

佐賀県立九州シンクロトロン光研究センター
SAGA Light Source (SAGA-LS)
年報 2022

巻頭言

公益財団法人佐賀県産業振興機構
九州シンクロトロン光研究センター
所長 妹尾 与志木



佐賀県立九州シンクロトロン光研究センター（英語名：SAGA Light Source（略称：SAGA-LS））は、稼働を始めた開所は2006年ですが、設立のねらいの制定は1999年に策定された「シンクロトロン光応用研究施設基本計画」までさかのぼります。ねらいの最初に「地域産業の高度化と新産業の創出」が掲げられ、日本で最初の産業応用を主目的とするシンクロトロン光研究センターとして歩みを始めました。シンクロトロン光を用いた研究と地域産業とを結びつける作業は容易ではなく、開所後間もない2007年度より「文部科学省先端研究施設共用イノベーション創出事業ナノテクノロジー・ネットワークプログラム」の援助を受け、さらにその後県からの援助も仰いで廉価な利用区分を設け、産業応用の利用例を全国

を対象として積み重ねてきました。しかしながら近年は国内において同様のシンクロトロン光研究センターの数も増え、各施設の独自性がより重要になってきていると考えられます。そのような観点から2023年度を、利用制度の上からも地域産業への貢献を明確に示すような変更を行う年と決めました。2022年度は、その変更の前段として佐賀県立九州シンクロトロン光研究センター施設運営の「指定管理者」を改めて選定する手続きが実施され、公益財団法人佐賀県産業振興機構が再選定されました。少し紙面を要しますが、そのことについてご説明をさせていただきます。

2003年9月の地方自治法の改正により、公の施設の運営については、県から県出資の法人や公共的団体等へ委託する従来型の管理手法のほかに、民間企業を含む指定管理者がある程度の自由度をもって管理・運営できる指定管理者制度が導入されました。佐賀県立シンクロトロン光研究センターの運営には後者が選択され、同年10月に指定管理で行う業務の範囲を定める「佐賀県立九州シンクロトロン光研究センター条例（佐賀県条例第42号）」が制定されました。「多様化する住民ニーズに、より効果的・効率的に対応するため、民間の能力を活用しつつ、住民サービスの向上を図る（佐賀県HPより）」のが同制度の趣旨です。当センターの場合、高度な専門知識をもった研究員の活動が必須であり、また放射線発生装置を扱う施設として厳しい安全管理を要求されることもあり、2003年（平成15年）12月に当財団（当時は財団法人佐賀県地域産業支援センター）が、「2004年（平成16年）1月1日から佐賀県立九州シンクロトロン光研究センター廃止の日まで」との期間を定められ、指定管理者に選定されました。「廃止の日まで」とされたのは、安全管理の面から管理者の継続性が重要と判断されたためのようなのです。指定管理者制度の考え方には、サービスの提供者を広く求め、設置目的との適合性や管理経費の縮減などの観点から見直す機会を設けるため、適当な期間を定めて指定を行う、という部分があります。上記の指定はこの部分の趣旨からはどうしても外れてしまうことになります。シンクロトロン光研究施設の管理・運営という特殊な業務を遂行可能な機関の数は極端に限られますので、「広く求める」面では限界があるものの、「見直しの機会を作る」ことは必要ではないかとの意見が持ち上がりました。

2021～2022 年度にこの点が議論され、開所後 15 年以上安定的な運営を行ってきたところではありますが、前述の法の趣旨を全うする形に見直されることとなりました。まず「研究センター廃止の日まで」と規定されていた指定期間の終期が、一旦 2023 年 3 月までとされ、2022 年 7 月に指定管理者の公募が開始されました。当財団はこの公募に応募し、2022 年 10 月 7 日の審査会を経て、2022 年 11 月 29 日に「佐賀県立九州シンクロトロン光研究センターの指定管理者に指定する」旨の通知を受けとることができました。指定期間は 2023 年（令和 5 年）4 月 1 日より 2033 年（令和 15 年）3 月 31 日までの 10 年間です。財団からの申請の際、提案の中に地域産業への貢献が明確な利用制度を入れさせていただきました。実施は 2023 年 4 月からですが、利用者の皆様にできるだけ早くお知らせする必要があると考え、ホームページ上に予告として掲載させていただきました。

日本全国に目を向けると、新しい施設 NanoTerasu が稼働開始に向けて準備を進められており、将来的に国内で 9 つの機関がシンクロトロン光に関わる施設を運営することになります。各施設間で協力し合えるところは協力を行う一方で、各機関の独自性を意識してその独自領域を整備・育成していくことがますます重要になってきます。佐賀県は農業・漁業・林業などが盛んな県です。当センターではそのような産業領域に対して、2020 年頃から研究員が単なる利用者支援の枠を超えて自ら研究推進に携わるようなプロジェクトを少しずつ進めています。しかしながら、当センター単独で担えるプロジェクトは無く、すべて協力していただける他の公的研究機関等との共同研究の形をとっています。現状では当センターも含めて製造業がシンクロトロン光を用いた研究の最大の出口ですが、地域産業への貢献のひとつの形としてこのような形態のプロジェクトを今後も積極的に推進していきたいと考えています。

当センターの運営のコンセプトは、日本全国あるいは世界規模の研究成果を基盤として、その活動を地域産業の振興に役立てる、というのですが、科学技術や学術研究は非常に裾野の広いものであり、地域産業への貢献の過程や結果が、逆に全国レベルでの研究や産業振興に有用な役割を果たすことも必ずあります。当センターは佐賀県立ではあるものの施設名に「九州」の名前が冠されており、そのような役割を少なからず意識して創設された施設です。今後もそのような点を意識しながら施設の運営を続けていきたいと考えます。

今後とも九州シンクロトロン光研究センターをよろしくごお願い申し上げます。

目次

I	概要	1
II	利用	
1	利用実績	4
2	利用研究の事例	7
(1)	シンクロトロン放射光による天山石の研磨工程で石材表面に同時形成された薄膜の構造解析	8
(2)	微生物を対象としたシンクロトロン光照射による突然変異誘発	12
(3)	X線内殻吸収を駆使した低結晶性有機金属構造体の配位子場分析	21
(4)	X線吸収分光による $\text{Sc}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ の局所構造解析	24
(5)	4H-SiCの埋戻し成長層における空洞欠陥のX線CT法による観測	27
(6)	放射光Micro-CTIによる紡錘虫類化石の殻、特に旋回壁内層状構造の観察	30
3	利用促進	34
III	加速器／ビームライン等の現状	
1	加速器	35
2	県有ビームライン	37
3	ナノスケール表面界面ダイナミクスビームライン (BL13 ; 佐賀大学)	40
4	九州大学硬 X 線ビームライン (BL06 ; 九州大学)	42
5	住友電工ビームライン (BL16、BL17 ; 住友電気工業株式会社)	44
IV	研究開発	48
V	研究会、講習会	49
VI	広報、人材育成	50
VII	委員会	52
VIII	安全管理	53
IX	施設管理	54
X	出版物等	56
	付録	63
1	収支	
2	運営組織	
3	アクセス	

I 概要

公益財団法人佐賀県産業振興機構は、指定管理者^{*)}として、佐賀県が設置した「佐賀県立九州シンクロトロン光研究センター」(英語名:SAGA Light Source。以下、「研究センター」という。)を管理運営し、2006年2月17日の開所(供用開始)以来、シンクロトロン放射光を用いた「地域産業の高度化、新産業の創出及び科学技術の振興」に取り組んでいる。

^{*)}指定管理者:2003年9月の地方自治法改正で創設された指定管理者制度に基づき、公の施設を管理運営する運営主体を指す(地方自治法第244条2の第3項に規定)。

研究センターの管理運営は、昨年度と同様に指定管理者が3年毎に佐賀県に提出する経営計画書(2021-2023年度)に基づいて実施した。すなわち以下のミッションを設定し、その実現を目指して運営を行っている。

<ミッション>

当研究センターのミッションは1999年に制定された「シンクロトロン光応用研究施設整備基本計画」の中で以下のように定められている。

- ①地域産業の高度化と新規産業の創出
- ②優秀な頭脳の集積
- ③多様な産学官連携拠点の集積
- ④先端科学技術を担う人材の育成
- ⑤科学技術への理解の促進

以下に、2022年度の管理運営状況を示す。また、付録1に今年度の管理運営に係わる収支状況を、付録2に運営組織について述べる。

【全般状況】

光源加速器とビームライン状況については、広範

囲に及ぶ分野の利用支援を確実かつ迅速に行うために、光源加速器と7本の県有ビームラインを安定的に運転し、加えて機器高度化、老朽機器更新、及び保守点検等を継続して行った。また、他機関ビームライン(佐賀大学1本、九州大学1本、住友電気工業株式会社2本)も研究センターと連携し順調に稼働した。

次に、放射光利用の深化と裾野拡大を促すことを目的として、毎年、研究成果報告会を開催しているが、今年度は『X線吸収分光(XAFS)法が主導する課題解決への道』と題し、第16回目の研究成果報告会を開催した(2022.8.5)。「分析ツールとしてのXAFS活用」(特別講演)、「酸化物ガラス中における遷移金属化学状態分析へのX線吸収分光法の適用とSAGA-LS利用」(企画講演)等が行われた。

次に、II章以下の内容を概括して述べる。

「II 利用」

1 利用実績

1-1. 加速器運転及びビーム供給状況

2022年度の加速器運転時間総計は2,249.5時間であり、そのうちビームラインへのビーム供給は1,679.0時間、マシンスタディは539.0時間、加速器故障は31.5時間であった。

1-2. ビームラインの状況

7本の県有ビームラインの外部利用及び内部利用を合わせた延利用時間は3,013.5時間であった。

また、他機関ビームラインのBL13;佐賀大学、BL06;九州大学、BL16、BL17;住友電気工業株式会社も順調に稼働した。

1-3. 県有ビームライン利用状況

(1) 全体統括

公募利用と共同研究を合せた外部利用が2,872.0時間(利用件数は153件)であり、外部利用に関しては、前年度(3,747.0時間)比76.6%となった。

(2) 佐賀県内・九州域内の利用状況

今年度の県内及び九州地域の利用時間数の割合は、それぞれ 29.5%、48.4%となり昨年度に比べ県内の割合は増加、九州地域の割合は減少した。

(3) 所属区分・利用区分毎の利用状況

産学官の利用時間数の割合は、企業 40.4%、大学 46.0%、公設試 13.6%であり、成果公開利用は 54.3% (1,559.0 時間)、非公開利用及び共同研究利用は 45.7% (1,313.0 時間) であった。

(4) 利用分野毎の利用状況

利用分野での利用時間数の割合は、電子デバイス 44.7%、素材・原料 17.8%、エネルギー11.5%、資源・環境 8.0%、農林水産・食品が 7.6%、バイオメディカル・健康 6.9%の順であった。

2 利用研究の事例

企業、大学及び公的試験研究機関による利用研究の分野は、1-(4) に述べたように多岐にわたっており、この状況はここ数年来同様である。主に 2022 年度の利用の中で、代表的な利用研究の事例を、II-2 節に 6 件紹介する。また、利用に関する発表論文を、X 章にまとめた。

3 利用促進

3-1 県内利用促進

佐賀県内の産業振興を目的に産業利用コーディネーター(3 名)を配置し、県内企業等に対して研究センターを使用した課題解決の提案等を行った。

また、包括利用制度による県内企業の支援や県試験研究機関との連携を通じた産業課題の解決を図った。その他、佐賀県内の産業利用を促進すべく、主に県内の企業や公設試等向けの施設見学会も 2 回 (2022.6.13、2023.2.27) 実施した。

3-2 県外等全般的な利用促進

利用相談(メール及び来訪等)の対応やユーザーアンケートにより、利用者の利便性向上を図った。

また、後述の「V. 研究会、講習会」や「VI 広報、人材育成」の取り組みについても、同時に利用促進の役割を果たしている。

「III 加速器/ビームライン等の現状」

1 加速器

光源加速器は、入射用 255 MeV リニアックと 1.4 GeV 電子蓄積リングから成る。

1 週間の運転パターンは、月曜日がマシンスタディ、火曜日～金曜日がビーム供給(ユーザー運転)である。ビーム供給は火曜日が 2 回入射、その他は 1 回入射である。なお、1 日のユーザー運転時間は、1 回入射日は 11 時間(10:00～21:00)、2 回入射日は 9.5 時間(前半 10:00～15:00、後半 16:30～21:00)である。

光源加速器のアボートは 3 件、44.0 時間であった。また、超伝導ウイグラーについては、ユーザー運転において、2 台同時励磁運用を定常的に行った(III-1 節参照)。

2 ビームライン等

7 本の県有ビームライン(BL07、BL09、BL10、BL11、BL12、BL15、BL18)では、40 eV から 35 keV の幅広い光子エネルギー範囲でのシンクロトロン放射光を利用した実験が可能である。

2022 年度は半導体関連基盤強化事業による整備を行った。また、測定データの定量性向上に向けた取り組みにも着手した。

一方、他機関ビームラインは、ナノスケール表面界面ダイナミクスビームライン(BL13;佐賀大学、III-3 節参照)、九州大学硬 X 線ビームライン(BL06;九州大学、III-4 節参照)、住友電工ビームライン(BL16、BL17;住友電気工業株式会社、III-5 節参照)で引き続き利用実験が行われた。

「IV 研究開発」

佐賀県から措置される試験研究費による研究が 3 件実施された。また、科学研究費による研究(研究センター研究員が研究代表者となっているもの)が 2 件実施された。

「V 研究会、講習会」

外部利用者や内部スタッフ、様々なシンクロトロン放射光分野の研究者、利用を検討している研究者等を対象とした研究会や講習会等について、研究センターが主催するもののみならず、関係機関の活動に共催、協賛又は後援等で参画し、利用促進に向けた情報交換や研究センターの成果普及に努めた。

主な研究会は、「第16回九州シンクロトロン光研究センター研究成果報告会」(2022.8.5)、「第36回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム」(2023.1.7-9)等であった。

また、シンクロトロン放射光の基礎から応用について学ぶ「SAGA-LS サマースクール 2022」(2022.8.24-26)を、利用促進を主眼とする講習会として実施した。

「VI 広報、人材育成」

広報については、研究センターを公開し活動内容を広く一般へ紹介するため、施設の「一般公開」を行い、実験ホールの見学ツアーや工作体験、地元の中学生の研究発表等を行い、196名の方に参加いただいた。

また、「一般見学」については年間を通じて一般市民、企業及び公共団体等の受入れを行い、885名にご来所いただいた。

また、ウェブサイト上で研究センターの近況等を発信する「SAGA-LS Web Magazine」を2回発行した(2022.4、2022.12)。

さらに、研究センターの設備や利用支援の仕組みを、複数の学会でのポスター発表や展示会等でブースを出展することで紹介した。

人材育成については、当研究センター研究員が講師となり、九州大学大学院にて特別講義「シンクロトロン光概論」を行った。

例年インターンシップによる地域からの学生を受け入れていたが、新型コロナウイルス流行の影響により、2022年度の受け入れはなかった。

「VII 委員会」

研究センターの管理運営に当たり有識者、関係機

関等の意見を広く反映するため、諮問委員会を設置している。

また、他機関ビームライン設置妥当性の協議及び決定を行う機関として他機関ビームライン評価委員会を設置している。

2022年度は諮問委員会、他機関ビームライン評価委員会とも開催実績はなかった。

「VIII 安全管理」

シンクロトロン放射光の利用を安全に行うために、放射線障害予防規程及び化学薬品管理規程等、安全に関する諸規程を運用し、定期線量測定及び放射線管理区域の管理並びに化学薬品等を持ち込む際の安全審査等を行った。

また、研究センター職員、利用者及び業者向けの放射線業務従事者教育訓練講習会を開催し、47名に受講いただいた(2022.5.23、2022.8.2、2023.1.20)。なお、放射線業務従事者登録数は449名(所内22名、所外427名)であった。さらに、実験廃液等の産業廃棄物処理を外部委託により行った。

「IX 施設管理」

電気、上下水道、都市ガス、排ガス等の一元管理と省エネルギーへの要請に取り組んだ。年間電気使用量は前年度比約0.9%減、年間水道水使用量は前年度比約0.6%増、年間都市ガス使用量は前年度比約4.0%減であった。

また、光熱費の高騰については、効率的な設備運転や節エネによる経費節減と合わせ、佐賀県と協議しながら事業継続補助金等の活用により対応した。

「X 出版物等」

成果公開タイプの全ての利用について、利用報告書の提出を求めており、次年度にウェブサイトですべて公開している。

また、研究センターが毎年開催する研究成果報告会、随時開催する各種研究会及び会議等は、その記録をウェブサイト上で公開すると同時に、印刷物として発行した。

Ⅱ 利 用

1 利用実績

2022年度の利用実績について、報告する。

1-1. 加速器運転及びビーム供給状況

加速器運転時間総計は、2,249.5 時間で前年比 99.7%となった。内訳は、表 1 に示すとおりビームラインへの「ビーム供給」、加速器の高度化、安定化研究を行う「マシンスタディ」、そして、「加速器故障」から成る。

その他、主に 9 月下旬から 10 月にかけては加速器の設備保守・点検等のためのシャットダウン期間となっている。

〈参考〉表 1 2022 年度加速器運転状況

図 1 2022 年度ビーム供給時間

表 1 2022 年度加速器運転状況

項 目	時間数 (時間)
ビーム供給	1,679.0
マシンスタディ	539.0
加速器故障	44.0

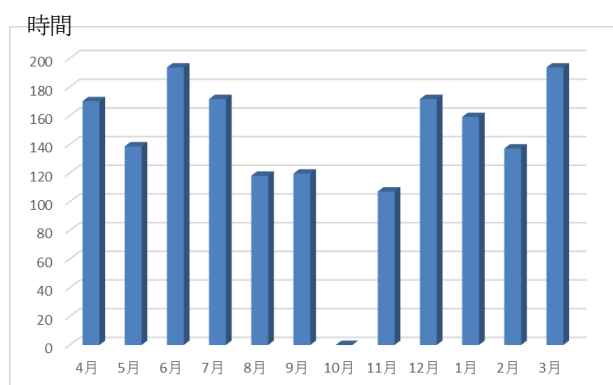


図 1 2022 年度ビーム供給時間

1-2. ビームラインの状況

7本の県有ビームライン (BL07、BL09、BL10、BL11、BL12、BL15、BL18) で利用実験が行われた。県有ビームラインの外部利用及び内部利用を合わせた延利用時間は、前年度比 76.1%の 3,013.5 時間であった。

〈参考〉図 2 県有ビームライン毎の延利用時間

また、4本のお他機関ビームライン (BL13 ; 佐賀大学、BL06 ; 九州大学、BL16、BL17 ; 住友電気工業株式会社) で利用実験が行われた。

なお、それぞれの延利用時間は、BL13 は 1,352.0 時間、BL06 は 1,029.0 時間、BL16 は 1,657.0 時間、BL17 は 1,542.0 時間であった。

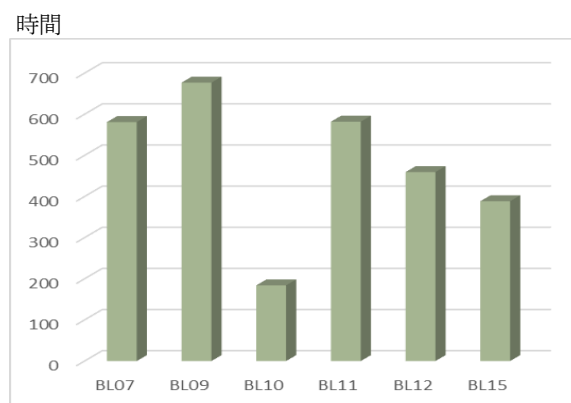


図 2 2022 年度県有ビームライン毎の延利用時間

1-3. 県有ビームライン利用状況

県有ビームラインの利用区分は、「一般利用」、「公共等利用」、「トライアル利用」、「地域戦略利用」、「探索先導利用」、「先端創生利用」、「包括利用」として、県指定管理事業で行う利用を設定した。また、共同研究契約に基づく「共同研究利用」も実施している。

「探索先導利用」は 2012 年度に設定した利用区分であり、対応する具体的な課題内容を見直しなが

ら、地域の活性化に結びつく先導的課題（Rタイプ）や基礎科学の領域に属する探索的課題（Fタイプ）の利用支援を行った。また、2013～2015年度；文部科学省先端研究基盤共用・プラットフォーム形成事業の外部資金を用いた利用区分から県指定管理費で行う利用区分に移行した「先端創生利用（長期、短期タイプ）」は、先端産業に資する実用化および基盤技術の高度化に関する課題を優先的に採択した。

なお、利用課題の募集は、年を3期に分けて行い、各期において月締めで課題を採択した。

(1) 全体統括

県有ビームラインの産学官による外部利用時間は、前年度比76.6%の2,872.0時間、利用件数は153件であった。

主な要因として、2021年度は新型コロナにより活動が制限されていた企業、大学の利用が回復し、大幅に伸びた年度であったが、集中して利用した企業等が、目的達成のため2022年度は利用しなかったこと、また、機器更新等による実験効率化や複数回利用による測定効率化等のため1件当たりの利用時間が減少傾向にあることが挙げられる。

〈参考〉表2 2022年度利用区分の概要

表3 2022年度利用状況

(2) 佐賀県内・九州域内の利用状況

県内及び九州地域の利用時間数の割合は、それぞれ29.5%、48.4%となり、前年度に比べ県内の割合は増加、九州地域の割合は減少した。

主な要因としては、県内は主に公設試の利用が増えたこと、九州地域においては2021年度に利用が多かった九州域内大学の利用時間が、目的達成等のため減少したことが挙げられる。

〈参考〉図3 2022年度地域別の割合

(3) 所属区分・利用区分毎の利用状況

産学官の利用時間数の割合は、企業40.4%、大学46.0%、公設試13.6%であり、成果公開利用は54.3%（1,559.0時間）、非公開利用及び共同研究利用は45.7%（1,313.0時間）であった。

前年度は成果公開利用における大学の利用の割合が多かったが、2022年度においては企業・公設試の利用の割合が増え、共同研究も含め、産業利用の側

面からも活用が進んでいる。

〈参考〉図4 2022年度産学官の利用割合

(4) 利用分野毎の利用状況

利用分野での利用時間数の割合は、電子デバイス44.7%、素材・原料17.8%、エネルギー11.5%、資源・環境8.0%、農林水産・食品が7.6%、バイオメディカル・健康6.9%の順で、おおよそ例年同様の割合となっている。

表2 2022年度利用区分の概要

利用区分	概要
一般利用	主に企業利用を想定（学官可） 成果非公開可 有料
包括利用	県内企業の課題解決を目的として実施 成果非公開可 有料
トライアル利用	産学官の利用可 成果公開 初回1日無料
公共等利用	大学、公的研究機関に限定 成果公開 有料
探索先導利用	産学官の利用可（F、Rタイプ） 成果公開 有料
先端創生利用	産学官の利用可（長期、短期タイプ） 成果公開 有料
地域戦略利用	佐賀県試験研究機関に限定 成果公開 有料
共同研究等利用	機関間の契約に基づく研究

表3 2022年度利用状況

利用区分	利用件数 (件)	利用時間 (時間)
一般利用	65	1,183.5
包括利用	5	16.0
トライアル利用	5	55.0
公共等利用	4	44.0
探索先導利用/Fタイプ	32	680.0
探索先導利用/Rタイプ	18	289.5
先端創生利用/短期タイプ	18	391.5
先端創生利用/長期タイプ	1	77.0
地域戦略利用	2	22.0

共同研究等利用	3	113.5
計	153	2,872.0

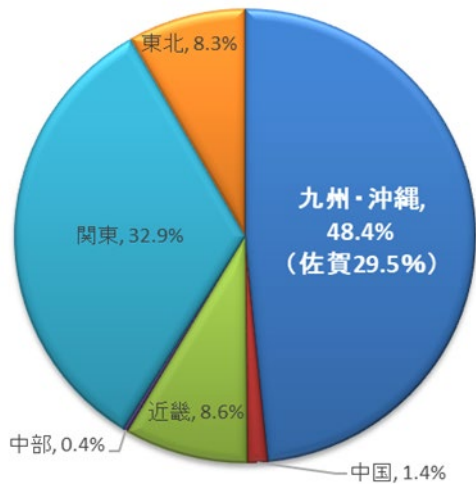


図3 2022年度地域別の利用割合

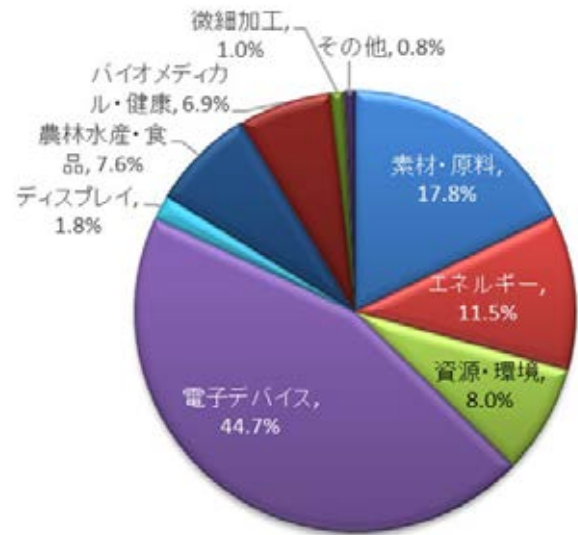


図5 2022年度分野別の利用割合

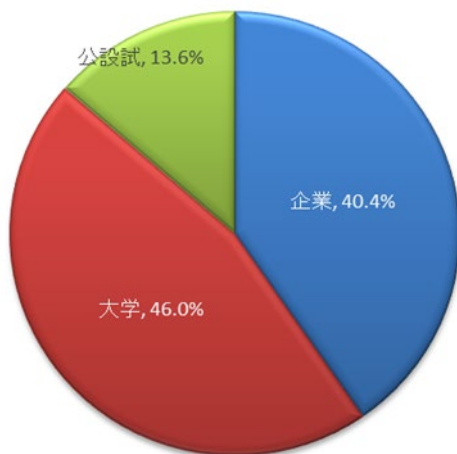


図4 2022年度産学官の利用割合

2 利用研究の事例

1. 利用分野

2022年度は、153件(2,872.0時間)の利用実験の支援を行った。利用分野の分布を図1に示す。電子デバイス及び素材・原料を始めとして、現代社会のニーズを反映した広範囲な分野でシンクロトン放射光が利用されている。

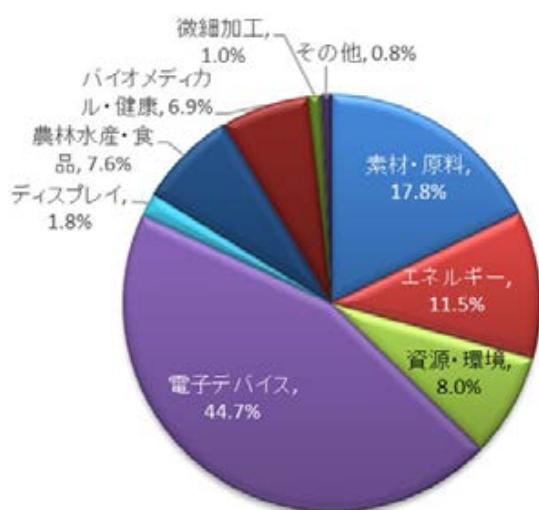


図1 2022年度分野別の利用割合(再掲)

2. 利用事例

ここでは広い分野に及ぶ利用研究から、各利用分野や実験手法の特長を示す以下の6件の利用事例について、次ページ以降、紹介する。

- (1) シンクロトン放射光による天山石の研磨工程で石材表面に同時形成された薄膜の構造解析
立山博^{1,2}、馬込栄輔³、房安貴弘⁴、田中義人^{1,5}
(¹天山石材株式会社、²産業技術総合研究所、³九州シンクロトン光研究センター、⁴佐賀大学、⁵長崎総合科学大学)

- (2) 微生物を対象としたシンクロトン光照射による突然変異誘発
木村圭、小林元太、後藤正利、永野幸生、吉田和広、馬場嵩一郎、Sittichoke Ketkaeo、水戸誠也、瀨崎友宏(佐賀大学)

- (3) X線内殻吸収を駆使した低結晶性有機金属構造体の配位子場分析
山神光平¹、芳野遼²
(¹高輝度光科学研究センター、²東北大学 金属材料研究所)

- (4) X線吸収分光によるScxGa1-xNの局所構造解析
上原雅人¹、池本勇²、平田研二¹、大曲新矢¹、瀬戸山寛之³
(¹産業技術総合研究所、²九州大学、³九州シンクロトン光研究センター)

- (5) 4H-SiCの埋戻し成長層における空洞欠陥のX線CT法による観測
紀世陽¹、児島一聡¹、米山明男²、山口博隆¹
(¹産業技術総合研究所、²九州シンクロトン光研究センター)

- (6) 放射光Micro-CTによる紡錘虫類化石の殻、特に旋回壁内層状構造の観察
一田昌宏(豊橋市自然史博物館)

なお、利用研究に関する成果等は、X章にタイトル、所属及び氏名等をまとめて記述している。

シンクロトロン放射光による天山石の研磨工程で石材表面に同時形成された薄膜の構造解析

立山 博^{1,2}、馬込栄輔³、房安貴弘⁴、田中義人^{1,5}

¹天山石材株式会社、²産業技術総合研究所、³九州シンクロトロン光研究センター、⁴佐賀大学、⁵長崎総合科学大学

1. はじめに

石材は、古くから、建材、石碑、墓石等、非常に幅広く利用されているが、一般的に見栄の美しさを要求されているため、表面の研磨が非常に重要である^[1]。国産石材の1つである天山石^[2]は、圧縮強度が非常に大きく、加工が難しい石材であるが、数十年経過しても、経年劣化がほとんどないという特徴を有している。

最近、著者らは、天山石の研磨時に、石材表面に非晶質シリカ膜が、同時形成されるという、これまでの研磨の概念を覆す新規な事実を、世界で初めて明らかにした^[3]。この天山石表面に形成された非晶質シリカ薄膜の存在が、石材表面のコーティング剤として働き、天山石の耐候性を優れたものとしている一因と推定した。

本報告では、この非晶質シリカ膜について、9種類の研磨盤を用いて、全研磨工程の石材試料について、GIXRD法による解析を行い、より詳細な薄膜の構造解析を行ったので、その結果を報告する。

