SPring-8 シンポジウム 2018 講演要旨　目次

SPring-8 この 1 年

O-01　**SPRUC がやるべきことと施設への期待**
水木 純一郎（SPRUC 会長・関西学院大学）・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・1

O-02　**利用者の動向と施設の対応**
石川 哲也（理化学研究所）・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・2

O-03　**ビームラインポートフォリオと先端ビームライン提供の展望**
櫻井 吉晴（高輝度光科学研究センター）・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3

SPring-8 を取り巻く環境と進むべき道

O-04　**ユニークな基幹技術による世界との差別化**
矢橋 牧名（高輝度光科学研究センター）・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・4

O-05　**新しい利活用研究を拓く研究会**
有馬 孝尚（SPRUC 利用委員長・東京大学）・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・5

SPRUC 2018 Young Scientist Award 受賞講演

O-06　**放射光により生成されたガンマ線による原子・分子のダイナミクス測定法の開発と その多様な応用研究**
齋藤 真器名（京都大学）・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・6

O-07　**微小結晶タンパク質 X 線結晶構造解析を加速する自動データ処理システムの開発**
山下 恵太郎（東京大学）・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・7

分野融合研究

O-08　**「SPRUC 分野融合研究」から「放射光活用科学・新分野創成」へ ー 実用・応用課題に潜む広域的本質・コンセプト発掘 ー**
高尾 正敏（元 パナソニック/大阪大学）・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・8

O-09　**計測を指向する機械学習手法の開発と応用**
鷲尾 隆（大阪大学）・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・9

時間軸でみる SPring-8/SACLA の利用研究

O-10　**X 線自由電子レーザーSACLA を使った超高速サイエンスの開拓**
片山 哲夫（高輝度光科学研究センター）・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・10

O-11　**構造生物学における SACLA 時分割構造解析の展望と課題**
久保 稔（兵庫県立大学）・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・11

O-12　**放射光を利用した燃料電池・蓄電池反応の時間追跡**
雨澤 浩史（東北大学）・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・12

O-13　**金属材料のための放射光回折顕微鏡法の可能性**
林 雄二郎（㈱豊田中央研究所）・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・13

利用トピックス

O-14 **量子とじこめ効果により発現する Pd 薄膜の強磁性**
櫻木 俊輔（東京大学） ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 14

O-15 **ゼオライトの精密設計を目的とした非周期系原料及び結晶ゼオライトの原子・ナノスケール PDF 解析**
脇原 徹（東京大学） ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 15

O-16 **光電子ホログラフィーによる半導体中のドーパント局所構造解析**
筒井 一生（東京工業大学） ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 16

O-17 **位相差イメージングによる心臓刺激伝導系形態解析 ーさらなる知見創出と社会貢献に向けてー**
篠原 玄（東京慈恵会医科大学） ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 17

0-01

SPRUC がやるべきことと施設への期待

SPRUC 会長（関西学院大学）
水木　純一郎

ついに今年度、第三世代 3GeV 放射光計画が動き出しました。これは SPring-8 の多くのユーザーにとっても長年の夢が実現に向かうことになり、SPRUC の期待される役割や行動もそれを意識したものにならなければいけないでしょう。しかし、状況や環境が変化しようとも、SPRUC に期待されることは、SPring-8 を利用して世界に誇る素晴らしい成果を輩出し、人類社会の発展に貢献することであることは変わりありません。このことを常に頭に置き、これから SPRUC がしなければいけないこと（期待される働き）と、施設へ期待したいことを考えてみたいと思います。

【SPRUC がやるべきこと】

・**SPring-8 次期計画（up-grade 計画）に向けた研究会の開催・研究組織の形成。**
3GeV 放射光計画が動き出したことを受け、SPring-8 の up-grade 計画がいよいよ本格化することが期待されます。SPring-8 がユーザーのための施設であることを考えると up-grade 計画に SPRUC が果たす役割が大きいでしょう。世界の研究動向を正確に把握し、国際的な研究競争を有利に進めるために必要なX線や新規な実験手法を提案していきたいと考えています。そのためには、up-grade 計画に向けた研究会の開催や研究組織を形成し、施設側と密な議論をしなければいけません。SPRUC には、現在 BL 高性能化検討作業部会が設置されています。これを発展させることで次期光源計画を見据えた新しいサイエンス開拓の取り組みや施設整備計画についての意見を取り纏め、施設側との議論・情報交換を継続的に行うことも必要と考えています。

・**SPRUC と施設が継続的に議論するための仕組みづくり。**
上に述べたような目的のために、SPRUC と施設側とが継続的に議論できる仕組みが必要です。ユーザーの考えていることがタイムリーに施設側に届き、また施設が抱えている問題があればそれらをユーザーが共有することによってより良い方向に向かうでしょう。

・**産業界を含めた裾野拡大の取り組み。**「産業は学問の道場である」と言われるように、産業界からのユーザーが増えることにより、世界に誇る成果の輩出や人類社会の貢献へと繋がっていくでしょう。SPRUC が主催する「秋の学校」が 2017 年から実施されており、これには産業界からの参加者も多くみうけられ今後、ユーザーとして参画されることを期待しています。

・**分野融合型研究活動の活性化。**現在、2 つの分野融合型研究グループが形成され活動されています。このグループの数を増やし、「さすが SPring-8」と社会を唸らせる成果創出に貢献したいと考えています。
また、SACLA のユーザー協同体である SACLA-UC とサイエンスを基盤とした連携を強化していくことも世界に誇る成果輩出には必要でしょう。

【施設への期待】

・**ビームライン(BL)のスクラップ＆ビルド。**BL 高性能化検討作業部会から放射光利用の今後の方向性として、（1）既存計測の自動化・汎用化、（2）既存計測の技術の高性能化による科学・技術の連続的発展、（3）既存技術では実現できない新しい計測技術による革新的な理工学の開拓、の 3 つのカテゴリーに分けられることが報告されている。これらに答えていただくためには、（1）では裾野ユーザー、ポテンシャルユーザー等も利用可能な BL の整備、（2）ではトレンド・ニーズに合わせた BL のスクラップ＆ビルド、（3）では革新的実験探究のための BL の整備、を期待いたします。

・**「仕組み」つくり。**上記 3 つを進めるためには、長期的に狙うべきサイエンスを議論しそれを評価する仕組み、挑戦的な新規手法の開拓を促進する仕組み、既存ビームラインを評価する仕組みを組織していただくことを期待しています。

O-02

利用者の動向と施設の対応

理化学研究所放射光科学研究センター
石川 哲也

平成30年度に、東北での3GeV放射光計画が動き出し、わが国は二つの第3世代放射光施設を持ち、それらを相補的に利用する体制を考えることが可能になった。もとより東北放射光計画は、今日産業界の利用が増大し一層の強靭化を求められているわが国の放射光科学研究体制の強化の一環として計画され、SPring-8 としてもこれが実現しなければ 1 年間シャットダウンして次世代施設へのアップグレードが不可能であることから全面的に応援してきたものであり、今後もその応援は続けていく。一方で言うまでもないことではあるが SPring-8 の将来構想は相補的施設が別に存在することを意識して構築することが必要となった。共用開始以来20余年を経過した施設を取り巻く社会の変化は、SPring-8の運営の在り方に相当の変革を迫るものである。20年間社会の様々な要請に応えてきた一方で、この間ずっと世界の一線級に留まってきたというわが国の共用施設としては稀有な経験を利用者と施設で共有し、その上に完成後20年程度は世界の一線で活躍できる施設を目指す将来計画を作るべきであろう。

この一年を振り返ると、昨年秋開催した共用開始20周年記念式典に、世界の放射光施設の責任者のほぼ全員が駆けつけてくれたことは、SPring-8 の放射光科学の中での位置づけを端的に示すものであり、ある種の期待の高さを感じさせるものであった。この式典は建設とその後の発展にお世話になった皆様への感謝と、今後の展開に向けて決意を新たにする目的を十分に達成したと感じているが、今後もお題目だけではない「利用者本位」を施設者・登録機関が協力して、また利用者団体である SPRUC の意見を十二分に取り入れながら実現させていかなければならない。世界の状況をみると、「電子ビームエミッタンス」という単一のパラメータのみに着目し、他は殆ど顧みない無謀とも思える次期計画が乱立している。SPring-8 の次期計画は、様々なパラメータのバランスをとったものとなっており、先進的な利用者にとっても海外施設に引けをとらないパフォーマンスを発揮するものと確信している。しかしながら、ヨーロッパでの各国放射光施設の連携の動き(The League of European Accelerator-based Photon Sources; LEAPS)、アメリカ・エネルギー省の米国内量子ビーム施設の統合的整備計画、中国での中央政府による北京、上海、合肥の基軸施設整備と、武漢、西安、重慶、東莞などの地方政府主体の放射光施設計画の林立などの状況を見るにつけ、日本全体でしっかりとした役割分担を決めて進まないと、日本が未だに優位性を保っている量子ビーム領域ですら近い将来、海外の後塵を拝すことになる可能性は否定できない。

