1-3-2. 理研ビームライン

理化学研究所放射光科学研究センターでは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12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線による蛍光を活用した新規走査型回折顕微法など 新しい測定手法を開発している物理科学ビームライン I (BL29XU)、また2016年度からユーザー利用を開始し 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)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6本の理研ビーム ラインにおいて順調に技術開発と利用実験を進めてい る。以下では、運用中のビームライン (BL26B1&B2、 BL32XU、BL45XU、BL19LXU、BL44B2、BL17SU、 BL29XU、BL43LXU、BL05XU) の現状について報告 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、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 ジャー $SPACE^{[1]}$ 、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ことにより、オペレータの 介助による従来の専用ネジ式ピンを利用した自動データ 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、創薬研究における複合体構造解析等、 大規模なスクリーニング実験の実施を見据えたデータ収 集効率化を目指し、高速二次元検出器の導入等ビームラ イン機器や測定システムの高度化を継続して行ってい る。2017年度はBL26B1にて開発を進めてきた結晶化プ レートスキャン装置の試験利用を開始した他、さらなる 自動化を進めるため、実験ハッチ内に保管した複数の結 晶化プレートを産業用6軸ロボットハンドで自動交換す る、プレート自動交換装置を導入した(図1)。利用で きる結晶化プレートは標準的なSBS96穴規格に対応して おり、9枚のプレートを挿入可能なプレートホテル6個 を内蔵可能な恒温槽を備え、合計54枚のプレートが収 納可能である。現在基本動作試験を進めると共に、ビー ムライン制御系と連携して自動測定を進めるためのイン ターフェース開発を進めており、2018年度中にユーザー 利用に供する予定である。

またビームラインでの回折データ収集に加え、タンパク質の結晶化から構造解析までを含めた、オンサイト支援の拡大を目指した装置の整備や高度化を進めている。上記ビームラインに導入したプレートスキャン・自動交換装置は、2017年度サイト内に導入したオフライン結晶化観察装置RockImager54(Formulatrix社)のプレートホテルをそのまま設置可能な互換性を持つ設計であり、将来的に試料情報の共有等の連携を見据えている。



図1 BL26B1 実験ハッチ内のプレートスキャン・自動交換装置 プレート交換用6軸ロボットおよび54プレート保管可能な 恒温槽

これらに加え、利用者が膨大な試料情報と解析データを含む一連の実験のフローにサイト外からネットワークを通じてアクセスする環境を整えるため、D-Chaの機能を拡張した新規Webデータベースシステムの開発や、遠隔実験において膨大な回折データの転送を不要とする、自動データ処理パイプラインの開発も進めている。

参考文献

- [1] Murakami, H., et al. (2012). J. Appl. Cryst. 45, 234-238
- [2] Ueno, G., et al. (2006). J. Struct. Funct. Genomics. 7, 15-22.
- [3] Okazaki, N., et al. (2008). J. Synchrotron Rad. 15, 288-291.
- [4] Ueno, G., *et al.* (2016) AIP Conference Proceedings 1741, 050021.
- [5]Baba, S., et al., (2013), Acta Cryst. **D69**, 1839-1849. (上野 剛)

2. ターゲットタンパクビームライン (BL32XU)

BL32XUは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2010年度から運用を開始した。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ミクロンとなっており、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。

2017年度も2016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 行った。特に2015年から開発を進めてきた自動データ 収集システムZOOの運用と高度化について注力した。 上半期はユーザーが凍結試料をSPring-8 BL32XUに送 付し、結晶サイズ、目的(データ収集か結晶化スクリー ニングか)などを担当者に伝え、担当者が自動測定を行いデータと測定終了後の容器を返送するというモデル実験を数多く行い、自動運転のテストスタディを行った。これにより、測定効率が手動測定に比較して3~5倍程度良いことがわかるとともに自動測定へのニーズ、さらに自動測定に求められる機能について実験結果に基づいて検討した。放射光施設を訪れずとも構造解析に必須なデータ収集を完了できるケースが増えてきた。またテストスタディを通して自動データ処理および解析に関する自動化について検討項目を洗い出すことができた。実際にはレポート機能の拡充とデータマージ結果の返送の方法などが課題であると考えこれらを今後の課題として設定し高度化を進めている。

