

## 2019年度量子ビームサイエンスフェスタ 学生奨励賞について

J-PARC MLF 利用者懇談会事務局担当幹事 中野岳仁  
PF-UA 行事幹事 北島昌史, 伏信進矢

2020年3月12日(木)～14日(土)にザ・ヒロサワ・シティ会館(茨城県立県民文化センター)において開催予定でした、2019年度量子ビームサイエンスフェスタは、新型コロナウイルスの感染拡大のため、中止となりました。発表については、講演要旨はサイエンスフェスタのホームページ上で公開され、公知となっていることから、サイエンスフェスタでの発表は成立するものとなりました。PF-UAとJ-PARC MLF利用者懇談会では、本年度も「学生が筆頭著者のポスター発表」で、PF, KENS, MSL, MLFおよび低速陽電子のいずれかを利用した研究成果を対象に「学生奨励賞」を準備して参りましたが、残念ながら、今回は見送りとなりました。本年度の学生奨励賞応募ポスター発表数は77件であり、非常に多くの応募を頂きました。お礼を申し上げます。なお、本学生奨励賞はPF-UAとJ-PARC MLF利用者懇談会の共催で、中野岳仁(J-PARC MLF利用者懇談会/茨城大), 北島昌史(PF-UA/東工大), 伏信進矢(PF-UA/東大), 河村聖子(J-PARC MLF利用者懇談会/JAEA), 佐賀山基(KEK-PF)が担当致しました。

## X線トポグラフィー・ユーザーグループ の紹介

三重大学 小泉晴比古

### 1. はじめに

X線トポグラフィー・ユーザーグループ(UG)は2009年に設立され、昨年、設立から10年が経ちました。そして、本ユーザーグループの責任者は、山口博隆先生(産総研)から2019年に私に引き継がれました。また、2013年にはBL-15がミニポールアンジュレーター光源への変更に伴うビームラインの移設が行われ、現在の本UGの活動拠点は、BL-3C, BL-14B, 及び、BL-20Bとなっています。

X線トポグラフィーは、X線回折の基礎的な現象が深く関わっており歴史は古く、Si系半導体の開発にも活発に利用されてきた測定手法です。この測定手法を用いると、結晶内の結晶欠陥やその周りの歪んだ領域での局所的な回折X線の強度の変化を通して、欠陥を観察することができます。そして、比較的完全性の高い結晶において、個々の欠陥、例えば、転位、積層欠陥、不純物によるクラスター、成長境界といった結晶欠陥の空間分布や形状を調べることができます。さらに、その欠陥を特徴付けている物理量、

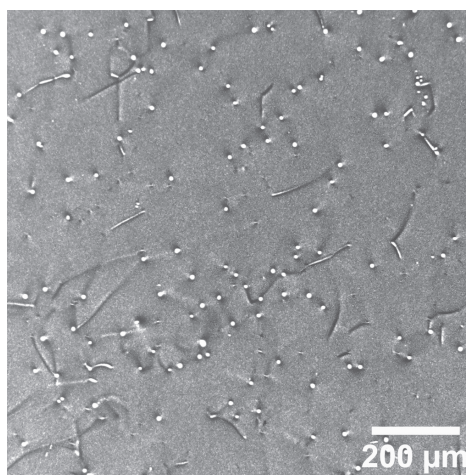


Fig. 1 4H-SiC 結晶における 1128 反射の X 線トポグラフィ像。

例えば、転位のずれの量であるバーガース・ベクトルを同定することも可能です。このため、X線トポグラフィーは、結晶欠陥、特に、主要な欠陥である転位を観察するための最も有効な手法の一つとして広く利用されています。

X線トポグラフィーでは、スリットにより成型されたミリメートルサイズのビームを直接、試料に照射し、回折してきたX線をフィルムや原子核乾板に焼き付けます。この回折スポットがX線トポグラフィ像となり、光学顕微鏡により像を拡大することで、結晶内の欠陥の空間分布や形状を観察することができます(Fig. 1)。このため、X線トポグラフィーにおける欠陥像の空間分解能は、光源の大きさ、光源から試料までの距離などの幾何学的実験配置、結晶欠陥の周りの歪場における回折効果による像の広がり、X線検出器として用いられるX線フィルムや原子核乾板の粒子のサイズなどに依存しますが、最高で1~2 μm程度となります。透過型電子顕微鏡と比較すると、空間分解能の点では劣りますが、試料をそのままに、加工が不要なことと視野が広いことが大きな利点となっています。また、近年では、6.5 μmの分解能を有する高分解能X線CCDカメラも導入されたため、X線トポグラフィ像の高分解能でのリアルタイム観察も行え、高温下・応力下などの結晶欠陥の動的な振る舞いの観察も行うことができます。