共用開始からの20年の間に、放射光科学研究のフロンティアは急速に拡大し、放射光の有用性の認知度は産官学を問わず格段に向上してきた。このことは、SPring-8が20年前に定義し、その後大きな変更なしに使い続けてきたビームラインのポートフォリオを再定義することを迫っている。また新たに放射光利用を始めたい研究者人口は増大を続け、彼らの放射光科学への取り組み方は20年前とは全く違う。産業利用分野はSPring-8が世界の先頭を切って走ってきたが、東北での3GeV計画はSPring-8の産業利用に不満を持つ層を相手に盛んな売り込み活動を展開し一定の成功を得ている。SPring-8では、産業界にどのような不満があるかを分析し、それを修正していくことが急務である。一方で成果占有利用の明確化に関して監督官庁等からの様々な要請もあり、どこかの時点で時代に即した形に整理する必要がある。

SPring-8-II は現状の SPring-8 と比較して輝度で 100 倍程度を狙っており、ある種の計測に関しては高速なデータ収集が可能になる。また多くの計測で AI 等を援用した自動化が進むことになろう。その際に、ビームラインの垣根を外した最適化を行うことにより、全体のスループットは格段に向上することが期待される。しかしながら垣根を外すことには制度的な障害もあるので、これからアップグレードまでの間にどのような「高度化」が可能か、施設者・登録機関・利用者間で、アップグレード以降の20年程度は世界の一線級に踏みとどまることが可能な制度改革を進めていく必要があろう。またその際には、SACLA, SCSS, NEW SUBARU 等とどのような相乗作用を生じさせるかも、真剣に考慮せねばなるまい。

O-03

ビームラインポートフォリオと先端ビームライン提供の展望

高輝度光科学研究センター
櫻井　吉晴

SPring-8 は、供用開始以来 20 年が経過し、ビームラインポートフォリオを再定義する時期を迎えている。建設当時に設定された共用ビームライン、専用ビームライン、理研ビームラインの枠組み（当初、原研ビームライン含む）は、建設期から充実期に至る成長期においても維持されてきた。現在では、挿入光源と偏向電磁石を含めた計 57 本のビームラインが稼働するに至り、物質・材料科学、生命科学、産業応用などの幅広い分野の課題解決に貢献している。現在、日本発の総論文数の 1%強にあたる 1000 報の論文が毎年発信されるなど、多くの質の高い研究成果が SPring-8 で創出される中、現ポートフォリオにおける限界も見えてきている。

その一つとして、先端ビームラインの整備と先端計測技術の一般ユーザーへの提供の問題をあげることができる。この具体例を示すために、X線回折実験が可能な挿入光源ビームラインについて、PETRA-III と SPring-8 を比較したものを表１に示す。PETRA-III はドイツのハンブルグにある 6 GeV の大型放射光施設で、現在、19 本の挿入光源ビームラインが稼働している（SPring-8 は 34 本）。PETRA-III は全て共用のビームラインからなり、そのうち 5 本を特長あるX線回折専用の先端ビームラインとして整備している。一方、SPring-8 では、8 本の挿入光源ビームラインにおいてX線回折実験が可能であるが、一般ユーザーにとって利用可能なビームラインは 3 本の共用ビームラインに限られる。また、多くのビームライン（共用、専用とも）では、他の計測手法と共存していることもあり、SPring-8 全体として特長あるＸ線回折装置を装備した先端ビームライン群として見えてこない。

同様なことは、SPring-8 の HAXPES や XAFS など計測手法においてもみられ、先端ビームラインの整備に関して、共用/専用/理研ビームラインの枠組みを越えたビームライン間の強い協調が求められている。

SPRUC から毎年提出される「SPring-8 の利活用促進および成果創出の最大化に資する利用者の動向調査」には、In-situ/オペランド、複合同時計測などの具体的な高性能化項目の提案がある一方で、汎用的装置と先端的装置の両方の整備の重要性を指摘するコメントが多く見受けられる。同報告書は、現ユーザーの声を反映しているものであるが、汎用と先端という枠組みは、ポテンシャルユーザーの要求にも応えるものと考えている。

本講演では、限りある SPring-8 の資源を最大限に活かすために、SPring-8 の全ビームラインを、⑴ ハイスループットを指向する汎用ビームライン、⑵ フロンティア研究を行う先端開発ビームライン、⑶ 10～20 年のスパンで未踏領域をターゲットとする挑戦的なビームライン、として再定義することを示し、次期光源に向けたビームライン整備について議論したい。

PETRA-III	SPring-8
P02: Hard X-ray Diffraction P08: High Resolution Diffraction P09: Resonant Scattering and Diffraction P23: In-situ and Nano-diffraction P24: Chemical Crystallography	BL13XU: Surface and Interface Structures (P) BL15XU: WEBRAM(NIMS) (C) BL16XU: SUNBEAM ID (C) BL22XU: JAEA Actinide Science (C) BL24XU: HYOGO ID (C) BL28XU: RISING II (C) BL40XU: High Flux (P) BL46XU: Engineering Science Research III (P)

(P)共用ビームライン、(C)専用ビームライン

表１：　SPring-8 と PETRA-III の現状比較（X 線回折）

0-04

ユニークな基幹技術による世界との差別化

高輝度光科学研究センター
矢橋 牧名

マルチベンドアクロマット（MBA）技術の進展とともに、放射光源の高輝度化・低エミッタンス化の流れが世界各国で加速している。ESRF は、2019 年に運転を停止し、約 1 年間かけて新しいラティスへの入れ替えを行なう。APS は 2023 年に MBA リングへのアップグレードを計画している。さらに、中国は、北京郊外に 6GeV の High Energy Photon Source（HEPS）の新設を決定し、2025 年に完成を予定している。

利用の側でも、高輝度性を活かす計測手法は大きく発展しており、コンベンショナルな手法の多次元化（例: 3DXRD）とともに、タイコグラフィや Bragg CDI 等、コヒーレンスを積極的に活用した手法による実用材料の解析もはじまった。

このような高度な利用を実現するには、先端要素技術による裏打ちが不可欠である。X 線光学系に関しては、SPring-8/SACLA は依然世界をリードする存在である。大阪大学によって開発されたナノ集光 KB ミラーは、高効率で色収差がない優れた集光システムであったが、その後コマ収差をなくした Advanced KB（AKB）ミラーへと発展し、次世代の結像・集光光学系として準備が進められている。コンベンショナルなチャンネルカット分光結晶は、無歪みプラズマエッチングの活用によってリバイバルを迎えており、世界各国からの引き合いがはじまった。また、2 次元検出器については、SACLA 向けの MPCCD に引き続き、17kfps という高速のフレームレートを有する積分型検出器 CITIUS の開発が進められ、2020 年には SPring-8 においてプロトタイプ機のテストを開始する予定である。

しかしながら、これまで SPring-8 では、これらの独自の先端要素技術を組み合わせながら総合的な「実験システム」を構築し活用する取り組みが弱かった。この欠落こそが、「多数の 1.5 流エンドステーション」と呼ばれる現在の状況を招いた要因の一つといえよう。この状態を打開するには、いくつかのアプローチが考えられる、その一つとして、モデルとなるパイロットビームラインの構築がある。ナノイメージングや高エネルギー利用といった今後の鍵となる分野をターゲットにして、世界で最も競争力の高いビームラインを設計・実現し、将来を先取りすることは、当該分野にとどまらない幅広い利用者層にとって極めて有用であろう。

一方で、これらのビームライン・エンドステーションには、検出器からの膨大なデータを扱う大容量・高速 DAQ と、ナノポジショニング等の精密制御システムの導入が必須である。SACLA の経験から敷衍すると、このようなシステムは、開発は勿論のこと、維持・保守管理ですら相当のリソースを要することが想定される。したがって、先進システムが少数の「ショーケース」にとどまらず広く普及していくフェーズを見越すと、施設の取り組みとして、エンドステーションについてもリソースの共有化を図り、効率的かつ持続的な運用を可能とする仕組みを考えていく必要がある。これは、技術面のみならず、共用・理研・専用ビームラインといった既存の枠組みにも再考を迫るものである。

