第30回日本放射光学会年会・ 放射光科学合同シンポジウム(JSR2017)学生発表賞審査結果について

第30回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム(JSR2017) 組織委員長 **矢代 航**(東北大学 多元物質科学研究所)

日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム(年会・合同シンポ)学生発表賞では,将来性・独創性のある優れた発表を行った学生を顕彰し,賞状を贈呈してまいりました。年会・合同シンポジウムの精神に則り「学生による全ての発表」を対象としています。第30回年会・合同シンポジウム(JSR2017)では,組織委員長,実行委員長,副実行委員長,プログラム委員長,副プログラム委員長の5名で学生発表賞選考委員会を組織し,84名の審査員によるのべ499件の審査結果に基づき選考が行われました。審査にご協力いただいた先生方には,この場をお借りして厚く御礼申し上げます。

第30回年会・合同シンポ(JSR2017)では学生発表賞対象講演の申込数が127件ありましたが、1件の発表キャンセル があり、最終的な対象講演数は126件となりました。分野別の内訳は以下の通りです。

第1分野 X線領域の回折・散乱・分光など

- 口頭発表:10件,ポスター発表:34件
- 第2分野 VSX 領域の固体・原子分子など
- 口頭発表:24件,ポスター発表:25件
- 第3分野 加速器装置・イメージングなど
- 口頭発表:9件,ポスター発表:24件
- <u>合計件数</u> JSR2017:126件(JSR2016:109件,JSR2015:113件,JSR14:124件,JSR13:104件,JSR12:111件, JSR11:124件,JSR10:96件)

学生発表賞選考委員会では上記発表を対象に,審査員による採点の結果をTスコアにより評価し,以下の7名の方々 に学生発表賞を授与することに決定しました。受賞者の皆様が,これを契機に今後も放射光分野において益々ご活躍され ることを期待しております。

【JSR2017学生発表賞受賞者(各分野,五十音順)】

<u>第1分野</u>X線領域の回折・散乱・分光など 発表番号:9P073 氏名(所属):大出真央(慶大理工,理研播磨) 演題:X線小角散乱法を用いたシロイスナズナ phototropin1の構造及び機能研究

発表番号:8P082 氏名(所属):中井真理奈(立命館大院生命) 演題:窒化銅ナノ粒子の液相合成過程に関する化学状態解析

<u>第2分野</u>VSX 領域の固体・原子分子など 発表番号:8P033 氏名(所属):岸潤一郎(阪大理) 演題:InSb(001)基板上に作製した Bi 薄膜の1次元的な表面電子状態

発表番号:4B004 氏名(所属):高根大地(東北大院理) 演題:トポロジカル線ノード半金属 HfSiS の高分解能 ARPES 第3分野 加速器装置・イメージングなど

発表番号:9P026

氏名 (所属): 関口優希 (慶大理工,理研播磨)

演題:XFEL コヒーレント回折イメージング実験におけるデータ解析の高度化と酵母細胞核の三次元構造解析への適用

発表番号:9P027

氏名(所属):谷直哉(北大電子研) 演題:X線レーザー回折イメージングのための脂質膜マイクロチャンバーの開発

発表番号:3F001

氏名(所属):山田純平(阪大院工) 演題:小型かつ大倍率を実現するX線結像ミラー光学系の開発

なお,次ページ以降に各受賞者の研究要旨が本人の紹介と受賞コメントと合わせて掲載されております。ぜひご覧くだ さい。

JSR2017学生発表賞 第1分野

受賞者	:大出真央(発表番号:9P073)
題目	:X線小角散乱法を用いたシロイヌナズナpho-
	totropin1の構造及び機能研究
講演者	:大出真央 ^{1,2} ,岡島公司 ^{1,2} ,嘉祥寺谷幸子 ^{2,3} ,高山
	裕貴 ^{1,2} , 苙口友隆 ^{1,2} , 引間孝明 ² , 山本雅貴 ² , 中
	迫雅由 ^{1,2}
所属	:1慶應大•理工,2理研•播磨,3大阪府大•生命
	科学