2. 実験

2-1 試料

佐賀県唐津市七山にある天山石株式会社の採石場から天山石の原石を採集した。天山石は、花崗閃緑岩に属し、主に、斜長石、石英、黒雲母、正長石を含んでいる。天山石の特徴としては、圧縮強度が 192.5 N/mm^2 と、他の石材の庵治石 (175.0 N/mm^2) や大島石 (118.2 N/mm^2) と比較して大きな値を示すこと、また、吸水率が 0.059% と、庵治石 (0.19%) や大島石 (0.15%) と比較して、非常に小さいことである^[2]

2-2 研磨方法

原石を、ダイヤモンドカッターで切断後、三和研磨工業(株)製の9種類の研磨盤を用いて、粗(#60、#200) — 中(#200相当、#400、#800、#1500) — 細(#2000相当、#4000相当) — ツヤ(#8000相当)の9研磨工程で、表面研磨を行った。研磨盤の種類は、高屋^[4]らの表記方法に従った。なお、測定試料の大きさは、 $100 \times 100 \times 10 \text{ mm}^3$ とした。ここで、9種類の研磨盤で研磨された石材を、通し番号で、それぞれ、試料1～9と呼称する。研磨条件は、研磨圧力： $5.0 \times 10^3 \sim 2.2 \times 10^4 \text{ kgf/m}^2$ 、研磨板回転速度： $600 \sim 800 \text{ rpm}$ である。

2-2 実験方法

(1) 微小角入射 X 線回折(GIXRD)法

石材の結晶相の解析は、GIXRD法を用いた。図1に光学系の概略と測定条件を示す。入射角は $\omega = 0.15^\circ$ に固定し、 2θ 走査法で、試料表面の測定を

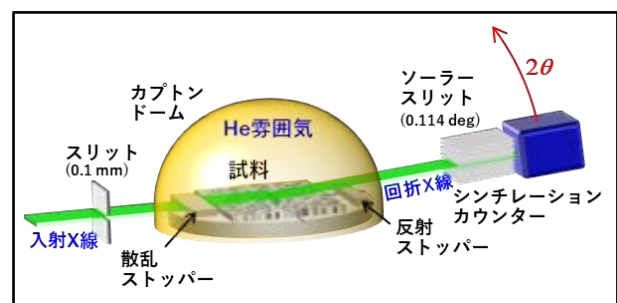


図1 微小角入射 X 線回折 (GIXRD) 法の光学系

行った。

(2) 蛍光 X 線(XRF)法

石材の表面に形成された薄膜の膜厚測定には、XRF法を用いた。XRFの光学系の概略図と測定条件を図2に示す。X線エネルギーは、試料に含ま

れる主な元素の吸収端以上である 8.00 keV とし、

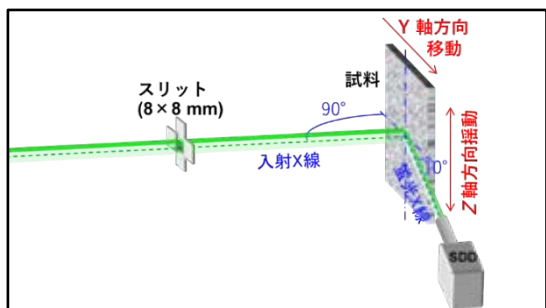


図2 蛍光 X 線 (XRF) 法の光学系

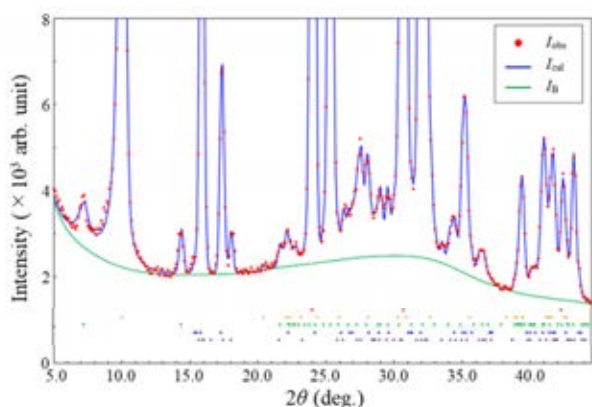
試料に含まれる Fe の蛍光 X 線 (Fe K α 線 : 6.40 keV) の強度変化から膜厚測定を行った。

3. 実験結果及び考察

3-1 研磨石材の GIXRD 法による解析

(1) 試料 1 の GIXRD 法による解析

図 3 に試料 1 (#40 で研磨) の GIXRD 法による解析結果を示す。まず、定性的に各鉱物 (結晶) の同定を行った。同定された結晶相は、石英、黒雲母、緑泥石、正長石、斜長石 (アンデシン) の 5 種類であった。それぞれの結晶相を色別に、石英 : 赤色、黒雲母 : 橙色、緑泥石 : 緑色、正長石 : 青色、



アンデシン : 紫色とした。なお、試料 1 には、研磨初期のため、非晶質シリカは存在しない。

図3 試料 1 の GIXRD 法による解析

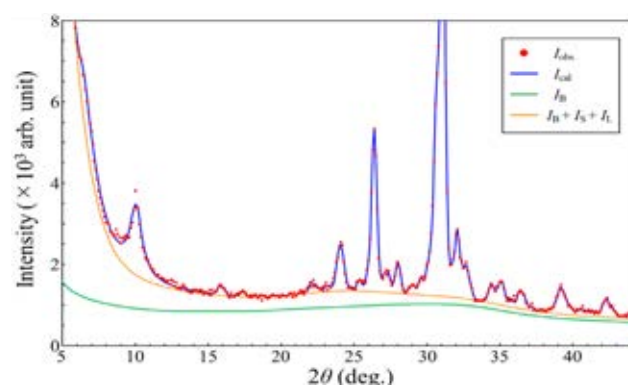
観測プロファイル (I_{obs} 、赤丸) と計算プロファイル (I_{cal} 、青線) のフィッティングは、各結晶相の原子座標や格子定数を基に、Rietveld^[4] 法を用いて行った。以下に計算の基本式を示す。

ここで、 I_i (i : 各結晶相の通し番号) は、結晶相の

$$I_{cal}(2\theta) = \sum_{i=1}^5 I_i(2\theta) + I_B(2\theta)$$

強度プロファイルを表す。ただ、結晶相の粒子径が数 mm と大きく、切断面が任意のため、回折面も任意となり、Rietvelt 法でのフィッティングは不可能であった。そこで、個々の観測強度と一致するようにフィッティングを行い、各結晶相の格子定数及び半値幅を求めた。 I_B (緑線) は、バックグラウンド散乱プロファイルを示し、バックグラウンド関数のパラメータは、上記と同様な方法で求めた。解析の信頼度因子 (R 値) は、1.99% であり、十分に高い精度であった。

(2) 試料 2 ~ 9 の GIXRD 法による解析



試料 2 から 9 (#200 ~ #8000 で研磨) の GIXRD 解析の中で、試料 9 の解析結果を図 4 に示す。

図4 試料 9 の GIXRD 法による解析

個々の計算プロファイルは、以下の基本式を基に各パラメータを変化させてフィッティングを行った。

ここで、 $I_i(2\theta)$ のプロファイル (青線) は、各結晶相の半値幅を、試料 1 と同じと仮定して、各結晶相の格子定数を求めた。バックグラウンド関数のパラメータは、試料 1 と同じと仮定し、試料毎に、スケール因子 (C_B) を変化させた。

$I_S(2\theta)$ は、表面層のプロファイル (橙色) である。表面層は非晶質シリカであり、石英ガラスと同じ

$$I_{cal}(2\theta) = \sum_{i=1}^5 I_i(2\theta) + C_B \times I_B(2\theta) + C_S \times I_S(2\theta) + I_L(2\theta)$$

物質であることが確認されているため^[3]、石英ガラスのプロファイルを $I_S(2\theta)$ として用いた。 C_S は表面層散乱のスケール因子で、 C_S を試料毎に変化させて、フィッティングを行った。

$I(2\theta)$ は、低角度域散乱プロファイル（橙色）である。この低角度域の散乱プロファイルは、結晶の形状を球と仮定した時の、結晶外形関数で与えられる。以下にその基本式を示す。

$$\Phi(\xi\eta\zeta) = 3N \frac{(\sin 2\pi b'R - 2\pi b'R \cos 2\pi b'R)}{(2\pi b'R)^3}$$

ここで、 N は単位格子の数、 R は球粒子の半径、 $\xi\eta\zeta$ は回折線が、逆格子のエヴァルト球と交差する位置、 hkl はブラッグ反射の位置、 b', b, h は散乱ベクトルで、これらの間には、以下の関係式が成立する。

$$\begin{aligned} b' = b - h &= (\xi - h)a^* + (\eta - k)b^* + (\zeta - l)c^* \\ &= \left(\frac{2}{\lambda}\right) \left\{ \sin\left(\frac{\chi}{2}\right) - \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \right\} \end{aligned}$$

ここで、 χ は、散乱角、 θ は、ブラッグ角、 $h=0, k=0, l=0$ を代入すると、 $2\theta=0^\circ$ に半径 R の球粒子の XRD プロファイルが得られる。また、 $b' = s/2\pi$ (s : 散乱ベクトル) とすると、小角散乱の理論より導出される式と一致する。

ここでは、結晶外形関数を Pseudo-Voigt 関数 (Lorentz 関数の割合 20%) で近似し、積分強度 (C_G) と半値幅を独立変数とした。この半値幅の値が $2R$ に相当し、半値幅より球粒子の直径を求めることができる。半値幅より求められた球粒子の直径は、 $16.4 \pm 0.6 \text{ \AA}$ であった。この大きさは、環状シロキサン の六量体から八量体の大きさに近く、この球粒子は、環状シロキサンと推定できる。R 値は 2.33% であり、十分に高い精度であった。

(3) 各パラメータ (C_s , C_b , C_G) の計算結果

試料 2 から試料 9 までの、 C_s , C_b , および C_G の変化を調べた。その結果、非晶質シリカ、および環状シロキサンが、どの研磨盤から、どの程度形成されるかを、定性的ではあるが、明らかにすることができた。これにより、研磨盤の粒度や、研磨材の種類による違いを明確にすることができた。ただ、これらの個々のデータに関しては、紙数の関係から、本報告では割愛することとする。

3-2 XRF による非晶質シリカ薄膜の厚さ測定

XRF を用いて、天山石の表面に形成された薄膜の厚さを、研磨面 (#8000 で研磨) と未研磨面 (裏面) の強度を比較することにより行った。この Fe K α 線 (6.40 keV) のピーク強度は、研磨面と未研磨面とでわずかな差がみられ、未研磨面で大きい。この差は前述の天山石表面の非晶質シリカ薄膜による X 線吸収によると考えられる。そこで Fe K α 線の未研磨面強度と研磨面強度を比較して、薄膜層の膜厚を計算した。計算された非晶質シリカ膜厚は、3 箇所計測した結果の平均値として、 $1040 \pm 150 \text{ nm}$ であった。

4. まとめ

天山石の研磨過程で、石材表面に、研磨と同時に非晶質シリカ膜が形成されるという新事実を、世界で初めて発見した。さらに、GIXRD 法による詳細な解析で、9 種のどの研磨盤から非晶質シリカ膜および環状シロキサンが形成されるか明確にすることができた。現在、研磨盤毎の薄膜形成メカニズムを、界面化学的手法を用いて、理論的に解析し、その基本原理を、明らかにしつつある。

この基本原理を、天山石の製造現場にフィードバックした結果、これまででない透明で欠陥の無い均質な薄膜の形成に成功している。さらに、この手法は、これまでの薄膜形成法とは異なり、低温で薄膜形成が可能のため、他の材料への応用展開も十分に可能であり、現在、検討中である。

参考文献

- [1] Y. Takayama, T. Hattanji and Y. Matukura, "An experimental study on weathering of granite tombstone affected by surface polishing", Transactions Japanese Geomorphological Union, **34**, 293-302, (2013).
- [2] 日本石材産業協会編、国産銘石カタログ、**55**, 2019.
- [3] 立山博、馬込栄輔、房安貴弘、田中義人、"天山石の研磨工程で石材表面に同時形成された薄膜のシンクロトロン放射光による解析"、砥粒加工学会、(2023 年 8 月 7 日受理)

[4] H. M. Rietvelt, 'A profile refinement method for nuclear and magnetic structures', *J. Appl. Cryst.*, **2**, 65-71, (1969).

微生物を対象としたシンクロトロン光照射による突然変異誘発

木村圭, 小林元太, 後藤正利, 永野幸生, 吉田和広,
馬場嵩一郎, Sittichoke Ketkaeo, 水戸誠也, 濱崎友宏
佐賀大学

1. はじめに

微生物は地球上のあらゆる環境に生息しており、生物生態系に大きな影響を及ぼす存在である。我々社会活動においても、産業・工業分野において微生物は広く利用されており、中でも発酵食品をはじめとする食品産業においては、細菌類、酵母、糸状菌などの微生物が非常に重要な役割を果たしている。消費者が食品に対して求める良好な香味、あるいは機能性は、これら微生物が産生する物質に起因することが多い。そのため、有用な特徴を有する細菌類、酵母、糸状菌の探索は、食品分野での産業利用に直結する。また水圏環境では、微生物が海洋生態系の基盤を成しており、水圏環境分野では微生物の機能を解析することの意義は大きい。近年は、微細藻類などの微生物の機能解明のため、さまざまな変異株が作出されている。

著者らは、産業的な有用微生物、あるいは研究における有用微生物の取得のために、保存株や自然界から分離した微生物株の育種を行っている。微生物の育種改良法には、選抜育種、遺伝子組換え技術、変異処理技術等があるが、食品等に利用される微生物の育種改良には、変異処理技術を用いる例が多く見られる。微生物に対する変異処理では、エチルメタンスルホン酸 (EMS) やニトロソグアニジン (NTG) 等の化学薬品変異剤の利用、紫外線 (UV) の照射等が一般的であり、他にイオンビーム照射による変異誘発も散見される^[1-3]。しかしながら、シンクロトロン光の照射による変異誘発事例の報告は非常に少なく、またシンクロトロン光照射による変異誘発機構も十分に解明されていない^[4-7]。一方で、シンクロトロン光照射は、既存の変異処理技術とは異なる手法であるため、変異の起こり方が他の手法と異なり、特有の変異株を取得できる利点も期待できる。

酵母などの微生物の場合、動物や陸上植物に比べて

圧倒的にゲノム (全遺伝子情報) サイズが小さい為、変異処理後に変異が起こっている箇所を、ゲノムワイドに特定することが容易である。一方で、酵母においてシンクロトロン光を変異源として用いた研究例は1例しかなく、シンクロトロン光照射によるDNA上の変異誘発機構の解明だけでなく、変異誘発の有用性等に関する知見すら乏しい状況である^[8, 9]。また糸状菌などの微生物の場合、黄麹菌はシンクロトロン光による軟X線を変異源として用いた研究例があるが^[10]、紅麹菌にシンクロトロン光を変異源として照射した例はない。微細藻類においても同様に、シンクロトロン光による有用性変異株取得の例はない。

そこで著者らは、清酒酵母、糸状菌の紅麹菌、微細藻類の珪藻を対象として、シンクロトロン光照射による変異株取得を試みた。清酒酵母については香气成分に注目した。清酒酵母は、日本酒製造におけるエタノール生産において重要な役割を担っているが、同時に香气成分や有機酸など、清酒の香味に関係する成分も多く生産する。そこで本実験では、選択培地 (tert-Butyl Hydroperoxide (TBHP) 培地) 等を用いることで、好気成分の変化した新規有用清酒酵母株の取得を試みた。紅麹菌は、有用な二次代謝物質であるモノコリンKを生産する。モノコリンKはスタチンの類縁体でコレステロール低下作用がある。本研究では、短時間培養でモノコリンKを多く生産する紅麹菌株を、シンクロトロン光照射による変異処理によって取得することを試みた。最後に、珪藻については、ウイルス感受性に注目した。珪藻類は海の牧草と称されるように重要な資源生物であるが、常にウイルス感染によって減耗の危機に晒されている。ウイルス感受性の違いが、珪藻個体群の維持に関わっており、それが海洋環境に大きく影響していると考えられている。しかしながら、珪藻のウイルス感受性に関する詳しいことは、

十分に理解されていない。そこでウイルス感受性の理解深化を目的に、シンクロトロン光照射によってウイルス感受性が変化する株の取得を試みた。

本報告では、2019年度から2022年度までに実施した5回の照射実験の例から、シンクロトロン光照射による微生物株への変異誘発技術の確立、有用微生物株取得の実例、DNA上に起こる変異の特徴について紹介する。

2. 実験

2-1 試料

<清酒酵母> *Saccharomyces cerevisiae* Y5201-47株

<紅麹菌> *Monascus purpureus* KUPM-5株

<珪藻> 有明海産 *Chaetoceros tenuissimus* Cten2-10株

<珪藻> 有明海産 *Chaetoceros tenuissimus* Cten2-6株 (死滅率算出のみ)

2-2 実験方法

(1)シンクロトロン光照射の条件検討

照射条件は、九州シンクロトロン光研究センターの石地耕太郎博士の支援により、以下の計算により決定した。

◆試料条件

酵母を直径 0.008 mm, 厚さ 0.008 mm, 密度 1.2g/cm³ の円柱状のアミノ酸とみなす。酵母 1 個の重さ 4.82e-13 kg

◆ビーム条件

ビーム電流: 250 mA, 距離: 24 m, エネルギー範囲: 500~50000 eV, 共通フィルター: Be 0.5 mm, Polyimide 0.05 mm, Air 1000 mm, ポリスチレン 2 mm, 水 6 mm, 放射線パワー: 2.03e-9 W

◆実験条件

300秒間を上下にステージを 50 mm 動かしながら照射。ビーム縦を半値幅 (7 mm) とすると、実際の照射時間に 7/55 を掛けて正味の照射時間とする。したがって、実際に試料 1 個が正味照射される時間は 38.2 秒。

◆計算方法

1. 試料透過前後のスペクトルを、上記条件を用いて計算する。

- (透過前スペクトル) - (透過後スペクトル)、すなわち、試料が吸収したエネルギー分布を計算し、エネルギー積分する。
- 1.6e-19 (eV→J/s への変換係数) を掛け、0.001 (0.1%b.w のこと) で割る。
- 試料の重量 (kg) で割る。単位は J/kg・s = Gy/s になる。
- 正味照射された時間 (38.2 秒) を掛け、新吸収線量とする。なお、250 mA で 38.2 秒照射は 20.8 mAh である。

これにより、変異誘発の為のシンクロトロン光照射では、入射エネルギーを一定に保ちつつ、光の照射強度をフィルター (アルミ厚) により調整することで、微生物への照射エネルギーを変えて実験を行った (表 1)。

表 1. プラスチック試験管内の懸濁液試料に対してシンクロトロン光を照射する条件

吸収線量 (Gy)	0	5	20	50	100	300
アルミ厚 (mm)	照射なし	1.7	0.92	0.52	0.3	none

(2)シンクロトロン光の照射方法

清酒酵母は、YPD 液体培地で培養した酵母を 0.85% 生理食塩水に懸濁し、5ml ポリスチレン製プラスチック試験管内に懸濁液を分注し、蓋をして密閉した状態で照射実験に用いた。紅麹菌では、菌の孢子細胞を 0.01% Tween 80 水溶液中に懸濁し、5ml ポリスチレン製プラスチック試験管内に懸濁液を分注し、蓋をして密閉した状態で照射実験に用いた。珪藻は、Modified SWM-3 培地で培養した細胞 (約 2.0×10⁶ cells/mL) を懸濁し、5ml ポリスチレン製プラスチック試験管内に懸濁液を分注し、蓋をして密閉した状態で照射実験に用いた。5ml 試験管をアクリル板に粘着テープで固定し、可動式作業台に設置し、上記条件下でシンクロトロン光を照射した (図 1)。照射終了後、各試料は佐賀大学農学部の研究室へ速やかに持ち帰り、死滅率の測定、有用株の選抜作業を実施した。

(3)シンクロトロン光照射による死滅率の算出

清酒酵母では、各照射条件の試料の一部を段階希釈し、YPD 寒天培地に塗布し、30°C で 1-2 日間培養し、生えたコロニーの数を計測した (n=3 (塗布シャーレ

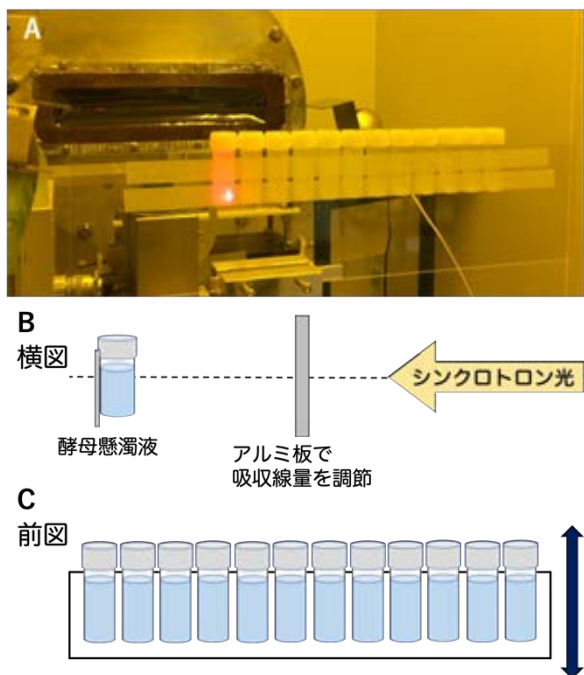


図 1. プラスチック試験管へのシンクロトロン光照射方法
 A. 試料台に固定して照射する状況の様子. B. 照射の方法の模式図 (横図). C. 照射の方法の模式図 (前図)

数)). シンクロトロン光を照射しなかったコントロール試料のコロニー数と、各照射試料のコロニー数を比較することで、各吸収線量での死滅率を求めた。

紅麹菌については、各照射条件の試料の一部を段階希釈後、*Monascus* 用合成デンプン寒天培地に塗布し、30°Cで3日間培養した。培養後、生育したコロニー数を計測し、シンクロトロン光を照射しなかった試料と、各照射試料の生育コロニー数を比較することで、各吸収線量での死滅率を求めた。

珪藻については、照射後、各照射条件の試料の一部を Modified SWM-3 培地で段階希釈し、96 穴培養プレート内に各希釈段階の液を 100 μ L ずつ分注して、7 日間 15°C 100 μ mol m⁻² S⁻¹ の光 (12:12=L:D) 条件で培養した。培養後、96 穴培養プレートで増殖細胞が確認できた well を確認し、各照射条件で生育可能な希釈段階から、計算によって照射直後の生残細胞数を求めた。照射した試料と照射していない試料の生残細胞数を比較することで、各吸収線量での死滅率を求めた。

(4)清酒酵母における香り成分高生産候補株の選抜

清酒酵母の香り成分高生産株の選抜に当たり、*tert*-Butyl Hydroperoxide (TBHP)、およびセルレニンを培地中に添加して、株の選抜を行った。TBHP は過酸化脂質の一種で、細胞膜の不飽和度が減少し、トランスフェラーゼ活性の抑制を解除する。その為、TBHP 耐性を持つことで、香り成分の酢酸イソアミル高生産になると報告されている^[11]。セルレニンは、*Cephalosporium caerulens* が生産する抗生物質の一種で、脂肪酸合成酵素を阻害し脂質生成を阻害する。その為、セルレニン耐性を持つことで、香り成分のカプロン酸エチル高生産となると報告されている^[12]。

100Gy および 300Gy のシンクロトロン光を照射した試験管内の酵母懸濁液試料について、遠心分離による集菌を行い、TBHP を 4mM 含む寒天培地に塗布し、30°Cで3-4 日間培養した。この培養処理により生育してきたコロニーを香り成分の酢酸イソアミルを高生産する一次候補株として分離した。この一次候補株を、5mM TBHP 培地、6mM TBHP 培地へと継代し、6mM TBHP 培地で生育したものを、最終的な酢酸イソアミル高生産候補株とした。

また、上記の死滅率測定実験で、照射した試験管内の酵母懸濁液試料について、遠心分離による集菌を行い、YPD 寒天培地に塗布した。数日後、YPD 寒天培地で生育してきたコロニーを、25 μ M のセルレニンを含む寒天培地 (Cer 培地) に接種し培養した。さらに、生育したコロニーを、50 μ M の Cer 培地に継代し、この培地で生育したものを、最終的なカプロンエチル高生産候補株とした。

(5)紅麹菌におけるモノコリンK高生産候補株の選抜

紅麹菌は、赤色色素、モノコリンK、シトリニンなどの低分子化合物である多様な二次代謝物質を生産する特徴を有する。モノコリンKは、摂取によりヒトのコレステロール値を低下させる作用をもつ有用な化合物である。本研究では、野生株に比べ、モノコリンKを高生産する変異株を取得するために、変異株のバイオアッセイによるスクリーニングを行なった。300 Gy のシンクロトロン光照射後に、寒天培地上で紅麹菌のプレート培養を行い、そこに酵母菌を懸濁し

た上層培地を注加した。モノコリン K は酵母菌の生育を阻止するため、モノコリン K をより高生産する紅麹菌コロニーは、野生株のコロニー周りに、より大きな阻止円をつくる^[13]。そこで親株よりも大きな阻止円を形成するコロニーを分離しモノコリン K 高生産候補株とした。

(6)珪藻におけるウイルス抵抗性株の選抜

珪藻 *Chaetoceros tenuissimus* Cten2-10 株は、珪藻ウイルスの CtenRNA virus type-II を接種する事で、約 1 週間後に完全に死滅することが分かっている^[14]。100 Gy および 300 Gy の線量のシンクロトロン光照射後の Cten2-10 株を滅菌プラスチック内に集め (約 500 mL)、珪藻ウイルスの CtenRNA virus type-II を 5 ml 摂取し、48 穴培養プレート 10 枚 (各ウェルに 1 mL) に分注して 2 週間培養した。コロニー状に生残した細胞をウイルス抵抗性能獲得候補株として分離し、さらに、形質の安定、ウイルスの除去、無菌化、ウイルス抵抗性能の再確認が完了した株を、ウイルス抵抗性能獲得株とした。

(7)清酒酵母と紅麹菌へのシンクロトロン光照射によるゲノム DNA 配列の変異特性の解明

シンクロトロン光を照射により得られた、高香気成分生産性の清酒酵母、モノコリン K 高生産性の紅麹菌株から、ゲノム DNA を抽出し、Long-reads または Short-Reads によるゲノム解析を行い、親株のゲノム配列と比較した。なお、解析の詳細は、本報告の趣旨から外れるため、既に報告している論文を参考にされた^[15]。本研究では、清酒酵母 9 株と紅麹菌 3 株で生じた、一塩基および複数塩基置換、挿入/欠失の数とパターンから、シンクロトロン光照射によって起こる突然変異の特徴について考察した。

なお、珪藻においても、作出した変異株からゲノム DNA を抽出し、Short-Reads によるゲノム解析をおこなったが、まだ変異特性の解析は実施できていない。珪藻については、変異株と親株のゲノム配列の比較解析のみ実施した。

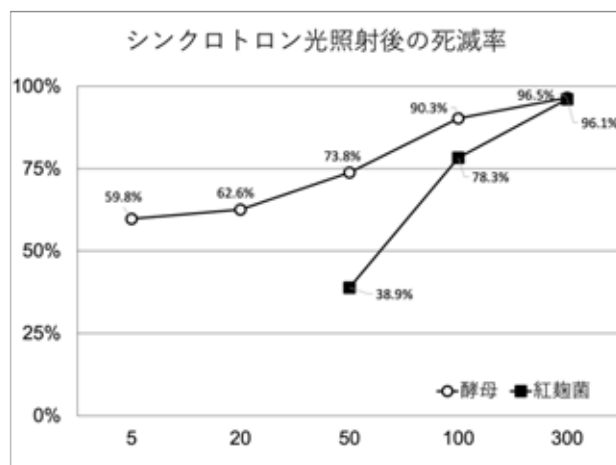


図 2. 清酒酵母、紅麹菌の各照射線量における死滅率

3. 結果及び考察

(1)シンクロトロン光照射による各微生物の死滅率

シンクロトロン光を照射した清酒酵母について、各吸収線量による死滅率を測定した (図 2)。同様に、シンクロトロン光を照射した紅麹菌の、吸収線量による死滅率も測定した (図 2)。これらの結果、吸収線量を高くするほど死滅率が高く、吸収線量が高いほど DNA の変異量が多くなっていることが強く示唆された。また、吸収線量に応じて死滅率が上昇し、300 Gy において、両生物共に 95% の死滅率が得られることが明らかになった。一方で、50 および 100 Gy の照射線量では、生物間で死滅率が大きく異なっていることから、微生物によってシンクロトロン光照射による影響の現れ方が異なることも明らかになった。つまり、初めてシンクロトロン光照射による変異誘発を実施する微生物においては、死滅率を指標とした効率的な照

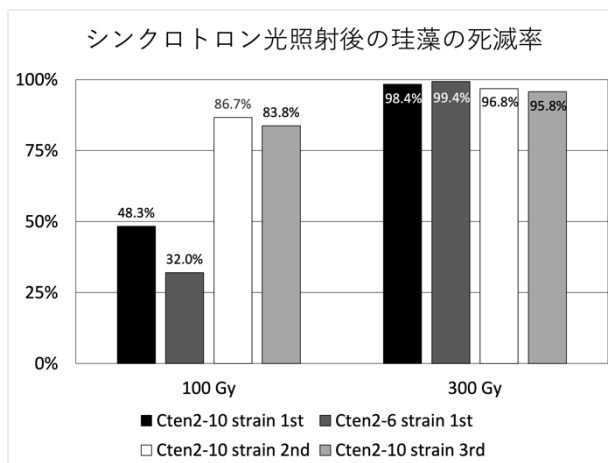


図 3. これまでにシンクロトロン光を照射した珪藻株の死滅率

射条件の検討を実施することが推奨される。なお、本研究で用いた、5ml ポリスチレン製プラスチック試験管内に細胞懸濁液を入れ、このチューブを粘着テープで固定してシンクロトロン光を照射する手法は、試料の分注が必要ではあるものの、試料の持ち運びが容易であり、照射施設内で微生物を扱う必要がないことや、無菌環境を維持できるなどの利点から、様々な微生物に応用できる手法であると期待される。