新しい技術が新しいサイエンスを生み出し、運用システムも合理的に刷新される、このような健全な発展が促進されるよう、SPRUC の皆様と議論を深めていきたい。

O-05

新しい利活用を拓く研究会

SPRUC 利用委員長／東京大学・理研
有馬孝尚

2012 年に設立された「SPring-8 ユーザー協同体」(SPRUC)は、SPring-8 のすべての利用者を会員とする形のユーザー組織で、その最大の目的は、SPring-8 の有効な利活用です。利活用をより高度なものにすることで、放射光科学、ひいては、科学技術全体の発展に協力することを謳っています。利用委員会は、この目的を具現化するための組織です。

一方で、放射光科学は広い学術分野と関係しているため、ボトムアップの活動は、各研究会が行う形をとっています。SPRUC の研究会の目的は、SPring-8 を利用するサイエンス・実験技術の発展に協力し、SPring-8 の利用促進をユーザーサイドから推し進めることとされています。多くのユーザーが各研究会で意見を出し、研究会ごとに議論の上集約されて利用委員会に伝えられ、それを利用委員会が取りまとめて SPring-8 側に伝え、その意見が吟味されたのちに SPring-8 利活用の促進、施設の高度化などの将来計画に反映されていくのが理想的な形です。

一方で、研究会の成り立ちを考えると、その構成員や活動内容の刷新は容易ではありません。ほとんどの場合、研究会に属している構成員のうち意見を述べるのは比較的少数のメンバーに限られます。SPRUC では２年ごとに研究会を更新していますが、組織の改廃はごく稀です。万が一、主要メンバーや活動内容が変化しない研究会が実質的に運営するようなビームラインがあると、研究会活動を通じた利活用の促進は夢物語となってしまいます。

では、研究会活動を常に進化させるにはどうすればよいのでしょうか。ここで、「作業量を増やすことで活動が活性化した気になる」という状態に陥らないように気を付ける必要もあります。無意味な作業量を増やすことなく活動を活性化させるというのは容易ではないからです。昨年度から今年度にかけての研究会更新の際には、２年間の研究会活動のうちデータ化できている部分についてのみ利用委員会のほうで簡単な確認を行い、いくつかの研究会には提言をする形をとりました。もちろん、これだけで研究会が活性化するはずはありません。各研究会の内部から「こういう新しいことに挑戦したい」という声が出てくるようになって初めて、新しい利活用を拓くことが可能になります。

そのためには、どのような手段を講じればよいのでしょうか。各研究会が具体的な短期・中期の目標（手法開発や実験技術向上など）を明示し、少なくとも研究会の構成メンバーの間で、できれば、外部とも、意識共有できるような形にするのも一つの案だと思います。各研究会の活動について自己点検が進むようになれば、それが研究会の活性化につながることを期待するのですが、いかがでしょうか。シンポジウムではこのような点について議論を行いたいと思います。その結果を受けて、例えば、研究会設置申請書の「活動目標」の記載内容を変更する必要があるかなど、具体的な案にして検討したいと思っています。

0-06

放射光により生成されたガンマ線による
原子・分子のダイナミクス測定法の開発とその多様な応用研究

京都大学 複合原子力科学研究所
齋藤　真器名

物性研究に最適化された高輝度放射光の登場など、近年の量子ビーム科学の発展に伴い、物質中の微視的な構造に関する知見は飛躍的に増大した。一方構造に加えて、その微視的な運動性も物質の粘性や電気伝導性などのマクロ物性を決定づける主たる要因であるため、その理解は大変重要である。しかしながら、科学技術が発展した現代においても物質中の微視的な運動の全体像を知ることは未だに不可能であり、物質科学のさらなる進展を妨げている。特に原子・分子が、ナノ秒～ミリ秒の時間スケールで運動している場合、X 線や中性子を用いてもその観測は大変困難であった。

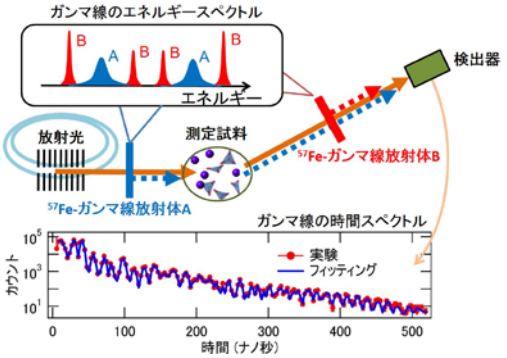


図 1. 多色ガンマ線を用いた準弾性散乱実験の概念図とガンマ線のエネルギー時間・スペクトル。

単色ガンマ線を用いた準弾性散乱法は、ナノ秒～マイクロ秒の原子・分子スケールのダイナミクスの測定を可能とする手法である。[1,2] この方法では、14 keV の放射光により ^{57}Fe 原子核を励起し、励起原子核が寿命 140 ns 程度の後に脱励起した際に弾性的に放射されるガンマ線に着目する。このガンマ線は 14 keV のエネルギーを有し、4.6 neV のエネルギー幅を有する極めて単色で比較的高い指向性を有する光である。測定試料にこの単色ガンマ線を照射して、散乱ガンマ線の単色性の変化を調べることで、散乱を測定した散乱角（すなわち運動量移行）に対応する空間スケールの構造の運動の時間スケールを知ることができる。近年開発した多色なガンマ線を用いた新手法は、図1に概念図を示すように複数の異なる波長を有する単色なガンマ線を時間領域上で干渉させ、その複雑な干渉パターンからダイナミクスの情報を高効率で得るというユニークな装置系となっており、これまでの単一の波長のガンマ線を用いる手法に比べて大変迅速かつ高精度に原子・分子ダイナミクスを測定可能となっている。[2]

本新手法により、過冷却液体、高分子、ガラス、液晶、脂質膜のモデル系、タイヤのモデル系など様々な系に対し応用研究が可能となってきた。特に液体－ガラス現象のメカニズムの解明は物性物理学の最も解決困難な問題の一つと言われ、その解明に向けて興味を持って取り組んでいる。我々は、深く過冷却した液体中で原子・分子の拡散運動がガラス転移に向けて徐々に凍結していく中で、過冷却液体状態においても固体で起こるような局所的な活性化過程が起こることやその特性を明らかにしている。[3] さらに物性の基礎理解を通じて産業開発につなげる目的で、ゴムやタイヤのモデル系に関する応用研究を推進している。[4,5] また、高級アルコール中のナノ構造ダイナミクスと分子ダイナミクスをそれぞれ測定し、液体の粘性の構造的な起源を明らかにしている。[6] 液晶などのソフトマターにおいても本手法で分子運動性が直接測定可能なことを実証しており、分子ダイナミクスの情報から局所的な分子の配向秩序など、マクロ特性の基礎理解に重要な知見が得られている。[7] このように、本手法はこれまで不可能であった様々な研究を可能とし、放射光を用いた物性研究のさらなる可能性を切り開くものであると考えられる。

参考文献

1) A. Q. R. Baron, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2823 (1997).
2) M. Saito, R. Masuda, Y. Yoda, and M. Seto, *Sci. Rep.* **7**, 12558 (2017).
3) M. Saito, S. Kitao, Y. Kobayashi, M. Kurokuzu, Y. Yoda, and M. Seto, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 115705 (2012).
4) T. Kanaya, R. Inoue, M. Saito, M. Seto, and Y. Yoda, *J. Chem. Phys.* **140**, 144906 (2014).
5) M. Saito, R. Mashita, R. Masuda, H. Kishimoto, Y. Yoda, and M. Seto, *Hyperfine Interact.* **238**, 99 (2017).
6) T. Yamaguchi, M. Saito, K. Yoshida, T. Yamaguchi, Y. Yoda, and M. Seto, *J. Phys. Chem. Lett.* **9**, 298 (2018).
7) M. Saito, M. Seto, S. Kitao, Y. Kobayashi, M. Kurokuzu, J. Yamamoto, and Y. Yoda, *J. Phys. Soc. Jpn.* **81**, 023001 (2012).

0-07

微小結晶タンパク質 X 線結晶構造解析を加速する自動データ処理システムの開発

東京大学・院理，理研・SPring-8
山下恵太郎

X 線結晶構造解析は生体高分子の構造を精密に決定する非常に強力な手法であり，光源・検出器・試料調製技術などの進歩によって構造決定に必要な時間・労力を含むコストは大幅に削減されてきた．しかしながら，生命機能の解明に重要な膜タンパク質等の解析難度は高く，簡便に解析が可能な 20–30 μm 以上の大きさの結晶を得ることは一般に難しい．結晶が微小な場合，バックグラウンドを抑え S/N 比を最大化するためには結晶サイズと一致したビームサイズを用いることが重要である．近年 SPring-8 の BL32XU や BL41XU 等で利用可能になった高フラックスマイクロビーム X 線を用いることで，微小結晶からのデータ収集は現実的なものとなった．しかしながら，微小結晶からのデータ収集には多くの問題がつきまとう．その根本的な原因は放射線損傷である．タンパク質結晶への X 線照射による許容吸収線量は決まっており，微小結晶においては照射可能な光子数は大きく制限されるため，数–10 μm 角程度の微小結晶から高分解能なデータを得るには多数の結晶が必要になる．我々は BL32XU において微小結晶を用いた構造解析手法の発展に取り組んできた.