1. はじめに

植物蛋白質 phototropin (phot) は光合成の高効率化を 担う蛋白質であり,青色光センサーとしての機能を備えて いる。これまでの研究から,photは2個の青色光受容ド メイン (light-oxygen-voltage sensing domain; LOV1, LOV2)^{1,2)}と1個のセリン・スレオニンリン酸化酵素ドメ イン (ser/thr kinase domain; STK)³⁾を持ち,青色光によ って励起された LOV2が STK の活性を制御することで他 の蛋白質へシグナルを伝達すると推定されている^{4,5)}。し かしながら,phot の全体形状が不明であるため,LOV2が STK の活性を制御するメカニズムについて未だ構造的知 見は得られていない。

このような背景を踏まえ,本研究では X 線小角散乱法 (Small-Angle X-ray Scattering: SAXS)を用いてシロイヌ ナズナ由来 phototropin1 (phot1)の LOV2と STKで構成 された機能最小単位 (phot1 LOV2-STK: P1L2K)の構造 を解析し,青色光照射下での LOV2による STK の制御機 構を考察した⁶。

2. 測定方法

SAXS 測定は, SPring-8小角散乱ビームライン BL45XUにて実施した。青色光照射に伴うP1L2Kの構造 変化を解析するため、測定中任意のタイミングで青色光を 照射できるよう溶液試料セル直上に青色光LEDを配置し た。測定シーケンスは以下の通りである([]内は光条件 に応じた測定データの呼称)。

①試料溶液を暗条件下で SAXS 測定 [Dark1]
②測定後,試料溶液に青色光照射開始
③2 分後,青色光を照射しながら SAXS 測定 [Light]
④青色光照射を停止
⑤15分後,暗条件下で再度 SAXS 測定 [Dark2]

これら3度のSAXS測定により、P1L2Kの青色光依存的 な構造変化の有無及び可逆性の確認を行った。

3. SAXS プロファイル測定結果

Fig. 1に P1L2K SAXS プロファイルを示す。縦軸の散 乱強度 *I*(*S*)は蛋白質溶液濃度 *C* で規格化した後,自然対 数をとってプロットされている。ここで,上段黒丸のプロ ファイルが Dark1,中段灰丸のプロファイルが Light,下



段三角のプロファイルが Dark2である。また、グラフ中 に Light と Dark1の差分プロファイル(黒丸), Dark2と Light の差分プロファイル (灰丸) が内挿されている。 Fig. 1 差分プロファイルより S=0.006 Å⁻¹ 付近で青色光照 射下の散乱プロファイルに変化が生じており、青色光依存 的に分子全体のスケールで何らかの構造変化が生じている ことが示唆された。また, Dark1から Light, Light から Dark2への光条件変化に伴う散乱強度の増減はほぼ対称的 である。そのため、P1L2K の青色光に依存した構造変化 は可逆的な変化であったと言える。Guinier 解析の結果, 原点散乱強度の値から P1L2K は溶液中で二量体を形成し ていることが明らかになった。また、慣性半径の値は Dark1で42.9Å, Light で48.8Å, Dark2で43.5Åであっ た。従って、青色光を受容した P1L2K には可逆的な分子 伸長が生じると推定された。この分子伸長における具体的 な構造変化について、分子形状推定ソフトウェアを用いた 推定を行った。

4. P1L2K 構造変化モデル

得られた Dark1 SAXS プロファイルからソフトウェア GASBOR⁷⁾による分子形状推定を行い,暗条件下での P1L2K が Fig. 2a のように扁平型の二量体であると推定し た。また,推定形状に対して LOV2結晶構造²⁾と STK 予 測構造⁵⁾を重ね合わせ,機能ドメイン配置の予測を行っ た。同様の解析を Light SAXS プロファイルに対しても行 った結果,青色光照射条件下における P1L2K 推定形状は Fig. 2b のように Dark1 推定形状と比較してより伸長・屈