上述したテストスタディの結果、自動測定に求められ る機能として結晶サイズによってデータ収集スキームを 選択するということが挙げられた。自動データ収集シス テムZOOでは利用できるビームサイズと結晶サイズに 応じて種々の測定スキームを選択することが可能である が、例えば600ミクロン程度のループの中に数十ミクロ ンの結晶が数十個凍結されたものを測定対象とした場 合には"small wedge"法(一つの結晶から5~10°程度の データを大量の結晶から収集)と呼ばれる方法を適用 する。またビームサイズよりも大きな結晶がループ上 に1-3個程度凍結された測定試料からはより広い、例え ば90-360°の範囲の回折データについて一つの結晶内で 照射点を並進させながら収集するヘリカルデータ収集法 を適用する。自動測定プログラムの問題は、人間であれ ば結晶のサイズを認識してそれぞれに適した測定スキー ムを選択するところを、いずれかの方法しか適用できな い点にあった。そこで、ミックスモードと称する2つの 方法を合わせた自動測定をZOOに実装した。ループ上 に凍結されている結晶のサイズや空間的な配置を考慮し て、それぞれの結晶に適した測定スキームを選択して適

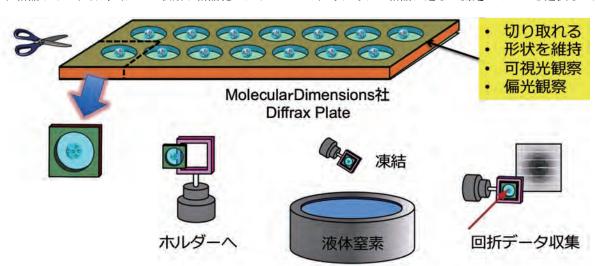


図2 Diffrax プレートと開発したホルダーを利用した膜タンパク質結晶からのデータ収集の概略図

用する。開発したミックスモードのスキームはZOOにこれまで無かったある種のインテリジェンスの実装であり、ZOOの最終目標である「完全無人測定」に向かって大きな前進であったといえる。

高度化を進めている自動測定を含め、BL32XUを利用した種々のハイインパクトな高分解能結晶構造解析の成果を論文発表することができた^[68]。

さて脂質メソフェーズ法で結晶化を行った場合にはい くつかの技術的な問題がある。脂質メソフェーズ法では 多くの場合にはガラスサンドイッチ法と呼ばれる方法 で結晶化を行う。文字通り2枚のガラスで穴の開いたス ペーサ兼両面テープ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に結晶が 出て来るため、顕微鏡でそれらを確認したのちその部分 のガラスに傷をつけ、割って結晶をすくいとる。この工 程は非常に難易度が高い手技が要求され、特に不慣れな 実験者の場合、ビームラインで利用する凍結結晶が「結 晶が出た時のままの回折能を示している」のか「すくい とるときに損壊した状態」なのかを判断することが難し いケースが散見される。例えば、結晶をループですくい とる際の時間が制限されていることもこの要因である。 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秒程度ですくいとらなければ種々の結晶環境条件 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ず、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2017年度、京都大学との共同研究を通し て、脂質メソフェーズ法で結晶化された結晶をプレート から取り出さずに回折データを収集するための方法につ いて検討を進めた(図2)。Molecular Dimensions社製 のDiffraxプレートと呼ばれるプレートはガラスの代替 品として水バリア性が高く、X線散乱が小さい組成の膜 を2枚利用して結晶化を行う。結晶化が終了したら、こ のフィルムをハサミで切ってそのまま凍結し、回折実験 に用いるというコンセプトの商品である。このプレート に付属しているホルダーはフィルムをクリップするタイ