シンクロトロン光を照射した珪藻 *Cten2-10* 株、2-6 株について、100 Gy および 300 Gy の吸収線量による死滅率を測定した (図 3)。*Cten2-10* 株については、これまでに 3 回照射しているため、それぞれの実験における死滅率を示している。清酒酵母と紅麹菌の死滅率結果同様に、吸収線量が大きいほど、死滅率が高くなることを確認した。また、吸収線量が 300 Gy の照射条件においては、全て 95% の死滅率が得られることが明らかになり、300Gy 以上で安定して高い死滅率が得られることが明らかになった。一方で、100 Gy における死滅率は、30% 台~80% 台と、大きく死滅率に差が出る結果となった。これは、毎回変化する培養条件や照射実験条件の影響であると考えられるが、その理由を明らかにできていない。いずれにせよ、本珪藻の変異誘発実験でも、300 Gy でのシンクロトロン光照射により、高効率で変異を引き起こすことができると考えられる。

(2) 清酒酵母における香気成分高生産候補株の選抜

酢酸イソアミル高生産候補株については、シンクロトロン光照射後のプラスチック試験管内の酵母懸濁液試料から 4mM TBHP 培地への接種によって、782 株の取得に成功した。その後、4mM TBHP 生育株を 5mM、6mM TBHP 培地へと順次継代し、最終的に 65 株の酢酸イソアミル高生産候補株を取得することに成功した。カプロン酸エチル高生産候補株は、照射株後 YPD 培地に生育した約 3,000 株の中で、168 株が 25 μ M Cer 培地において生育した。この生育した株を 50 μ M Cer 培地に継代し、最終的に 55 株のカプロン酸エチル高生産候補株を取得することに成功した。

これら 120 株の変異株について、麴エキス培地での発酵試験を行い、酢酸イソアミル、カプロン酸エチル

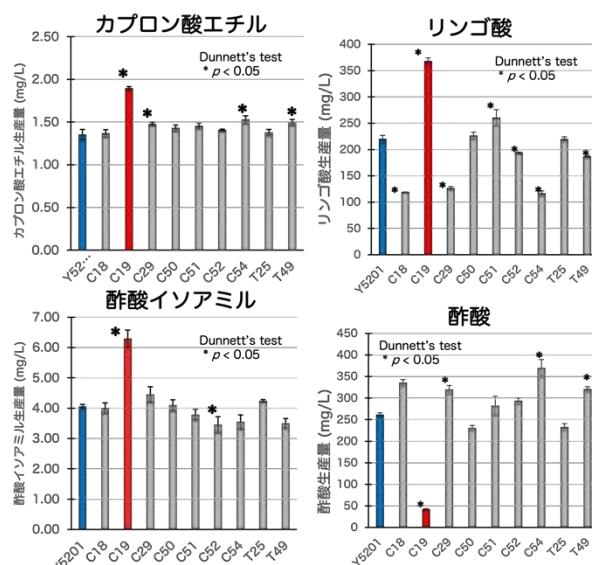


図 4. 変異清酒酵母株を対象とした小仕込み試験による好気成分と有機酸の分析結果

共に、親株より多く生産する 9 株を選抜した。さらにこれらの株の醸造特性を評価するため、数 L スケールの小仕込み試験を行い、全てのサンプルの香気成分と有機酸量を分析した。得られた分析値から、親株である Y5201 株とは異なる特徴ある株を得ることに成功した。特に C19 株ほどの試験株とも全く異なる特徴を示し、カプロン酸エチルや酢酸イソアミルを高生産する他、良好な酸味を呈するリンゴ酸を顕著に高生産することが明らかになった (図 4)。

(3) 紅麹菌におけるモノコリンK高生産候補株の選抜

モノコリンK高生産候補株は、シンクロトロン光照射後のプラスチック試験管内の紅麹菌懸濁液試料を寒天培地状に塗布し、この寒天培地上で形成された紅麹菌約 940 コロニーを取得した。これらの株に対して

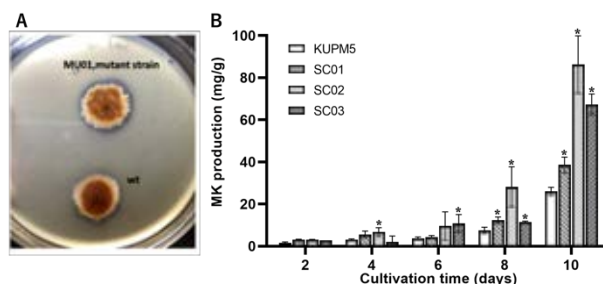


図 5. 変異紅麹菌株の選別と、変異紅麹菌株を使用した麴の二次代謝物の分析結果

A. 紅麹菌コロニー周辺の酵母菌生育阻止円形成の様子。 B. 変異株3株におけるモノコリンK生産量。

酵母を重層培養し、紅麹菌コロニーのまわりに生じる、透明な酵母増殖阻止円が大きい株を3株選抜することに成功した(図5)。これらの株を5、6回継代培養することで、形質を固定化した後、タイ米を用いて紅麹を作成した。この紅麹の二次代謝物質を分析した。その結果、野生株で作成した紅麹と比較して、130%~250%のモノコリンKを生産する3株のモノコリン高生産株の取得に成功した(図5)。

(4)珪藻におけるウイルス抵抗性株の選抜

シンクロトロン光照射後の珪藻に、珪藻ウイルスの CtenRNA virus type-II を接種し、約2週間培養したところ複数の48穴培養プレートwell中に、ウイルス感染から生残したコロニーが確認された(図6)。これらのコロニーを複数分離し、試験管にて形質が安定するまで継代培養した。その中で成長が良く、3回以上、安定して継代培養できている5株を、ウイルス抵抗性獲得候補株として分離した(図6)。この5株は、Cten 2-10-SL-R2VR シリーズ株と命名し、ウイルス抵抗性獲得候補株として、無菌化、継代によるウイルスの除去を行い、さらにウイルス接種によって感染しないことを再確認することで、ウイルス抵抗性獲得株として確立した。

珪藻では、シンクロトロン光による変異特性の解析を実施していないことから、ここでは、変異株と親株のゲノム配列比較について記述する。ゲノム解析の結果、全ての変異珪藻株で、親株の登録ゲノム配列と比較して20万箇所以上の一塩基変異(SNP)が生じていることが明らかになった。しかしながら、これらの

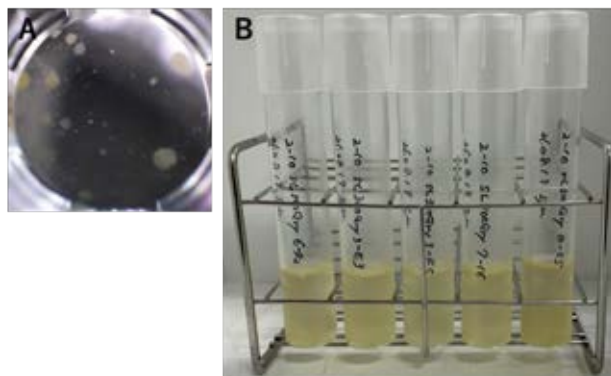


図6. 変異珪藻株の選別

A. ウイルス感染から生残し、培養容器中にコロニーを形成した変異珪藻株. B. 取得した変異株5株.

SNPs がほぼ全ての株で一致することも判明し、用いた親株(二倍体)の両染色体間に存在する20万箇所以上の変異に由来するSNPs(相同染色体上で配列の異なるヘテロ接合箇所)が含まれている可能性があることが判明した。そのため、今後は、SNPsの中からシンクロトロン光照射によって生じた変異だけを抽出し、再比較することで、ウイルス抵抗性に関連する遺伝子を特定することが可能と考えられる。

(5)各微生物へのシンクロトロン光照射によるゲノムDNA配列の変異特性の解明

シンクロトロン光を照射により得られた、清酒酵母変異株9株におけるゲノムDNA上の突然変異点数は、多い株で289箇所、少ない株で75箇所、平均175箇所の変異が生じていることが明らかになった(表2)。次に、最も頻度の大きかった、一塩基置換に絞って集計した。DNAの一塩基置換は、4つのDNA塩基がどの塩基に置換するかによって、大きく2つのパターンに分けられる。1つは、プリン塩基(AおよびG)同士、あるいはピリミジン塩基(CおよびT)同士で変異が起こる、トランジション変異であり、もう一つは、プリン塩基からピリミジン塩基、あるいはピリミジン塩基からプリン塩基への変異であるトランスバージョン変異である。前者は、後者に対して比較的起こりやすい変異であると考えられている。清酒酵母において、一塩基置換の起こりやすさをトランジションとトランスバージョンで比較したところ、トランジションが全ての株の平均103箇所、トランスバージョンが50箇所となり、トランジションの方が2倍多く生じていることが明らかになった(表2)。またトランジションの中でも、A:C塩基対がG:C塩基対に変異する(A:C to G:C)パターンと(G:C to A:C)パターンがほぼ同頻度で起こっていた(図7)。

薬剤による突然変異誘発でよく用いられているEMSによる変異では、塩基置換の中でも(G:C to A:C)パターンが98%以上を占めるといわれている^[16,17]。また、短波長のUV(UVB(280-320nm)・UVC(200-280nm))を変異源として照射した場合は、トランジションである(G:C to A:T)パターンの変異頻度が顕著に高くなり、長波長のUV(UVA(320-400nm))照

表 2. シンクロトロン光照射清酒酵母株に存在するDNA配列上の変化

変異株	変異点数	一塩基置換	トランジション	トランスバージョン	挿入/欠失	一塩基置換 (%)	挿入/欠失 (%)
C18	84	67	41	23	17	79.76	20.24
C19	233	209	138	71	24	89.70	10.30
C29	273	251	177	74	22	91.94	8.06
C50	80	65	43	22	15	81.25	18.75
C51	244	218	148	70	26	89.34	10.66
C52	78	62	41	21	16	79.49	20.51
C54	221	194	130	64	27	87.78	12.22
T25	289	257	172	85	32	88.93	11.07
T49	75	63	41	22	12	84.00	16.00

表 3. シンクロトロン光照射紅麹菌株に存在するDNA配列上の変化

変異株	変異点数	一塩基置換	トランジション	トランスバージョン	挿入/欠失	一塩基置換 (%)	挿入/欠失 (%)
SC01	8,783	6,069	462	5,607	2,516	70.28	29.72
SC02	8,783	6,090	461	5,629	2,476	70.61	29.39
SC03	8,490	5,810	446	5,364	2,477	69.72	30.28

射の場合は、短波長照射のパターンに加えて (G:C to T:A) パターンの変異頻度が上昇することが明らかになっている^[18-20]。これらの報告に対して、シンクロトロン光照射によって起こった清酒酵母の変異パターンは、2つのトランジションパターンの頻度が、トランスバージョンの2倍の頻度で起こるというものであり、これまで知られている変異源での報告とは異なる結果であった。このことは、他の変異源とは特性の異なる変異株を得る目的において、シンクロトロン光が一定の役割を果たすことが示唆された。

また、EMS や UV 照射いずれの方法でも、一塩基置換がほとんどであるが、X 線照射による突然変異では、塩基置換に加えて塩基欠失も誘発されることが報告されている^[21]。本研究で、シンクロトロン光を照射した結果では、一塩基置換が 85.8%であったのに対し、挿入/欠失が 14.2%も生じており、シンクロトロン光

照射によって、塩基置換の他に、DNA 構造を変化させ、アミノ酸並列を大きく変えることで、大きな形質の変化を起こす変異が比較的高頻度で起こる可能性が示唆された。

一方で、シンクロトロン光照射で得られた、紅麹菌変異株 3 株におけるゲノム DNA の変異点を分析した結果、多い株で 8,783 箇所、少ない株で 8,490 箇所、平均 8,685 箇所と、清酒酵母に比べて明らかに多くの変異が生じていた (表 3)。さらに、一塩基置換のパターンは、トランジションが平均 456 箇所であるのに対して、トランスバージョンが 5,533 箇所と 10 倍以上の頻度で生じており、トランジションの頻度が高かった清酒酵母と明らかに異なる変異パターンを示していた (表 3、図 7)。

本研究で清酒酵母に生じた変異点数が平均で 175 箇所であるのに対して、紅麹菌では 8,685 箇所と、紅麹菌の方が 50 倍の頻度で変異が起こっていたこと、清酒酵母と紅麹菌のゲノムサイズが、それぞれ約 12 Mbp^[22]と約 38 Mbp (本研究によって得られたデータであるが、データは省略する) と、ゲノムサイズでは 3 倍程度の差しか無かったことから、もしシンクロトロン光照射によって、両生物でゲノム全体に満遍なく変異が生じるのであれば、明らかに紅麹菌の方が影響を強く受けていることが明らかになった。しかしながら、両者で変異株の多くを取得した 300 Gy の照射線量では死滅率に違いはなく、また 100 Gy ではむしろ清酒酵母の方が死滅率が高いことから、死滅率のみで評価した場合は、紅麹菌の方がシンクロトロン光の影響を強く受けていたとは言い難いことも明らかである (図 2)。このような結果になった理由は、酵母と紅麹菌の細胞特性の違いが影響していることも考えられる。例えば、紅麹菌は多核細胞であるため、紅麹菌の変異の影響は、酵母のそれとは異なる現れ方を示す可能性もある。また、他の理由としては、珪藻の場合同様に、紅麹菌の親株の 2 組の染色体間に、複数の変異点が存在していた可能性等も考えられる。

一方で、清酒酵母と紅麹菌のトランジション、トランスバージョンの頻度の違いについては、これを説明できる理由を示すことは、現状の情報では難しい。シンクロトロン光照射の DNA 配列への影響、さらに

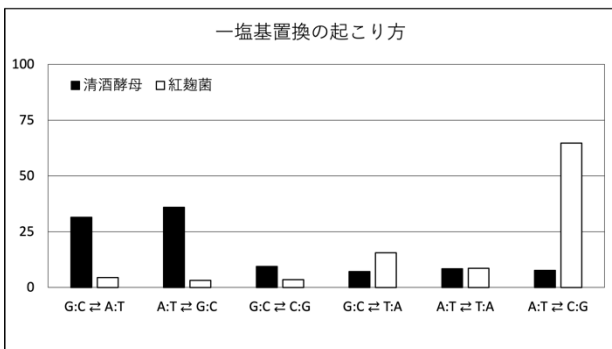


図 7. 清酒酵母と紅麹菌の一塩基置換の起こり方の比較

言えば DNA 損傷に対する修復の仕組みが、生物によって異なっていたためという理由も考えられるだろう。シンクロトロン光照射が引き起こす DNA 配列への影響を深く理解していくためには、清酒酵母と紅麹菌の例だけでなく、今後も、様々な生物、特にモデル生物も含めた、シンクロトロン光照射による変異誘発を行い、その影響に関する情報を蓄積することが必要であろう。

4. まとめ

著者らは、清酒酵母、紅麹菌、珪藻を対象として、シンクロトロン光照射による変異株取得を試み、清酒酵母では高香氣成分生産株、紅麹菌では二次代謝物質のモノコリン K 高生産株、珪藻ではウイルス抵抗性株の取得に成功した。また、複数の微生物に対する実験を通して、液体培養が可能な微生物の場合、細胞懸濁液を入れたポリスチレン製プラスチックチューブを粘着テープで固定し、シンクロトロン光を照射する手法が容易であり、有効であることを明らかにした。

変異株のゲノム解析を行ったところ、清酒酵母ではシンクロトロン光照射によってトランジションがトランスバージョンよりも高頻度で生じ、高い頻度で挿入/欠失が生じることも明らかになった。一方で、紅麹菌では、清酒酵母と比べて明らかに高い頻度で変異が生じ、変異パターンもトランスバージョン頻度が極めて高いことが明らかになった。これらの違いが生物間の特性に由来するのか、あるいは使用した親株の影響なのかは、今後のさらなる研究によって明らかにする必要がある。

5. 謝辞

本照射実験は、九州シンクロトロン光研究センターのビームライン BL09 にて実施した。微生物への照射条件の検討では、九州シンクロトロン光研究センターの石地耕太郎博士の協力をいただいた。本研究は、九州シンクロトロン光研究センターの研究課題；トライアル研究（1905040T）、探索先導利用 R タイプ（1908065R, 2007077R, 2105039R, 2209089R）において実施したものである。本研究は、科研費（20H03327）の支援を受けて実施した。

参考文献

- [1] S. Hashimoto, M. Ogura, K. Aritomi, H. Hoshida, Y. Nishizawa, R. Akada, “Isolation of Auxotrophic Mutants of Diploid Industrial Yeast Strains after UV Mutagenesis”, *Appl. Environ. Microbiol.*, **71**, 312-319 (2005).
- [2] Y. Arikawa, M. Yamada, M. Shimosaka, M. Okazaki, M. Fukazawa, “Isolation of sake yeast mutants producing a high level of ethyl caproate and/or isoamyl acetate”, *J. Biosci. Bioeng.*, **90**, 675-677 (2000).
- [3] K. Satoh, Y. Oono, “Studies on Application of Ion Beam Breeding to Industrial Microorganisms at TIARA” *Quantum Beam Science*, **3**, 11 (2019).
- [4] 吉田 桂一郎, 西 美友紀, 石地 耕太郎, 松本 和夫, 広田 雄二: シンクロトロン光も用いた水稻における突然変異育種法の検討, *日本作物学会九州支部会報*, **78**, 8-9 (2012).
- [5] 阿部知子, 風間裕介, 西美友紀, 永吉実孝, “九州ブランドを世界に! -突然変異育種の挑戦-”, *育種学研究*, **16**, 67-71 (2014).
- [6] K. Sakamoto, M. Nishi, K. Ishiji, Y. Takatori, R. Chiwata, “Induction of flower-colour mutation by synchrotron-light irradiation in spray chrysanthemum”, *Acta Horticulturae*, **1237**, 73-78 (2019).
- [7] 松野純子, 戸田浩子, 山元俊輝, 山口 徳之, 新井和俊, “カーネーションの突然変異育種に有効なシンクロトロン光の吸収線量及び波長”, *愛知県農総試研報*, **52**, 73-79 (2020).
- [8] 三井俊, 伊藤彰敏, 杉山信之, 榊原康彰, 船井秀哉, 水野善文, 木村伸一, 小栗宏次, 山本晃司, “シンクロトロン光の微生物育種の利用”, *あいち産業科学技術総合センター研究報告*, 44-47 (2018).
- [9] 三井俊, 山本晃司, 伊藤彰敏, 家田明音, 近藤徹弥, 杉山信之, 赤尾健, 吉村明浩, 榊原康彰, 船井秀哉, 原本直幸, 志水元亨, 加藤雅士, “シンクロトロン光を利用した尿素非生産性の愛知県酵母育種”, *日本醸造協会誌*, **116**, 703-712 (2021).

- [10] L. Chen, S. Jiang, L. Wan, X. Ma, M. Li. “The radiation effects of aspergillus oryzae spores with soft x-rays near the K shell absorption edges of C, N, O elements from synchrotron radiation”, *Journal of Radiation Research and Radiation Processing*, **4**, 2-11 (2007).
- [11] 高下秀春, 梶原康博, 大森敏郎, 下田雅彦, 和田久継, “酢酸イソアミル高生産酵母の取得方法”, 特許公開番号1998-276767, (1998).
- [12] E. Ichikawa, N. Hosokawa, Y. Hata, Y. Abe, K. Suginami, S. Imayasu, “Breeding of a Sake Yeast with Improved Ethyl Caproate Productivity”, *Agric. Biol. Chem.*, **55**, 2153-2154 (1991).
- [13] M. A. Vilches Ferrón, J. L. Casas López, J. A. Sánchez Pérez, J. M. Fernández Sevilla, Y. Chisti, “Rapid screening of *Aspergillus terreus* mutants for overproduction of lovastatin”. *World J. Microbiol. Biotechnol.* **21**, 123–125 (2005).
- [14] K. Kimura, Y. Tomaru, “Discovery of Two Novel Viruses Expands the Diversity of Single-Stranded DNA and Single-Stranded RNA Viruses Infecting a Cosmopolitan Marine Diatom”, *Appl Environ Microbiol*, **81**, 1120-1131 (2015).
- [15] S. Baba, T. Hamasaki, K. Sawada, R. Orita, Y. Nagano, K. Kimura, M. Goto, G. Kobayashi, “Breeding sake yeast and identification of mutation patterns by synchrotron light irradiation”, *J. Biosci. Bioeng.*, **132**, 3, 265-270 (2021).
- [16] C. Christine, H. M. Jeffrey, “Genetic Studies of the *lac* Repressor: IV. Mutagenic Specificity in the *lacI* Gene of *Escherichia coli*”, *J. Mol. Biol.*, **117**, 577-606 (1977).
- [17] A. Q. Charles, T. Mitch, C. Nicola, W. Clifford, R. D. Brian, “Whole-Genome Sequence Accuracy Is Improved by Replication in a Population of Mutagenized Sorghum”, *Genes. Genomes. Genetics*, **8**, 1079-1094 (2018).
- [18] G. P. Pfeifer, “Formation and Processing of UV Photoproducts: Effects of DNA Sequence and Chromatin Environment”, *Photochem. Photobiol.*, **65**, 270-283 (1997).
- [19] G. P. Pfeifer, Y. H. You, A. Besaratinia, “Mutations induced by ultraviolet light”, *Mutat. Res.*, **571**, 19-31 (2005).
- [20] H. Ikehata, T. Ono, “The Mechanisms of UV Mutagenesis”, *J. Radiat. Res.*, **52**, 115-125 (2011).
- [21] 加藤武司, “突然変異の分子機構”, *Radiosotopes*, **34**, 334-343 (1985).
- [22] T. Akao, et al. Whole-Genome Sequencing of Sake Yeast *Saccharomyces cerevisiae* Kyokai no. 7”, *DNA Res.*, **18**, 423–434 (2011).

X線内殻吸収を駆使した低結晶性有機金属構造体の配位子場分析

山神 光平¹, 芳野 遼²

¹高輝度光科学研究センター, ²東北大学 金属材料研究所

1. はじめに

遷移金属イオンや希土類イオンの d, f 電子が持つ電荷、スピン、軌道自由度は結晶学的に設計された配位子(非共有電子対を与えて配位結合する分子や陰イオン)によって制御される。つまり、遷移金属化合物や希土類化合物の固体電子物性は、配位子場の基に発現していると見ることができる。配位子場は、(i)金属イオンが配位子からの静電ポテンシャルを受けて、エネルギー分裂する結晶場分裂、(ii)配位子-金属イオン間の軌道混成、そして、(iii)配位子から金属イオンへ電子が移動する際のエネルギー利得を示す電荷移動エネルギー、を含んでおり(図 1(a))、固体電子物性を特徴づける重要な物理パラメータとして固体物理学を中心に広く認知されている。

新たな多孔性材料として注目されている有機金属構造体(MOF)において、架橋配位子は分子吸着・分離、発光、磁気秩序などの魅力的な機能性の発現にも一役を担っている。最近、我々は、低結晶性シアノ架橋型 MOF $M[Ni(CN)_4]$ (MNi ; $M = Mn, Fe, Co$)の水吸着挙動を報告した[1]。その水和物 ($MNi \cdot H_2O$) は、 $M(H_2O)_2[Ni(CN)_4]$ の2次元シート間に水分子の水素結合が介在しているため、正方形平面の四シアニドメタレートと八面体(O_h)の $[MO_2N_4]$ クラスターからなる層構造を有する(図1(b))。しかしながら、 MNi は低結晶(アモルファスも含む)であるため、精密結晶学的手法を用いた、構造的洞察からの理解が困難である。紫外・赤外光学分光法、巨視的磁化測定を組み合わせることで、 $MnNi$ 、 $FeNi$ 、 $CoNi$ は四面体対称性(T_d)を持つことを示唆しているが、遷移金属イオンに対する配位子場や、低結晶性MOFの構造的特徴に関する実験的な定量評価は、依然として困難である。

そこで、我々は局所構造と電子状態の両方を観測できるX線吸収分光法(XAS, XAFS)に注目した。本実験手法は注目元素の内殻準位-非占有準位間のエネルギー

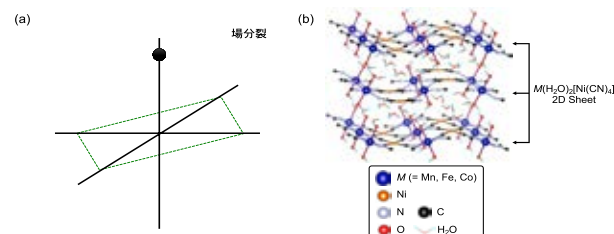


図 1 (a) 配位子場。 (b) $M(H_2O)_2[Ni(CN)_4]$ の結晶構造。

ギー差に相当するX線(エネルギー: $h\nu$)を照射することで吸収されるX線強度を測定する。内殻準位は元素によって一意に決まっているため、得られる吸収スペクトルは元素選択性を持つ。さらに、内殻吸収の終状態は内殻準位に正孔が存在するため、注目元素の価電子帯や化学結合した配位子からの電子による遮蔽が発生する。よって、吸収スペクトルは局所性をもち、低結晶MOFに埋もれている遷移金属イオンの局所構造と電子状態を効果的に観測できる。

本研究はXAS, XAFSを用いて、 MNi の遷移金属イオンに対する局所構造と電子状態を観測し、配位子場を定量的に評価することで、 MNi の水吸着挙動をエネルギーの視点から明らかにした[1,2]。特に遷移金属イオンの1s → 4p吸収に相当するK吸収端(K-edge)と2p → 3d吸収に相当するL吸収端(L-edge)を相補的に組み合わせることで、配位子場を受ける3d電子状態を詳細に探った。

2. 実験

2-1 試料

MNi ($M = Mn, Fe, Co$)は攪拌法を用いて合成した。粉末X線回折パターンは、石英製キャピラリーを使用し、Rigaku Ultima IV 分光計で記録した。試料は測定前に400Kで6時間加熱して脱水した。

2-2 実験方法

(1) 硬X線XAFS

K-edge XAFS 測定は SAGA Light Source の硬X線ビームライン BL-11 において行った。XAFS スペ

クトルは、2つのイオンチェンバーを用いた透過法で得た。試料はXAFS測定に適した濃度になるように高純度窒化ホウ素で希釈し、乾燥 Ar ガスを充填したグローブボックス内でペレット状に成形した。その後、ペレット試料をポリエチレン袋に密封した。

(2) 軟X線XAS

L-edge XAS 測定は立命館大学 SR Center の軟X線ビームライン BL-11で行った。XAS スペクトルは、オージェ電子と二次電子を検出するマイクロチャンネルプレートを用いた部分電子収量法で行なった。試料は乾燥 Ar ガス充填したグローブボックス内で、試料ホルダーに取り付けた導電性カーボンテープ上に薄く伸ばした後、空気中の水分による水分吸着を避けながら、高真空チャンバーに搬送した。

(3) 多重項配位子場理論

L-edge XAS スペクトルから 3d 電子状態を抽出するために、多重項配位子場理論計算を XTLS 9.0 を用いて行った。

3. 結果及び考察

(1) K-edge XAFS: 局所構造解析

図 2(a)に $MNi-H_2O$ と MNi の M イオン ($M = Mn, Fe, Co$) に対する K-edge の X 線吸収近傍構造 (XANES) スペクトルを示す。ここから M イオンの化学状態に関する情報が得られる。エッジの立ち上がりエネルギー (Mn : ~ 6542 eV, Fe : ~ 7116 eV, Co : ~ 7714 eV) は 3 価のそれと比べて低エネルギー側に観測された。特に、 MNi はより 2 価に近いことから、 M イオンは 2 価であることがわかる。加えて、エッジの立ち上がりエネルギーより 7 eV 低いエネルギー (Mn : ~ 6537.5 eV, Fe : ~ 7110 eV, Co : ~ 7707 eV) に小さいながらも水和物に依存するピークを観測した(図 2(a)の挿入図)。これは、プリエッジと呼ばれ、3d 遷移金属イオンの場合、 $1s \rightarrow 3d$ 遷移に対応する。 $MNi-H_2O$ から MNi にかけて、強度が増大し、その絶対値は O_h から T_d 対称性への変化を示していることが明らかになった。これは紫外・赤外光学分光法、巨視的磁化測定で示唆していた結果と一致する。

次に、 MNi の M イオンと配位子の結合長について考察するため、広域 X 線吸収微細構造 (EXAFS) スペクトルを解析した。その結果、明瞭な EXAFS 振動を

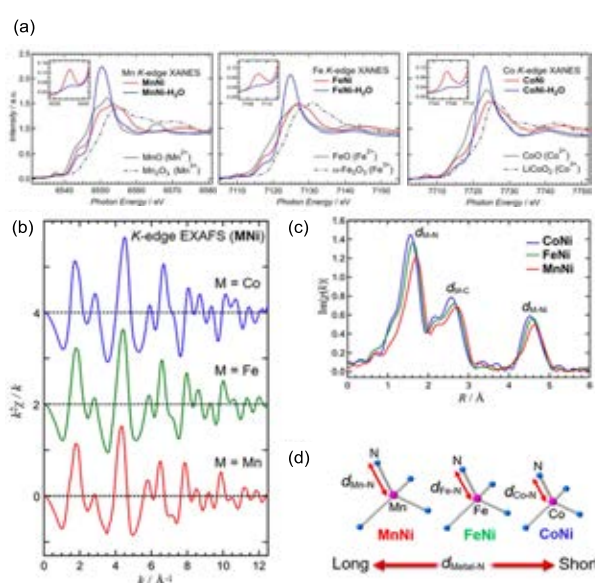


図 2 (a) XANES スペクトル。 (b) EXAFS 振動 (c) EXAFS 振動のフーリエ変換で得られた、原子間距離。 (d) MNi における結合長の変化の様子。

観測した(図 2(b))。これをフーリエ変換することで、 M イオンに依存する定性的な結合長の大きさを獲得した(図 2(c))。その結果、 $M = Mn, Fe, Co$ の順に四面体構造が小さいことが明らかになった(図 2(d))。点電荷ポテンシャルに対する 3d 遷移金属イオンの結晶場分裂の大きさは配位子との距離の 5 乗に反比例するため、結晶場分裂は Mn, Fe, Co の順に大きくなる。以上、K-edge XAFS の結果をまとめると、 MNi の M イオンは T_d 対称性を持ち、その結晶場分裂は $M = Mn, Fe, Co$ の順に大きくなっていると考えられる。

(2) L-edge XAS: 電子状態解析

K-edge XAFS の結果を踏まえて、 M イオンの 3d 電子状態をより直接的に解析するため、L-edge XAS スペクトルを観測した。図 3(a)に MNi の M イオンに対する L-edge XAS スペクトルを示す。内殻吸収の終状態に生成される正孔のスピンの軌道相互作用により、L-edge スペクトルは二つの構造 (L_3 と L_2) で構成されている。特に L_3 -edge は非対称な複雑なスペクトル構造を持つため、こちらに注目していく。観測される L-edge XAS スペクトルは局所構造の対称性に加えて、3d スピン状態によっても変化する。図 3(a)で同時に示した、参照化合物と比較することで、 MNi の M イオンは T_d 対称性の下で高スピン状態の 3d 電子状態を有することがわかった。