Fig. 2 P1L2K Dark1 推定形状(a) と Light 推定形状(b)。

曲した形状であった。よって P1L2K は青色光照射によっ て分子全体規模で伸長・屈曲を起こすと考えられる。この モデルは慣性半径の増加というプロファイルの解析結果と も一致しており, 尤もらしいモデルであろう。また, Dark1, Light のドメイン配置を比較すると分子全体の形 状変化に伴って STK ドメインの LOV2に対する相対配置 が変化している。従って, P1L2K の青色光に依存した STK 制御メカニズムは伸長・屈曲運動による LOV2, STK ドメインの相対位置変化である可能性が示唆された。

5. P1L2K 変異体による STK 制御機構の解析

前節において P1L2K の全体形状及び青色光依存的な構 造変化が推定された。これについてさらに理解を深めるた め、機能発現に重要な残基を置換した P1L2K 変異体につ いて SAXS 解析を行い, 自然種 P1L2K SAXS プロファ イルと比較した。Fig.3は475番リジン残基をアラニンに 置換した K475A 変異体の SAXS プロファイルである。 Fig. 3 も Fig. 1 と同様に,縦軸の散乱強度 I(S) は蛋白質溶 液濃度 C で規格化した後,自然対数をとってプロットさ れている。K475A 変異体は STK の活性を失っているこ とが先行研究⁸⁾で確認されているが、SAXSによる測定の 結果、青色光照射によって小角での散乱強度が大きく、か つ可逆的に上昇した。上昇率はおよそ1.4倍であり、この 上昇量から K475A 変異体は青色光によって可逆的な凝集 を起こしたと考えられる。これは青色光照射によって P1L2K 分子表面の性質が変化したことに起因すると考え られるが、475番リジン残基はドメイン配置の推定結果か ら LOV2-STK の界面に位置すると予測されている。従っ て、LOV2-STK界面に位置する475番リジン残基の欠損 が青色光依存的な P1L2K の構造変化に大きな影響を与 え,凝集を生じさせたと考えられる。この結果から, LOV2-STK の界面が STK の制御において重要な役割を



Fig. 3 P1L2K K475A 変異体 SAXS プロファイル。

果たしていると予想される。

6. おわりに

本研究から P1L2K の分子形状及び青色光依存的な構造 変化が推定され、また LOV2-STK の界面が LOV2による STK の制御に重要であると予想された。特に、本研究で 予想された「LOV2-STK の相対位置による STK ドメイ ンの制御」というメカニズムはシロイスナズナ由来 phot2 LOV2-STK 断片⁵⁾やクラミドモナス由来 phot⁹⁾を対象と した先行研究においても同様のモデルを想起させる結果が 得られており、phot に共通の制御メカニズムであること が予想される。 参考文献

- 1) M. Nakasako et al.: J. Mol. Biol. 381, 718 (2008).
- A. S. Halavaty and K. Moffat: Acta. Crystallogra. F69, 1316 (2013).
- 3) L. Bogre et al.: Trends Plant Sci. 8, 424 (2003).
- 4) J. M. Christie *et al.*: Plant J. **32**, 205 (2002).
- 5) Y. Takayama *et al.*: Biochemistry **50**, 1174 (2011).
- 6) M. Oide *et al.*: J. Biol. Chem. **291**, 19975 (2016).
- 7) D. I. Svergun et al.: Biophys. J. 80, 2946 (2001).
- 8) S. Kashojiya et al.: PLoS One 10, e0124284 (2015).
- 9) K. Okajima et al.: J. Biol. Chem. 289, 413 (2014).