プのもので、測定中にフィルムそのものが揺れ回折データ収集に支障をきたすことがわかった。この問題を解決するために我々は切り出したフィルムの位置を測定中に安定化することを目指して新規フィルムホルダーを開発した。開発したフィルムホルダーを利用し、結晶を取り出すこと無く、簡便に生成した結晶をすべて凍結して測定に用いることができるようになった。実際に膜タンパク質の結晶について量としては少なくとも従来の5倍程度は一度に測定に用いることができるようになった。現在はこのホルダーを利用した自動測定を目指して検討と高度化を進めている。

参考文献

[6] Abe, S., et al. (2017). ACS Nano, 11 (3), 2410–2419.

[7] Shihoya, W., et al. (2017). Nature Structural & Molecular Biology, 24 (9), 758-764.

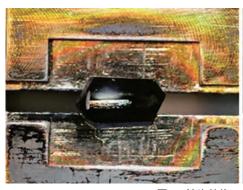
[8] Taniguchi, R., et al. (2017). *Nature*, 548 (7667), 356–360.

(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ステーションおよび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%を創薬等先端技術支援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。

2017年度はSAXSステーション用の分光器の可動軸の



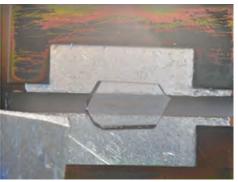


図3 洗浄前後のダイヤモンド結晶

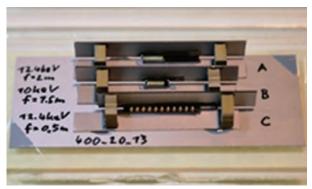


図4 SAXS/WAXS用X線屈折レンズユニット

定期オーバーホールと分光素子のダイヤモンド結晶の洗浄を行った(図3)。ダイヤモンド結晶の洗浄およびホルダーへの再設置により、試料位置でのビーム強度は約20%向上し、ビームサイズは約10%程度の集光特性の回復が得られた。また、生体繊維試料の局所構造解析や微小量の溶液からの散乱測定の向上のために X 線屈折レンズユニット(図4)を導入し、実験系の構築を進めている。屈折レンズを用いることにより従来のビームサイズ $300~\mu m$ (H) $\times 200~\mu m$ (V)(FWHM)から、 $10~\mu m$ 程度のミニビームで SAXS および WAXS 測定の実現を目指している。

測定制御・解析系ではコンピューターを更新しソフトウェアの改善を進め、制御プログラムの安定化とデータ処理システムの迅速化を推し進めた。これらにより、数十ミリ秒の時分割測定から、数十分に及ぶSEC-SAXS測定など様々な測定において、2次元散乱画像の表示、1次元へのデータ処理、測定データの評価などがほぼ散乱データ収集と同時に自動的に行えるようになった。

上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]Oide, M. et al. (2018) J. Bio. Chem. 293(3), 963-972.
- [10] Yokota, T. et al. (2018) *Nature Nanotechnology* **13**, 139-144.
- [11] Wright, G. et al. (2018) *Sci. Signal* 11(525), eaaq0825.

(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)、実験ハッチ1と3の精密空 調の更新(2016年度)、ハッチ自動扉の電動化(2017年度) が行われてきた。また、BL19LXUの強力なX線を有効 に活用できる時分割実験を高度化するために、フェムト 秒レーザーシステムを1 kHzから10 kHzに高繰返し化 (2016年度) し、それに合わせてHモード用のX線チョッ パーも9.49 kHzに対応できるようにした(2016年度)。 これによって、時分割測定の信号強度が従来測定系より 10倍強くなっている。