Photon FactoryにおけるBL-3C, BL-14B, 及び、BL-20Bでは、SiCやダイヤモンド、さらには、近年、次世代材料として注目されているGa<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の評価が行われています。そして、上記の無機結晶だけではなく、有機結晶であるタンパク質結晶の評価も行われており、多岐にわたる材料の評価が行われています。また、この他にも結晶だけではなく、漆器の漆層の観察といったユニークな研究も行われています。本UG紹介では、最近、タンパク質結晶を用いてBL-20Bで得られた研究成果について紹介いたします。

## 2. 最近の研究から

超高齢化社会を迎え、病気の原因解明や新薬開発のために、タンパク質分子の立体構造の解明に関する研究が盛んに行われています。タンパク質分子の立体構造の多くは、タンパク質結晶を用いたX線構造解析により明らかにされていますが、その解析精度は、タンパク質結晶の完全性に依存します。このため、構造が明らかにされていても、解析に用いたタンパク質結晶の完全性が低いと十分な解析精度を得ることができません。そして、現在明らかにされているタンパク質分子の構造の内、炭素-炭素間距離に相当する1.5 Å以下の分解能を有する構造は、未だ9%ほどしかないのが現状です。また近年では、放射光による高エネルギーX線を用いた高分解能で高精度な構造解析や電子密度の解析が行われるようになりました。特に、電子密度の解析は、タンパク質の重要な性質を決めている価電子状態とも深く関係しています。しかし、これらの解析では、依然として回折強度の測定値と理論値に大きな違いが見られ、より高精度の解析を行うためには、結晶の完全性の改善が必要となります。このため、より高品質なタンパク質結晶を作製するために、国際宇宙ステーションを利用した微小重力実験をはじめとした、タンパク質結晶の高品質化に向けた様々な研究が世界中で盛んに行われています。

結晶によるX線回折は、大きく分けると運動学的回折と動力学的回折の2種類に分類することができます。運動学的回折は、欠陥を含む一般の多くの結晶で観察されるのに対し、動力学的回折は、半導体結晶のSiのような高品質な完全結晶で起こります。従って、動力学的回折の観察は、結晶の完全性の指標にもなります。しかし、タンパク質結晶では、これまで動力学的回折の明瞭な証拠が得られず、その結晶品質が依然としてSiなどの高品質な結晶に比べて劣るのか、そもそも観察されないのか、タンパク質結晶で動力学的回折が観察できるかは長年の課題でした。

近年、横浜市立大学 橘勝教授のグループでは、タンパク質の一種であるグルコースイソメラーゼ結晶によるX線トポグラフィーを行ったところ、その結晶内には、転位などの欠陥が無く、等厚干渉縞が観察される極めて完全性の

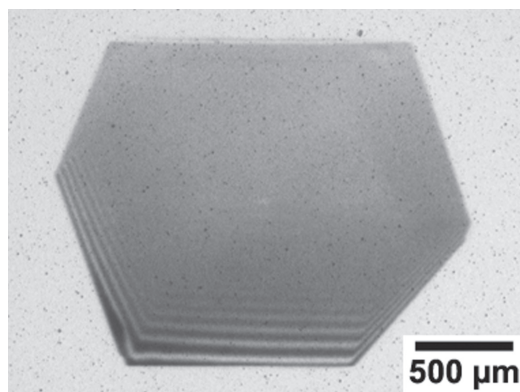


Fig. 2 タンパク質結晶の一種であるグルコースイソメラーゼ結晶における011反射のX線トポグラフィ像。

高い結晶であることが示されました (Fig. 2)。そして、このようなタンパク質結晶を用いて、ロッキングカーブ測定によるX線回折強度の振る舞いを観察すると、半導体結晶のSiのように完全結晶に近い結晶のみでしか観察されていない振動現象の観察に初めて成功しました。また、入射するX線の波長、及び、結晶の厚さにおける振動現象の依存性を調べ、その振動現象が動力学的回折理論から予測される振る舞いと非常に良い一致を示すことを観察し、グルコースイソメラーゼ結晶において観察された振動現象が、動力学的回折に起因することを示しました。高品質なタンパク質結晶を用いた構造解析において、従来は考慮されていなかった動力学的回折理論を取り入れることで、回折強度の解析精度の改善につながり、より高精度な電子密度の評価、さらには理論化学計算との比較によるタンパク質の性質の原理的な理解が期待されます。