大出真央 慶應義塾大学大学院基礎理工学専攻修士 課程 2 年

[略歷] 2015年慶應義塾大学理工学部物理学科 卒業。現在,慶應義塾大学大学院基礎理 工学専攻修士課程2年。

[受賞のコメント]

この度は学生発表賞に選出していただい たことを大変光栄に思います。この受賞は多くの皆様に支えて いただいた賜物に他なりません。特に,日頃からご指導いただ いております中迫教授, 苙口専任講師,岡島特任助教,共同実 験者である理研・播磨の山本基盤研究部長,引間博士,現兵庫 県立大の高山助教,現筑波大の嘉祥寺谷博士にこの場をお借り して厚くお礼申し上げます。これを励みに今後より一層研究に 精進してまいりたいと思います。

JSR2017学生発表賞 第1分野

受賞者:	中井真理奈(発表番号:8P082)
題 目:	窒化銅ナノ粒子の液相合成過程に関する化学状態
	解析
講演者:	中井真理奈1,中村考志2,山口有朋2,
	渡邊稔樹1,片山真祥1,稲田康宏1
所 属:	1立命館大学大学院生命科学研究科,2產業技術総
	合研究所

1. 緒言

窒化銅は anti-ReO₃ 型構造をとり、その薄膜は高速集積 回路などに応用される半導体材料である。また、窒化銅ナ ノ粒子はプリンテッド・エレクトロニクス・デバイスへの 応用も期待される重要な電子材料である。

酢酸銅(II)・一水和物を用いた液相還元法は,比較的 容易に窒化銅を合成できる有用な手法であるが¹⁾,その合 成過程における窒化銅の生成メカニズムは詳しく分かって いない。窒化銅ナノ粒子の生成メカニズムを知ることは, さらに効率的な窒化銅の合成や,新規合成経路の開発のた めに不可欠な知見であり,窒化銅ナノ粒子の利用範囲の拡 大に向けて重要である。

本研究では,窒化銅ナノ粒子を液相還元法で合成する過 程の銅化学種の状態変化をその場で解析することにより, 窒化銅ナノ粒子の生成メカニズムの解明を目的とした。尿 素分解を用いた酢酸銅(II)・一水和物の液相還元過程に ついて²⁾, *in-situ* XAFS 解析を行うことにより窒化銅ナノ 粒子の合成過程での化学状態変化を明らかにした。

2. 実験

尿素と酢酸銅(II)・一水和物を加えた1-ノナノールに ポリビニルピロリドンを添加することで,溶液中での反応 物や生成物の沈降を防いだ。本研究で新たに開発した溶液



Fig. 1 気体のフローが可能な溶液反応用 XAFS セル。

反応用 XAFS セル(**Fig. 1**)を用いて,He 雰囲気下にお いて190℃まで昇温する過程についての *in-situ* XAFS 測定 を,高エネルギー加速器研究機構 PF BL-9C において, 透過法で行った。

結果と考察

尿素分解を用いた液相還元過程の in-situ XAFS 測定で 得られた XANES スペクトルとその一次微分曲線,及 び,それを用いて行った組成解析の結果を Fig. 2 に示す。 XANES スペクトルは,始状態の酢酸銅(II)から最終生 成物の窒化銅へ変化することを示しており,組成解析の結 果,酢酸銅(II)から窒化銅へ至る過程で,CuO 及び銅 (I)-アンミン錯体の存在が確認された。

銅(I)-アンミン錯体は140℃以上の温度域で存在してお り、この条件では尿素の分解によって生成した十分な濃度 のアンモニアが溶液内に存在する。また、同じ溶液反応用 XAFS セルを用いて行ったアンモニア存在下での解析か らは、銅(II)-アンミン錯体が140℃で1価に還元される ことを明らかにした。酢酸銅(II)は尿素の分解によって 生成したアンモニアにより銅(II)-アンミン錯体を形成 し、溶媒である1-ノナノールによって速やかに銅(I)-ア