はじめに，多数の微小結晶を用いた高効率データ収集を実現した．微小結晶は試料ホルダ上では顕微鏡下でも視認できなくなることが多く，微小結晶に正確に X 線を照射するためには X 線による試料ホルダの走査(回折スキャン)が必須である．2 次元回折スキャンの結果を迅速に解析するため，結晶位置探索ソフトウェア SHIKA を開発した．SHIKA は検出器イメージから高速に回折斑点の探索を行い，回折斑点の数や S/N 比に基づいて結晶の位置をマッピングするソフトウェアである．結晶位置情報は，吸収線量に基づくデータ収集ストラテジ計算プログラム KUMA [1]にスムーズに渡すことができ，これにより回折スキャン終了後即座にデータ収集を開始することが可能になった.

次の課題は，多数の結晶から収集された大量の回折イメージを処理する方法である．1 つ 1 つの結晶から収集された個別のデータはほぼ通常通りの方法で処理が可能だが，結晶ごとの個性を反映した個別のデータをまとめて 1 つのデータにするには同型なデータに分類し，さらに異常値を示すデータを排除する仕組みが必要である．そこで，多数の結晶から収集されたデータの処理を自動化するソフトウェア KAMO を開発した．KAMO は結晶個別のデータを自動処理し，格子定数に基づいて分類，空間群を判別，さらに階層的クラスタリング法によって同型性による分類を試み，各クラスタについて異常値を示すフレームまたは結晶の棄却を行いながらスケール・マージし，最良クラスタの決定を行う．KAMO によって，数百個以上の結晶を用いた場合でも構造解析を簡便に行えるようになった．KAMO は GitHub にてオープンソース下で公開されており，既に国内外を問わず利用されている[2].

さらに，我々はこれらのプログラムを含めた自動データ収集システム ZOO を開発し，試料交換を含めた自動測定が可能になった．これらの開発によって微小結晶を用いたデータ収集が大幅に効率化され，高難度試料の構造解析に多数貢献することができた．今後も多くの構造解析の助けになれば幸いである．BL32XU ユーザの皆様ならびに SPring-8 PX-BL のスタッフの皆様にはこの場を借りてお礼申し上げる.

参考文献

1) Hirata, K. *et al*. (2016) “Structural biology with microfocus beamlines.” In: Adv. Methods. Struct. Biol. Springer Protocol Handbooks. pp. 241–273.
2) K. Yamashita, K. Hirata and M. Yamamoto (2018) “KAMO: towards automated data processing for microcrystals.” *Acta Cryst. D***74**, 441–449.

O-08

「SPRUC 分野融合研究」から「放射光活用科学・新分野創成」へ
ー 実用・応用課題に潜む広域的本質・コンセプト発掘 ー

"From fusion of several research fields to novel creative scientific fields through Synchrotron radiations"

'Overlooking the real application materials provide some scientific essences and concepts.'

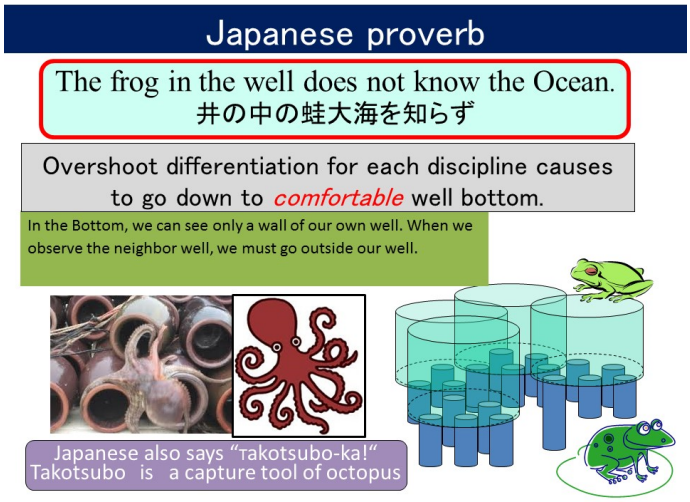
SPRUC 分野融合研究(実用)世話人

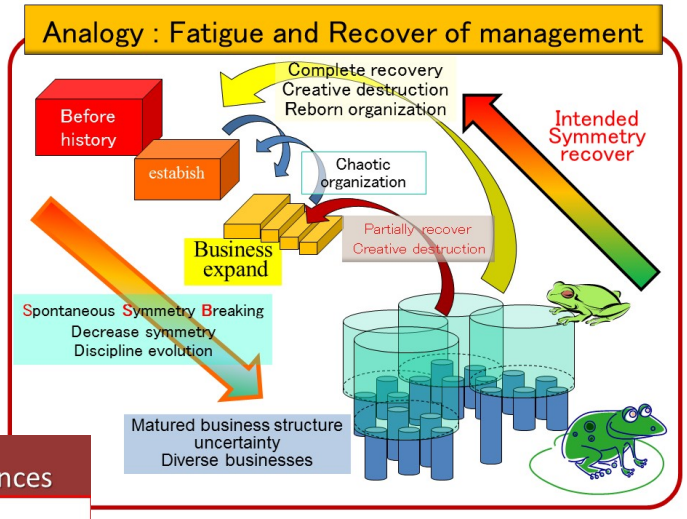
高尾 正敏

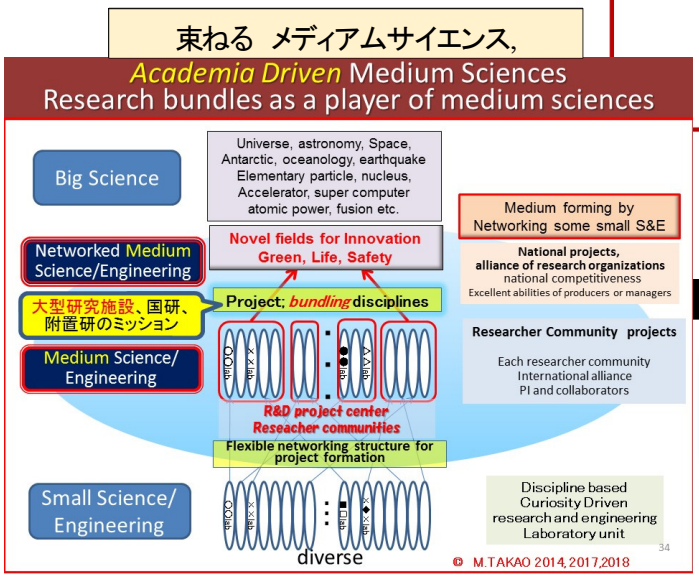
ここ数年 SPRUC 分野融合研究を担当させていただいていることと、企業での研究開発マネージメントの経験から、標記話題について、下記の幾つかのキーワードを通してお話しさせていただきます。4つの図面はキーワードの一部をマンガ的に示したものです。

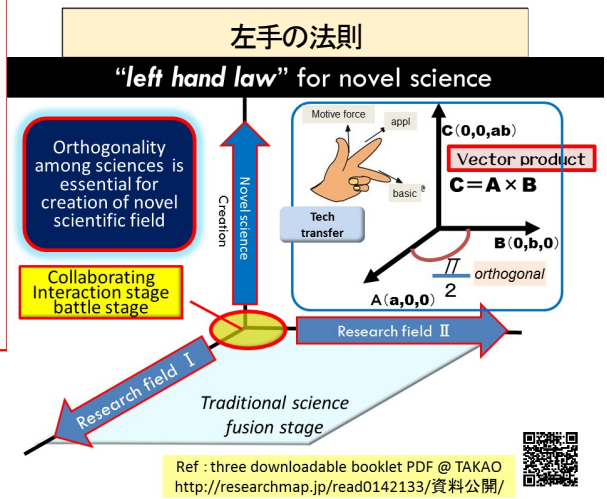
>>キーワード：

●何のため？ 誰のため ●国際競争力 ●分科と統合 ●居心地よい井戸 ●「井の中の蛙」は創造的か？ ●制度疲労と回復 ●ボトムアップとトップダウン ●実用からのバックキャスト ●分野融合研究実現確率は？ ●新分野創成へ向けての行動は？ ●スモールサイエンスからメディアムサイエンス ●まずは束ねて、その先に新奇分野 ●「融合」と「バトル」●和ではなく積 ●成功確率の推定・設定 ●千三つ・万が一？ ●適切なステージゲート設計 ●左手の法則 ●理研・JASRI・SPRUC の役割は？ ●新規分野を生み出す場（ステージ）の提供 ●etc