L-edge XAS スペクトルから、配位子場を解析する

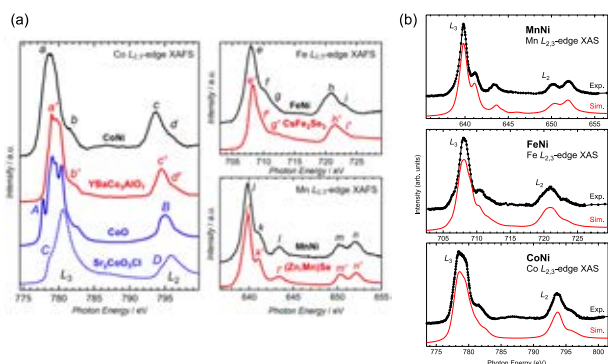


図 3 (a) 無機化合物と XAS スペクトルの比較。
(b) 実験(黒線)と計算(赤線)で得られた XAS スペクトルの比較。

ため、多重項配位子場理論によるスペクトル計算を実施した。本研究では、 T_d 対称性における結晶場分裂 $10Dq$ 、電荷移動エネルギー、軌道混成をパラメータに採用した。図 3(b)に実験と計算で得られたスペクトル比較を示す。特に、 L_3 -edge のスペクトル形状が再現するようにパラメータを最適化した。その結果、得られたパラメータから導かれた 3d 電子のスピンの状態は高スピン状態であり、参照化合物の比較から導かれたスピン状態の結果と一致した。さらに、配位子場における共有結合性の指標となる、イオン状態(d^n)に対する一電子遷移状態($d^{n+1}L$)の割合が非常に小さいことが明らかになった。これは、 MNi の M イオンはイオン性が強い、つまり、局在性の高い 3d 電子状態を持っていることを意味している。

(3) 考察: 水吸着挙動と配位子場の関係

最後に得られた結果から、 MNi の水吸着挙動と配位子場の関係について考察する。図 1(b)に示すように、水分子は、 $M[Ni(CN)_4]_2$ 次元シートに垂直な方向に M イオンと配位する。そのため、 M イオンの d_{z^2} 軌道と水分子の酸素 p 軌道間の化学結合が重要となる。 MNi では、 $e(d_{z^2}, d_{x^2-y^2})$ 状態は T_d 対称性の下では最高被占分子軌道状態になり得ない(図 4)。これが、 MNi の水吸着挙動に閾値が存在することに関係する。さらに、 $10Dq$ の絶対値が大きくなると、 e 状態がエネルギー的により安定化する。これは、酸素 p 軌道と d_{z^2} 軌道間の化学結合形成が起こりにくくなることにつながり、 $MnNi$, $FeNi$, $CoNi$ にかけての閾値の増加に繋がる。閾値の存在するゲスト分子吸着の実現、そして、その閾値制御には、ゲスト分子軌道と遷移金属 3d 軌道間の化学結合形成の環境を制御することが重要

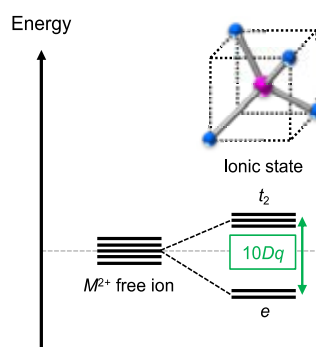


図 4 T_d 対称性に対する遷移金属 3d 電子の結晶場分裂の様子。

であると考えられる。

4. まとめ

本研究は X 線内殻吸収を駆使して、低結晶 MOF の分子吸着特性を配位子場の視点から明らかにした。硬 X 線と軟 X 線の吸収端を効果的に組み合わせることで、低結晶性物質に埋もれた、対称性の残った局所構造を観測することが可能であることを実験的に示した。MOF をはじめとした金属錯体は特に軟 X 線に対する X 線照射の劣化が激しいことが、元素選択的な電子状態解析の大きなボトルネックとなっている。しかし、X 線分光内でも高い収率を誇る内殻吸収と、X 線強度密度を制御することで、無機化合物に対する X 線吸収分光と同程度の質を確保した電子状態研究が展開できると期待する。

本研究は日本学術振興会科研費(JP16H06519, JP18H01997, JP18K14245, JP19H04701, JP19K15580, JP20K22554)の助成を受けて行なった。本研究は、文部科学省量子リープフロッグシブプログラム(MEXT Q-LEAP)助成金 No. JPMXS0118068681 の助成を受けた。軟 X 線吸収分光実験は、文部科学省最先端研究基盤形成・共用化推進事業(No.S18004, S18005)の支援を受けた。硬 X 線吸収分光測定は SAGA Light Source の探索先導利用(課題番号 1810095F, 1901141F, 2103020F, 2105046F)で実施した。芳野は日本学術振興会特別研究員(第 19J12589 号)の助成を受けた。

参考文献

- [1] H. Yoshino, K. Yamagami, et al., Inorg. Chem., 2021, **60**, 3338.
- [2] K. Yamagami, H. Yoshino, et al., Phys. Chem. Chem. Phys. 2022, **24**, 16680.

X線吸収分光による $\text{Sc}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ の局所構造解析

上原雅人¹, 池本勇², 平田研二¹, 大曲新矢¹, 瀬戸山寛之³

¹産業技術総合研究所, ²九州大学, ³九州シンクロトロン光研究センター

1. はじめに

ワイドバンドギャップ半導体として知られるウルツ鉱型結晶の AlN や GaN は c 軸方向に分極をもつので圧電性も示す。当グループでは、 Sc を添加することで圧電特性が飛躍的に増大することを見出してきた^[1, 2]。これらはスマートフォンの5G用高周波フィルタに利用されるなど、先端的なMEMSデバイスとして期待されている。この圧電特性増大の要因は、 Sc 添加による格子軟化やひずみ応答性の増大であると第一原理計算による研究で考えられている^[3]。また、最近、 ScAlN や ScGaN は大きな残留分極をもつ強誘電体であることが明らかになった^[4, 5]。従来、 AlN や GaN は強誘電性を示さないと考えられてきたが、 Sc 添加によって分極の反転障壁が低下し、強誘電性が発現すると考えられている。

第一原理計算によると、 Sc 原子周辺の局所構造は Al 原子や Ga 原子周辺と異なり、 Sc 原子がより動きやすいため、圧電特性が増大し、強誘電性は発現すると考えられている。しかし、これらの構造解析はX線回折による結晶構造評価や膜全体の平均的な格子定数解析に留まっており、局所構造の実体は明らかになっていない。これらを解明することは、新しい応用展開を期待させる圧電体や強誘電体としてのウルツ鉱型窒化物の設計指針の確立に不可欠である。本研究では、 $\text{Sc}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 薄膜の局所構造を明らかにするために、硬X線吸収分光測定を行った。

2. 実験

2-1 試料

GaN 焼結ターゲット(高純度化学研究所製)と Sc 金属ターゲット(アドバンテック製)を用いて、2元同時スパッタリング法によって $\text{Sc}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 薄膜($x=0\sim 0.46$)を $\text{Hf/Si}(100)$ または $\text{Mo/Ti/Si}(100)$ 基板上に成膜した。 $\text{Sc}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ の膜厚は約500 nmであった。X線

回折法により結晶構造解析を行い、ウルツ鉱型結晶の c 軸配向膜であることを確認した。

2-2 実験方法

BL11にて、シリコンドリフト検出器(7素子SDD)を用いた蛍光収量法により、 Sc K 端(4.5 keV)および Ga K 端(10.4 keV)のXANESおよびEXAFS測定を行った。冷却セルおよび加温セルを用いて、種々の温度(10K~900K)で測定した。解析にはAthenaを用いた。

3. 結果及び考察

図1に300 Kで測定した $\text{Sc}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ の Sc K 端のXANESスペクトルを示す。いずれの試料でも4490 eV付近に明瞭なpre-edge peak (A)が観察された。このことから、 Sc 周辺の局所構造は T_d 対称性(ウルツ鉱型構造)をもつことが分かった。このAの強度は Sc 濃度によって変化し、図2に示すように、 Sc 濃度が高くなるほど減少する傾向にあった。第一原理計算を用いて計算したスペクトルと比較した結果、Aの強度低下は、 Sc 周辺の対称性が T_d から D_{3h} (BN型六方晶構造)、あるいは O_h (岩塩構造)へ変化したためであることが分かった。

また、 Sc 濃度の増加とともに、4506 eV付近(B)では低エネルギー側へのピークシフトが、4508 eV付近(C)付近では強度増加が認められた。スペクトル計算により、前者は D_{3h} 、後者は O_h の存在を示唆していることが分かり、 Sc 濃度の増加によって対称性が変化していることが明らかになった。現在、 Ga K 端についてもスペクトル計算を行っており、 Ga 周辺の構造変化の解明を進めている。

図3に300 Kで測定したEXAFS振動を示す。 Ga K 端および Sc K 端のいずれも、 Sc 濃度が高くなると振幅が小さくなる傾向にあったが、 Ga K 端について

は、 $x=0.46$ の試料でも $k \sim 13 \text{ \AA}^{-1}$ まで明瞭に振幅が認められた。一方で Sc K 端では、 $x=0.46$ の試料で $k \sim 9 \text{ \AA}^{-1}$ 程度までしか振幅が認められなかった。このことから、Ga に比べて、Sc 周辺の局所構造の乱れが大きいことが示唆された。

$x=0.39$ の試料について種々の温度で測定した EXAFS を図 4 に示す。300 K 以上に加熱すると、Ga K 端と Sc K 端のいずれも振幅は小さくなった。一方、冷却することで EXAFS 振幅は明瞭になった。Ga K 端は 10 K と 100 K で、 $k \sim 15 \text{ \AA}^{-1}$ 付近まで明瞭に認められた。Sc K 端も 300 K では $k \sim 9 \text{ \AA}^{-1}$ までしか認められなかったが、10 K では $k \sim 11 \text{ \AA}^{-1}$ まで認められた。詳細な局所構造を評価するには、高波数域での S/N を一層高める必要があり、現在、極低温測定用セルを開発中である。

4. まとめ

$\text{Sc}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ の局所構造を明らかにするために、BL11 で蛍光収量法により XANES/EXAFS 測定を行った。XANES スペクトルでは、第一原理計算に基づいて計算した結果と比較することで、Sc 濃度の変化に伴う局所構造の変化が明らかになった。EXAFS 振動では、Ga よりも Sc 周辺の局所構造が乱れていることが示唆された。詳細な解析を行うには 10 K に冷却することが必要であることが分かった。現在、より感度の高い極低温測定セルを開発中である。

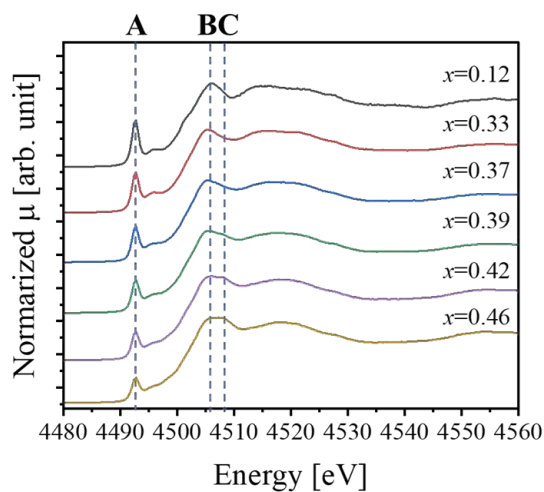


図 1 300 K で測定した $\text{Sc}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ の Sc K 端の XANES スペクトル

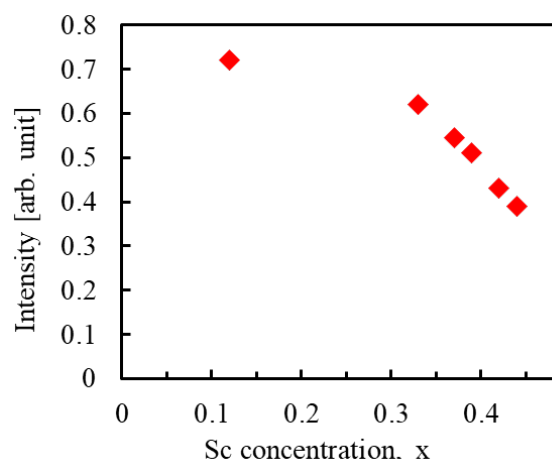


図 2 300 K で測定した $\text{Sc}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ の Sc K 端の XANES スペクトルのピーク A の強度

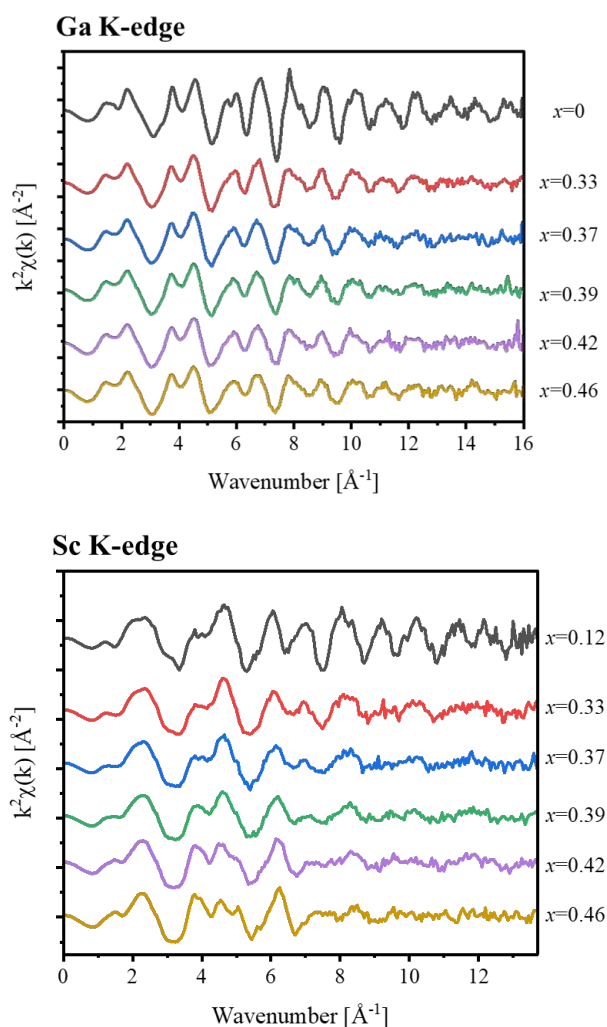


図 3 300 K で測定した $\text{Sc}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ の EXAFS 振動上 : Ga K 端、下 : Sc K 端

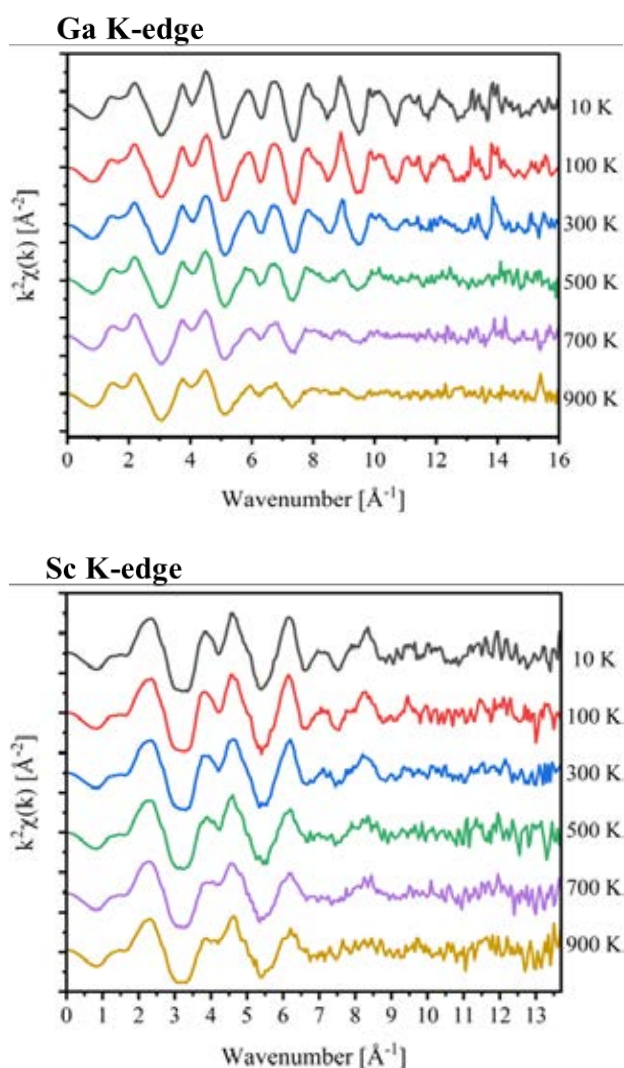


図 4 種々の温度で測定した $\text{Sc}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ ($x=0.39$) の EXAFS 振動 上 : Ga K 端、下 : Sc K 端

謝辞

本研究の一部は科研費基盤研究 (B) (22H01784) で行われた。

参考文献

- [1] M. Akiyama et al., “Enhancement of piezoelectric response in scandium aluminum nitride alloy thin films prepared by dual Reactive cosputtering”, *Adv. Mater.* **21**, 593 (2009).
- [2] M. Uehara et al., “Increase in the piezoelectric response of scandium-doped gallium nitride thin films sputtered using a metal interlayer for piezo MEMS”, *Appl. Phys. Lett.* **114**, 012902 (2019).

[3] F. Tasnadi et al., “Origin of the anomalous piezoelectric response in wurtzite $\text{Sc}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ alloys”, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 137601 (2010).

[4] S. Fichtner et al., “AlScN: A III-V semiconductor based ferroelectric”, *J. Appl. Phys.*, **125** 114103 (2019).

[5] M. Uehara et al., “Demonstration of ferroelectricity in ScGaN thin film using sputtering method”, *Appl. Phys. Lett.* **119**, 172901 (2021).

[6] 池本ら, XANES 解析による Sc 添加が与える GaN の配位構造変化の評価, XAFS 討論会予稿集, 10-03 (2023).

4H-SiCの埋戻し成長層における空洞欠陥のX線CT法による観測

紀世陽¹, 児島一聡¹, 米山明男², 山口博隆¹

¹産業技術総合研究所, ²九州シンクロトロン光研究センター

1. はじめに

近年、4H-SiCはSiを超えるその優れた半導体材料特性を背景にパワーエレクトロニクスデバイスの領域で幅広く活用され始めている。また更なるデバイス特性の向上を図るために、ドリフト層にPNカラム構造を有するスーパージャンクション (SJ) 構造のSiCへの適用が提案されている¹。我々は化学気相成長法 (CVD) を用いてトレンチ埋戻し成長技術を開発し²、深さ 25 μm の部分 SJ 構造を採用した SiC SJ-MOSFET の試作品を世界で初めて報告した³。結果として耐圧：7.8kV、オン抵抗：17.8 $\text{m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ を達成、同耐圧クラスの一般的な 4H-SiC DMOSFET に比べてオン抵抗が 50%減少するという結果を得た⁴。

しかしながら、トレンチ埋戻し成長技術を用いて作製した SJ 構造ではトレンチ端部に長さ数～数十マイクロメートルのボイド欠陥 (空隙) が形成されてしまう。このボイド欠陥は、作製した SJ デバイスのリーク電流を増加させることがわかっている⁵。また、ボイド内に残留する汚染物がデバイスプロセスに影響を与える可能性がある。そのため、デバイスプロセスを実施する前に、予めボイド欠陥の形状や位置を確認、その状態に応じて、対策を施す必要があるが現状では FIB-SEM 等を用いた破壊検査によるのみボイドの有無を確認することが出来る。結果としてボイドの有無を確認したウエハはデバイスプロセスに用いることが出来なくなるため、非破壊かつ広範囲でボイドの存在並びにその形状等を判断する技術が必要となる。

本稿では、我々がマイクロ X 線コンピューター断層撮影 (X 線 CT、Micro X-ray Computed Tomography) という非破壊分析により⁶、CVD 埋戻し成長により作製した 4H-SiC トレンチ端部におけるボイド欠陥の 3次元形状を同定した事例について報告する。

2. 実験

2-1 試料

(1) トレンチ作製

4H-SiC 4 インチ市販基板 (n+型, 4 θ オフ, Si 面) 上に酸化膜を堆積し、フォトリソグラフィにより堆積させた酸化膜上にピッチ P=3, 4, 5 μm (線幅=P/2) の線状パターンを転写、ドライエッチング法 (RIE) により、ストライプ状のトレンチ構造を形成した。RIE 法において、トレンチの深さと線幅は相互に関連しているため、それぞれのピッチ幅に対するトレンチの深さは約 D \sim 9, 13, 14 μm となった。

(2) トレンチ埋戻し成長

基板から切り出したピッチ P=3, 4, 5 μm (線幅=P/2) のマルチ線状パターンがあるトレンチチップ (10 mm 角型) に対して $\text{SiH}_4 + \text{C}_3\text{H}_8 + \text{H}_2 + \text{HCl}$ ガス系のホットウォール化学気相成長装置 (HW-CVD) を用いてトレンチを P 型の SiC によって埋戻し成長を行った。ここでは、トリメチルアルミニウム (TMA) を P 型ドーパントとして使用した。成長温度 1650 $^\circ\text{C}$ 、圧力 38 kPa で、原料ガスと TMA 流量を一定に保ち3時間エピ成長を行った³。走査電子顕微鏡による断面観察を行い、トレンチが完全に埋め込まれていることを確認した (SEM 像略)。

(3) 研磨加工

今回使用した X 線 CT で撮影できる試料サイズは ϕ 1 mm 前後である。そのため以下の手順で試料の加工を行った。10 mm 角のサンプルからトレンチ両端の端部領域 (トレンチ線状パターンの開始と終了位置) を中心にして、図 1 (a) に示すようにダイサーで幅約 1.5 mm の八角形を切り出し、それにワックスを付け、軸径 1.6 mm の精密ドライバーの先に目視で垂直に固定する (図 1 (b))。電動研磨装置を使用し、手動で八角形試料を付けたドライバーを回転させて側面を研磨する。研磨装置の回転盤には、まず円形

の SiC 耐水研磨紙 (Grit #600) を貼り付け、八角形試料の角形突起を削った (図 1(c))。その後に研磨粒子の粒径が 30 μm 、9 μm 、0.5 μm の順にダイヤモンドラッピングシートを貼り替えて研磨し続ける。

(図 1(c)~(f)) 作業中は、超純水を研磨液として使用し、図 1(f)に表れるように円盤状試料の側壁を鏡面に研磨する。最後に、化学機械研磨 (CMP) プロセスを加え、円盤状の側面をできるだけ平滑化する (図 1(g) (h))。図 1(g)の微分干渉顕微鏡像によると、研磨の傷が少し見られる程度である。

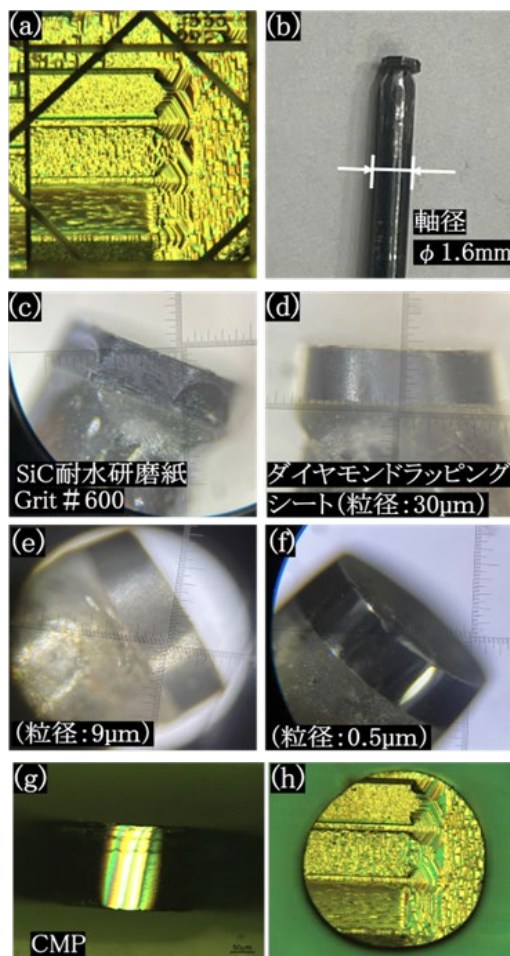


図 1 研磨作業。(a), (g), (h) : 微分干渉顕微鏡像

2-2 実験方法

加工された円盤形試料の X 線 CT 測定は、九州シンクロトロン光研究センター (SAGA-LS) のビームライン BL07 で実施した。測定システムは、試料位置調整・回転機構、画像検出器から主に構成される。詳しいシステムセットアップおよび画像処理方法などは、参考文献を参照されたい⁵⁾。使用した X 線エネルギーは 18 keV、投影数は 3000 枚/360 度である。

3. 結果及び考察

図 2 は各ピッチのトレンチ ($P=3, 4, 5 \mu\text{m}$) の埋戻し成長前 (図 2(a)) と成長後の光学顕微鏡図 (図 2(b)) を示している。成長前のサンプル表面からはトレンチ構造の端部が確認できるが、成長後の試料表面には、厚いエピ層並びに巨大なステップバンチングで覆われており、顕微鏡像ではトレンチ端部の位置を確認することが出来なくなった。さらに、試料端部にボイドがあるかどうか判断できなくなった。

実験で得られた X 線 CT 像の画像データをトレンチの表面水平方向と横方向の垂直断面と縦方向の垂直断面の 3 方向からスライスして、得た画像は図 2(c)~(e)に示している。

図 2(c)はある深さにおける SiC (0001) の平行面の X 線 CT 像の画像をスライスしたものである。いずれのピッチサイズのトレンチにおいても、端部付近にボイド欠陥の存在が確認できる。ピッチ $P=3 \mu\text{m}$ のトレンチには、最も小さいボイド欠陥が含まれることが判る。図 2(c)からはピッチ $P=4 \mu\text{m}$ のトレンチのボイド欠陥の長さが一番長いと見られたが、図 2(c)よりも浅い位置の画像をスライスするとピッチ $P=5 \mu\text{m}$ のものももっと長いことが判明した (画像省略)。

図 2(d)はそれぞれのピッチサイズのトレンチ中心位置を貫通している X 線 CT 撮影の画像をスライスしたものである。スライスした面は SiC (1-100) 結晶面と平行にしてある。ピッチが $3 \mu\text{m}$ から $5 \mu\text{m}$ になると、ボイド欠陥の全長は $2 \mu\text{m}$ から $60 \mu\text{m}$ と大きく増加している。ボイドの断面積もピッチサイズの増加によって、大きくなることが判る。また、図中の赤線は元のトレンチ端の形状を示しているが、トレンチのピッチ、深さによらずボイド発生位置は、トレンチ端の底部であることが判った。

図 2(e)はトレンチと垂直な (11-20) 面で X 線 CT 画像をスライスした画像を表す。ピッチサイズが増加するにしたがい、ボイドの幅も増加する傾向になる。ピッチ $5 \mu\text{m}$ のトレンチ端部ボイドの幅が大きくて、逆にピッチ $3 \mu\text{m}$ のトレンチはボイド欠陥のサイズが非常に小さく、相隣のボイドもはっきり分離できなかった。

図 3 は、取得した X 線 CT 像の画像データから作成

した3次元像である。ピッチ幅によらず、同一ピッチサイズのトレンチグループの両側に発生するボイドが相対的に大きくなる。このように、同一ピッチサイズのトレンチでも発生するボイドのサイズには場所によるバラツキが存在することが明らかになった。

これらの結果からX線CT像は、ボイドの形状と寸法を立体的な画像として把握できて、現行のFIB-SEMに比べて広い面積での内部欠陥情報を一括で明らかにできるという点においてトレンチ埋戻し成長技術を用いたSiC-SJ構造の評価に対して非常に有利であることが判った。

4. まとめ

CVD法による埋戻し成長を行った4H-SiCトレンチの端部におけるボイド欠陥の3次元形状をX線CT法で観察することを行い、ピッチサイズP=3~5 μm のトレンチの端部に形成したボイドの形状と寸法を立体的な画像として把握することに成功した。

参考文献

- [1] F. Udrea et al., "Superjunction Power Devices, History, Development, and Future Prospects", IEEE Trans. Electron Dev. 64, 713-727 (2017).
- [2] S.Y. Ji et al., "Fast-filling of 4H-SiC trenches at 10 $\mu\text{m}/\text{h}$ by enhancing partial pressures of source species in chemical vapor deposition processes", J. Cryst. Growth 546, 125809 (2020).
- [3] R. Kosugi et al., "Breaking the Theoretical Limit of 6.5 kV-Class 4H-SiC Super-Junction (SJ) MOSFETs by Trench-Filling Epitaxial Growth", (ISPSD 31st), Shanghai, China, 39 (2019).
- [4] K. Kawahara et al., "6.5 kV schottky-barrier-diode-embedded SiC-MOSFET for compact full-unipolar module", ISPSD 29th, Sapporo, Japan, 41(2017).
- [5] A. Yoneyama et al., "Advanced X-ray imaging at beamline 07 of the SAGA Light Source", J. Synchrotron Rad. 28, 1966 (2021).
- [6] 紀世陽、児島一聡、米山明男、山口博隆、"X線CTによる4H-SiCのCVD埋戻し成長におけるトレンチ端部空洞欠陥の観察", 第9回先進パワー半導体分科会講演会、福岡、日本、151(2022).