2017年度は、これまでビームイメージに縞模様が入るなどの問題となってきた分光結晶表面の汚れ対策として、光学ハッチ内の真空排気システムの全面更新を行った。これまではターボ分子ポンプとスクロールポンプで排気してきた、これらをイオンポンプで置き換えた(図5)。これによって真空度が向上しただけでなく、粗排気ポンプの維持管理費の大幅な削減が可能となった。また、大気開放時に分光結晶およびTCミラーの表面を保護するために、光学ハッチ内を清掃し、クリーンルーム仕様とした。

BL19LXUのアンジュレータは27 mの一体型のため、最小ギャップが12 mmに制限されてきた。一方で、磁石列の周期長は標準型と同じため、最低光子エネルギーは7.270 keVであった。BL19LXUでは磁気散乱などを使った磁性材料の研究を行っており、7.112 keVにある鉄の吸収端で測定できないことは、大きな弱点であった。これを解決するために変更申請を行い、最小ギャップを11.8 mmとした。その後、加速器グループとフロントエンドチームにより、このギャップでの運用に問題ないことが確認され、ユーザー実験に開放された。現在は、11.8 mmギャップで鉄の吸収端より低エネルギーの7.092 keVまで測定できるようになっている。

上記に加えて、フェムト秒レーザーを使った光学調整



図5 排気システムがイオンポンプ化されたBL19LXUの光学 ハッチ内の様子

時にハッチ外にレーザーが漏れないよう遮蔽カーテンを 設置、実験ハッチ4の上流部分の整備とハッチ内外電源 配線の整理などを行い、ユーザーが安全に実験できるよ うに処置した。

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施設(SACLA)利用のための新手法の開発が進められている。以下に2017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、量子イメージング実験、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)

当初、構造生物学IIビームラインであったBL44B2は、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JASRI共同利用課題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、ビームラインの主たる実験手法を、ブラッグ反射のみを考慮した粉末回折から散漫散乱を含む全ての干渉性散乱をまとめて取扱う全散乱へと転換するべく、計測システムの開発を行ってきた。特に、シャープなブラッグ反射とブロードな散漫散乱を同時に高い精度

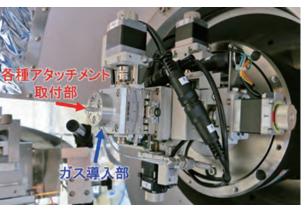


図 6 全散乱用試料ステージ

で測定し、広い実空間スケールの構造情報を原子分解能 で得るために、ハードウェアとソフトウェア両面からの 研究開発を進めている。

2017年度は、計測システムの開発の一環として、全 散乱用試料ステージ(図6)を導入した。これまでは、 測定する試料の形態(粉末や薄膜など)や環境(温度や ガスなど)に合わせてステージを交換していたが、新し いステージでは各種アタッチメントを交換するだけで 様々な形態や環境に対応可能な仕様となっている。その 結果、ステージの交換が一切不要となり、効率化だけで なく位置精度の向上にも寄与している。このステージの 特徴は、キャピラリーと既存のオンラインガス圧制御装 置と組み合わせることで、ガスを導入しながらキャピラ リーを高速で一軸回転させられる点である。従来は、ガ ス配管によって回転速度と範囲は限られていたが、新し いステージでは磁気シールとスリップリングを組み合わ せることで、高真空を維持しながら無限に回転させるこ とができる。全散乱であっても平均像を得ることに変わ りはないため、測定中に試料を回転させることで平均精 度を高めることが重要である。特に、ガス吸蔵プロセス などでは、構造の不均一性や不均質性が本質的であるか どうかを見極めるには、高速回転による平均化が不可欠 である。また、従来はガス導入管をアタッチメントに直 付けしていたが、ステージ内にガス導入管を通すことで アタッチメントとは分離し、脱着によるガス漏れを防ぐ ととともにワンタッチで試料交換が行えるようになって いる。この全散乱ステージには6軸の自動ステージが備 わっているため、薄膜の全散乱実験や画像認識を使った 自動試料位置調整も今後の制御ソフトウェアの開発に よって実現する見込みである。