参考資料: 下記よりダウンロード頂けます
http://researchmap.jp/read0142133/資料公開/
資料#008、#001, #002 ,,,

Ref : three downloadable booklet PDF @ TAKAO
http://researchmap.jp/read0142133/資料公開/

O-09

計測を指向する機械学習手法の開発と応用

大阪大学 産業科学研究所
鷲尾 隆

これまでX線構造解析処理やレーダー信号処理をはじめとした複雑な計測原理を用いる分野では、計測装置出力データに計測過程モデルなどを用いた数理的推定処理を施し、目的結果を得ることが主に行われて来たが、あくまでも計測過程や装置に関する既存の知見に基づく補完的な情報処理が主体であった。一方現在では、情報科学や統計数理の分野において、機械学習などデータから知見を自ら収集可能な新しい推定処理の方法論が急速な発展を遂げており、これらを導入することで、計測装置やその既存知見だけでは十分な推定を行うことが困難な問題に対し、より高精度な計測を実現しうる可能性が急速に増大している。このような新しい解析処理の方法論を主体的に計測情報処理に導入することで、大量原子・分子の種類や位置の高精度計測や柔軟で実用的な各種センサーなど、従来限界を超える計測の実現が期待される。

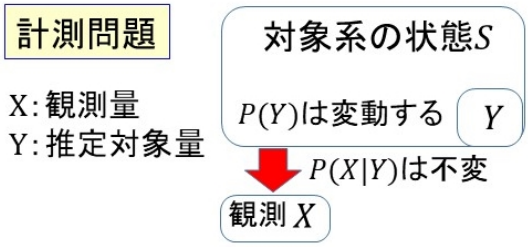


図1. 計測問題の一般的枠組み.

しかしながら、既存の機械学習をそのまま計測問題に適用するだけでは不十分な場合が多い。標準的な機械学習の問題設定は、与えられた対象母集団分布 P(X,Y)から標本化されたデータ集合から、X から Y を推定する何らかのモデルを自動的に得ることである。一方、計測の問題設定はこれと異なり、図1に示すように、例えば任意の位置と速度と質量を有する対象について速度のみを推定するというように、未知である対象状態 S の中で着目する部分的な状態量 Y のみを、たとえ S の未知な変動によって Y の分布 P(Y)が変動しても、新しい1つの観測結果 X から P(Y)の変動の影響を極力排除して Y を高精度に推定するモデルを必要とする。従って、従来の機械学習の方法論をそのまま計測のためのモデル化に適用すると、測定したい対象量以外の変化の影響を受けやすく、かつ学習に用いたデータと同じ母集団分布が成り立つ狭い条件でしか使用できない計測手法となってしまう恐れがある。

そこで我々は、機械学習の諸原理を利用しつつも、学習に用いる母集団分布や計測対象以外の状態量の変動影響を受け難いロバストな計測のためのモデル化の方法論を探求している。本講演では、計測装置の計測過程分布 P(X|Y)は、多くの場合に計測対象の状態分布 P(S)や P(Y)とは独立不変に構成されることを利用し、その不変性を陽に利用した高性能な機械学習アルゴリズムが構築可能であることを示す。そして、その方法論を用いることで、「ナノギャップを用いた1分子計測装置における高度ノイズ除去」や、「膜型表面応力センサーを用いたフレキシブルな嗅覚センシング」を実現した最新の研究事例を紹介する。

参考文献

1) Takashi Washio, Gaku Imamura and Genki Yoshikawa, Machine Learning Independent of Population Distributions for Measurement, Proc.. DSAA2017: 4th IEEE International Conference on Data Science and Advanced Analytics, DOI: 10.1109/DSAA.2017.28 (2017)
2) 鷲尾 隆, 谷口正輝, 大城敬人, 吉田 剛, 吉川元起, 今村 岳, 計測指向機械学習の探求, 第65回応用物理学会春季学術講演会, Sシンポジウム, S19 先端計測と機械学習の融合 (2018)
3) 吉田 剛, 鷲尾 隆, 大城 敬人, 谷口 正輝, 計測ノイズ除去に向けた PU 分類学習原理の検討, 人工知能学会全国大会予稿集, 2P3-01 (2018)
4) Gaku Imamura, Kota Shiba, Genki Yoshikawa, and Takashi Washio, Analysis of nanomechanical sensing signals; physical parameter estimation for gas identification, AIP (American Institute of Physics) Advances, Vol.8, pp 075007 (2018)

O-10

X 線自由電子レーザーSACLA を使った超高速サイエンスの開拓

高輝度光科学研究センター
片山哲夫

超高速で起こる現象を実時間で観測するには、パルス光を使用するポンプ・プローブ法が有力です。これまでその光源は、赤外～紫外光領域のレーザーが主流でしたが、近年、フェムト秒の極短パルス幅を有する X 線自由電子レーザー（XFEL）SACLA の運転開始により、X 線領域でのポンプ・プローブ法への道が拓かれました。プローブ光として XFEL を利用すると、原子レベルの時間（フェムト秒）・空間（オングストローム）分解能を併せ持つ革新的な「分子動画」を撮影できるため、広範な学術分野で新奇性の高い研究が展開されています。

XFEL を使った超高速サイエンスを推進するには、光源性能を最大限引き出すための基盤テクノロジーの開発・整備が必要不可欠です。例えば、XFEL と赤外～紫外光領域の同期レーザーを組み合わせるポンプ・プローブ X 線計測では、２つの独立した光源からのパルス光を完全に同期させることが技術的に難しく、タイミングが揺らぐことが知られています（ジッター）。フェムト秒の時間分解能を達成するためには、このジッターを実験と並行して計測し、データを補正しなければなりません。SACLA ではビームブランチング法（図 1a）を利用した光診断システム「アライバルタイミングモニター（図 1b）」[1,2] が 2016 年より共用され、様々な研究に応用されています。

本講演では、このような基盤テクノロジーが利用研究にどのようなインパクトをもたらすのかについて最新の成果を紹介します。

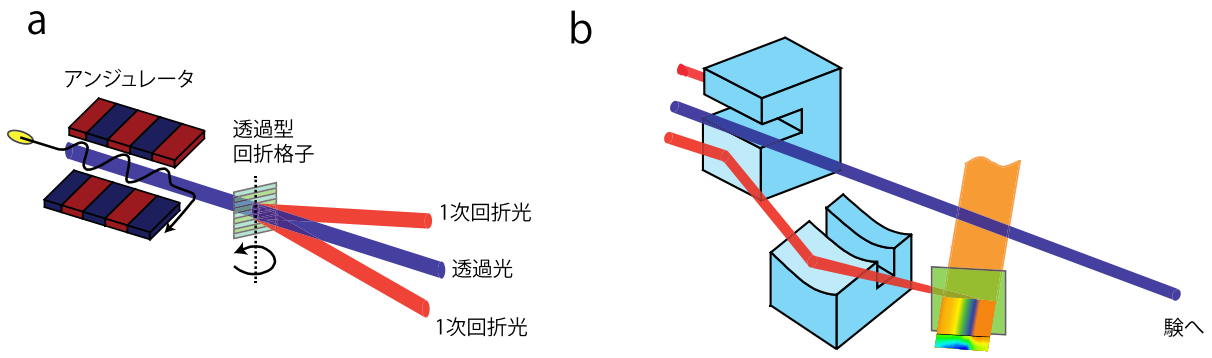


図 1. (a) ビームブランチング法模式図。(b) アライバルタイミングモニター模式図。

参考文献
1) T. Katayama et. al., Struct. Dyn. 3, 034301, (2016).
2) T. Sato et. al., Appl. Phys. Express 8, 012702, (2015).