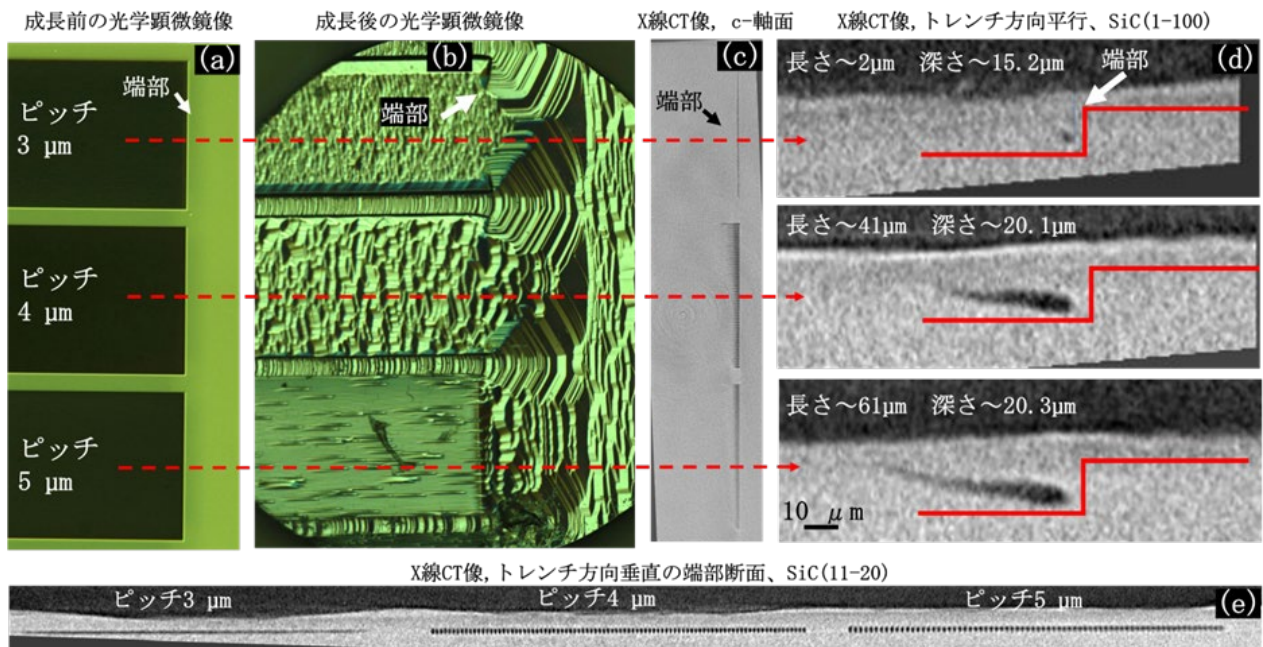


図2 成長前後の光学顕微鏡像(a) (b)とX線CT像の画像スライス(c) (d) (e)

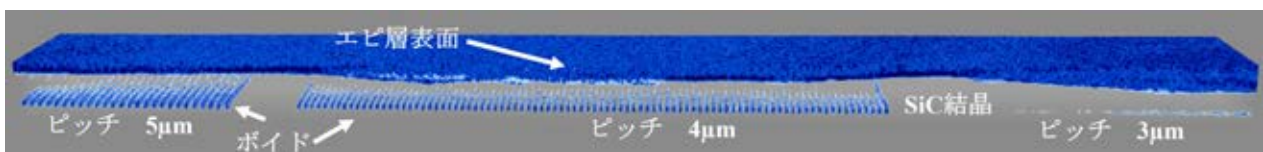


図3 X線CT観察によりトレンチ端部を内部可視化した3D構造図。

放射光Micro-CTによる紡錘虫類化石の殻、特に旋回壁内層状構造の観察

一田昌宏¹

¹豊橋市自然史博物館

1. はじめに

後期古生代石炭紀からペルム紀の熱帯～亜熱帯浅海域の堆積物、主に石灰岩から多産する紡錘虫類は、その急速な殻形態の変化もあり、層序学的に非常に有効なツールとして多くの研究がある。しかし、主に炭酸カルシウムよりなる石灰岩中に含まれ、炭酸カルシウム殻を持つ紡錘虫類化石は単離も難しく、その研究は薄片を用いた情報を基にしており、ごく一部の研究^[2]を除き、殻構造の三次元的な観察・検討はこれまで難しかった。また、紡錘虫類の主な研究方法である薄片は、薄片にする断面以外の部分は薄片作製時に消失するため、同一個体の内部構造を複数の任意の断面で観察することは不可能であった。その一方で、3次元的な殻構造の検討及び保存状態の検討が可能となれば紡錘虫類の分類やタフonomie及び古生態に有益な情報を取得できると期待される。

そこで、本研究では紡錘虫類殻の内部殻形態(図1)のみならず、紡錘虫類の分類及び系統関係に特に重要な形質であり数マイクロメートルサイズの旋回壁(spi)内の層状構造(図2)を同一個体の複数の任意の断面で観察・検討するため、二酸化ケイ素に置換された紡錘虫類化石をギ酸にて溶出し、その断面画像を放射光マイクロ X 線イメージングにより取得、解析した。

2. 実験

2-1 試料

SAGA-LSのBL-07のマイクロ X 線イメージングで測定可能なサイズ 2x2x2 mm 以内の紡錘虫類化石 4 種を測定に用いた。選定した 4 種は、紡錘虫類の代表的な旋回壁内層状構造の 4 タイプ(図 2)、*Profusulinella* type、*Fusulinella* type、*Triticites* type、*Schwagerina* type の内、前 3 つの型に対応する。測定した紡錘虫類化石は、石灰岩に含まれるが化石のみ

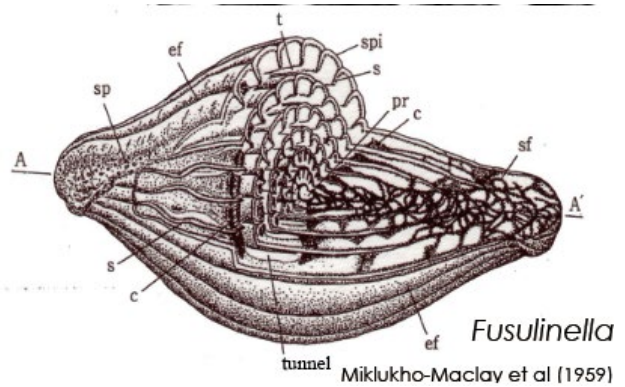


図 1 紡錘虫類 (*Fusulinella*) の内部構造
Pr: Proloculus(初房)、s: Septa(隔壁)、sp: Septal pore(隔壁孔)、spi: Spirotheca(旋回壁)、c: Chomata(コマータ)、tunnel(通道)。
Miklukho-Maclay et al (1959)^[3]を改変。

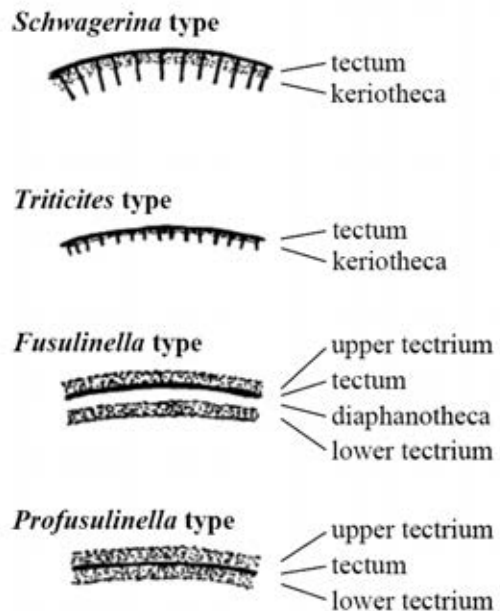


図 2 旋回壁内部の層状構造

二酸化ケイ素に置換されたものをギ酸によって溶出(図 3 上)の後、測定した。

(1) *Profusulinella* type 及び *Fusulinella* type

本2タイプでは、岐阜県高山市奥飛騨温泉郷に分布する上部石炭系モスコビアン階水屋ヶ谷層より産出する3属3種 (i-iii) の紡錘虫類化石を測定サンプルとした。

i. *Pseudostaffella sphaeroidea*

tectum、upper tectrium、lower tectriumから構成される3層構造の旋回壁 (Spirotheca) を持つ。

ii. *Beedeina lanceolata*

tectum、diaphanotheca、thick upper tectrium、thick lower tectriumから構成される4層構造の旋回壁 (Spirotheca) を持つ。

iii. *Hidaella kameii*

thin dense tectum、diaphanotheca、upper tectrium、lower tectriumから構成される4層構造の旋回壁 (Spirotheca) を持つ。

(2) *Triticites* type

本タイプでは、オーストリア・カーニックアルプスに分布する上部石炭系グゼリアン階Camizza層より産出する紡錘虫類化石、1属1種を測定サンプルとした。

i. *Triticites* cfr. *immutabilis*

tectum、well-defined alveolar keriotheca から構成される2層構造の旋回壁 (Spirotheca) を持つ。

2-2 実験方法

BL07において10 keVから20keVの単色光で、X線カメラKenvy 2(Visual field : 2x2 mm、2048x2048 pixels、pixels size: 1.3 μ m)にて、マイクロCT撮影した。試料は、木製のつまようじの上にタラカントゴムで固定し、ステージ上にセットした (図3下)。

3. 結果及び考察

3-1. *Profusulinella* type 及び *Fusulinella* type のイメージング画像

i. *Pseudostaffella sphaeroidea* (図4)

旋回壁(spi)には、明瞭なtectum(t)、upper tectrium(ut)及びlower tectrium(lt)が観察される。また、赤矢印部断面では、明瞭なtectumとtectum形成後に形成されるtectriumにより、室を付加して成長する殻の形成

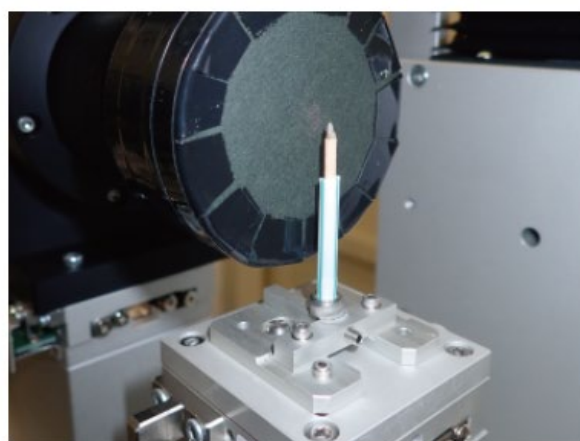
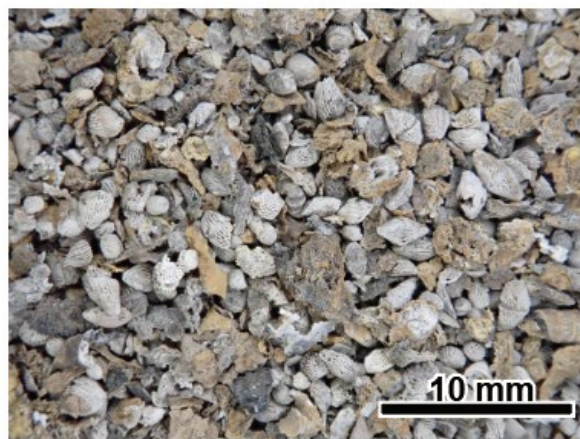


図3 ギ酸にて溶出した *Profusulinella* type 及び *Fusulinella* type 試料 (上) 及びステージ上にセットした試料 (下)

過程が観察される。加えて、任意の角度から観察可能であるため、初房(proloculus: pr)から第1室に連結するproloculus pore(pp)も観察される。多数の角度のイメージング画像の観察により、本個体の最終室付近のsepta(s)のtectriumが未発達であることから、最終室に付近まで保存されている、死後の水流などによる運搬に起因する死後破壊の影響が少ない個体であると考えられる。

ii. *Beedeina lanceolata* 及び iii. *Hidaella kameii*

旋回壁(spi)では、明瞭な5 μ m程度の厚さのdiaphanotheca(d)、upper tectrium(ut)及びlower tectrium(lt)が観察される。一方、tectumは、イメージング画像では不明瞭であった。diaphanotheca(d)は、結晶質方解石層であるため珪化されずギ酸処理時に溶けることで明瞭に観察されたと考えられる。多数の角度のイメージング画像の観察により、本 *Beedeina lanceolata* は、最終室近くでは、chomata及

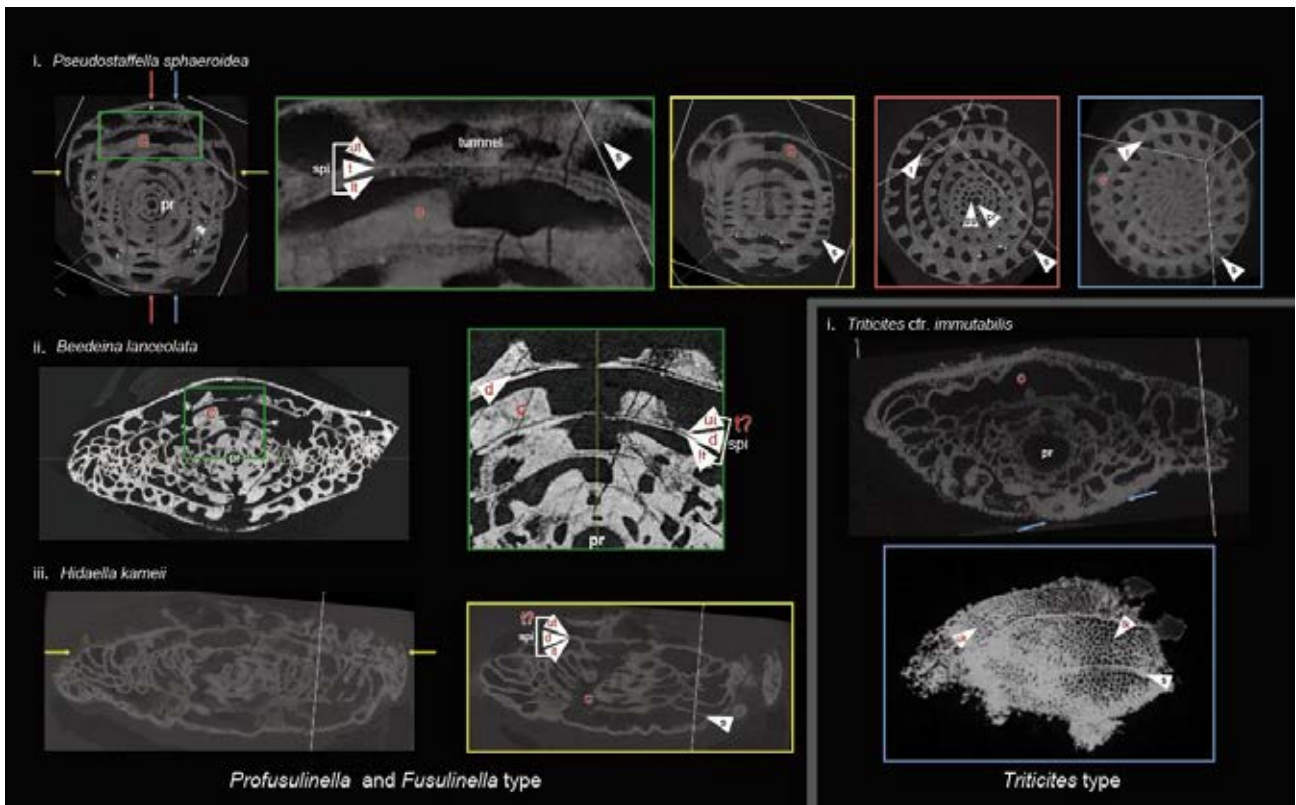


図4 *Profusulinella* type、*Fusulinella* type、*Triticites* type のイメージング画像
各色の矢印部の断面と同色の枠のイメージング画像が対応する。

びtunnelが未発達であり、と同じく死後破壊の影響が少ない個体であるといえる。一方で、*Hidaella kameii* はギ酸処理時の二酸化炭素気泡による内部破壊の程度が大きいものの、*Beedeina lanceolata*と同じ保存状態であるといえる。

3-2. *Triticites* type のイメージング画像

i. *Triticites* cfr. *immutabilis*

青矢印部断面の旋回壁(spi)では、tectum(t)、upper keriotheca(uk)及びlower keriotheca(lk)が観察される。特に、最終室付近の旋回壁(spi)では、keriothecaが未発達であり、tectum形成の後にkeriothecaが付加される、殻の成長過程も観察される。また、septaに発達する直径2-10 μm 程度のseptal poreも観察された。

最後及び最後から1つめのseptaをいくつかの角度のイメージング画像から観察した結果、keriothecaが発達する一方、tunnelが未開通かつchomata(c)も未発達であったため、最終室に付近まで保存されているサンプルであると考えられる。

4. まとめ

SAGA-LSのBL-07で測定、取得したイメージング画像により、世界で初めて1個体分の紡錘虫類の殻化石を複数の任意の断面で内部構造を観察され、数 μm オーダーの構造である旋回壁内の層状構造についても観察も可能であることが明らかになった。任意の断面かつ数 μm オーダーの旋回壁内層状構造の観察により、これまで不可能であった1個体内での死後破壊の程度などの殻の保存状態や殻の成長の程度の詳細な検討が可能となった。これらの新しい殻保存状態の評価方法は、紡錘虫類の古生態だけでなく、紡錘虫類が繁栄していた後期古生代の熱帯から亜熱帯浅海域の古海洋環境変遷の解明にも大きく寄与すると期待される。

5. 謝辞

本研究を進めるにあたり、三宅幸雄氏には珪化紡錘虫の情報や測定用のサンプルの提供をしていただいた。九州シンクロトロン光研究センターの米山明男博士には、放射光microCTの利用や実際の測定、解

析手法に関して終始丁寧なご教授、ご助力をいただいた。ここに心より感謝申し上げます。

本研究の一部には、JSPS 科研費 (JP19H00229) 及び全国科学博物館活動等助成事業 (20008)を使用した。

参考文献

- [1] U. Leppig, H. C. Forke, M. Montenari, B. Fohrer, “A three- and two-dimensional documentation of structural elements in schwagerinids (superfamily Fusulinoidea) exemplified by silicified material from the Upper Carboniferous of the Carnic Alps (Austria/Italy): a comparison with verbeekinoideans and alveolinids”, *Facies*, **51**, 541–553 (2005).
- [2] Y. Shi, H. Huang, Z. Shena, “New insights for ancient foraminifera through 3D visuals of fusulinids”, *Palaeoworld*, **28**(4), 478-486(2019)
- [3] A. D. Miklukho-Maclay, D. M. Rauser-Chernousova, S. E. Rosovskaya, “Fusulinids”, *Fundamental of Paleontology*1, 201–215 (1959)

3 利用促進

3-1 県内利用の促進

(1) 産業利用コーディネーター活動

2022 年度は佐賀県内の産業振興を目的に産業利用コーディネーター(3名)を配置した。佐賀県内の企業及び試験研究機関を訪問し、課題解決のため技術分野に関する支援を行った。

年間延べ営業活動件数(企業等訪問件数)は243件。訪問先企業等は製造業を中心に106機関であった。その中で研究センターの新規利用につながった件数は8件で、内訳は企業4件、大学1件、公設試3件となっている。

企業においては、主に新技術の開発や製品の不良発生の原因調査、大学においては、農産物の酵素分解技術の開発、公設試においては、産業の高度化につながる新技術の開発のための研究を目的として利用された。

(2) 包括利用による支援

シンクロトロン光利用による分析に馴染みの薄い県内企業の利用を促進するための利用区分として設けている。内容は、実験計画の策定・測定・報告書作成等を包括的にセンターの研究者が行うものであり、令和4年度の利用実績は5件であった。

(3) 県試験研究機関の利用促進・連携

県試験研究機関の地域課題や産業課題の解決に向けて、シンクロトロン光を活用した研究を支援した。特に県の基幹産業である農林水産の各分野における研究利用を促すため、共同研究等を通じて農林業試験研究機関等との連携を図った。

(4) 施設見学会の実施

佐賀県内の産業利用を促進すべく、主に県内の企業や公設試等向けの施設見学会を年2回実施した。

- ・2022年6月13日：32名参加
- ・2023年2月27日：24名参加

3-2 県外等全般的な利用促進

(1) 利用相談等

企業、大学及び公設試験研究機関等からメール、電話及び来所等により多くの利用相談が寄せられ、随時相談に対応した。

また、実験終了後に実験責任者からビームタイム利用記録兼アンケート用紙を収集し、その要望を基に利用改善に努め、必要に応じて実験責任者へ報告を行った。

(2) 講習会等

「第16回九州シンクロトロン光研究センター研究成果報告会」、「第36回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム」等における成果普及やシンクロトロン放射光の基礎から応用について学ぶ講習会「SAGA-LSサマースクール2022」の実施を通じて、利用促進を図った。

また、学会での発表や展示会等のブース出展による研究センターのPRも積極的に行った。

詳細は「V 研究会、講習会」、「VI 広報、人材育成」で述べる。

Ⅲ 加速器／ビームライン等の現状

1 加速器

1. SAGA-LS 加速器概要

SAGA Light Source(SAGA-LS)加速器は全長約 30 m, 最大ビームエネルギー255 MeV 電子リニアック(線形加速器)及び周長約 75.6 m, 最大ビームエネルギー1.4 GeV の電子蓄積リングより構成される。リニアックにより加速された電子は1Hzにて電子蓄積リングに入射される。電子蓄積リングに約 300 mA の電子を蓄積後、リング内にてビームエネルギーは 255 MeV から 1.4 GeV に加速される。ビーム入射及び加速に要する時間はそれぞれ約 3 分及び 1.5 分程度である。ビームエネルギー1.4 GeV 到達後、2 台の超伝導ウィグラーを約 15 分間かけて励磁を行い、ビーム軌道補正、ビームサイズ調整等を行ったのち、放射光ユーザー運転が開始される。SAGA-LS にはフルエネルギー入射を可能とするブースターリングあるいはフルエネルギーリニアックは存在しないため、ビームは減衰モードにてユーザー運転が維持される。ビーム寿命はビーム電流 300 mA においておおよそ 5 時間程度である。午前 10 時から 21 時までが公式な放射光ユーザー運転時間とされている。

SAGA-LS 電子蓄積リングは周長約 75.6m のコンパクトな電子蓄積リングであるが、8 つの長直線部を持ち、現在 2 台のアンジュレータ(planer 型 1 台、APPLE-II 型 1 台)、2 台の 4T 超伝導ウィグラーが設置されている。ナチュラルエミッタンスは約 25nmrad である。2000 年代初頭に設計された旧式の加速器ではあるが周長に対し比較的低エミッタンスな加速器である。

2. 運転状況

加速器の運転は緊急時及び光焼きだし等の例外を除き、平日の月曜日から金曜日にかけて行われる。週の初めの運転日(通常は月曜日、祝日明けなどは火曜

日以降)にマシンスタディが実施される。マシンスタディにおいては、ビームパラメーターの調整、記録、加速器構成機器類のメンテナンス、加速器高度化のための各種試験及び調整運転を実施する。マシンスタディが実施された翌日の火曜日には 2 回のビーム入射、その他の曜日では蓄積リングへの入射回数は 1 回である。アンジュレータのギャップ変更に伴うビーム軌道・チューン補償・カップリング補償はフィードフォワード方式にて制御されており、ユーザー運転中は基本的には無人で加速器の運転が行われている。

また、リング電磁石主電源には外付け DCCT を用いたフィードバック方式による電流制御を常時稼働しており、ユーザー運転時間におけるリング主電源の安定度は約 $\pm 5 \times 10^{-5}$ である。2022 年度は約 1680 時間のビーム供給(ユーザー運転時間)が行われた。ビームアポートタイムは約 44 時間であり、年間のビーム供給時間に対するアポート率は約 2.6%であった。

3. 主な加速器トラブル

2022 年度、ユーザー運転時間に影響があったマシントラブルは計 3 回発生した(原因不明の RF 反射: 1 回、RF 系クライストロン電源異常を推定とするインターロック発生 1 回、リニアック電子銃高圧電源故障: 1 回)であった。それぞれのトラブルによるアポート時間は各 43 分、2550 分及び 31 分である。原因不明の RF 反射に対しては RF 空洞電圧を低下させた運転(定格 500 kV に対し現在 330kV)、リングクライストロン電源に対してはリングクライストロン電源制御用 PLC の内部レジスタ(IGBT ユニット電位差等)の常時監視による原因調査を行っている。リングクライストロン電源の異常動作の要因のひとつとして IGBT 基板の動作不良が推定されている(原因なのか結果なのか、詳細なメカニズムは現在も不明)。リ

ングクライストロン電源 IGBT 基板は現在使用中の基板内部品の入手が困難なこともあるため加速器更新の一環としてリプレースが計画されている。

リニアック電子銃高圧電源は建設期に整備された特注品の機器のひとつである。電源制御基板内部品の故障を要因として長期間にわたる加速器運転停止が発生した。今後、予備品の確保がしやすい汎用品への置き換えと、代替高圧電源に対応するための電子銃制御機器類の改修を計画している。

4. 高度化

マシンスタディにおいて実施した主な加速器の高度化は、ビーム軌道の安定化と Beam Position Monitor (BPM) デジタル処理回路 (図 1) の整備である。加速器冷却水系の温度変化に伴うビーム軌道の変動が 2021 年から顕著となり、一部のビームラインに光強度の変動として影響を与えていた。加速器グループでは放射光実験に影響を与えやすい垂直方向のビーム軌道の変動を抑制するため、既存のステアリング電磁石 (STY) 8 台にコイルを追加し、ビーム軌道補正のためのフィードバックシステムを開発した。冷却水の温度変化に伴い最大で $\pm 20\mu\text{m}$ のビーム軌道の変動が発生していたが、ビーム軌道フィードバック制御により変動幅は $\pm 5\mu\text{m}$ 以下に抑制された (図 2)。水平方向を含めた更なるビーム軌道の安定化に対しては、BPM 真空槽の位置変動抑制や BPM の感度向上、コイル及びコイル用電源の整備が必要であり、今後の課題となっている。新規に運用を開始した BPM 処理回路 (Libera BPM) はビーム不安定性の解明や大電流蓄積のための入射軌道のターン毎計測等への使用が期待されている。



図 1 Libera デジタル BPM 処理回路

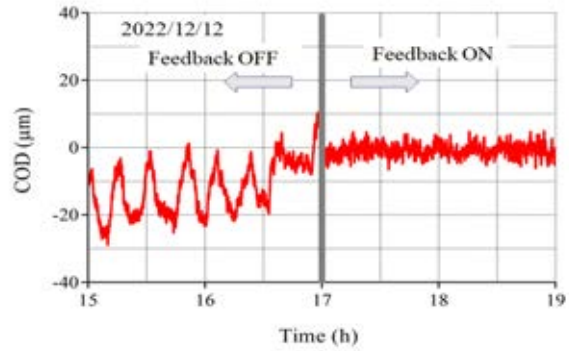


図 2 エクストラコイルを用いた垂直方向ビーム軌道補正フィードバックシステムの効果。軌道フィードバック補正システムは 2023 年 1 月以降常時運用されている。

5. 更新計画

SAGA-LS 加速器は 2003 年の機器類インストールから約 20 年が経過し機器類の老朽化が深刻となっている。現行部品で置き換えが可能な物に対しては随時現行品に置き換える等の処置を実施しているが、入射キッカーサイラトロン等、製造停止となっている部品も多く、今後の継続した加速器の維持のために大幅な更新が必要とされる。特に RF 空洞電圧の低下を引き起こしている空洞本体、重故障が多く発生する蓄積リング主電源、サイラトロンの確保が不可能となっている入射系電磁石電源 (セプタム・キッカー電源) 及び耐久年数を超えるセプタム電磁石、部品類の入手が困難となっている蓄積リング小型電源類に関し、5 ヶ年に渡る大規模な更新が計画されている (図 3)。

対象機器	2023年度	2024年度	2025年度	2026年度	2027年度
蓄積リング主電源	■	■			
リングRF空洞本体	■	■	■		
クライストロン電源IGBT基板	■	■	■		
セプタム・キッカー電源			■	■	■
セプタム電磁石			■	■	■
蓄積リング小型電源				■	■

図 3 SAGA-LS 加速器大規模改修計画

九州シンクロトロン光研究センター
加速器グループ
岩崎 能尊

2 県有ビームライン

1. 県有ビームラインの現状

7本の県有ビームラインでは表1に示す通りEUV、軟X線、Tender X線、及び硬X線を用いた利用研究が行われている。なお、BL18は過年度より継続的に実施してきた利用再開に向けての整備が概ね完了して2020年度より利用者受け入れを開始し、2022年度にも複数の課題が実施された。2022年度は例年の機器整備に加えて半導体関連基盤強化事業による整備も行った。また、測定データの定量性向上に向けた取り組みにも着手した。以下、2022年度に実施した主な機器整備と蛍光XAFS自己吸収補正への取り組みについて報告する。

(1) 高分解能光電子分光装置計測制御系更新

BL10では高輝度なアンジュレータからの放射光を利用した高エネルギー分解能の光電子分光測定が行われている。この技術は半導体基板表面近傍の原子の格子歪による原子の結合エネルギーの変化を捉えることができる優れた手法であるため、民間企業も含めて半導体材料評価に利用されている。そこで、測定能率の向上を目的に半導体関連基盤強化事業による整備を行った。近年、光電子信号検出技術が目覚ましく進歩していることを踏まえて、光電子アナライザーにより分光された光電子の信号を増幅するマルチチャンネルプレート、及び増幅された光電子を可視光に変

表1 県有ビームラインの概要

ビームライン	光源	光子エネルギー	主な実験手法
BL07 バイオ・イメージング	超伝導ウィグラー (4 T)	5 keV – 35 keV 白色光 (ピーク 8 keV)	<ul style="list-style-type: none"> ・ X線イメージング (CT) ・ X線回折 ・ タンパク質 X線回折 ・ 高エネルギーXAFS ・ 蛍光 X線分析 ・ 照射 (放射線効果)
BL09 照射・結晶構造	偏向電磁石	白色光 (ピーク 4 keV)	<ul style="list-style-type: none"> ・ 照射 (放射線効果) ・ 白色・単色 X線トポグラフィ
BL10 ナノサイエンス	偏光可変 アンジュレータ	40 eV – 900 eV	<ul style="list-style-type: none"> ・ 光電子顕微鏡 ・ 角度分解 X線光電子分光 ・ NEXAFS
BL11 局所構造	偏向電磁石	2.1 keV – 23 keV	<ul style="list-style-type: none"> ・ XAFS ・ X線小角散乱
BL12 表面界面	偏向電磁石	40 eV – 1500 eV	<ul style="list-style-type: none"> ・ NEXAFS ・ X線光電子分光
BL15 物質科学	偏向電磁石	3.5 keV – 23 keV	<ul style="list-style-type: none"> ・ X線回折 (薄膜、粉末) ・ X線反射率測定 ・ 単色 X線トポグラフィ ・ XAFS
BL18 EUV 光照射	偏向電磁石	～ 92 eV	<ul style="list-style-type: none"> ・ EUV 光照射

換して強度を読み取るCCDカメラ（図1）と制御機構を一新した。この整備によって検出される光電子強度が以前の約10倍にまで向上し、従来よりも高能率な測定が可能となった。また、セキュリティの一層の強化に向けて制御用PCの更新も併せて実施した。