参考文献

[12] K. Kato and H. Tanaka (2016) *Advances in Physics: X* **1**, 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BL17SUは、軟 X線領域の各種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等を主な目的として運営されている。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。研究を多角的か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調された超高分解能回折格子分光器が整備され、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実験ステーションにおいて、先端物質科学の実験的研究が2016年度に引き続いて行われた。もう一つの主要装置である高効率軟X線発光分光実験ステーションにおいては、固液界面で起こる現象を観察するための電気化学セルが新たに開発され^[13]、白金表面の水の電極酸化反応の観察等が軟X線吸収・発光分光計測法によって進められた。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、 CH_4 、 CH_3 Iや CH_2 I2など)を光電子分光実験装置のガスセルに気相標的分子として導入し、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2016年度に引き続いて進められた。

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2016年度に引き続いて行われ、 2017年度からは共鳴軟 X線回折による磁気カイラリ ティイメージングとその制御に関する研究などが進めら れた。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。2017年度は、単一分子からの解 離断片における原子間クーロン緩和過程の観察を目指 し、電子・イオン対の3次元運動量多重同時計測実験に よる研究が行われた。この他、持ち込み装置用フリー ステーションに2016年度末に導入された静電レンズ型 の光電子顕微鏡(図7)の調整が行われ、aブランチの SPELEEM程の空間分解能 (~22 nm) には原理的に及 ばないものの、80 nm 程度の空間分解能が確認されてい る。フェムト秒レーザーや電気的外場との同期実験によ

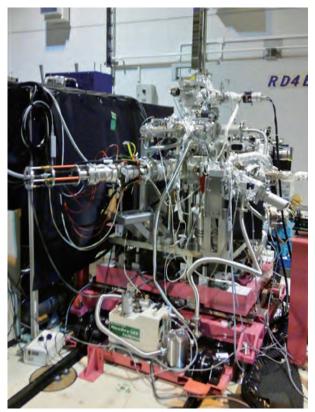


図7 静電レンズ型光電子顕微鏡

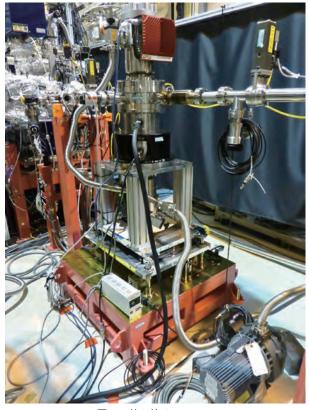


図8 軟X線チョッパー

る時分割観察が行えるよう、本装置の上流部にて軟 X 線 チョッパー (図8) の調整も併せて行われた。レーザーとの同期実験において、レーザーと放射光の同時照射時 刻の確認方法など、技術的な課題が2017年度より予備 的に進められており、2018年度からのユーザー利用実 験への公開に向け、基本的な測定システムの構築や、テスト実験がほぼ完了している。

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 テムが設置されている。2017年度より、FZPによる集 光調整を含めた立上げ調整運転が行われ、システムとし ての動作確認や大気圧下での測定のためのインフラの整 備などが進められた。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(He 置換された環境 下にある) 大気圧中の試料にサブミクロン軟 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目指した 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年度に引き続いて進められた。

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。

参考文献

[13] T.Ishihara et al. (2017) Rev. Sci. Instrum. 88, 104101.

(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ことが確認された。その後も、最新の低振動化技術を、逐次、導入している。二結晶分光器チェンバー内のアウトガスがクライオ冷却結晶に付着し、ブラッグ反射されるX線ビームを汚すと考えられる。アウトガスの成分分析を行って、潤滑剤が無視できない蒸気圧を有

することが判明した。液体窒素配管によるステージ冷却とモーター動作不良を防ぐためのヒーターが用いられているが、潤滑剤の蒸気圧を低減するため、ヒーター温度を従来の25°Cから10°Cに下げ運用を開始した。