O-11

構造生物学におけるSACLA時分割構造解析の展望と課題

兵庫県立大学大学院生命理学研究科
久保 稔

タンパク質は高分子ゆえの柔らかさを利用して，大域的かつ局所的に構造を変化させながら機能している。したがってその機能発現の分子メカニズムを理解するためには、タンパク質の動的性質やダイナミクスを理解することが重要である。X線自由電子レーザー（XFEL）を用いた時分割結晶構造解析は、反応過程にあるタンパク質の構造変化を原子分解能で観察できるため、現在発展しつつある「動的構造生物学」の先端手法として期待されている。我々は、ミクロの反応過程がマクロな構造変化へと繋がっていくナノ秒～ミリ秒の時間スケールに狙いを定め、ナノ秒の時分割ポンプ-プローブ測定により[1]、タンパク質の構造ダイナミクスを動画観察してきた。その結果、光駆動プロトンポンプ（bR）のほか、光合成系タンパク質（PSII）や呼吸系タンパク質（CcO）などのエネルギー変換膜タンパク質において、構造変化が分子機能と結びつく様子を捉えることに成功している[2-4]。構造生物学において時分割結晶構造解析をさらに発展させるためには、今後2つの課題に取り組むことが重要である。

1つは、光感受性タンパク質以外の系への研究展開である。光感受性タンパク質の光反応は、簡便なポンプ-プローブ法が適用可能であるため黎明期の研究対象に適しているが、大部分のタンパク質は光刺激ではなく化学刺激で作動する（光感受性タンパク質は全タンパク質の1%未満）。この課題解決に向けて、タンパク質微結晶とリガンド飽和溶液の急速混合で反応を開始するmixingデバイスの開発が、いま世界的に進められている。一方で我々は、光励起によってリガンドを放出するケージドリガンドの活用を進めているところである[5]。もう1つの課題は、結晶場のダイナミクスへの影響を評価することである。これには時分割レーザー分光が有用である。我々は、微結晶を測定できる顕微タイプの時分割紫外-可視・赤外吸収分光装置をoff-lineに立ちあげ、結晶相と溶液相のダイナミクスを分光で比較しながら、時分割結晶構造データを評価・意味付けした。bR, PSII, CcOいずれの時分割構造解析においても、実際に結晶中で起こることを分光法でモニターし、機能研究と結びつけながら進めたことが成功の鍵であった。本発表では、時分割結晶構造解析の研究例を紹介しながら、これら今後の課題について議論する。

参考文献

1) Kubo et al. Nanosecond pump-probe system for time-resolved serial femtosecond crystallography developed at SACLA. (2017) J. Synchrotron Rad. Vol. 24, 1086-1091.
2) Nango et al. A three dimensional movie of structural changes in bacteriorhodopsin. (2016) Science Vol. 354, 1552-1557.
3) Suga et al. Light-induced structural changes and the site of O=O bond formation in PSII caught by XFEL. (2017) Nature Vol. 543, 131-135.
4) Shimada et al. A nanosecond time-resolved XFEL analysis of structural changes associated with CO release from cytochrome c oxidase. (2017) Sci. Adv. Vol. 3, e1603042.
5) Tosha et al. Capturing an initial intermediate during the P450nor enzymatic reaction using time-resolved XFEL crystallography and caged-substrate. (2017) Nat. Commun. Vol. 8, 1585.

O-12

放射光を利用した燃料電池・蓄電池反応の時間追跡

東北大学　多元物質科学研究所
雨澤　浩史

化石燃料枯渇などの資源問題や地球温暖化などの環境問題に対応するためには，「省エネ」とならび，「創エネ」，「蓄エネ」技術の確立は喫緊の課題である。また，2011 年の東日本大震災以降，レジリエント社会の構築という社会的ニーズからも，これらの技術に対する期待は更に高まっている。「創エネ」，「蓄エネ」技術としては，例えば太陽光や風力などの再生可能エネルギー利用に代表される様々な技術の研究開発がなされているが，それらのなかでも，物質のもつ化学エネルギーを電気エネルギーに直接変換できる化学電池はその中核を占める技術であると言えよう。

水素に代表される化学燃料の燃焼反応を電気化学的に進行させることにより電気エネルギーを取り出す燃料電池は，原理的に高いエネルギー変換効率を達成し得ることから，小規模分散型および大規模集中型発電用，あるいは移動体用の電源として既に商用化が始まっている。現状では，低温作動の燃料電池（固体高分子形，PEFC）の普及が先行しているが，それと並行して，高温作動の燃料電池（固体酸化物形，SOFC）も，より高い変換効率を有する次世代燃料電池として市場導入が進められている。

一方，電気エネルギーを蓄えて繰り返し利用することができる蓄電池（二次電池）は，鉛蓄電池からリチウムイオン二次電池に至るまで，携帯機器や移動体の電源として，我々の生活に欠くことのできない技術となっている。特に近年では，ハイブリッド電気自動車，電気自動車用電源として，より高出力，高容量な蓄電池の実現が期待されている。また，再生可能エネルギーの平準化用や，スマートハウス・スマートグリッド用としても，蓄電池利用への期待は高まっている。

以上で述べてきた通り，燃料電池や蓄電池に対する期待は高いが，それらに求められる性能，条件は，その用途に応じて様々である。更には，既存のタイプの電池では達成し得ない性能を有する革新電池の開発，実用化も望まれている。これらのニーズに応える燃料電池，蓄電池を開発するには，電池の中で生じている現象を正確に把握することが重要である。そのための手法として，電池内部の状態を，電池を解体することなく，作動状態で評価することのできるオペランド計測は強力なツールとなり得る。使用可能なエネルギー領域が広く，実験に必要なエネルギーを比較的任意かつ容易に選択できる放射光は，このようなオペランド計測に有効である。事実，ここ 10 年余りの間に，放射光を用いた燃料電池，蓄電池のオペランド計測は急速に普及し，今ではもう特殊な計測手法とは言えなくなってきているほどである。近年では，単なるオペランド計測に留まらず，任意の部位の局所分析，多次元の反応・状態分布評価，反応の時間追跡を可能とする高位置分解計測，イメージング計測，高時間分解計測を用いた研究も精力的に行われており，さらには，これらを組み合わせた試みもなされつつある。

以上の現状を踏まえ，本発表では，特に燃料電池・蓄電池反応の「時間追跡」を念頭に，筆者等が行っている固体酸化物形燃料電池，全固体リチウムイオン二次電に関する放射光オペランド測定の結果を中心に紹介する。

O-13

金属材料のための放射光回折顕微鏡法の可能性

(株)豊田中央研究所
林 雄二郎

金属材料は古くより私たちの社会の近代化を支えてきた成熟した材料であるが、長年にわたって過酷環境下で使用されることが多く、1 つの小さな損傷が重大な事故を引き起こす可能性があるため耐久性については今もなお重要な研究テーマである。金属材料のマクロな機械特性は、原子スケールから転位組織スケールを経て結晶粒界ネットワークスケールに及ぶ階層的で複雑な不均一性（ヘテロ構造）や微細構造と深く関わっている。そのため、金属材料の研究には古くより顕微鏡が利用されてきた。透過型電子顕微鏡（TEM）の登場によりナノスケールのヘテロ構造・微細構造が観察され、暗視野法（透過電子回折を結像する方法）により転位組織や転位の動的挙動がビデオレートにより観察されるようになって金属材料の理解は飛躍的に進んだ（TEM は結像法であるため 2 次元検出器の時間分解能により動的挙動が観察できる）。また、走査型電子顕微鏡（SEM）中における電子線後方散乱回折法（EBSD, 反射電子回折により決定される局所的な結晶方位をマッピングする方法）は、マイクロスケールのヘテロ構造・微細構造と転位の集団運動によるすべり変形やき裂の伝播等の観察を可能とし、マクロな機械特性の理解への架け橋となる顕微鏡として爆発的に普及した。ただし、走査型であるため動的観察は難しい。今や TEM 及び EBSD は金属材料の研究において不可欠なものとして定着しているが、欠点は薄片試料あるいは自由表面の観察に限られ、その現象が材料内部で支配的に起こっているかどうか正確には分からないという点である。したがって組織学的金属材料研究の次なるステージは、材料内部におけるヘテロ構造・微細構造と転位集団の動的挙動やき裂伝播の非破壊観察であると言える。これは明らかに放射光が開拓すべき課題であり、既にそのような取り組みが欧米を中心に始まっている。