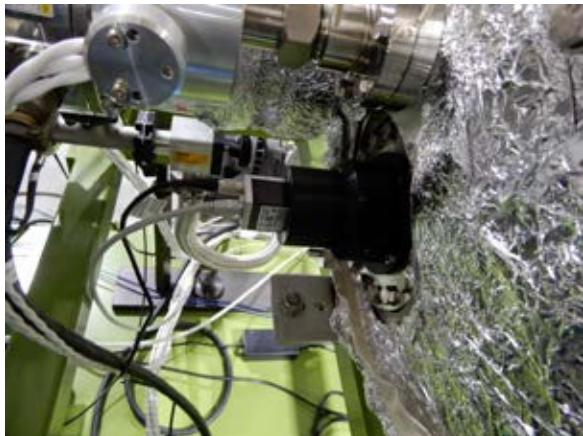


図1 アナライザーに取り付けた CCD カメラ

(2) 光電子分光試料搬送容器

光電子分光は試料表面の電子状態に敏感な測定手法であるため、測定試料の表面を常に清浄に保つことが求められる。試料表面が作製されたままの状態を保つためには、作製から測定装置に導入するまでの間も清浄な環境中での移送が求められる。試料を清浄な環境に保った状態で光電子分光装置に移送するための容器を半導体関連基盤強化事業により整備した（図2）。この容器はBL10及びBL12に設置されている光電子分光装置の両方に試料移送が可能である。



図2 光電子分光試料搬送容器

(3) 半導体基板用グローブボックス

半導体材料分析に用いられているBL10での光電子分光やBL15でのX線反射率測定はいずれも表面敏感な測定手法であるため、測定試料は清浄な環境で調製することが求められる。通常は、残留する水分や酸素



図3 大型グローブボックス

を極力少なくしたアルゴンや窒素等のガスを満たしたグローブボックス内で試料調製を行っているが、最も多く使われているシリコン基板は12インチ（直径30cm）と大型のため、そのままグローブボックス内に導入することはできなかった。半導体関連基盤強化事業により12インチシリコン基板の導入が可能な大型グローブボックスを整備しBL12の下流側に設置した。通常、12インチシリコン基板は25枚分を収納できる気密性が高い専用のウェハケースに入れられて流通している。整備したグローブボックスはウェハケースがそのまま入る大型の試料交換チャンバーを備えている（図3）。また、試料調製中の雰囲気清浄度を確認するための露点計と酸素濃度計とともに循環精製機も備えている。光電子分光試料搬送容器もこのグローブボックス内で取り扱われる。

(4) X線反射率測定用試料容器

X線反射率は試料表面の電子密度分布がナノメートルレベルで反映されるため、半導体基板上に製膜された数ナノメートルの薄膜内の電子密度の深さ分布や表面・界面の平坦性評価、及び表面の汚染分析にも用いられている。X線反射率測定は主にBL15にて行われているが、大気中で繰り返し測定をするとプロファイルが測定のために変化する場合が少なくない。この現象は、試料搬送中及び測定中に空気中の水分や炭化水素等の試料表面への吸着が原因と考えられるため、X線反射率測定は清浄な雰囲気で行われることが必要である。そこで、半導体関連基盤強化事業により、気密性に優れた試料容器を導入した（図4）。導入した容

器は190°Cから600°Cの間で気密性確保が可能である。この容器も半導体関連基盤強化事業で整備したグローブボックスで取り扱われることを想定している。



図4 X線反射率測定用試料容器

(5) カレントアンプ導入

15 keV以上の高エネルギーを除く硬X線域とTenderX線域のXAFS測定はBL11で行われている。利用希望の集中によりBL11での受け入れが難しい場合は過去にXAFS測定を受け入れていた実績のあるBL15で受け入れを行っていた。昨年度はBL11に利用希望が殺到し、第II期の途中で募集を停止せざるを得ない状態になったことから、BL15でもBL11と並行してXAFSを実施できるように試料に入射するX線強度、及び透過したX線強度の測定に必要なカレントアンプを導入した(図5)。



図5 BL15 ハッチ内に設置したカレントアンプ

(6) 蛍光XAFS自己吸収補正の検討

基板上の膜などX線が透過しない試料や測定対象元素が希薄な試料は蛍光収量法によるXAFS測定が広く行われている。しかし、蛍光収量法は測定試料自身による蛍光X線の吸収(自己吸収)により検出される蛍光X線強度が吸収係数に比例しないため、本来の

XAFSスペクトルが得られない欠点がある。自己吸収に対応するため、2次元検出器を用いて試料からの蛍光X線強度を複数の出射角で測定することにより本来のXAFSスペクトルを導出する方法が提案されているが大量の測定データを対象とした膨大な計算が必要になるため実用的な方法とは言い難い。そこで、試料希釈前後の蛍光スペクトルの比較より自己吸収補正を行う方法を検討した。

図6の青曲線はBNで希釈した濃度22wt%の Fe_3O_4 の蛍光XAFSスペクトルから導出したEXAFS振動($k^2\chi$)で、自己吸収により白丸で示した透過測定より導出した $k^2\chi$ よりも振幅が小さくなっている。赤曲線はBNで11wt%に希釈した試料と22wt%の試料の蛍光XAFSスペクトルを用いて自己吸収補正を行った $k^2\chi$ で、透過XAFSの $k^2\chi$ にほぼ一致し適切に補正できていることがわかる。

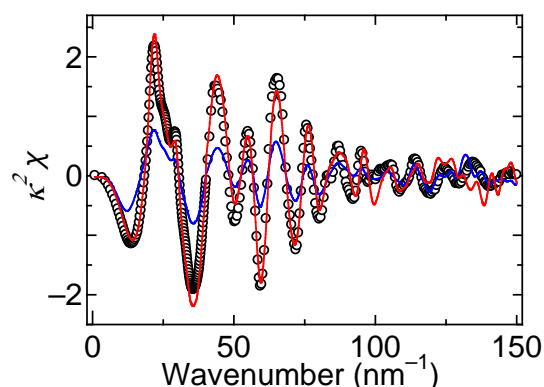


図6 Fe_3O_4 のEXAFS振動関数
○ 透過法、— 蛍光法補正前、— 補正後

2. まとめ

上記のとおり2022年度を通じて経年劣化への対応を含めて7本の県有ビームラインの維持管理を行うとともに、県有ビームラインの利用者に対する利用支援を継続的に行った。更に半導体分野を中心に利用者の利便性向上に向けた測定機器の更新・導入とそれらの立ち上げ調整、及び利用技術高度化の研究開発を継続的に行った。

九州シンクロトロン光研究センター
ビームライングループ
廣沢 一郎

3. ナノスケール表面界面ダイナミクスビームライン (BL13 ; 佐賀大学)

1. はじめに

佐賀大学ナノスケール表面界面ダイナミクスビームラインは、平面型アンジュレータからの高輝度な真空紫外光・軟エックス線を利用する実験ステーションと偏向電磁石からの紫外・真空紫外光を利用する実験ステーションにおいて、高分解能内殻光電子分光、角度分解光電子分光および吸収・蛍光測定による実験が可能である。また、短パルスレーザーとの組み合わせによる時間分解光電子分光も可能となっている。本ビームライン設備を用いて、シンクロトロン光を利用する研究開発の促進、人材育成ならびに地域活性化などに学術的立場から支援協力するとともに、九州地域の大学や国内外の研究教育機関との連携によるシンクロトロン光応用研究および関連する研究教育活動などに利用する目的や、種々の固体や表面における電子ダイナミクスを解明する目的での研究を遂行してきた。2022年度においても、エンドステーション機器を中心とした実験設備の高度化更新を行うとともに、シンクロトロン光による光電子分光実験およびレーザーとの組み合わせによるダイナミクス研究を中心とするプロジェクト研究と利用実験と学内外の研究者に向けた利用支援を推進した。

2. 測定システムの状況

アンジュレータからの高輝度光を用いる VLS ステーションと、偏向電磁石からの紫外・真空紫外光を利用する PGM ステーションのエンドステーションは同様の構成である。いずれにおいても電子軌道偏向による2次元角度マッピング機能を持つ高エネルギー分解能型光電子エネルギー分析器 (MB Scientific 社製、A-1/Lens4) を備えており、試料導入槽と試料準備槽を設置している。試料は6個までのストック機構を備えた試料導入槽から装置に導入

され、ターボ分子ポンプでの排気開始後およそ 30 分で試料準備槽へ移動可能となる。試料導入槽へはグローブボックスを取付けることができ、不活性ガス雰囲気中で調製した試料を大気に晒すことなく測定槽へ搬送することもできる。試料準備槽には、試料加熱機構、イオンスパッタ銃、電子ビーム蒸着源、水晶振動子膜厚計、ガス導入用バリアブルリークバルブ、低速電子線回折(LEED)装置を備えており、試料表面の清浄化や表面処理、薄膜作製などが可能である。また、“その場で”作製することが必要な種々の原子層物質の試料準備を希望する外部ユーザーからの要望に応じて、ユーザー持ち込みの蒸着源を簡便に入れ替えることができるように、試料準備槽には局所的に大気解放し短時間のベーキングで超高真空の復旧ができる蒸着ポートを備えている。

光電子測定槽では、試料は循環型ヘリウム冷凍機の先端に固定される。光電子分析装置の電子レンズは広角度範囲モードの $\pm 18^\circ$ から高角度分解能モードの $\pm 3.5^\circ$ まで可変の2次元マッピング型であり、試料位置を変更することなく2次元でのバンド分散の決定が可能である。また、光電子測定槽においては、全電子収量法による吸収測定も可能である。マニピュレータについては、X, Y, Z, および θ の4軸をステップモーター駆動とすることにより、試料位置と試料角度を測定用 PC から設定し、多数の試料位置条件に対しての自動測定を行う。2022年度からは、試料の角度決め精度を向上させるために高剛性型の中空回転導入機(真空光学社製、iRS152)を使用するとともに低振動型クライオスタットに更新している。また、2023年1月には光電子分析装置の二次元検出器用カメラの更新を行った。感度特性と転送速度が向上したことにより、MCP増幅部の寿命を伸ばすことができるとともに、計測効率も改善することができた。

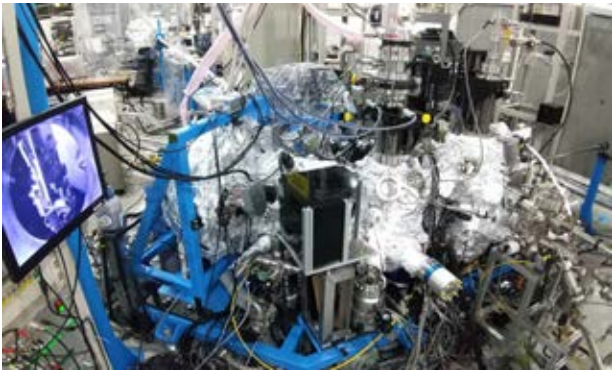


図1. VLSステーションの光電子分析装置。



図2. 更新した二次元検出器用カメラ。

PGMステーションの第1集光点には、種々の半導体材料の深紫外域での光学特性評価のための分光システムを設置している。真空槽は、試料導入槽と分析槽から構成されており、導入槽は6個までの試料ストック機構を備える。分析槽において、試料は約20 Kまで冷却可能な循環型低振動ヘリウム冷凍機の先端に固定され、透過法での吸収測定、可視-紫外蛍光測定を行う。蛍光測定では、真空中に配置したφ1.45 mm丸型の24芯バンドルファイバ端面より蛍光を取込み、大気側の0.25×6 mm 1列ライン型端面まで導く。回折格子は、150 1/mm (ブレイズ波長500 nm)、1200 1/mm (330 nm)、2400 1/mm (330 nm)の3種を用意している。

PGMステーションの第2集光点においては、25 eV以下などの低エネルギー領域でのARPES実験を中心に実験を行っており、光子エネルギー8-9 eVの範囲でMgF₂ 1/4波長板の利用により左右円偏光での円2色ARPES測定も可能である。例えば、低温に保持した3層グラフェン上にα相ビスマセンを成長させることに成功し、光子エネルギー15eVの放射光を用いた

ARPES測定により、1bilayer (BL)から3BL厚さのα相ビスマセンでのフェルミ面マッピングとΓ-X₁方向、Γ-X₂方向およびX₂点周りでのバンド分散を明らかにした成果などを報告している。

3. ビームライン利用状況

本学の重点領域研究としての「シンクロトロン光応用研究」による教育研究活動に加え、2022年度から2028年度までの計画で、ミッション実現戦略分の事業として「九州地域シンクロトロン光活用拠点における革新マテリアル研究と人材育成」を開始した。本事業では、シンクロトロン光施設での軟エックス線領域の学術研究の実績とレーザーとの組合せによる先導的な研究実績や、継続してきた連携研究の体制を土台とし、ウルトラワイドギャップ半導体材料作製技術やシンクロトロン光とレーザー光を活用した先端分析とDXを活用した高度解析を融合した研究に取り組む計画であり、社会課題の解決に資する革新的な材料開発研究、地域の研究者の分野横断的な連携を促進する共同研究と利用支援、先導的分析技術の社会実装、アウトリーチ活動などの研究・教育・社会貢献での成果を循環させ、シンクロトロン光利活用に関する九州地域の知的拠点としての活動を行う。これらの取り組みでは、次世代のナノスケール光・電子・スピンドバイス材料として期待される新規化合物半導体、薄膜・微粒子材料の作製技術を高度化し、その電子状態や光学特性等を明らかにするとともに、非平衡状態分析システムの高度化のために新規なコヒーレント計測技術の開発を行い、創エネルギーデバイスなどを評価できるシステムの高度化を進めている。さらに、学内外の研究者に向けたBL13利用実験の支援を継続して行っており、2022年度は学内他部局5件、学外12件を実施した。これらの研究成果は佐賀大学シンクロトロン光応用研究センターHP (<http://www.sl.c.saga-u.ac.jp/>)にて公表している。

佐賀大学シンクロトロン光応用研究センター
高橋和敏、東純平、今村真幸、山本勇、
齊藤勝彦、Deng Gaofeng、郭其新

4. 九州大学硬X線ビームライン (BL06 ; 九州大学)

1. はじめに

九州大学ビームライン (九大BL) は、X線吸収微細構造(XAFS)測定システム、及び小角X線散乱(SAXS)測定システムをエンドステーションに備え、学内・外に利用を開放している共同利用設備である。近年では、X線CT、及びXRDの整備を進め、一部は利用可能となっている。2022年度は、主にSAXSに関する基盤的な整備に加えて、試料環境の湿度条件制御系の構築を進めた。

2. 利用状況及び成果

2022年度のユーザー利用は、35件で100日間であった。その内、XAFS利用課題21件、SAXS利用課題14件であった。ユーザー利用以外の時間は、新規ユーザー及び関連研究グループによる新規研究利用への準備・高度化として利用された。

ユーザー利用では、民間企業と大学研究者との産学連携利用が増加しており、利用料収入によりBL維持費用を賄う水準を維持している。また、SAXS (及びWAXS) の利用件数が増加傾向にある。

九大BLにおける実験結果を基にした研究成果では、査読付き学術論文数は、2022年に11報発表され、こ

れまでの累計として92報となった(図1)。学術会議等での招待講演46件、口頭発表182件、ポスター発表158件に上り、8名の学会賞等の受賞となった。教育研究の成果として、博士論文9件、修士論文61件、学部卒業論文25件に九大BLにおける実験結果が使用された。

3. ビームラインの高度化

SAXS (及びWAXS) の利用が増加傾向にあることを踏まえ、主にSAXSの基盤的な高度化を進めた。前年度に、X線検出器を従来のIP検出器 (AXIS Ultra++、リガク) からPILATUS3 300K (DECTRIS Ltd.) に入れ替え常設検出器とした。PILATUS3は、真空、又はガス置換可能なチェンバー内でXZステージ上に設置される。チェンバーとカメラパスは連結され一体構造である。新たにカメラパスの入射窓を従来のポリイミドフィルムからSiNメンブレン (開口5×5mm、Siウエハ10×10mm) に変更し、カメラパス及び検出器チェンバーの真空下での運用に変更した。これにより、窓部及びカメラパス (従来はHe置換) に由来するバックグラウンドを大きく低減できた。また、カメラパス出口は、フライングビームストッパーの25μm厚ポリ

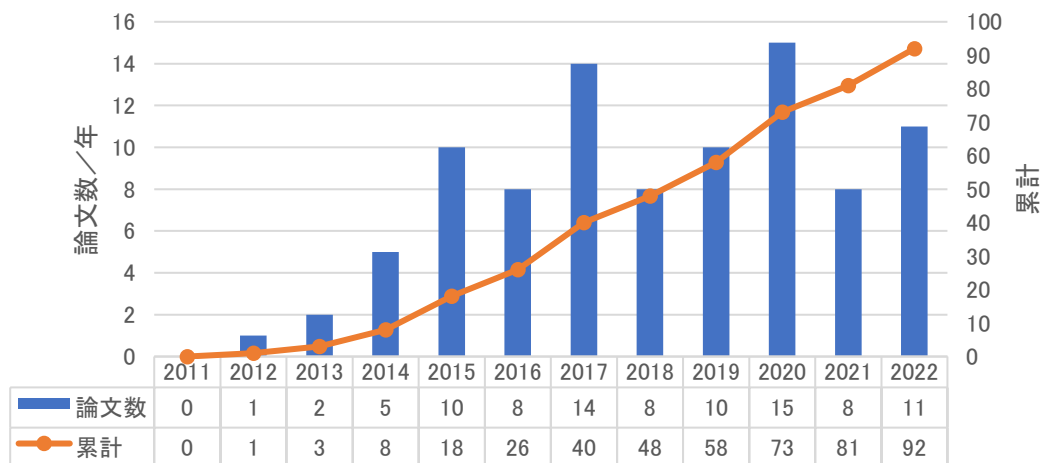


図1 九大BLでの結果を用いた論文数の推移

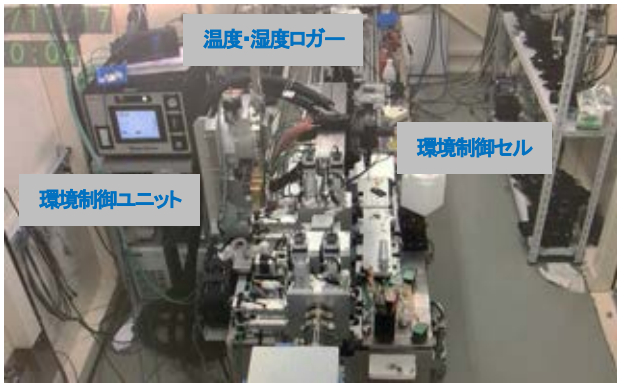


図2 加湿環境制御システム

イミドフィルムのみのため、高感度なX線検出を実現している。

一方、ユーザーとの共同により試料の高湿度環境制御の構築を進めた。調湿ガス供給装置 (Humi Cruise、第一科学) を設置するとともに、温度/湿度制御試料セルを独自に開発した。試料セルは、二重構造とし外側にチラー制御の温水を循環でき、X線用の上流・下流側窓を二重窓構造にして温風をフローさせて結露を低減する設計とした。BLオンラインで構築した写真を図2に示す。図3には、試料環境の温度及び湿度条件を変化させた際のログデータを示す。このシステムにより試料環境として温度80°C/湿度80%RHの条件で結露の影響のないXAFS、SAXSの測定を実現した。

九大BLで新たに構築した高湿度環境制御システムを用いてNafion膜でSAXS実験を行った九州大学・西原 正道 教授グループの結果を図4に示す。試料は、市販のNafion 211膜 (25 μ m厚) で、80°C環境での湿度依存性を評価した。カメラパスは1m、入射X線波長

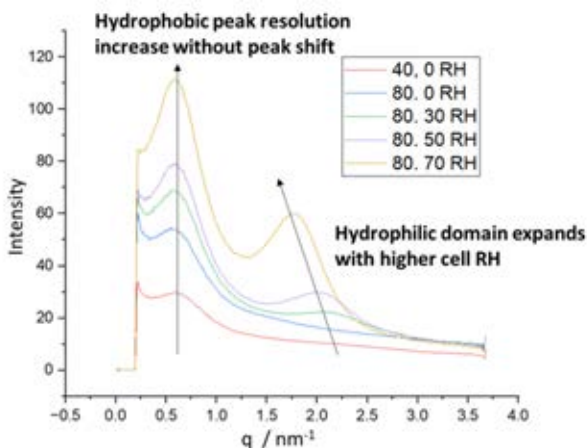


図4 Nafion 211 膜での高湿度 SAXS 測定

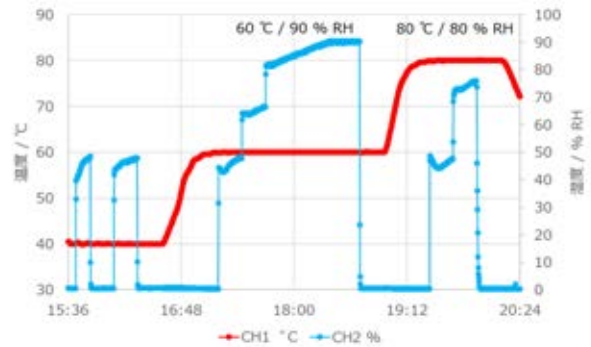


図3 温湿度ログデータ

は1.38Åの条件である。散乱スペクトルには、Nafion疎水部のクラスター構造に由来する小角側 ($q=0.6$) の散乱ピーク、及びスルホン酸からなる親水性ドメインに由来する広角側 ($q=1.8-2.2$) の散乱ピークが観測される。乾燥時は、特に親水ドメインに由来する散乱強度が小さく、かつ広角側にシフトしている。湿度の上昇に伴い、小角、広角双方に由来する散乱強度が増加し、更に広角側の散乱は小角側にシフトしている。このシフトは、スルホン酸からなる親水ドメインが加湿により膨潤したためと考えられる。また、親水性と疎水性のドメインの相分離がより明確になったため、散乱強度が増加したと考えられる。疎水部のクラスター構造に由来する小角側の散乱は、湿度が上昇するにつれ散乱強度は増加するものの、 q 値は湿度の変化に関係なく一定であった。疎水部には加湿による体積膨張が見られないため小角側へのシフトが観測されず、また親水部が膨潤することによる圧縮も起こっていないことを示している。

試料環境の湿度条件の制御は、燃料電池に必須の高分子電解質膜やイオノマー等、特に高分子材料の研究・開発に極めて有用であり、九大BLの特徴の一つとして今後の活用が期待される。

九州大学シンクロトン光利用研究センター
杉山武晴・石岡寿雄・吉岡聰・村山美乃・原田明
山内美穂・永長久寛・徳永信 (センター長)

5. 住友電工ビームライン (BL16、BL17：住友電気工業株式会社)

1. はじめに

住友電気工業株式会社（以下、当社）では、原子レベルの分析や製造プロセスのその場評価など、放射光を用いた最先端の材料分析を光ファイバや通信用デバイス、各種電線、切削工具など当社製品の信頼性や性能向上、新製品の開発促進に活用してきた。これを更に推進するためには、これらの最先端分析を日常的に利用できる環境が必要と考え、佐賀県立九州シンクロtron光研究センターにビームライン（以下、BL）の建設を進め、2016年11月より、本格的に活用を開始した。^[1]

当社製品は上述のように多様に展開しており、軽元素から重元素まで多くの元素を用いている。このため、

住友電工 BL では、Li より重い全元素の X 線吸収分光 (XAFS) 測定を実施可能とするため、ウィグラを光源とする BL16 (硬 X 線 BL) と偏向電磁石を光源とする BL17 (軟 X 線 BL) の二本の BL で構成し、50 eV ~ 35 keV の広い帯域をカバーしている。ビームラインの構成を図 1、基本仕様を表 1 に示す。

2. ビームライン利用状況

次頁の図 2 に BL16/17 の利用分野別、利用手法別の利用状況を示す。

当社および当社グループの業態や製品構成から、稼働当初より、素材・原料が半分を占めることになりはしない。但し、BL16 に計画的に導入してきたその場

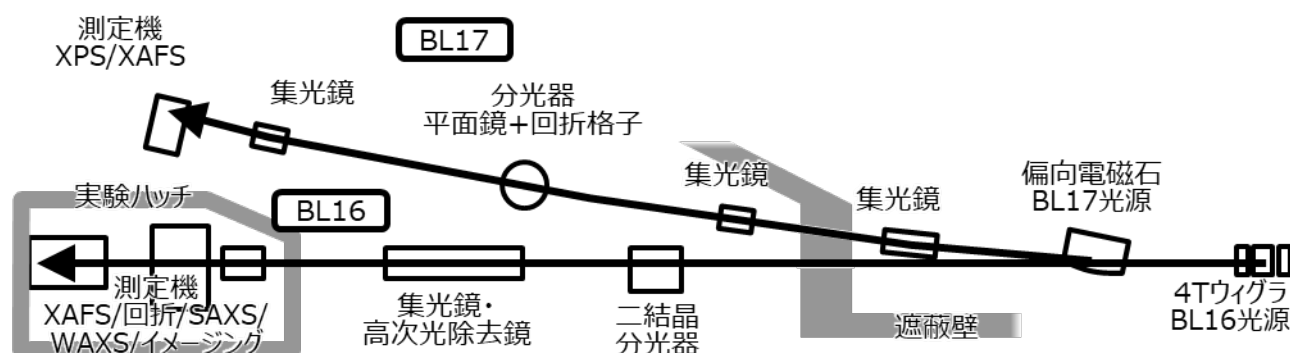


図1 住友電工ビームライン構成

表1 住友電工ビームラインの仕様

	BL16 (硬X線BL)	BL17 (軟X線BL)
光源	4T超伝導ウィグラ	偏向電磁石
分光器	二結晶分光器 : Si111/Si 311/InSb 111	可変偏角型回折格子分光器 : 400/800/1400/2200 Lines/mm
エネルギー範囲	2 keV~35 keV	50 eV~2000 eV
光子数	2.7×10 ¹⁰ photons/s @7 keV > 10 ¹⁰ photons/s @3.2 ~11 keV	2.0×10 ¹⁰ photons/s @400 eV > 10 ⁹ photons/s @50~1400 eV
エネルギー分解能	E/ΔE > 5000 @10 keV	E/ΔE > 3480 @400 eV
ビームサイズ	1.0 mm ^H × 0.2 mm ^V : 回折 1.7 mm ^H × 0.5 mm ^V : XAFS	0.5 mm ^H × 0.05 mm ^V

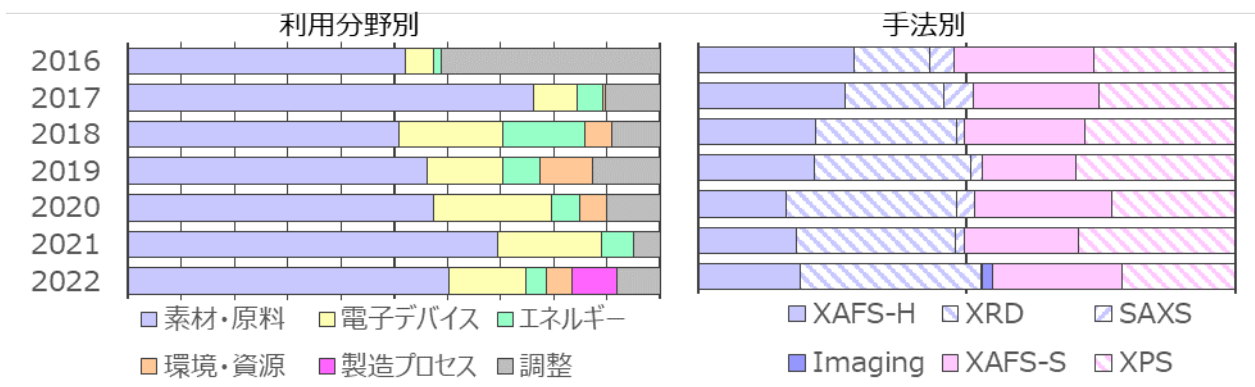


図2 住友電工ビームライン利用状況

測定用の試料ステージ^{2,3)}やイメージングシステム⁴⁾などを用いて、製造プロセスの評価にも着手している。

手法別では、BL16では回折の割合が高くなってきているが、2021年度に導入したイメージングシステム⁴⁾も立上げを完了し、本年度より実戦に投入することができている。BL17はXPSがやや増えているが、概ね変動の範囲内であり、XAFSとXPSがほぼ半々の利用となっている。

3. ビームライン整備状況

住友電工BLは稼働以来、大型の改造等は行っておらず、測定範囲と対象の拡大や測定の効率化を目指した機器導入や改造などを実施してきた。2022年度に実施した3件について、以下に報告する。

3-1. BL17 光学素子の洗浄

BL17は、コミッションングの期間を含めると、稼働以来、7年となり、光学素子の汚染が原因と思われる、C-K端近傍での強度の低下が顕著になってきた。

この状況の中、SPRing-8の各BLの分光結晶や各種光学素子の炭素系の汚染を(公財)高輝度光科学研究センター(以下、JASRI)に整備されたオゾンアッシング装置を使用して洗浄されていることを知り、JASRI 研究員の方に相談し、技術指導を頂いて洗浄を試みた。

本年度については、分光器チャンバーを大気開放する計画があったことから、ここに備えているミラーと回折格子の洗浄を実施した。

図3上は、洗浄前のミラーであり、中央部分の光が当たっている場所が黒い筋状に汚染されていることがわかる。一方で、図3下はオゾンアッシング洗浄後であり、汚染が見た目には除去されていることがわか

る。

図4は洗浄前後のフラックス測定を行った結果であり、回折格子1(400 Lines/mm、Gr-1)では数倍～十倍、回折格子2(800 Lines/mm、Gr-2)では1.5桁程度の強度アップが確認された。

洗浄後のC-K端近傍での強度低下は、分光器以外での炭素系の汚染に依るものと考えられ、今後、光学

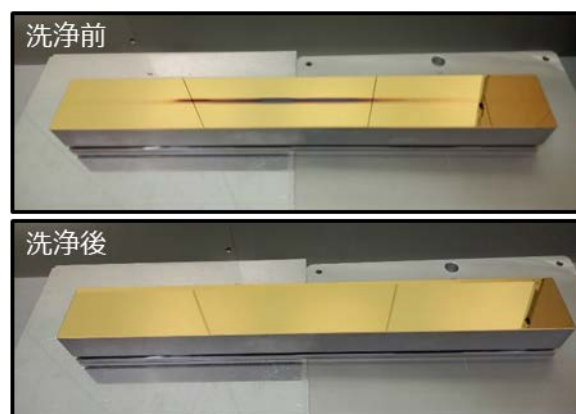


図3 分光器ミラー洗浄前(上)、洗浄後(下)