## 3. PFへの要望

過日、BL-20Bでゾーンプレートを利用し、5~6 keVで実験を行ったところ、かなり強烈なスペックルが検出されました (Fig. 3)。しかし、下流Be窓をカプトン膜に交換したところ、スペックルが消えたので、原因は下流Be窓で間違いのないと思われます。このため、この下流Be窓を研磨Beに交換したいという要望があります。今回は通常よりも低いエネルギー(5~6 keV)を使用したもので、スペックルが顕著に現れたのかもしれませんが、研磨Beへの換装は、X線トポグラフィ像の分解能向上にも期待が持てます。

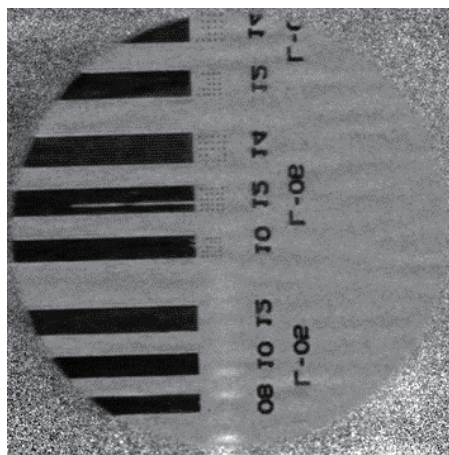


Fig. 3 BL-20Bにおいて観察されたスペックル。PFの若林・鈴木氏撮影。



## 固体分光ユーザーグループ活動紹介

東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター  
相馬清吾  
東北大学材料科学高等研究所 佐藤宇史  
東北大学多元物質科学研究所 / KEK-IMSS 組頭広志  
KEK-IMSS 堀場弘司  
東京理科大学理学部 齋藤智彦

### はじめに

固体分光ユーザーグループは、固体のバルク物性およびこれに関連する固体表面・界面の物性の理解のために、その電子構造を分光学的手法により研究する研究者の集まりです。利用する主要ビームラインは BL-28A (VUV 領域), BL-2A (VUV・SX 領域), BL-16A (SX 領域) であり、角度分解光電子分光 (ARPES), 軟 X 線吸収分光 (XAS), X 線吸収磁気円二色性 (XMCD) といった、電子分光を中心とした分光学的実験を展開しています。今回は上記のうち、改良が進行中の BL-28A とそれに先立って数年前にビームラインを更新した BL-2A の状況を報告致します。BL-28A の記事は主に相馬先生に、BL-2A の記事は主に組頭先生に元原稿を執筆頂き、代表を務める齋藤が全体を纏めました。

### BL-28A

BL-28A は、専用アンジュレーターによる高分解能 ARPES ステーションとしてユーザーの強い要望により建設され、高機能物質のフェルミ準位近傍における微細電子構造と物性機構解明の研究が盛んに行われてきました。しかし近年、トポロジカル絶縁体や原子層物質等の新たな研究テーマが生まれたことで、国際的研究競争がますます先鋭化してきており、更なる高分解能・高効率の ARPES 測定が強く望まれています。

このような背景のもと、2015 年より新たな ARPES エンドステーションの建設が、偏光可変アンジュレーターへの更新と合わせて始まりました。エンドステーションが発足した経緯を踏まえ、装置の設計・製作・調整はユーザーグループと施設が密接に協力して行われています。新装置は電子分析器を VG-Scienta 社の SES2002 型から DA30 型に変更し、これに合わせて試料測定槽、5 軸回転型試料マニピュレーター、クライオスタット、試料準備槽、試料搬入システムなど、ARPES 測定に係る装置一式を、ユーザーの競争的資金も積極的に活用しながら新たに設計し製作しました。装置の立ち上げは 2018 年にほぼ終了し、2019 年の第 1 期から BL-28A においてユーザーの共同利用を段階的に開始しました。

新装置の特徴は、(1) 光電子取り込み角度の 14 度から 34 度への拡大、(2) 電子ディフレクターによる角度スキャン機能、(3) 将来的なスピン検出器への拡張、などが挙げられます。とくに (1) と (2) により運動量空間の ARPES マッピングの効率が大幅に向上し、物質にもよりますが、旧