H. F. Poulsen (Technical University of Denmark) らのグループは 3 次元 X 線回折顕微鏡法 (Three-dimensional x-ray diffraction microscopy, 3DXRD) [1]と呼ばれる手法を開発し、多結晶金属試料内部における各結晶粒の方位及び応力が非破壊で得られることを実証した。この手法は高エネルギーの高輝度放射光 X 線が得られるようになって初めて実現されたものである。しかし、3DXRD 法では試料中の結晶粒数が多くなると解析が困難になる。この制約を克服するため、筆者らは高エネルギー放射光マイクロビームを用いて試料を走査する走査型 3DXRD 法[2] を提案した。この方法を用いて実用鉄鋼材料（冷間圧延鋼板 1mm 厚）内部の非破壊方位マッピングに成功し、実用金属材料への有用性を示した。ただし EBSD 同様、走査型であるため動的観察は難しい。さらに Poulsen らは、ブラッグ反射の透過回折 X 線に複合屈折レンズを用いて拡大結像させることで、1 つの結晶粒内において転位集団による方位差やひずみの実空間分布が 3DXRD 法よりも高空間分解能（100nm）で得られることを実証した。この手法は暗視野 X 線顕微鏡法（Dark-field x-ray microscopy, DFXM）[3,4]と呼ばれる。TEM 暗視野法と同様に結像法であるため原理的にはビデオレートで動的観察が可能である。講演では走査型 3DXRD 法の進捗報告を交えてこれらの手法について紹介し、動的観察を含めた非破壊内部顕微鏡法の今後の期待について述べたい。

謝辞
走査型 3DXRD 顕微鏡は JSPS 科研費 JP22760571, JP26870932 の助成を受けて開発したものです。

参考文献

1) H. F. Poulsen, J. Appl. Cryst. **45**, 1084 (2012).
2) Y. Hayashi *et al.*, J. Appl. Cryst. **48**, 1094 (2015).
3) H. Simons *et al.*, Nat. Commun. **6**, 6098 (2015).
4) H. F. Poulsen *et al.*, J. Appl. Cryst. **50**, 1441 (2017).

O-14

量子とじこめ効果により発現する Pd 薄膜の強磁性

東京大学物性研究所
櫻木俊輔

遷移金属において Fe、Co および Ni のみがバルク状態で室温において安定な強磁性を発現する。近年の研究において、それらの金属以外に Pd などの遷移金属が微粒子状態において強磁性を発現することが実験的に示されてきた。金属における磁性は主にフェルミエネルギー付近の状態密度 $D(\varepsilon_F)$により特徴づけられることから、微粒子化に伴う電子状態の変化が強磁性の発現を引き起こすものと理解されているが、その詳細は明らかではなかった。本研究では、Pd(100)超薄膜に形成される *d* 電子量子井戸状態に起因した $D(\varepsilon_F)$の変調に伴う Pd の磁性の変化を詳細に調べた。

$SrTiO_3$基板上に堆積した Pd(100)超薄膜の磁化測定から、Pd 中に膜厚に対し振動的に自発磁化が生じ、その最大値が Ni の磁化に相当することが見出された。この振動周期は Pd のフェルミ面の形状より予想される量子井戸状態の周期と完全に一致する。これより、Pd(100)超薄膜では特定の膜厚で量子井戸状態に起因した $D(\varepsilon_F)$の増大が生じ、強磁性の発現条件である Stoner 条件が満たされることで強磁性が発現することが明らかとなった(図 1)[1]。

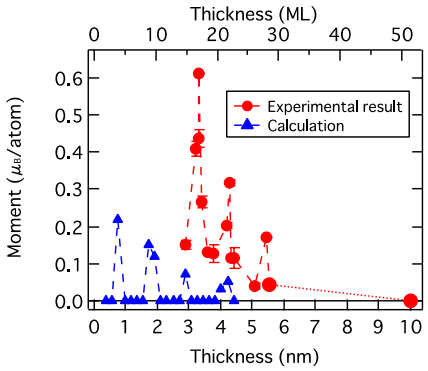


図 1. Pd(100)における磁化の膜厚依存性

本試料について、SPring-8 BL-13XU における *in-situ* 構造解析実験および第一原理計算から、量子井戸により誘起された強磁性と構造の関係について議論を行った。それより、Pd における強磁性の発現に伴い表面エネルギーに利得が生じ、それが薄膜構造の一様性を高めることが明らかとなった(図 2)。また、Pd が交換分裂した際のエネルギーの損失分を抑制するために自ら格子を膨張させることが観測された。これは磁気相転移に伴い系の $D(\varepsilon_F)$が変調されるという、従来の Stoner 理論の逆効果の存在を示唆する[2]。

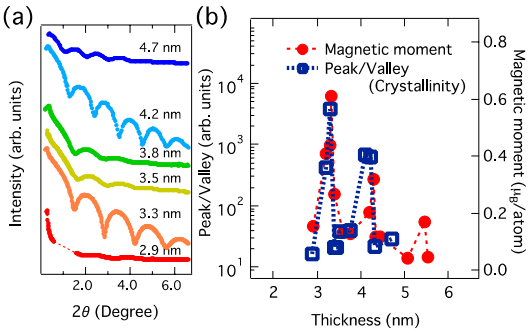


図 2. (a) X 線反射率プロファイルの Pd 膜厚依存性
(b) 反射率により評価した結晶構造の一様性.

本結果は、遷移金属において磁性-量子井戸状態-構造歪みの三要素の相互関係により磁気状態が決定されるメカニズムを示す。これは、歪みの誘導により効果的に磁性スイッチングを引き起こすことが可能であることを示唆する[3]。この発見が他の磁性材料に拡張されることで、電子構造エンジニアリングによる材料の磁気機能のデザインが可能となることが期待される。

参考文献

1) S. Sakuragi *et al.*, Phys. Rev. B **90**, 054411 (2014).
2) S. Sakuragi, H. Tajiri, H. Kageshima, and T. Sato, Phys. Rev. B **97**, 214421 (2018).
3) Y. Ban, S. Sakuragi *et al.*, Appl. Phys. Lett. **112**, 142409 (2018).

O-15

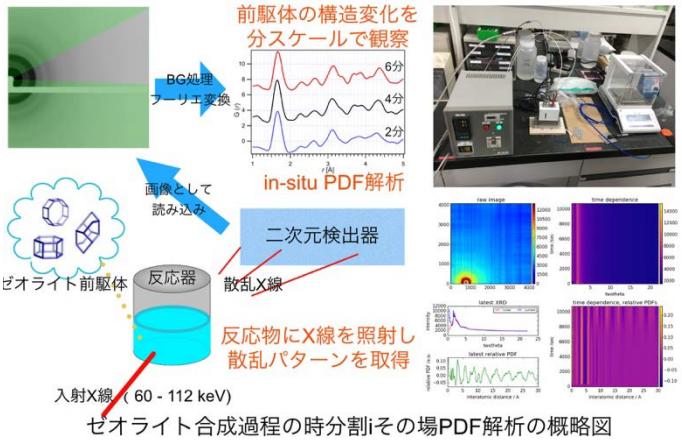
ゼオライトの精密設計を目的とした非周期系原料及び結晶ゼオライトの原子・ナノスケール PDF 解析

（Time resolved analysis of zeolite formation mechanism at atomic and nano scales: Towards the design of novel functional zeolites）

脇原徹（東京大学）

ゼオライトは持続的社会の形成のために大きく貢献するキーマテリアルといっても過言ではなく、今日では年間 200 万トン以上製造されている。さらに、ゼオライトの特性が触媒プロセス、工業プラントの性能・サイズなどを決定しており、その波及効果は極めて大きい。ゼオライトは主に構造規定剤含有アルミノシリケート非晶質を水熱条件下での加熱による結晶化により得られるが、出発物質が非晶質であることから、その生成過程は十分に解明されておらず、経験則に基づいたトライアルアンドエラー的なアプローチにより新規材料合成が試みられてきた。今後、こういった材料開発において日本が世界を先導する立場をとるためには、その生成過程を原子・ナノスケールで調べることにより、構造規定剤や構成元素の役割を明確にし、得られた情報に基づいた設計を試みる必要がある。以上の目的を達成するためには、回折パターンのブラッグピークの有無にかからず、原子・ナノスケールにおける構造情報が直接観測できる、X 線二体分布関数(PDF)解析および、その情報に基づいた構造モデリングによる 3 次元構造解析を時分割で行う必要がある。SPring-8 の特徴である 60keV 以上の高エネルギーX 線を用いれば、世界最高レベルの PDF データを取得することができるため、これを最大限に生かした長期課題を行うこととなった。

本長期課題では、放射光高エネルギーX 線全散乱測定を軸としたゼオライト合成原料（非晶質）の結晶化過程を時分割測定により理解することを目的とする。さらに、結晶化過程の構造変化に関する知見を生かして今までに報告例のない新しい組成をもつゼオライトを創造し、新規反応を実現するゼオライト、高触媒活性・高耐熱水蒸気性を併せ持つゼオライトを自在設計するための基盤技術の創出を目指す。ポスターではこれまで得られた成果について発表する。