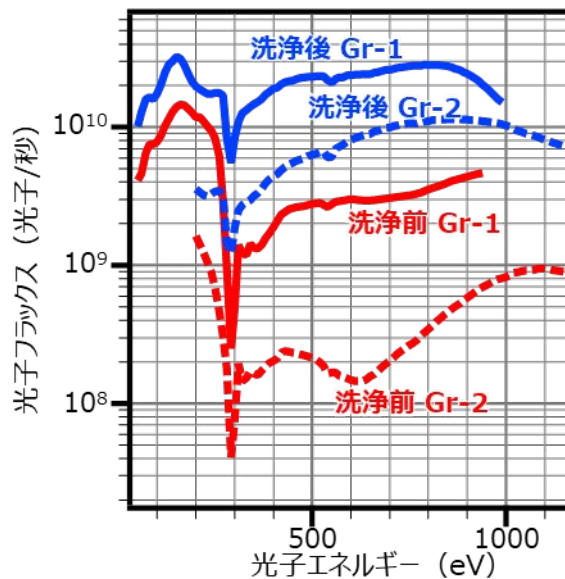


図4 洗浄前後の光子フラックス

素子の洗浄を検討していく。更に汚染防止策についても検討を進めたい。

3-2. BL16 低エネルギー領域の高強度化

リン (P) や硫黄 (S) は電線材料をはじめとする各種金属材料の特性を制御するための微量添加剤として多く用いられている。これらの金属内での存在形態を知ることでより良い製品が得られることが期待できる。このためには、これら P や S の XAFS 解析が有効である。

BL16 では、2 keV～5 keV のいわゆるテングー領域の利用を可能としているが、光源からエンドステーションまでには Be 窓、グラファイトフィルター、X 線取り出し窓による吸収があり、希薄成分の分析やより多くの試料を測定するため、強度向上が必要となってきた。しかし、上流側に手を加えることは難しいため、今回は実験ハッチに X 線を取り出す窓について検討を行った。

窓は 50 μm 厚さのポリイミド (PI) 膜を用いており、利用エネルギーにより集光ミラー、高次光除去ミラーの角度を変えるため、幅 45 mm、縦 105 mm の開口サイズとしていた。図 5 に示すように、この膜の透過率は 2 keV で 6%、3 keV で 42% であり、一桁から半分の強度減少となっている。これを 12.5 μm 厚さにすることができれば、透過率を 2 keV で 50%、3 keV で 80% にすることが可能であり、8 倍～2 倍の強度向上が期待される。

窓の構造については、BL の設計を行った(株)トヤマと相談し、薄膜を用いる際に窓全体を交換する方式とし、幅 15 mm、縦 35 mm と開口を小さくすることで大気の透過を抑えることとした。また、従来は金属ガスカートで真空封止して、SUS 製フランジで固定していたものを、O リング封止、Al 製フランジを使用することで 4.1 kg から 1.8 kg に大幅に軽量化し、交換時の操作性と安全性を向上させている。

薄膜化により、PI 膜の気体透過で真空が劣化する恐れがあったが、開口を小さくしたこともあり、従来通りの到達真空度であることを確認した。また、凡そ 1 年間使用しているが、膜には外観上の劣化は見られず、真空度の劣化も認められていない。

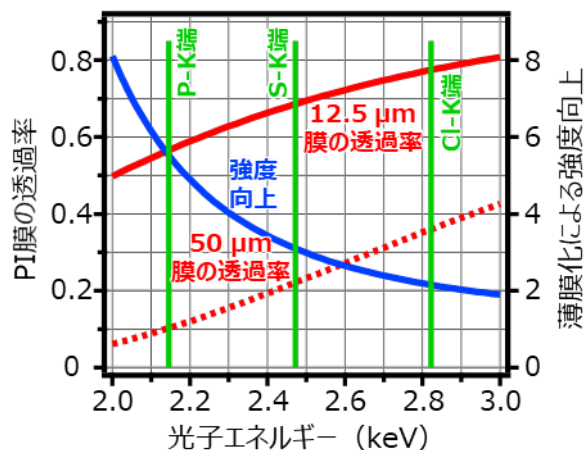


図5 薄膜使用による強度向上 (計算値)

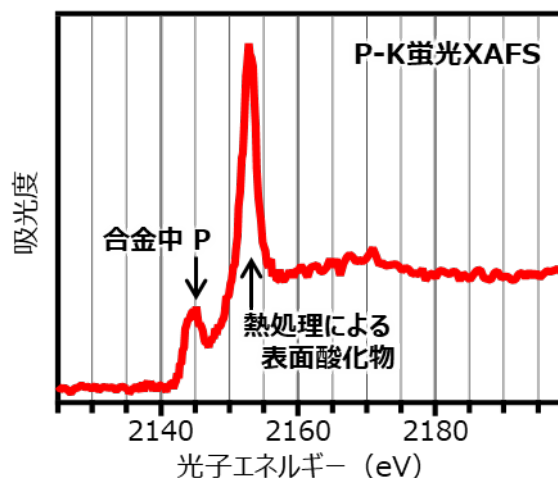


図6 薄膜窓使用時のP-K XAFSスペクトル
試料：約0.1%のPを含む銅合金

窓の交換は、輸送部の最下流セクションを大気開放して窓を交換、真空引きを実施することになるが、これに要する時間は凡そ 3 時間である。このため、朝一番に交換すれば、午後からは交換後の窓を用いた測定が可能となっている。

図 6 は銅合金を He チャンバー内に置き、単素子 SDD を用いた蛍光 XAFS 測定を行った結果である。合金中の P の濃度は約 0.1% であるが、合金中に存在する P と熱処理プロセスで生じた表面酸化物の P が明確に認められている。この測定には約 1 時間を要しているが、従来の 50 μm 厚さの PI 窓では、5 時間を要しており、大幅な効率化を確認することが出来た。

3-3. 集光素子による硬 X 線微小領域分析

BL16 では、自動スリットと固定 (手差) スリットを併用して、回折計及び下流架台で 50 μm ～100 μm

程度のビーム径での回折測定、XAFS 測定を可能としている。しかし、より小さな領域の分析、マッピング測定での空間分解能向上に対するニーズがあり、対応を検討してきた。

より幅の狭いスリットの利用では、フラックスが不足するため、集光素子（ポリキャピラリ）を用いた微小領域分析を検討した。光軸に直交する上下と左右の駆動機構及びこれに対応した傾斜軸を備えたステージ上に集光素子を搭載し、調整する機構を設けることで位置合わせを比較的容易に、再現性良く実施することができるようになった。これを用いることで、半値全幅で $16\ \mu\text{m}$ のビームを得ることに成功している。

図7 は測定時の配置であり、集光素子で絞ったビームを試料に照射し、試料後方（下流側）には、回折測定を行うための二次元検出器と透過光強度を測定するためのフォトダイオードを組み込んだビームストッパーを配置している。なお、二次元検出器を対比させ、ビームストッパーを外すことで下流にあるイオンチャンバーを用いて、より精密化に透過光強度を測定することも可能である。試料の側面には、7 素子 SDD 検出器を配置し、蛍光 X 線による組成分析、蛍光 XAFS 測定が可能となっている。

図8 はモデル試料として Au#400 メッシュの透過・回折・蛍光の同時測定の結果であり、約 $60\ \mu\text{m}$ の Line & Space が明瞭に観察できている。

4. まとめ

2022 年度の住友電気 BL の活動概要を報告した。

当社および当社グループにとって、放射光を利用した原子レベル解析などの最先端分析は必須の分析手法であり、皆様のご協力を頂いて、高度化、高効率化を進めていきたい。

謝辞

光学素子の洗浄（3-1.）に関しましては、（公財）高輝度光科学研究センターの為則雄祐様（現：東京都立大学）、上杉健太郎様、東山将弘様にご指導、ご協力を頂きました。この場をお借りして謝意を表します。

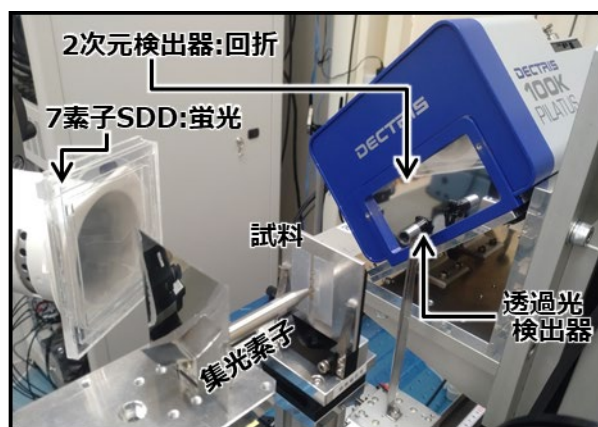


図7 集光素子による微小ビーム形成と透過・回折・蛍光同時測定

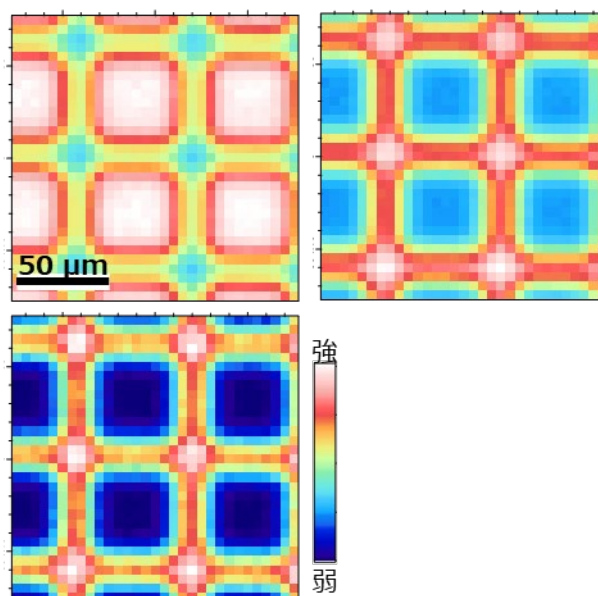


図8 集光素子で形成した微小ビームを用いたマッピング。左上:透過、右上:回折、左下:蛍光

参考文献

- [1] 山口浩司、飯原順次、上村重明、斎藤吉広、SEIテクニカルレビュー, **192**, 143 (2018).
- [2] 山口浩司、九州シンクロトロン光研究センター年報 2018, 33 (2020)
- [3] 山口浩司、九州シンクロトロン光研究センター年報 2019, 33 (2021)
- [4] 上村重明、九州シンクロトロン光研究センター年報 2021, 33 (2022)

住友電気工業(株) 解析技術研究センター
山口 浩司

IV 研究開発

1. はじめに

当研究センターの2022年度の研究開発について、報告する。研究開発は、光源加速器及びビームライン等の高度化並びに新規実験技術開発等を目的とし、当研究センターの試験研究費及び国の科学研究費等に基づいて実施した。以下に、その概略を述べる。

2. 研究開発の概略

2-1 試験研究費による研究

2022年度実施された研究は、表1のとおりである。

表1 2022年度に実施された研究

課題名	代表者(分担者)
ミクロン集光 DXAFS 計測系の開発	米山明男
① 高濃度イオン注入 SiC の格子秩序構造調査	石地耕太郎
② SiC 結晶内の混合転位のエッチピット調査	
軌道角運動量を運ぶテラヘルツ遷移放射の観測	高林雄一

2-2 科学研究費助成事業による研究

当研究センターは、2006年度から科学研究費補助金取扱規程による学術研究機関の指定を受けており、研究員は科学研究費の応募が可能である。

2022年度に交付決定を受けた研究は1件であった。また2022年度より前に交付決定を受けた研究も含めた実施概要は表2のとおりである。

表2 2022年度実施状況一覧

(2022年度より前に交付決定を受けた研究を含む)

期間	種目	課題名	代表者
2021 ～ 2023 年度	基盤研究 (C)	軌道角運動を運ぶ遷移放射の観測	高林雄一
2022 ～ 2024 年度	基盤研究 (B)	軟X線超高速光電子分光法による内殻電子ダイナミクスの実時間観測	金安達夫

2-3. 地域産業課題解決のための共同研究

主に県内の試験研究機関等と連携を図りながら、課題解決に向けて共同研究を行った。

【主な事例】

- ◇‘佐賀果試35号’へのシンクロトロン光照射による‘かいよう病’抵抗性個体の作出
 - ・共同研究先 佐賀県果樹試験場
- ◇次世代精鋭スギ等の強度特性の解明
 - ・共同研究先 佐賀県林業試験場

V 研究会、講習会

1. 研究会

1-1 第 16 回九州シンクロトロン光研究センター研究成果報告会

- ・開催日：2022年8月5日
- ・開催地：サンメッセ鳥栖
- ・主催：当研究センター
- ・参加者：100名
- ・内容：『X線吸収分光(XAFS)法が主導する課題解決への道』と題して、研究成果の報告会を実施した。

本報告会は、当研究センターの概況報告、特別講演(1件)、企画講演(7件)のプログラムで開催した。ポスター発表は13件であった。



1-2 第 36 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム

- ・開催日：2023年1月7日～9日
- ・開催地：立命館大学びわこ・くさつキャンパス
- ・主催：第36回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム組織委員会
- ・内容：施設報告やオーラルセッション、ポスターセッションにおいて当研究センターの研究員が発表を行った。

1-3 応用物理学会九州支部学術講演会

- ・開催日：2022年11月26日～27日
- ・開催地：大分大学 旦野原キャンパス
- ・主催：応用物理学会 九州支部
- ・内容：企業紹介ブースやHP等における施設の紹介や参加者との技術交流を行った。

2. 講習会

2-1 SAGA-LS サマースクール 2022

- ・開催日：2022年8月24日～26日
- ・開催地：当研究センター
- ・主催：当研究センター
- ・参加者数：5名
- ・内容：当研究センターにおいて、企業の研究者及び大学院生等を対象にサマースクールを開催した。

カリキュラムは、シンクロトロン放射光の基礎を学ぶ座学とシンクロトロン放射光を使った実験を体験する実習(XAFS、X線CT、Topography等)の2部構成で実施した。



2-2 施設(実験ホール)見学会

- ・開催日・参加者数：
第1回：2022年6月13日・32名
第2回：2023年2月27日・24名
- ・開催地：当研究センター
- ・主催：当研究センター
- ・内容：九州唯一の放射光施設の現物(実験ホール)を体感して、当研究センターの研究活動に対する理解を深めてもらうため、施設見学会を実施した。



VI 広報、人材育成

1. 広報

年に1度の施設の一般公開の開催や一般見学の随時受入れ、Web Magazine を2回発行するなど、当研究センターの広報に努めた。

1-1 一般公開

当研究センターを地域住民や県民に広く知ってもらうため、施設の一般公開を行い、実験ホールの見学ツアーや工作体験、地元の中学生の研究発表等を行った。

- ・開催日：2022年9月23日
- ・参加者：196名

1-2 施設見学及び学校研修の受入れ

年間を通じて、専門の研究者から一般市民まで広範な分野から見学者を受け入れ、当研究センターの紹介を行っている。また、中学校や高等学校及び大学等からの要請により学校研修の受入れも行っており、科学への理解を深めてもらうことにも努めている。

- ・見学者数：885名

1-3 Web Magazine

地域や研究センターの最新トピックスを、ホームページに掲載し、関係機関やユーザーへの広報に努めた。

- ・発行数：2回（2022年4月、2022年12月）

1-4 施設紹介

当研究センターの装置や設備の概要については、学会や展示会等でポスターによる広報も行っている。

2022年度に参加し、口頭発表及びポスターの展示等を行ったものは次のとおりである。

●X-ray Optics and Applications

- ・開催日：2022年4月18日～22日
- ・開催地：パシフィコ横浜、オンライン

●13th International Particle Accelerator Conference

- ・開催日：2022年6月12日～17日
- ・開催地：バンコク（タイ）

●18th International Conference on X-Ray Absorption Fine Structure (XAFS) 2022

- ・開催日：2022年7月10日～15日
- ・開催地：シドニー（オーストラリア）、オンライン

●日本医用画像工学会（JAMIT2022）（第41回大会）

- ・開催日：2022年7月29日～31日
- ・開催地：豊田講堂 名古屋大学 東山キャンパス

●第25回 XAFS 討論会

- ・開催日：2022年8月2日～4日
- ・開催地：サンメッセ鳥栖、オンライン

●第16回九州シンクロトロン光研究センター研究成果報告会

- ・開催日：2022年8月5日
- ・開催地：サンメッセ鳥栖、オンライン

●2022年X線トポグラフィ研究会

- ・開催日：2022年8月5日
- ・開催地：オンライン

●SPIE Optics+Photonics2022

- ・開催日：2022年8月21日～25日
- ・開催地：サンディエゴ（アメリカ）

●The 15th Asia-Pacific Physics Conference (APPC15)

- ・開催日：2022年8月21日～26日
- ・開催地：オンライン

- 19th International Conference on Defects=Recognition, Imaging and Physics in Semiconductors
 - ・開催日：2022年8月29日
 - ・開催地：オンライン
- 2022年日本液晶学会討論会
 - ・開催日：2022年9月14日～16日
 - ・開催地：オンライン
- 第83回応用物理学会秋季大会
 - ・開催日：2022年9月20日～23日
 - ・開催地：東北大学川内北キャンパス、オンライン
- 雪氷研究大会
 - ・開催日：2022年10月1日～5日
 - ・開催地：札幌コンベンションセンター、オンライン
- 第19回日本加速器学会年会
 - ・開催日：2022年10月18日～21日
 - ・開催地：オンライン
- 第51回結晶成長国内会議
 - ・開催日：2022年10月31日
 - ・開催地：RCC文化センター
- 応用物理学会先進パワー半導体分科会
 - ・開催地：2022年12月20日～21日
 - ・開催地：福岡国際会議場
- 第36回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
 - ・開催日：2023年1月7日～9日
 - ・開催地：立命館大学びわこ・くさつキャンパス
- 第21回国際ナノテクノロジー総合展・技術会議
 - ・開催日：2023年2月1日～3日
 - ・開催地：東京ビッグサイト

- European Congress of Radiology2023
 - ・開催日：2023年3月1日～5日
 - ・開催地：ウィーン（オーストリア）、オンライン
- 第70回応用物理学会春季大会
 - ・開催日：2023年3月15日～18日
 - ・開催地：上智大学四谷キャンパス、オンライン
- 2022年度第40回PFシンポジウム
 - ・開催日：2022年3月14日～15日
 - ・開催地：オンライン

2. 人材育成

例年インターンシップによる地域からの学生を受け入れていたが、新型コロナウイルス流行の影響もあり、2022年度の受け入れはなかった。

また教育活動の一環として当研究センター研究員が講師となり、九州大学大学院にて特別講義「シンクロトロン光概論」を行った。

Ⅶ 委員会

1. 委員会の開催

○諮問委員会

開催なし。

令和4年度は、佐賀県において「九州シンクロトロン光研究センターサービス向上委員会」が設置され、令和4年度から令和5年度にかけて、当センターの取組の評価・点検が行われているため、諮問委員会の開催を見合わせた。

○他機関ビームライン評価委員会

開催なし。

VIII 安全管理

1. はじめに

施設、利用者及び職員に対する安全管理については、安全管理室が担っており、以下にその詳細を述べる。

2. 放射線の安全管理

放射線障害予防規程に規定する放射線管理区域の放射線管理業務を行った。

2-1 許認可申請及び届出

2023年10月1日に施行される法改正（放射線の量等の測定の信頼性確保のための放射性同位元素等の規制に関する法律施行規則の一部を改正する規則）に向け、予防規程の改正案の審議を行った。2023年度に予防規程の変更を予定する。

2-2 放射線モニタリング等

蓄積リング及び各ビームライン等、各評価点において、年2回の定期線量測定を行った。また、モニタリングポスト等による定常監視を実施した。

いずれも、法令の基準内であった。

2-3 教育訓練実施状況

放射線業務従事者の登録に必要な教育訓練を次のとおり実施した。

(1) 実施日：2022年5月23日

講師：岩崎能尊、瀬戸山寛之（当研究センター・放射線取扱主任者）

受講者：12名

(2) 実施日：2022年8月2日

講師：岩崎能尊、立石雄一（当研究センター・放射線取扱主任者、業務委託者・放射線取扱主任者）

受講者：18名

(3) 実施日：2023年1月20日

講師：岩崎能尊、瀬戸山寛之（当研究センター・放射線取扱主任者）

受講者：17名

2-4 放射線業務従事者管理及び入退管理

当研究センターで放射線業務従事者として登録し、個人被ばく線量計により個人被ばく管理を行った。表1に放射線業務従事者登録者数を示す。

表1 2022年度放射線業務従事者登録数

	放射線業務従事者登録数 (名)
当研究センター職員	22
外来者	427
計	449

個人被ばく線量計の最小検出限界は、X線、ガンマ線に対して0.1 mSv/月である。全ての業務従事者について被ばく線量は検出限界未満であった。

3. 化学薬品等の安全管理

化学薬品管理規程及び生物試料安全管理規程に基づき、高圧ガス等を含む化学薬品等を当研究センター内に持ち込む際の安全審査を行った。

また、ビームライン利用者の持込試料等についての安全審査も行った。

4. 環境保全への取組み

実験廃液等の産業廃棄物については、業者に収集運搬及び処分を委託し、処理を行った。

5. 緊急時対応

緊急時連絡先等を利用の手引き及び安全の手引き（ウェブサイト）等に掲載しているほか、第1出入口及び実験ホール内に掲示している。

IX 施設管理

2022年度の施設管理の状況について、報告する。

1. 光熱水管理

1-1 電気

当研究センターの電力は、九州電力株式会社及び九州電力送配電株式会社から供給されており、受電電圧は6,600Vである。

表1に電気使用量を、図1に月別の比較を示す。

表1 電気使用量 (単位 : kWh)

	2021年度	2022年度
電力使用量	4,910,194	4,867,519



図1 月別電気使用量(単位 : kWh)

1-2 水

当研究センターの水道水は、鳥栖市から供給されている上水道水で、飲料水、マシンの冷却設備、空調設備等に使用している。

表2に水道水の使用量を、図2に月別の比較を示す。

表2 水道水使用量 (単位 : m³)

	2021年度	2022年度
水道水使用量	6,510	6,553

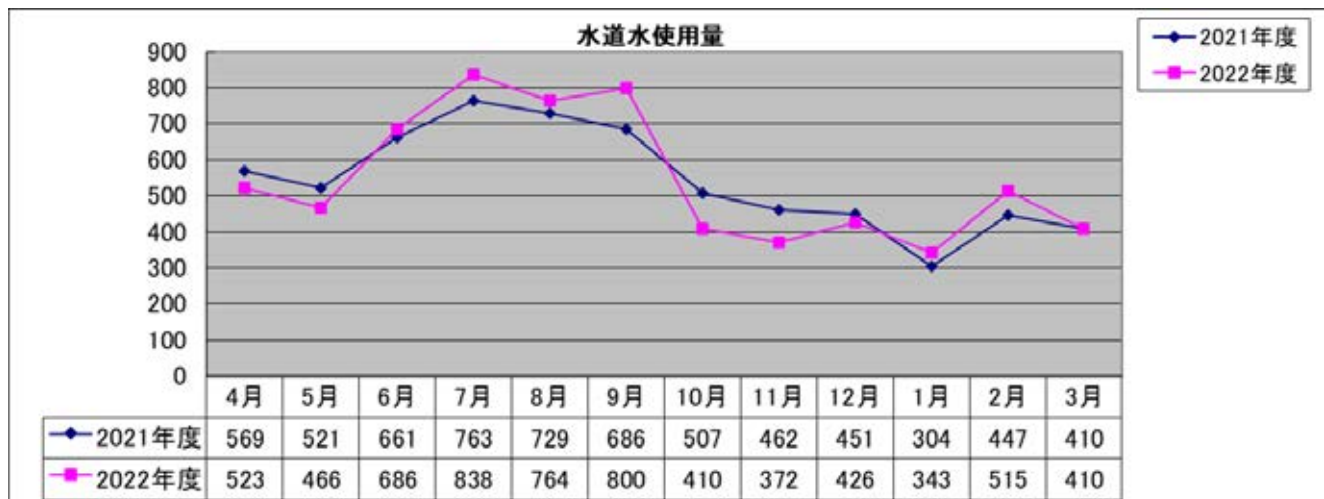


図2 月別水道水使用量(単位 : m³)

1-3 ガス

当研究センターの都市ガスは、鳥栖ガス株式会社から供給されており、実験ホール空調設備の熱源として使用している。

表3に都市ガスの使用量を、図3に月別の比較を示す。

表3 都市ガス使用量 (単位 : m³)

	2021年度	2022年度
ガス使用量	90,359	86,721

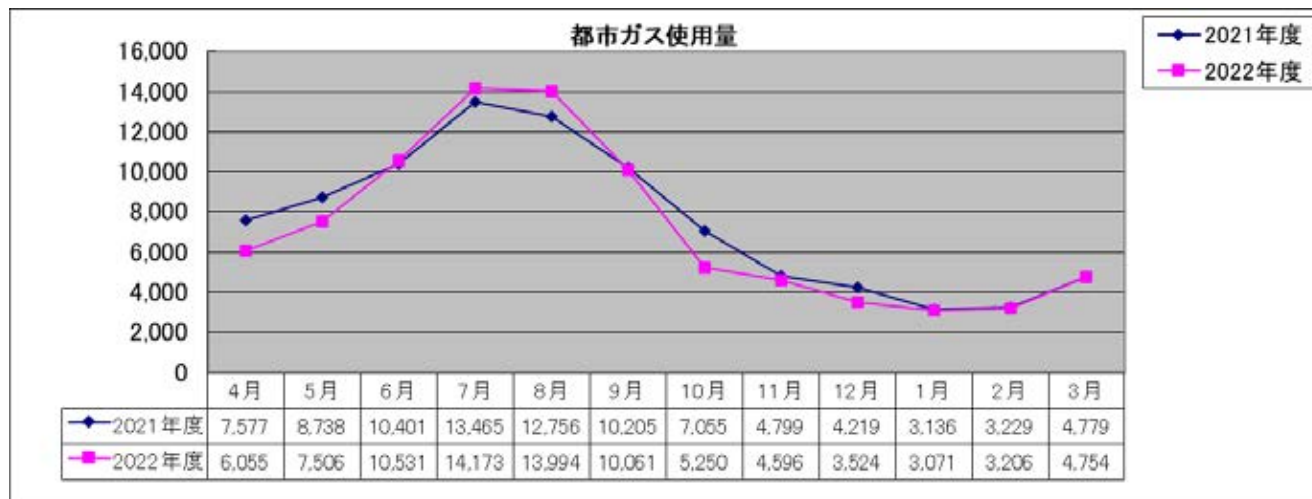


図3 月別都市ガス使用量(単位 : m³)

X 出版物等

1. 利用報告書

利用報告書は成果公開を前提とする利用区分の利用者が実験終了後 60 日以内に当研究センターへ行う報告である。以下にそのタイトル、所属及び氏名を示す。利用報告書は当研究センターのウェブサイト (<https://www.saga-ls.jp/main/80.html>) に掲載している。

成果非公開の一般利用は 65 件、包括利用は 5 件であった。

公共等利用

	実験責任者	所属機関	課題名
1	田端 正明	佐賀大学	肥前域におけるVOC（東インド会社）古陶磁器の産地推定
2	永石 尚昭	佐賀県工業技術センター	旋削加工により誘起された表面変質層を有するオーステナイト系ステンレス鋼の表面近傍における残留応力測定
3	久間 俊平	佐賀県工業技術センター	塗装木材のX線イメージング観察
4	田端 正明	佐賀大学	シンクロトロン蛍光X線分析法による17世紀後半から18世紀前半の有田焼磁器の胎土組成

地域戦略利用

	実験責任者	所属機関	課題名
1	坂本 健一郎	佐賀県農業試験研究センター	シンクロトロン光を活用した花き類の県オリジナル品種の育成
2	坂本 健一郎	佐賀県農業試験研究センター	シンクロトロン光を活用した花き類の県オリジナル品種の育成

探索先導利用（Fタイプ）

	実験責任者	所属機関	課題名
1	八方 直久	広島市立大学大学院 情報科学研究科	グラファイト層間化合物 K0.6Ca0.4C8 の広域X線吸収微細構造
2	大谷 亮	九州大学理学研究院 化学部門	異方的熱膨張挙動を示す二次元配位高分子の粉末X線回折測定
3	北浦 守	山形大学 理学部	高温融液から合成した長残光蛍光体における希土類イオンの価数・局所構造のXAFS解析
4	大谷 亮	九州大学理学研究院 化学部門	平面四配位型二次元配位高分子のXAFS測定を用いた構造解析
5	猪石 篤	九州大学 先導物質化学研究所	フッ化物イオン移動型電池の充放電中における電極変化の軟X線吸収によるその場観察
6	竹谷 敏	産業技術総合研究所	X線CTを用いたガスハイドレートの分解状態の可視化
7	猪石 篤	九州大学 先導物質化学研究所	水素化物系負極を用いた全固体電池のエクス線吸収測定による電極反応解析
8	檜垣 勇次	大分大学 理工学部	ポリオキサゾリン/ポリカルボキシベンタインメタクリレートブロック共重合体の共貧溶媒効果によるメソ構造形成
9	芳野 遼	東北大学 金属材料研究所	発光・磁気特性を組み込んだ配位高分子および共有結合性有機構造体の粉末X線構造解析
10	永井 杏奈	熊本大学大学院 先端科学研究部	遷移金属イオンを導入したL型ゼオライトの局所構造解析
11	安田 みどり	西九州大学 健康栄養学部 健康栄養学科	マイクロX線イメージングによる茹で麺（そうめん）の内部構造の観察
12	奥田 知明	慶應義塾大学 理工学部 応用化学科	人為的に化学状態を変化させた大気粒子中MnおよびZn元素のXANESによる化学状態解析
13	馬場 理香	株式会社日立製作所 研究開発グループ	生体模擬サンプルを用いた高速X線CT撮影の基礎的な検討(10)
14	賈 軍軍	早稲田大学 理工学術院	アモルファスW03薄膜の結晶化に関するその場XRD調査(I)
15	大谷 亮	九州大学理学研究院化学部門	極性構造を有する有機-無機ハイブリッド金属錯体の粉末X線回折測定
16	東野 昭太	大阪公立大学	電気めっき薄膜のXAFS測定による原子局所構造解析
17	竹谷 敏	産業技術総合研究所	室温から氷点下温度における軽元素材料の三次元構造観察
18	安田 みどり	西九州大学 健康栄養学部 健康栄養学科	放射光マイクロCTによる神埼そうめんの内部構造の観察
19	Le Ouay Benjamin	九州大学理学研究院化学部門	シアノ架橋を有する配位高分子の粉末X線回折測定による構造決定
20	奥田 知明	慶應義塾大学理工学部応用化学科	粒径の異なるエアロゾル粒子中Mn, Fe, CuおよびZn元素のXANESによる化学状態解析