本ビームラインでは、可干渉性 X線(コヒーレント X線)を用いた利用研究を推進している。2016年度には、主に物性材料や、マウスの全脳を観察するための高速 CT 計測装置をリング棟実験ハッチ2に構築した(図 9)。On-the-fly形式で、高速回転する主軸周りに回転し続け、1000投影分の試料透過像を0.18°刻みという細かいステップで、各ステップ30ミリ秒程度の露光時間で計測できる。この際、十分細かい刻み角間の画像の変化分は無視でき、10分以下で一周する高速計測が可能になった。

本ビームラインでは、2017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、JASRI湯本博勝研究員らがSPring-8で高精度楕円面鏡による世界最小の2次元X線100 nm集光ビームを達成した。今まで2次元X線集光ビームを生成するには、2枚の鏡が必要だったが、これを1枚の鏡で実現した[14]。楕円面鏡に



図9 2016年度に製作された高速CT計測装置の試料駆動ステージ組み立て写真

右方からX線が入射し、回転ステージ上の試料に照射され、透過像を左方の高速X線画像検出器で撮影する。回転ステージ上の試料を、奥の光学顕微鏡で観察することのできるシステムを構築した。

よる集光は、SPring-8やSACLAで利用される様々な先 端X線顕微鏡を支える高効率ナノビームや光学系の安 定性の向上に役立つものと期待される。韓国のGIST大 学、POSTEC大学などの共同研究チームは、切片化や、 染色などが施されていない、マウスの胎児から採取され たミトコンドリア細胞を用い、回折顕微鏡による分析を 行った。試料の回転角を26通り変えて取得した回折像 の解析から、ほぼ60 nmの解像度で細胞内部の三次元の 電子密度を計算で求めることに成功した[15]。この実験 に加え、ミトコンドリア細胞に100 nm強の大きさを有 する金の参照物体を近接して設置した実験も行ったとこ ろ、回折強度を上げることができ、解像度を14 nm程度 に向上させることができた[15]。理研放射光科学研究セ ンター構造可視化研究チーム(高橋幸生チーム)と元素 可視化研究チーム(唯美津木チーム)の共同研究で、X 線タイコグラフィー法を用いて試料のX線吸収微細構 造(EXAFS)を取得する「タイコグラフィー - EXAFS 法」が開発され、酸素吸蔵・放出材料の酸素拡散分布 を可視化することに成功した[16]。今後、タイコグラ フィー - EXAFS法は、様々な先端機能材料のナノ構造・ 化学状態分析へ応用されると期待されている。最後に、 XFEL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。

[14] H. Yumoto, et.al. (2017) S. Rep. 7, 16408.

[15] Y. Kim, et.al. (2017) S. Rep. 7, 1850.

[16] M. Hirose, et al. (2018) Angewandte Chemie International Edition, 57, 1474.

(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 2017, but the bulk of the time was for user experiments, including some installation of new equipment (see below). 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, Hattori), 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 full-time members of the engineering team (Nagare, Umezawa) on specific tasks including standard start-up of the LN_2 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.

The upstream BL components (electron orbit, IDs, mirrors) were stable during 2017. The orbit-correction protocol worked out the previous year operated smoothly, and there were no issues with the IDs, and no repeat of the previous years beam-steering accident where an ID cover was damaged. The high-heat-load mirror (M1) operated without changes - and was reasonably stable when used.