ゼオライト合成過程の時分割iその場PDF解析の概略図

O-16

光電子ホログラフィーによる半導体中のドーパント局所構造解析

[1] 東京工業大学、[2] JASRI、[3] 大阪大学、[4] 名古屋工業大学、[5] 分子科学研究所
筒井一生[1]、松下智裕[2]、室隆桂之[2]、森川良忠[3]、名取鼓太郎[1]、星井拓也[1]、
角嶋邦之[1]、若林整[1]、林好一[4]、松井文彦[5]、木下豊彦[2]

半導体に特定のドーパントの元素を添加してその電気伝導性を制御するドーピング技術は、デバイス製作プロセスの重要な基本技術である。ドーピング技術の課題のひとつに、電気的に活性なドーパントの濃度を高めることがある。通常、半導体に高濃度にドーパントを導入しても活性化する濃度に上限がある。これは、過剰なドーパントがクラスター構造をとるなどで電気的に不活性化するためと考えられている。しかし、このような半導体結晶中でのドーパントの局所配列状態を原子レベルで観測評価することはこれまで非常に困難であった。

近年、大きく発展してきた光電子ホログラフィー法[1]は、このような目的に非常に有用である。加えて、光電子の化学シフトにより異なる状態で混在するドーパントを識別し、電気的な活性/不活性とも関連づけて構造解析できる。本研究では、この手法を活用して、シリコン（Si）中にドープされた砒素（As）の局所構造を明らかにした[2]。

試料は、Si ウエハにイオン注入法で As をドープし、高速熱処理法で活性化処理を施したものである。光電子ホログラフィーの測定実験は、SPring-8 の BL25SU で実施し、ここに設置されている DA30 アナライザーを用いた。このシステムでは、数 100 meV 以下の As 3*d* 内殻光電子の化学シフトを分離できる高エネルギー分解能を有しながら 2 次元の角度分解測定が可能である。

図 1 に、得られた As 3*d* 内殻光電子スペクトルと、そこから得た光電子ホログラムを示す。スペクトルから BEH, BEM, BEL とラベル付けした 3 つの異なる化学結合状態の As が混在していることがわかった。ホログラムでは、BEH ピークからの模様は鮮明で、この構造は Si 原子からのホログラムと基本的に同じ構造であることから、この As は Si の結晶格子を置換していると結論づけられた。次に BEM では、ホログラムはやや不鮮明になるが BEH と類似の構造であることからこちらの As も基本的には格子置換していると考えられる。最後に BEL では、明確なパターンが現れず、As は非晶質的な構造に取り込まれていることが推測された。また、別途のホール効果測定と合わせて、BEH が電気的に活性、BEM と BEL が不活性な As であることが示唆された。

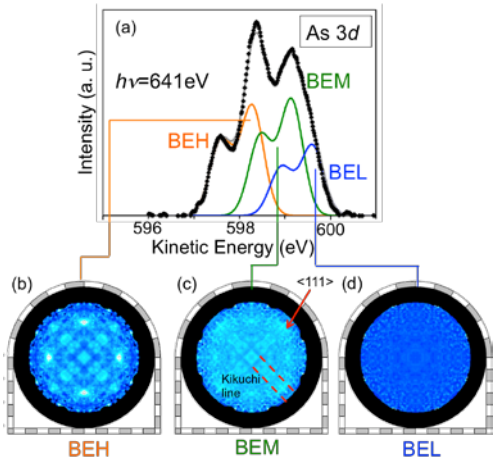


図 1　As 3*d* 光電子スペクトルと分離されたピーク成分ごとに得られた光電子ホログラム。

BEH と BEM について、ホログラムの解析から原子像を再構築した。この過程では、従来様々な提案がある格子置換 As を含むクラスター構造を候補とし、また、第一原理計算によってそれらのクラスター構造の化学シフトを予測し実験結果との照合も行った。その結果、図 2 に示す 3 次元配列構造を決定した。BEH に対して、図 2(a)のように単独で格子置換した As の構造、また BEM に対して、図 2(b)に示すように *n* 個の As 原子が一つの Si 空孔を会して結合している As_nV(n=2～4)型と呼ばれるクラスター構造をそれぞれ決めることができた。また、As に近接する Si 原子が局所的に大きく揺らいでいることもわかった。

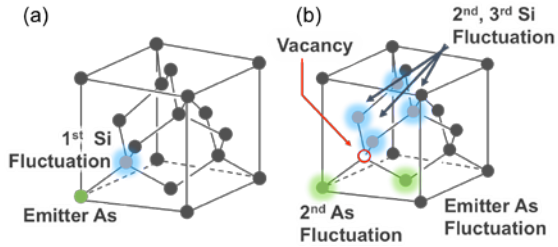


図 2　(a) BEH、(b) BEM に対する原子配列構造。

以上より、本手法が、半導体中のドーパント周りの局所構造解析に非常に有用であることを示した。

謝辞：本研究は科研費新学術領域研究「3D 活性ｻｲﾄ科学」、文科省 光・量子融合連携研究開発ﾌﾟﾛｸﾞﾗﾑの助成を受けた。

参考文献 [1] 大門、佐々木　監修：「機能構造科学入門　3D 活性サイトと物質デザイン」、丸善出版、(2016).
[2] K. Tsutsui *et al.*, Nano Letters, vol.17, 7533, (2017).　DOI: 10.1021/acs.nanolett.7b03467

O-17

位相差イメージングによる心臓刺激伝導系形態解析

ーさらなる知見創出と社会貢献に向けてー

1）東京慈恵会医科大学　心臓外科　2）国立成育医療研究センター　心臓血管外科
3）兵庫県立こども病院　心臓血管外科　4）新潟大学　心臓外科　5）神戸赤十字病院　心臓血管外科
篠原　玄[1)]、森田紀代造[1)]、木南　寛造[1)]、金子　幸裕[2)]、吉竹　修一[2)]、森下　寛之[2)]、
大嶋　義博[3)]、松久　弘典[3)]、岩城　隆馬[3)]、高橋　昌[4)]、築部　卓郎[5)]

心臓手術では、心臓刺激伝導系走行の解剖学的理解が不可欠である。しかし従来の組織学的検索により得られる知見は限られており、3 次元での刺激伝導系の外科解剖は、多くの心臓外科医にとり十分に理解しうるものとはいえなかった。SPring8 における放射光を用いた位相差 X 線 CT により、ヒト剖検心における刺激伝導系の非破壊的可視化が可能である。2015 年以降 BL20B2 の位相差 X 線 CT を用いた心大血管微小構造解析グループの小児心臓外科医からなる研究チームにて、これまで剖検心標本 36 例に対し刺激伝導系の解析を行った。今回のシンポジウムのテーマとして、研究方法、学術的知見、社会貢献の観点から、現状を踏まえ、今後の発展性と課題について報告する。

1）研究方法

臨床応用について：これまで本研究に対し心臓外科医、循環器医から最も多く寄せられる質問である。In vivo の位相差イメージングは一部臓器に対し研究開発が行われているが、刺激伝導系に対しては多くの問題が想定される；肺、胸郭など周囲の非軟部組織；時間分解能；エネルギー量（と被爆？）。

対象：上述の点から、さらに手術救命率向上に伴う剖検の激減、保守管理上の問題による劣化・廃棄が危惧される現状からも先天性心疾患標本が最適と考えられる。これまで研究者所属機関の標本を扱ってきたが、参加施設を拡大し、先天性心疾患デジタル標本として後世に残す意義は大きい。しかしながら現時点までに参加施設の拡大は進んでおらず、医学研究における倫理指針、authorship、画像解析手法の習得など研究参加における複合的な障壁に対し解決が求められる。

標本サイズ：剖検心サイズにより疾患群の分布が大きく異なり、撮影可能サイズの拡大は重要と考えられる。

2）学術的知見

方法論としての確立：刺激伝導系走行解析手法としての頑健性、精緻性、病理組織評価との等価性などの発信。

刺激伝導系研究：本研究により明らかとなることが期待される、刺激伝導系走行に対する知見が限られた先天性・後天性心疾患は多岐にわたる。例：両房室弁左室挿入、心房内蔵錯位症候群、修正大血管転位症、先天性大動脈弁異常等

3）社会貢献

位相差 CT 画像の二次利用として 3D PDF の操作可能なデータ公開、刺激伝導系の入った 3D プリントモデル制作など、貴重な先天性心疾患 3 次元データから心臓外科医の手術シュミレーションをはじめ、小児循環器医、広く心臓病の学習者を高い教育効果で支援することが可能である。ファイル形式ごとの最適な画像処理などが今後の課題である。

以上の現状、課題に対し、さらなる発展にむけた研究活動を計画しています。

参考文献

1）　Shinohara G, Morita K, et al.　World J Pediatr Congenit Heart Surg. 2016 Nov;7(6):700-705