装置では数時間かかるような  $2 \text{ \AA}^{-1}$  四方のマッピングを 10-20 分ほどで終わることが出来ます。測定データの質と量が圧倒的に増大したことで、今後ユーザーは装置の操作よりもデータ解析に多くの時間を費やすことになるでしょう。このとき、ARPES 測定とビームライン制御の自動化が極めて重要になりますので、現在 LabVIEW やスクリプト言語による自動制御プログラムの作成を、ユーザーと施設が協力して進めています。

また、近年の ARPES の実空間情報の重要性の高まりから、2020 年度に KB ミラーを BL-28A に導入し、試料上における 10-20 ミクロンのビーム集光をユーザーの競争的資金により計画しています。マイクロスポットの実現により、微小試料や難劈開試料の測定や、電場・圧力印加した試料の測定、多様な面方位の測定など、ARPES 研究の適用範囲が大きく広がり、これまでにないユニークな研究の展開が期待されます。また、試料のより清浄な箇所を選択的に測定できるので、本装置の国際的競争力が大きく底上げできると考えられます。BL-28 では、以上のようなエンドステーションの更なる高度化をユーザーグループが牽引して推し進めて高いレベルの研究成果へとつなぎ、ARPES 分野の発展に貢献していきたいと考えております。

### BL-2A

BL-2 は BL-2A および BL-2B の 2 ブランチからなるビームラインです。BL-2B は日立製作所専用ステーション (BL-2BH) と共同利用フリーポート (BL-2BF) からなり、今回報告する本ユーザーグループの活動は、主に BL-2A になります。この BL-2A "MUSASHI" (Multiple Undulator beamline for Spectroscopic Analysis on Surface and HeteroInterface) は、PF の長直線部を有効活用して 2 台の異なるアンジュレーター挿入光源 [真空紫外光領域 (30 ~ 300 eV) と軟 X 線領域 (250 ~ 2000 eV)] をタンデムに配置することで、高分解能・高強度を保ちながら広いエネルギー領域の光を利用できる表面・界面物性研究用のビームラインとして整備されています。

BL-2A MUSASHI には、ユーザーの競争的資金により運営・整備しているエンドステーションとして、レーザー分子線エピタキシー (MBE) 法により作製した薄膜に対してその場 (in situ) で ARPES・内殻準位・共鳴光電子分光・XAS の多元的電子分光測定・解析を実施することができる「*in-situ* ARPES - レーザー MBE 複合装置」が設置されています。さらに本複合装置には、これらのレーザー MBE 槽・光電子測定槽に加えて、試料準備・評価槽および試料導入槽も超高真空下で連結されており、通常のバルク試料の測定や表面科学の研究も可能となっています。近年では、BL-2A の特長である広いエネルギー範囲を利用して、トポロジカル絶縁体の表面状態の研究や原子層物質の表面・界面研究などが精力的に展開されるようになってきています。特に、よく定義された表面を作製し、その清浄性・結晶性・化学状態を内殻準位測定で評価してから、フェルミ準位近傍の微細なバンド構造を ARPES で決定す

るといった独自性のある研究が盛んに行われています。

BL-2Aの研究活動の源流は、更新前のBL-2Cにおける「量子ナノ分光ユーザーグループ」でしたが、「量子ナノ」も含めた電子分光3ユーザーグループが集合し、固体分光ユーザーグループを結成して現在に至っています。その大きな理由として、近年の物質科学研究においては分野の垣根を超えた融合的な研究展開が不可欠であること、さらに本分野のように実験装置の開発・維持のための労力と資金が大きい分野においては、ユーザーグループのスケールを拡大し、施設と連携・協同して必要な実験装置を速やかに調達・整備することが必須であることが挙げられます。その意味で、今後、競争的資金、装置の開発・改良、次世代人材の育成、等あらゆる点において、お互いの長所を生かす密接な連携がますます不可欠となっていきますが、本ユーザーグループでは、そのような連携のもとに、関連研究者の知恵を募りつつ、一層の研究活性化を目指していきたいと考えております。

### おわりに

本ユーザーグループの活動を支えてくださっているユーザー各位に感謝いたします。また、この記事をきっかけとして、より多くの皆様に固体分光分野に興味を持っていただき、研究活動に参加頂ければ幸いです。

## 令和元年度 PF-UA 総会について

PF-UA 会長 清水敏之

PF-UA は、新型コロナウイルス感染拡大防止に対応するため、3月14日（土）に予定しておりました「令和元年度 PF-UA 総会」を4月以降に延期することを決定いたしました。