Beam Position Monitoring: Two diamond quadrant transmission beam position monitors (DQBPMs) were 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 (3 × 9 mm² aperture with four $1.5 \times 4.5 \text{ mm}^2$ 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 μm for a beam size of ~300 μm . The DQBPM before the MRM, however, was not stable in the high power monochromatic beam (roughly $5 \times 10^{14}/\text{s/mm}^2$ 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 (figure11), before mostly stabilizing. As a practical matter, this BPM will mostly be used to



Figure 10 XZ stage for the diamond quadrant BPM on CF114 beam pipe just upstream of the high-resolution spectrometer sample position

measure small (\sim 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 $\sim 1~\mu m$ for a 5 μm 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-heat-load 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

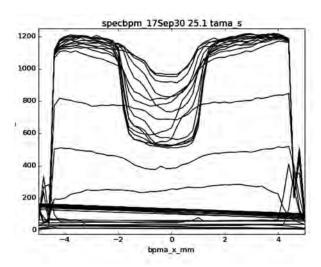


Figure11 Scans of the RIGI through a small (~0.05 × 0.05 mm²) beam after a burn-in period. The plot shows total current in pA vs x-position (mm) for several different z's (see text). The radiation damage is evident. See text.

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^[19]: A graded-multilayer KB setup was installed which successfully achieved a 4.4 × 4.1 um² beam size at 17.79 keV at the sample position of the HR spectrometer with a throughput of ~60% (>75% 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).

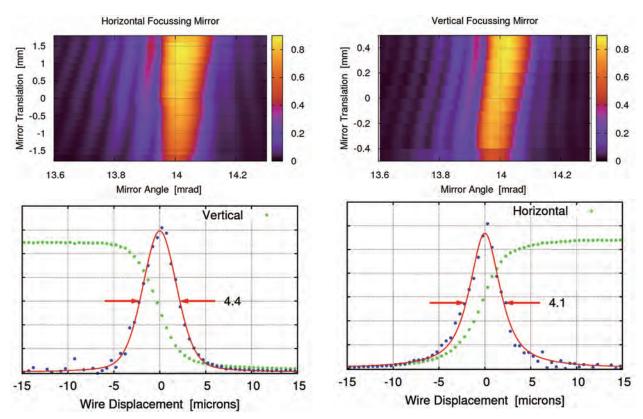


Figure 12 KB Mirror Performance. The top panels give the measured reflectivity of each mirror as a function of position and grazing angle when the mirror is scanned through a small beam. The main Bragg peak at 14 mrad and the usual subsidiary maxima are easily visible. The lower panels show the beam profiles measured using a wire scan with the calculated derivative and a pseudo-Voigt fit. The numbers give the FWHM from the fit.

Collimation & Masks^[19]: 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^[19]. (Baron, Ishikawa, Fukui & Nakajima, submitted). 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 [20]. One notes that the best published data on electronic excitations before [20] 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 re-aligned 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 ground-water 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.



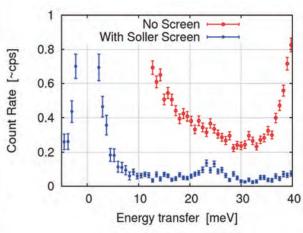


Figure 13 Left: Soller screen mounted near the DAC. Right: Spectra measured from a sample of Re metal at ~180 GPa pressure with and without the Soller screen. The reduction of the background from diamond and the improved contrast for the Re LA signal at 24 meV is clear. Data from Ikuta, et al. in preparation.

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, 14 (2010). 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**, 3 (2015).

[19] A.Q.R. Baron, D. Ishikawa, H. Fukui, Y. Nakajima, submitted (see arXiv 1807.03620)

[20] D. Ishikawa, M. W. Haverkort, and A. Q. R. Baron, J. Phys. Soc. Japan, Lett. 86, 93706 (2017).

(Alfred Q.R. Baron & Daisuke Ishikawa)

9. 施設診断ビームライン I (BL05XU)

BL05XUは、革新的研究開発推進プログラム (ImPACT)「超薄膜化・強靭化 しなやかなタフポリマーの実現」における「タフポリマー実現のための放射光構造科学基盤構築」の一環として、ポリマー材料のタフネスを評価する小角・広角散乱測定プラットフォームとして整備を進めてきた。2016年度に、光学ハッチへの湾曲機構付ミラーおよびTCスリットの設置、光学ハッチー実験ハッチ間ビームパス輸送パスの大口径化、実験ハッチへの種々の小角散乱測定用コンポーネントの設置を実施し、2016年10月末より ImPACTメンバーによる利用を開始した。さらに、2017年1-3月の停止期間に、挿入光源を真空外アンジュレータから真空封止アンジュレータ (周期長32mm、周期数93)への入れ替えを実施した。

