well, a second one was installed just in front of the medium resolution monochromator (MRM). The sensors were both RIGI4-M's from Dectris (3x9mm² aperture with four 1.5x4.5 mm² quadrants) followed by at TetrAMM 4-channel picoammeter (CAENels) mounted on an xz stage (the chamber/stage combination was designed in collaboration with Kohzu based on a CF114 cross). The DQBPM for the HR spectrometer performed nicely, even at currents down to ~50 pA/channel (~1 GHz flux at 25.7 keV), with position noise less than 2 μ m for a beam size of ~300 μ m. The DQBPM before the MRM, however, was not stable in the high power monochromatic beam (roughly 5x1014/s/mm² at 21.7 keV) - it had a burn-in period of several weeks, during which the output over the beam spot dropped roughly a factor of two (figure 2), before mostly stabilizing. As a practical matter, this BPM will mostly be used to measure small (~10 micron) beam displacements so it remains useful. However, the burn-in issue is worth noting for others.

The DQBPM for the HR spectrometer is used to stabilize the beam position at the sample to an estimated ~1 μ m for a 5 μ m beam size after the KB. Note: the temperature of the support was carefully monitored and found to be sufficiently stable, unless either the hutch door was opened for a longer period of time, or new equipment was placed in the hutch. The second DQBPM will be used to stabilize the energy zero of the MRM in the face of angular drifts of the mirrors and high-heatload monochromator. (Baron & Ishikawa)

Sub-meV resolution: Building on previous tests, commissioning of the sub-meV setup using the Si(13 13 13) reflection at 25.7 keV continued. This included new offset crystals, and substantial fine-tuning of the optical performance for stability. Notably, the thermal heat load of the beam from the high-heat-load monochromator on the stability of the offset crystals was a significant issue. World-leading resolution of 0.81 to 0.86 meV for a user instrument was obtained in useful operating conditions and, if the beam was attenuated, 0.76 meV was possible, consistent with ^[18]. Several samples were measured including user experiments. A new method of reducing the power onto the backscattering crystal to obtain better than 0.8 meV resolution with higher rates is now in progress - this will also be applied to, we expect, achieve 1.3 meV at the (11 11 11) without attenuation. (Ishikawa & Baron)

5 µm Micro-focus: A graded-multilayer KB setup was installed which successfully achieved a 5x5 µm2 beam size at 17.79 keV at the sample position of the HR spectrometer with a throughput of ~60% (>90% peak reflectivity on each multilayer) and a d-spacing for the coating as small as 22 Angstroms. The setup time for this is significant (2+ days) as it requires removing the cylindrical mirror usually used, and a realignment of much of the beamline (including manual translation of several transport channel components). The new KB setup did greatly facilitate experiments in extreme conditions in DACs, reducing background from gaskets, allowing the x-ray beam to easily fit within the laser heated spot, and allowing a new, through-gasket, geometry to improve rates. It was greeted with great enthusiasm by the DAC community working at BL43. (Baron & Ishikawa).

Collimation & Masks: Several new types of collimation (Soller slits & related) were installed downstream sample for high-resolution spectrometer and shown, e.g. to significantly reduce the scattering from the diamonds of a DAC cell. (Baron, Fukui & Nakajima). In addition, masks were designed for the sub-meV setup to allow improved count-rates with good momentum transfer resolution at low Q. These allowed clean data to be collected at momentum transfers as low as 0.5 nm-1 at 25.7 keV with sub-meV resolution. (Ishikawa & Baron).

Medium-Resolution Analyzer Crystals. Two good analyzer crystals were used (~25 and 27 meV resolution) and showing reasonable count-rates^[19]. One notes that the best published data on electronic excitations before^[19] had >50 meV

resolution, and similar rates with a much larger solid angle, so BL43LXU is doing well. The glue failed on one of the earlier poorer analyzers, but we have already moved beyond that design. First tests were done with a combined T-gradient/ dispersion-compensated setup which was found to improve resolution from 260 meV to better than 60 meV (this is at larger detector offsets than the 25 meV resolution). Three more analyzers are now in progress and should be installed early in 2018. (Ishikawa & Baron)

High-Resolution Spectrometer: This operated reasonably over most of the year, excepting issues with the granite alignment/floor stability. Early in 2017, the granite was realigned by Huber/Oelze but, then, after that, the alignment drifted again, unusually quickly, forcing additional work in the summer. The performance has been mostly reasonable since then. The fluctuation of the granite stability (some years very stable, but occasionally not) leads one to wonder if the problems could be related to floor motion due to groundwater changes in the gravel layer under the concrete. Two other issues noted with the spectrometer include slowing of the response of one air sensor, and slight (few micron) motion of the sample associated with the two-theta arm motion. The responsible company, Huber, has been contacted.

High Resolution Analyzer Crystals: Three new analyzer crystals were delivered. The performance was acceptable (~ 1.5 meV resolution) but not as good the best ones received.

- [17] A. Q. R. Baron, SPring-8 Inf. Newsl. 15, (2010) 14.
 and A. Q. R. Baron, in Synchrotron Light Sources Free.
 Lasers Accel. Physics, Instrum. Sci., edited by E.
 Jaeschke, et al. (Springer, Cham, 2016), p. 1643–1757.
 See also arXiv 1504.01098.
- [18] D. Ishikawa, D. S. Ellis, H. Uchiyama, and A. Q. R. Baron: J. Synchrotron Radiat. 22, (2015) 3.
- [19] D. Ishikawa, M. W. Haverkort, and A. Q. R. Baron: J. Phys. Soc. Japan, Lett. 86, (2017) 93706.

(Alfred Q.R. Baron & Daisuke Ishikawa)