会員の皆様にはご迷惑をおかけいたしますが、何卒ご理解・ご協力くださいますようお願い申し上げます。

なお、予定が決まり次第あらためてご連絡させていただきます。

## ユーザーグループ一覧

2020年4月1日現在

|    |               |       |               |
|----|---------------|-------|---------------|
| 1  | XAFS          | 田渕 雅夫 | 名古屋大学         |
| 2  | タンパク質結晶構造解析   | 海野 昌喜 | 茨城大学          |
| 3  | 小角散乱          | 櫻井 伸一 | 京都工芸繊維大学      |
| 4  | 放射線生物         | 横谷 明德 | 量子科学技術研究開発機構  |
| 5  | 粉末回折          | 植草 秀裕 | 東京工業大学        |
| 6  | 高圧            | 高橋 博樹 | 日本大学          |
| 7  | 構造物性          | 有馬 孝尚 | 東京大学          |
| 8  | 表面科学          | 吉信 淳  | 東京大学          |
| 9  | 固体分光          | 齋藤 智彦 | 東京理科大学        |
| 10 | 原子分子科学        | 小田切 丈 | 上智大学          |
| 11 | 核共鳴散乱         | 小林 寿夫 | 兵庫県立大学        |
| 12 | 位相計測          | 高野 秀和 | 東北大学          |
| 13 | 低速陽電子         | 長嶋 泰之 | 東京理科大学        |
| 14 | 医学利用          | 松下昌之助 | 筑波技術大学        |
| 15 | X線発光          | 手塚 泰久 | 弘前大学          |
| 16 | 表面界面構造        | 近藤 敏啓 | お茶の水女子大学      |
| 17 | マイクロビームX線分析応用 | 宇尾 基弘 | 東京医科歯科大学      |
| 18 | 物質物理          | 八方 直久 | 広島市立大学        |
| 19 | X線トポグラフィー     | 小泉晴比古 | 三重大学          |
| 20 | 動的構造          | 中村 一隆 | 東京工業大学        |
| 21 | 鉱物・合成複雑単結晶    | 吉朝 朗  | 熊本大学          |
| 22 | 産業利用          | 米山 明男 | (株)日立製作所中央研究所 |
| 23 | 原子力基盤研究       | 岡本 芳浩 | 日本原子力研究開発機構   |

## PF-UA 運営委員名簿

任期：2018年4月1日～2021年3月31日

|       |                     |
|-------|---------------------|
| 朝倉 清高 | 北海道大学触媒科学研究所        |
| 東 善郎  | 上智大学理工学部            |
| 一國 伸之 | 千葉大学大学院工学研究院        |
| 植草 秀裕 | 東京工業大学理学院           |
| 奥田 浩司 | 京都大学大学院工学研究科        |
| 奥部 真樹 | 東京工業大学フロンティア研究所     |
| 鍵 裕之  | 東京大学大学院理学系研究科       |
| 小林 寿夫 | 兵庫県立大学大学院物質理学研究科    |
| 腰原 伸也 | 東京工業大学理学院           |
| 近藤 寛  | 慶應義塾大学理工学部          |
| 齋藤 智彦 | 東京理科大学理学部           |
| 佐々木 聡 | 東京工業大学フロンティア研究所     |
| 佐藤 宇史 | 東北大学大学院理学研究科        |
| 佐藤 友子 | 広島大学大学院理学研究科        |
| 佐藤 衛  | 横浜市立大学大学院生命医科学研究科   |
| 志村 考功 | 大阪大学大学院工学研究科        |
| 鈴木 昭夫 | 東北大学 大学院理学研究科       |
| 田渕 雅夫 | 名古屋大学シンクロトロン光研究センター |
| 手塚 泰久 | 弘前大学大学院理工学研究科       |
| 沼子 千弥 | 千葉大学大学院理学研究科        |
| 増田 卓也 | 物質・材料研究機構           |
| 松村 浩由 | 立命館大学生命科学部          |
| 宮脇 律郎 | 国立科学博物館地学研究部        |
| 山口 博隆 | 産業技術総合研究所           |
| 横谷 明德 | 量子科学技術研究開発機構        |
| 足立 伸一 | 物構研・放射光科学第二研究系      |
| 雨宮 健太 | 物構研・放射光科学第一研究系      |
| 木村 正雄 | 物構研・放射光科学第二研究系      |
| 千田 俊哉 | 物構研・放射光科学第二研究系      |
| 船守 展正 | 物構研・放射光実験施設         |