本ビームラインでは、試料位置固定の検出器移動によるカメラ長変更システムを採用している。試料周辺に柔軟なスペースを確保しつつ大型切替ステージを設置することで、様々な変形装置や環境制御装置を持ち込んだ測定を可能とし、様々な変形・破壊条件下での測定を実施している。試料 - 検出器間距離は~0.1-4.5 m、入射 X線

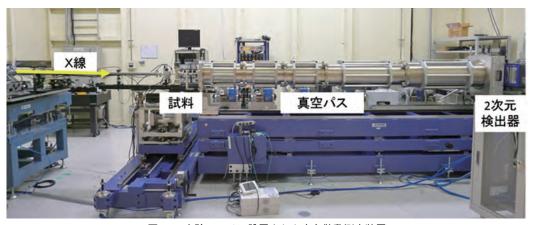


図14 実験ハッチに設置された小角散乱測定装置

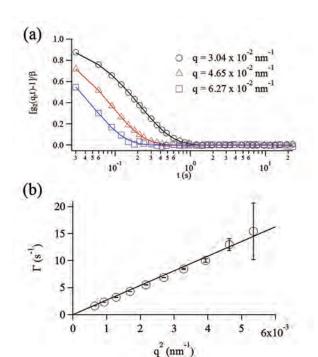


図15 XPCS測定により得られた (a) 時間自己相関関数と (b) 緩和速度の \mathbf{q}^2 依存性

エネルギーは7-15 keVの範囲で調整可能で、空間スケール~Å-300 nm範囲の構造が測定可能である。また、通常の透過型測定だけでなく、高分子薄膜の観察に対応するために、ヘキサポッドステージを用いた斜入射型(~0.1°)小角・広角散乱測定も実施されている。

真空封止アンジュレータ導入後、2017年度より、X 線光子相関分光測定(XPCS)系の整備を行った。XPCS では、コヒーレンスの高いX線を試料に照射し、得られ るスペックルパターンの時間揺らぎから、散乱体のダ イナミクスを議論する。本ビームラインでは入射X線 を20 μm×20 μm またはそれ以下にスリットで切り出 すことで部分コヒーレントなX線を得て、散乱スペッ クルを約4 m下流に設置した2次元検出器EIGER 1M (Dectris) で検出した。本検出器は、ピクセルサイズが 75 μm×75 μm とスペックルサイズに対して十分な空間 分解能を有しており、3000 Hzでの時分割測定が可能で ある。デモ測定として、グリセロール中に分散させたシ リカ粒子(直径~100 nm)に対してXPCS測定を実施し、 図15に示す結果を得た。散乱強度の時間自己相関関数 g_2 (q,t) (q:散乱ベクトル、t:時間) が指数関数で表され ており、得られる緩和速度Γがq二乗に比例している。 これは、単純なブラウン運動の観測に成功していること を示している。その後、本セットアップを用いて、種々 のポリマー材料に対するXPCS測定が実施されている。

(星野 大樹)

理研 放射光科学研究センター 利用システム開発研究部門

山本 雅貴

生物系ビームライン基盤グループ 生命系放射光利用システム開発チーム 上野 剛、平田 邦生、河野 能顕 山下 恵太郎、引間 孝明

物理・化学系ビームライン基盤グループ 物質系放射光利用システム開発チーム 玉作 賢治、大浦 正樹(兼務)

軟X線分光利用システム開発チーム

大浦 正樹

放射光イメージング利用システム開発チーム 香村 芳樹、加藤 健一、星野 大樹

利用技術開拓研究部門 物質ダイナミクス研究グループ Alfred Baron、石川 大介