探索先導利用 (Fタイプ)

	実験責任者	所属機関	課題名
21	大谷 亮	九州大学大学院 理学研究院	平面四配位型二次元配位高分子のXAFS測定を用いた構造解析
22	永井 杏奈	熊本大学大学院先端科学研究部(工学系)	L型ゼオライトに導入した遷移金属イオンの価数評価
23	二宮 翔	東北大学 国際放射光イノベーション・スマート研究センター	X線吸収分光法によるCu-Al-Mn超弾性合金の局所構造解析
24	檜垣 勇次	大分大学理工学部	新規多元オレフィン系共重合自己修復性エラストマーの小角X線散乱測定による階層構造解析
25	馬場 理香	(株) 日立製作所研究開発グループ	生体模擬サンプルを用いた高速X線CT撮影の基礎的な検討(11)
26	猪石 篤	九州大学先導物質化学研究所	新規Naイオン導電体のX線吸収分光による解析
27	本倉 健	横浜国立大学大学院工学研究院	固定化金属ナノ粒子と有機分子の協奏的触媒作用のXAFSによる解明
28	徳留 靖明	大阪公立大学	X線マイクロCT法によるNiAl系LDHナノ材料系造影剤の評価
29	正井 博和	産業技術総合研究所 ナノ材料研究部門 高機能ガラスグループ	ガラス、および、結晶化ガラスにおけるCaカチオンの構造解析
30	岡 伸人	近畿大学 産業理工学部	アモルファスW03薄膜・Ga203薄膜の結晶化に関するその場XRD調査(II)
31	猪石 篤	九州大学先導物質化学研究所	フッ化物電池の電気化学反応の軟X線吸収による評価
32	村山 美乃	九州大学大学院理学研究院化学部門	含硫黄多孔性樹脂に担持したパラジウム触媒のPd K吸収端XAFSによる局所構造解析

探索先導利用 (Rタイプ)

	実験責任者	所属機関	課題名
1	徳留 嘉寛	佐賀大学リージョナル・イノベーションセンター	実使用に則して洗浄剤を適用したヒト角層構造の評価
2	鹿田 真一	関西学院大学 理工学部	X線トポグラフィによるダイヤモンドの欠陥観察
3	正井 博和	産業技術総合研究所 ナノ材料研究部門 高機能ガラスグループ	組成および塗布条件に依存した抗菌性コーティング膜の構造評価
4	原田 昌彦	東北大学大学院 農学研究科	線虫体内に取り込ませたニッケルのX線イメージングと、遺伝子変異による形態異常の位相コントラストX線CTイメージング
5	徳留 嘉寛	佐賀大学リージョナル・イノベーションセンター	目周辺皮膚とその他顔皮膚の構造解析を目的とする研究
6	徳留 嘉寛	佐賀大学リージョナル・イノベーションセンター	エミューオイル適用時における皮膚角層構造変化の解析
7	鹿田 真一	関西学院大学 理工学部	X線トポグラフィによるダイヤモンドの欠陥観察
8	正井 博和	産業技術総合研究所	ガラス上にコートした親水性膜の構造評価
9	久保 裕也	福岡工業大学 工学部	XAFSを用いたタンタルおよびニオブの新製錬プロセスに関与する非フッ酸系化合物の解明
10	久保 裕也	福岡工業大学 工学部	XAFSを用いたタンタルおよびニオブの新製錬プロセスに関与する非フッ酸系化合物の解明
11	木村 圭	佐賀大学農学部生命機能科学コース	シンクロトロン光照射を利用した微生物の有用株取得(実験4)
12	徳留 嘉寛	佐賀大学リージョナル・イノベーションセンター	実使用に即して洗浄剤を適用したヒト角層構造の評価
13	喜多條 鮎子	山口大学大学院創成科学研究科	XANESを利用したLi1.2Cr0.4Mn0.4O2正極の電荷補償機構の解明
14	前田 良輔	長崎県農林技術開発センター 果樹・茶研究部門	シンクロトロン光照射によるカンキツの突然変異個体作出手法の開発
15	安部 良樹	大分県農林水産研究指導センター農業研究部花きグループ	シンクロトロン光を用いた花きの突然変異育種手法の開発
16	喜多條 鮎子	山口大学大学院創成科学研究科	NEXAFSを利用したLi1.2Cr0.4Mn0.4O2正極の電荷補償機構の解明
17	久保 裕也	福岡工業大学 工学部	XAFSを用いたタンタルおよびニオブの新製錬プロセスに関与する非フッ酸系化合物の解明
18	助永 壮平	東北大学多元物質科学研究所	ボロシリケートガラス中のチタニウムイオンの存在形態評価

先端創生利用 (長期タイプ)

	実験責任者	所属機関	課題名
1	パントン パチャ	福岡大学 機能・構造マテリアル研究所	ポリオレフィンのメソスケールの内部構造が及ぼす力学的特性に関する基礎研究

先端創生利用（短期タイプ）

	実験責任者	所属機関	課題名
1	嘉数 誠	佐賀大学大学院 理工学研究科	X線トポグラフィーによるHVPE酸化ガリウムエピタキシャル層の転位の特性解明
2	嘉数 誠	佐賀大学大学院 理工学研究科	X線トポグラフィーによるHVPE酸化ガリウムエピタキシャル層の転位のバーガーズベクトルの同定
3	檜木野 宏	九州大学大学院 総合理工学研究院	導電性超ナノ微結晶ダイヤモンド電極の化学結合構造が電気化学特性に及ぼす影響のPESおよびNEXAFSによる調査
4	檜木野 宏	九州大学大学院 総合理工学研究院	同軸型アークプラズマ成膜法における負バイアスおよび窒素ドーピングが超硬基板上に成膜した超ナノ微結晶ダイヤモンド/アモルファスカーボン混相膜の化学結合状態に与える効果
5	嘉数 誠	佐賀大学大学院 理工学研究科	X線トポグラフィーによる低欠陥密度のHVPE酸化ガリウムエピタキシャル層の観察
6	上原 雅人	産業技術総合研究所センシングシステム研究センター	RFスパッタ法で作製した窒化物圧電薄膜のエックス線吸収微細構造解析
7	嘉数 誠	佐賀大学大学院 理工学研究科	X線トポグラフィーによる 新規の(011)面方位HVPE酸化ガリウムエピタキシャル層の観察－従来の(001)面、(010)面方位との比較
8	児島 一聡	産業技術総合研究所 先進パワーエレクトロニクス研究センター	X線CTによる4H-SiC SJ構造内部のポイド観察
9	大曲 新矢	産業技術総合研究所 センシングシステム研究センター	量子センサ応用に向けたダイヤモンド高密度NVアンサンブルの形成と表面微細構造解析 (I)
10	嘉数 誠	佐賀大学大学院 理工学研究科	X線トポグラフィーによる ハーフインチ径HVPE酸化ガリウムトレンチ型ショットキーバリアダイオードエピタキシャル層の観察
11	嘉数 誠	佐賀大学大学院理工学研究	X線トポグラフィーによる EFG成長酸化ガリウム基板中の欠陥とその上に成長したHVPEエピタキシャル層の欠陥の直接比較
12	嘉数 誠	佐賀大学大学院理工学研究科	シンクロトロンX線トポグラフィーによる HVPE β 型酸化ガリウムエピタキシャル層の欠陥の基板およびCMP研磨による影響の研究
13	嘉数 誠	佐賀大学大学院理工学研究科	シンクロトロンX線トポグラフィーによる溶液成長法成長した β 型酸化ガリウムバルク結晶の欠陥の観察
14	吉本 則之	岩手大学理工学部	X線CTによる油脂の結晶組織の観察
15	上原 雅人	産業技術総合研究所センシングシステム研究センター	RFスパッタ法で作製した窒化物圧電薄膜のエックス線吸収微細構造解析
16	嘉数 誠	佐賀大学大学院理工学研究科	シンクロトロンX線トポグラフィーによる HVPE β 型酸化ガリウムエピタキシャル層のトレンチ型ショットキーバリアダイオードの転位と結晶欠陥の観察
17	檜木野 宏	九州大学大学院総合理工学研究院	同軸型アークプラズマ成膜法で作製したナノダイヤモンド薄膜の化学結合状態が上皮細胞の付着に与える影響と歯科インプラントへの応用
18	嘉数 誠	佐賀大学大学院理工学研究科	シンクロトロンX線トポグラフィーによる HVPE β 型酸化ガリウムエピタキシャル層のリップ形状のキラ結晶欠陥の観察

トライアル利用

	実験責任者	所属機関	課題名
1	吉川 浩史	関西学院大学	X線吸収分光法を用いた有機電池における硫黄-硫黄結合状態の解明
2	山口 峻英	茨城大学 理学部	小角X線散乱法による絹糸の染色メカニズムの解明
3	久保 裕也	福岡工業大学 工学部	XAFSを用いたタンタルおよびニオブの新製錬プロセスに関与する非フッ酸系化合物の解明
4	Manna Biplab	熊本大学 産業ナノマテリアル研究所	XAFS measurement to elucidate local structural determination of 2D nano MOFs that helps to understand its functions.
5	吉井 文晴	東北大学多元物質科学研究所	二次電池用炭素材料中のホウ素および酸素の軟X線XAFS解析

2. 発表論文

2-1 利用者

1. Kazutoshi Kojima, Shin-ichiro Sato, Takeshi Ohshima, Shin-Ichiro Kuroki, "Growth of vanadium doped semi-insulating 4H-SiC epilayer with ultrahigh resistivity", J. Applied Physics, 131, 245107 (2022).
2. Mamoru Kitaura, Shinta Watanabe, Hirokazu Masai, Toshiaki Ina, Hiroyuki Setoyama, Manabu Ishizaki, Takayuki Nakanishi, Yuta Matsushima, Takashi Kunimoto, Akimasa Ohnishi, "Valence and Local Structure Analyses of Eu and Dy Ions in Sr₂MgSi₂O₇:Eu, Dy Long Persistent Phosphorescence Phosphors Synthesized by Solid State Reaction", Chemistry Letters, 52, 190-193 (2023).
3. Mamoru Kitaura, Yoshitaka Taira, Shinta Watanabe, "Characterization of imperfections in scintillator crystals using gamma-ray induced positron annihilation lifetime spectroscopy", Optical Materials X, 14, 7 (2022).
4. Ayuko Kitajou, Satoshi Hiroi, Koji Ohara, Kazutaka Ikeda, Takuma Nanami, Shunsuke Muto, "Cathode Properties of xLiF-LiCrO₂ Composites (x = 0-1.5) Prepared by Dry Ball-Milling Method for Lithium Ion Batteries", J. Phy. Chem. C, 127, 2866-2874 (2023).
5. Kakeru Ninomiya, Koki Itamoto, Hiroyuki Setoyama, Daisuke Egusa, Eiji Abe, Michiaki Yamasaki, Maiko Nishibori, "Chemical interactions of solute atoms during L12 cluster formation in Mg-Zn-Gd alloys with long-period stacking ordered structure", Journal of Alloys and Compounds, 928, 167101, (2022).

6. Wang Haobing, Yang Yang, Masayoshi Nishiura, You-lee Hong, Yusuke Nishiyama, Yuji Higaki, Zhaomin Hou, "Making Polyisoprene Self-Healable through Microstructure Regulation by Rare-Earth Catalysts", Angewandte Chemie International Edition (2022).
7. 久間俊平、田栗有樹、帆秋圭司、平井智紀、矢野昌之、福元豊 “木材用水性塗料の耐候性向上に関する研究－機能性添加剤を用いた耐候性向上（第1報）－”, Japan Energy & Technology Intelligence, 70(5), 61-66, (2022).
8. 久間俊平、田栗有樹、帆秋圭司、平井智紀、矢野昌之 “生物由来ナノファイバーを含有する水性塗料の耐候性向上”, 塗料開発の新展開, 1, 167-175 (2022) .

2-2 加速器グループ

1. Y. Iwasaki, "Beam Loss Reduction During Energy Ramp-Up at the SAGA-LS", in Proc. Particle Accelerator Conf. (IPAC'22), Bangkok. Thailand, June 2022, pp. 2583-2585 (2022).
2. T. Kaneyasu, Y. Hikosaka, M. Fujimoto, H. Iwayama, and M. Katoh, "Coherent control of atoms in the extreme ultraviolet and attosecond regime by synchrotron radiation", Journal of Physics: Conference Series 2380, 012115 (2022).
3. T. Kaneyasu, T. Odagiri, H. Tanaka, J. Adachi, Y. Hikosaka, "Single and double Auger decays from highly-excited vibrational substates in core-ionized N₂ molecules", J. Electron Spectroscopy and Related Phenomena 259, 147244 (2022).

4. T. Kaneyasu, M. Hosaka, A. Mano, Y. Takashima, M. Fujimoto, E. Salehi, H. Iwayama, Y. Hikosaka and M. Katoh, “Double-pulsed wave packets in spontaneous radiation from a tandem undulator”, *Sci. Rep.* 12, 9682 (2022).
 5. T. Fuji, T. Kaneyasu, M. Fujimoto, Y. Okano, E. Salehi, M. Hosaka, Y. Takashima, A. Mano, Y. Hikosaka, S.-I. Wada, and M. Katoh, “Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of synchrotron radiation”, *Optica* 10, 302-307 (2023).
 6. 金安達夫, 彦坂泰正, 藤本将輝, 岩山洋士, 加藤政博 “原子の内殻励起における電子波束の干渉”, *光学* 51, 273 (2022).
 7. 保坂将人, 金安達夫, 藤貴夫, 加藤政博 “タンデムアンジュレータからの放射光波束の時間構造観測”, *日本放射光学会誌* 36, 53 (2023).
 8. A.V. Berdnichenko, Yu.A. Goponov, R.A. Shatokhin, Y. Takabayashi, I.E. Vnukov, “A proof-of-principle experiment on a new diagnostic tool for determining beam sizes from angular distributions of parametric X-ray radiation”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 1032, 166619 (2022).
 9. A.V. Berdnichenko, I.E. Vnukov, Y.A. Goponov, R.A. Shatokhin, Y. Takabayashi, “Effect of Reflection Asymmetry on the Output of the Parametric X-Ray Radiation of Electrons in Crystals”, *Journal of Surface Investigation: X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques*, 16, 273 (2022).
 10. M. Ćosić, S. Petrović, Y. Takabayashi, “Classical patterns in the quantum rainbow channeling of high energy electrons”, *Physical Review A*, 103, 022818 (2021).
- 2-3 ビームライングループ**
1. Takashi Ohata, Kazuaki Tachimoto, Kanokwan Jumtee Takeno, Akihiro Nomoto, Takeshi Watanabe, Ichiro Hirose, Rie Makiura, “Influence of the Solvent on the Assembly of Ni₃(hexaiminotriphenylene)₂ MetalOrganic Framework Nanosheets at the Air/Liquid Interface”, *Bulletin of the Chemical Society of Japan* 96(3) 274-282 (2023).
 2. Satoshi Takeya, Sanehiro Muromachi, Akio Yoneyama, Keiichi Hirano, Kazuyuki Hyodo, and John A. Ripmeester, “Superheating of Structure I Gas Hydrates within the Structure II Cyclopentane Hydrate Shell”, *The Journal of Physical Chemistry Letters*(2022).
 3. Kumiko Konishi, Ryusei Fujita, Keisuke Kobayashi, Akio Yoneyama, Kotaro Ishiji, Hiroyuki Okino, Akio Shima, Toru Ujihara, “Nucleation sites of expanded stacking faults detected by in operando x-ray topography analysis to design epitaxial layers for bipolar-degradation-free SiC MOSFETs”, AIP Publishing(2022).
 4. Natsuko Utsunomiya, Motoki Katsube, Yutaka Yamaguchi, Akio Yoneyama, Naoki Morimoto, Shigehito Yamada, “The first 3D analysis of the sphenoid morphogenesis during the human embryonic period”, *Scientific Reports*(2022).
 5. Hiromi Miki, Akio Yoneyama, Keiichi Hirano, “Observation of processed rice using synchrotron radiation X-ray phase-contrast imaging”, *Journal of Texture Studies*(2022).

6. Daiko Takamatsu, Akio Yoneyama, Shin Yabuuchi, Jun Hayakawa, Tatsumi Hirano, “Quantitative visualization of ion and thermal distributions in electrolytes during operation of electrochemical devices by Operando phase-contrast X-ray imaging”, *Journal of Materials Research*(2022).
7. Satoshi Takeya, Sanehiro Muromachi, Akio Yoneyama, “X-ray Imaging of Clathrate Hydrates as Gas Storage Materials: Absorption Contrast of Low-Density and Low-Absorption Materials Using Energy-Dependent X-ray Computed Tomography”, *Energy & Fuels*(2022).
8. Aoi Nohara , Natsumi Owaki , Jun Matsubayashi, Motoki Katsube, Hirohiko Imai, Akio Yoneyama, Shigehito Yamada, Toru Kanahashi, Tetsuya Takakuwa, “Morphometric analysis of secondary palate development in human embryos”, *Journal of Anatomy*(2022).
9. Yutaka Yamaguchi, Ami Murase, Ryota Kodama, Akira Yamamoto, Hirohiko Imai, Akio Yoneyama, Shigehito Yamada, “Three-dimensional visualization and quantitative analysis of embryonic and fetal thigh muscles using magnetic resonance and phase-contrast X-ray imaging”, *Journal of Anatomy*(2022).
10. Toru Kanahashi, Hirohiko Imai, Hiroki Otani, Shigehito Yamada, Akio Yoneyama, Tetsuya Takakuwa, “Three-dimensional morphogenesis of the human diaphragm during the late embryonic and early fetal period: Analysis using T1-weighted and diffusion tensor imaging”, *Journal of Anatomy*(2022).
11. A. Yoneyama, R. Baba, M. Kawamoto, T. T. LWIN, “Method of ring artifact reduction in X-ray CT using 2-directional Fourier transform filter”, *ECR2022*(2022).
12. Akio Yoneyama, Akiko Iizuka, Tatsuo Fujii, Kazuyuki Hyodo & Jun Hayakawa, “Three-dimensional x-ray thermography using crystal-based x-ray interferometer Conference Paper”, *Developments in X-Ray Tomography XIV*(2022).
13. A. Yoneyama, R. Baba, T. Lwin, M. Kawamoto, “Four-type phase-contrast X-ray imaging at SAGA Light Source”, *Journal of Physics Conference Series*(2022).
14. Hiromi Miki, Akio Yoneyama, Keiichi Hirano, “Visualizing morphological structures of rice grains in precooked products using synchrotron radiation X-ray phase-contrast computed tomography”, *Food & Function*(2022).
15. Tsukasa Terada, Takafumi Ishibe, Eiichi Kobayashi, Kazunori Sato, Yoshiaki Nakamura, " The effect of interdiffusion during formation of epitaxial Ca intercalated layered silicene film on its thermoelectric power factor", *Japanese Journal of Applied Physics*, Volume 62, Issue SD, id.SD1004, 5 pp, 2022.
16. Atsushi Inoishi, Naoko Setoguchi, Hironobu Hori, Eiichi Kobayashi, Ryo Sakamoto, Hikari Sakaebe, Shigeto Okada, "FeF₃ as Reversible Cathode for All-Solid-State Fluoride Batteries", *Advanced Energy and Sustainability Research*, 3(2022).
17. Hiroshi Kakiuchida, Akihiko Matsuyama, Eiichi Kobayashi, and Akifumi Ogiwara, “Thermoresponsive mobility of liquid crystals and reactive mesogens during photopolymerization-induced phase separation” ,*Physical Review E* 106, 044704(2022).

18. Yumi Matsuo, Yuko Matsukawa, Masahiro Kitakado, George Hasegawa, Suguru Yoshida, Ryoto Kubonaka, Yuya Yoshida, Tatsushi Kawasaki, Eiichi Kobayashi, Chikako Moriyoshi, Saneyuki Ohno, Koji Fujita, Katsuro Hayashi, Hirofumi Akamatsu, “Topochemical Synthesis of LiCoF₃ with a High-Temperature LiNbO₃-Type Structure”, *Inorganic Chemistry* 61(30) 11746-11756 (2022).

19. Akira Nishio, Yuji Ishido, Kosuke Nakamoto, Eiichi Kobayashi, Atsushi Inoishi, Hikari Sakaebé and Shigeto Okada, “Eldfellite-type cathode material, NaV(SO₄)₂, for Na-ion batteries”, *Materials Advances* 3, 6911–7144 (2022).

20. Yanna Chen, Osami Sakata, Hiroyuki Morita, Akifumi Matsuda, Fanhao Jia, Okkyun Seo, Loku Singgappulige Rosantha Kumara, Toshiaki Ina, Eiichi Kobayashi, Jaemyung Kim, Chulho Song, Satoshi Hiroi, Natalia Palina, Yanfang Lou, Wei Ren, Mamoru Yoshimoto, “Electronic states of gallium oxide epitaxial thin films and related atomic arrangement”, *Applied Surface Science* 578, 151943 (2022).

21. Tsukasa Terada, Yuto Uematsu, Takafumi Ishibe, Nobuyasu Naruse, Kazunori Sato, Tien Quang Nguyen, Eiichi Kobayashi, Hideyuki Nakano, Yoshiaki Nakamura, “Giant Enhancement of Seebeck Coefficient by Deformation of Silicene Buckled Structure in Calcium-Intercalated Layered Silicene Film”, *Advanced Materials Interfaces* 9, 2101752 (2022).

22. K. Ishiji, K. Kobayashi, M. Hidaka, H. Taguchi, K. Sakamoto, K. Konishi, A. Shima, T. Okajima, “Expansion of beam width in exposure and crystal structure beamline (BL09) of SAGA-LS and

applications using expanded beams”, *Nucl. Instr. Meth. A* 1041, 167366 (2022).

23. K. Ishiji, T. Fujii, T. Araki, Y. Shiraishi, and T. Fukuda, “Defect generation behavior in Czochralski-grown SrAl₂MgO₄ crystal using synchrotron X-ray topography”, *J. Cryst. Growth* 603, 126984 (2023).

24. S. Harada, T. Nishigaki, N. Kitagawa, K. Ishiji, K. Hanada, A. Tanaka, and K. Morishima, “Development of High-Resolution Nuclear Emulsion Plates for Synchrotron X-Ray Topography Observation of Large-Size Semiconductor Wafers”, *J. Electr. Mater.* 52, 2951 (2023).

3. 学会発表

表 1 に学会発表の件数を示す。

表 1 学会発表件数

	国際学会 (件)	国内学会 (件)
当研究センター	3	25

4. 出版物

九州シンク トロ トン 光 研究 セン ター 年 報 2021

付 録

1 収 支

佐賀県と締結した「佐賀県立九州シンクロトロン光研究センターの管理運営に関する変更協定書」に基づき、当研究センターでは施設の運営、維持管理、安全管理及び利用推進等に関する業務を行っている。

(当初の協定は 2004 年 1 月 1 日)

2022 年度の決算額は、収入が前年度比 73,218 千円増の 680,928 千円、支出が前年度比 71,215 千円増の 680,928 千円であった。表 1 に収支の決算状況を示す。

表1 収支決算状況（単位：千円）

科 目	2021 年度	2022 年度
収 入	607,710	680,928
受託料等収入	531,167	594,470
資産運用収入	5	4
施設利用料収入等	75,692	78,572
雑収入	774	2,015
他会計繰入金収入	72	5,867
支 出	609,713	680,928
人件費	200,768	204,436
謝金	1,574	970
旅費	4,109	7,865
庁費	379,011	443,146
公租公課	22,145	22,507
他会計繰入金支出	72	0
固定資産購入	2,034	2,004
収支差額	△2,003	0

2 運 営 組 織

図1に組織図を、表1にスタッフリストを示す。

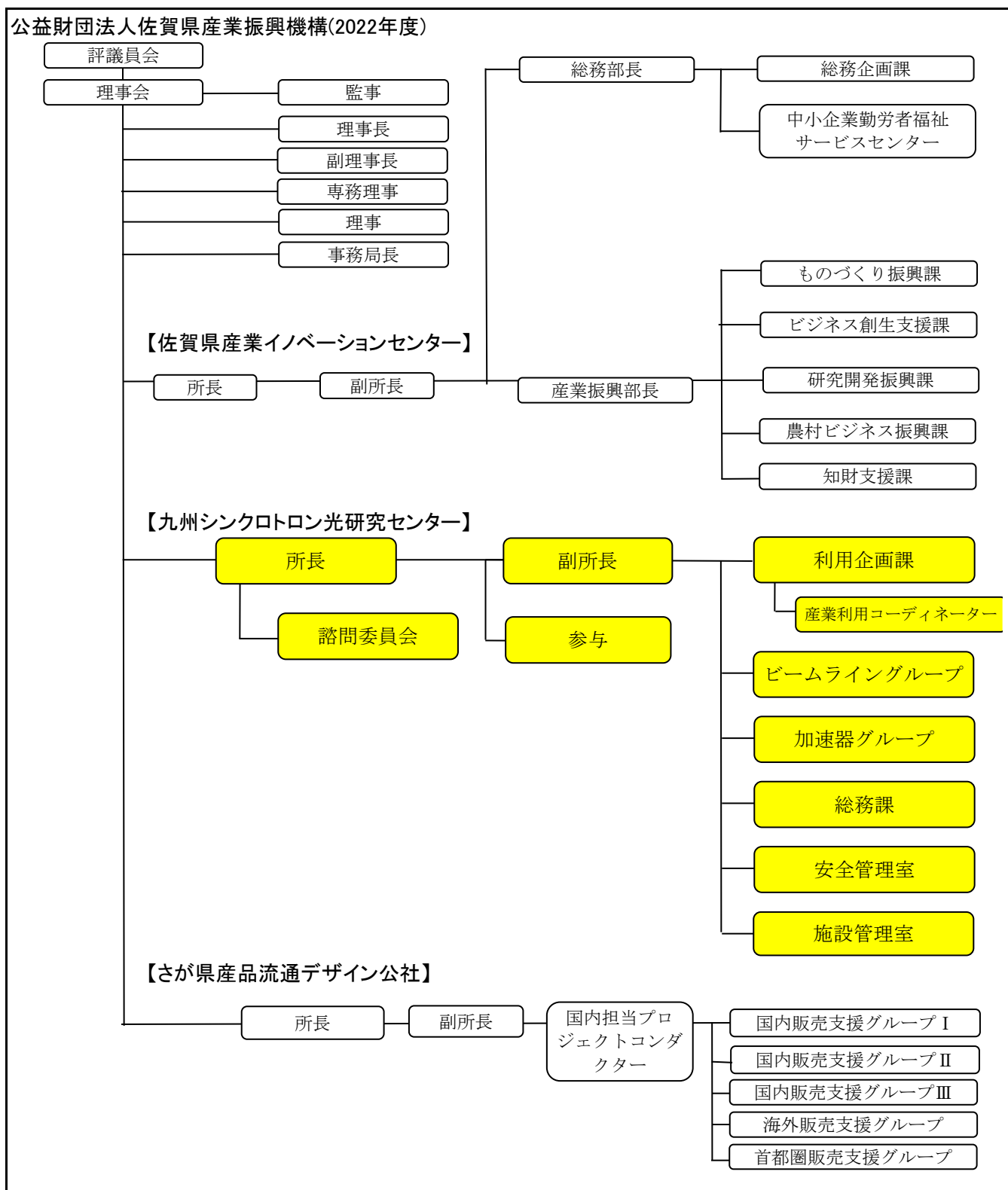


図1 組織図

表1 スタッフリスト

(2023年3月末時点)

所長 (財団業務執行理事)	妹尾 与志木		
参与 (財団常務理事)	白仁田 和彦		
副所長 (兼総務課長)	石井 正宏		
利用企画課		総務課	
課長	富永 剛 (佐賀県派遣)	スタッフ (兼施設管理室)	竹原 伸子
スタッフ (兼安全管理室・総務課)	福島 慶一	スタッフ (兼施設管理室・利用企画課)	田中 慎一
スタッフ (兼安全管理室)	内田 章太	スタッフ	藤田 加津子
スタッフ	石郷岡 美香	スタッフ	山内 愛
スタッフ	山田 涼子	他2名兼任	
他1名兼任			
産業利用コーディネーター	玉井 富士夫		
産業利用コーディネーター	前田 英明		
産業利用コーディネーター	鈴木 直幸		
ビームライングループ		安全管理室	
グループ長	廣沢 一郎	7名兼任	
副グループ長 (兼安全管理室)	米山 明男		
副グループ長 (兼安全管理室)	河本 正秀	施設管理室	
主任研究員 (兼施設管理室長)	小林 英一	非常勤嘱託	大澤 薫弘
副主任研究員 (兼安全管理室)	吉村 大介	他7名兼任	
副主任研究員 (兼安全管理室)	瀬戸山 寛之		
副主任研究員 (兼施設管理室)	石地 耕太郎		
副主任研究員 (兼施設管理室)	馬込 栄輔		
加速器グループ			
グループ長 (兼安全管理室長)	江田 茂		
主任研究員	岩崎 能尊 (放射線取扱主任者)		
副主任研究員 (兼施設管理室)	高林 雄一		
副主任研究員 (兼施設管理室)	金安 達夫		

3 アクセス



鉄道

- JR 鳥栖駅から
 - ・タクシー【約 10 分】
 - ・バス(鳥栖プレミアムアウトレット行き)【約 15 分】
- JR 新鳥栖駅から
 - ・タクシー【約 10 分】
- JR 弥生が丘駅から
 - ・タクシー【約 5 分】
 - ・徒歩【約 20 分】
 - ・バス(鳥栖プレミアムアウトレット行き)【約 6 分】

自動車

- 高速道路[鳥栖インター]から【約 5 分】
- 久留米基山筑紫野線[柚比インター]から【約 1 分】

飛行機

- 福岡空港(地下鉄)～JR 博多駅【約 6 分】
 - ・JR 博多駅(特急)～JR 鳥栖駅【約 20 分】
 - ・JR 博多駅(新幹線)～JR 新鳥栖駅【約 13 分】

著作権法に基づき、本書のいかなる形式の複製または転載も、当研究センターの事前の許可が必要です。

佐賀県立九州シンクロトロン光研究センター年報 2022
2024 年 3 月発行

【指定管理者】

公益財団法人佐賀県産業振興機構

九州シンクロトロン光研究センター

〒841-0005 佐賀県鳥栖市弥生が丘八丁目 7 番地

電話：0942-83-5017

URL：<https://www.saga-ls.jp>