Fig. 2 窒化銅の合成過程における XANES スペクトル(a), XANES スペクトルの一次微分曲線(b), 銅化学種組成の温度変化(c)。

Cu(CH₃COO)₂ Fig. 3 尿素分解法の反応メカニズム。

ンミン錯体に還元されると考えられる。その後,生成した 銅(I)-アンミン錯体が窒化銅を形成することが明らかに なった。

一方で,酢酸銅(II)は加熱による熱分解によって CuOを形成する。このCuOは、190℃に達して尿素が分 解して生成したアンモニアにより窒化され、窒化銅を形成 することが、反応物にCuOを用いた解析から明らかにな った。従って、尿素分解を用いた液相還元法では、Fig.3 に示すように、酢酸銅(II)から銅-アンミン錯体を経由 して窒化銅を生成する反応経路と、酸化銅を経由して窒化 銅へ至る反応経路が共存することを明らかにした。これ は、窒化銅ナノ粒子の合成における副生成物の除去やアン モニア導入の短時間化などについての重要な知見を与える 結果であり、固体ナノ粒子の液相合成過程を反応条件下で

JSR2017学生発表賞 第 2 分野

受賞者	:岸潤一郎(発表番号:8P033)
題目	: InSb(001) 基板上に作製した Bi 薄膜の1次元的
	な表面電子状態
講演者	:岸潤一郎1,大坪嘉之1,2,矢治光一郎3,原沢あゆ
	み³,小森文夫³,辛埴³,J. Rault4,P. Le Fevre4,
	F. Bertran ⁴ , A. Taleb-Ibrahimi ⁴ , 木村真一 ^{1,2}
所属	:1阪大理,2阪大生命,3東大物性研,4Synchrotron
	SOLEIL

1. 緒言

近年,薄膜やナノワイヤといった低次元構造を持つ物質 は,量子閉じ込め効果や非フェルミ液体といった興味深い 物性を発現するため,盛んに研究されている。特に重元素 を含む低次元系は,その強いスピン軌道相互作用により, 直接解析可能な XAFS 法の適用によって初めて解明する ことに成功した。

参考文献

- 1) T. Nakamura et al.: Inorg. Chem. 53, 710 (2014).
- 2) T. Nakamura et al.: J. Nanopart. Res. 16, 1 (2014).



中井真理奈 立命館大学大学院生命科学研究科生命科 学専攻博士課程前期課程 2 回生

[略歷] 2015年3月立命館大学生命科学部応用 化学科卒業。現在,立命館大学大学院生 命科学研究科生命科学専攻博士課程前期

課程2年。 **[受賞のコメント]**

この度は、栄誉ある JSR2017学生発表賞を頂き、大変光栄に 思います。本研究を進める上でご指導頂いております稲田康宏 先生、片山真祥先生ならびに共同研究者の皆様に、心から感謝 いたします。この受賞を励みに、今後の研究に精進していきた いと思います。

スピン偏極した電子状態を持つことがあると知られてお り、電子の後方散乱抑制による省エネルギー・超高速伝導 等、スピントロニクス分野への応用が期待されている¹⁾。 これまでは、このようなスピン偏極状態は 3Dトポロジカ ル絶縁体の表面状態²⁾等の2次元系で主に研究されてきた が、電子の後方散乱の完全な抑制を目指す場合は、重元素 を含む1次元系を用いてスピン偏極状態を実現する必要 がある。

そこで本研究では,面内異方性の大きい InSb(001)を基 板とした Bi 薄膜 [Bi/InSb(001)] を作製し,スピン偏極 した1次元電子状態の実現を目指した。

2. 実験

試料は,超高真空下で清浄化した InSb(001)上に10原 子層程度の Bi を真空蒸着することで作製した。測定は,



Fig. 1 結合エネルギー100 meV における電子状態の等エネル ギー面に相当する図。 $k_x = 0$ Å⁻¹における電子状態の励起 光依存性は, $k_x = 0$ Å⁻¹における電子状態の k_z 方向分散に 対応する。

Synchrotron SOLEIL, CASSIOPEE ビームラインにて放 射光($h\nu = 15 \sim 90 \text{ eV}$)を用いた角度分解光電子分光 (ARPES)を、東京大学物性研究所極限コヒーレント光科 学研究センターにてレーザー励起光($h\nu = 6.994 \text{ eV}$)を 用いた ARPES 及びスピン分解 ARPES(SARPES)を行 い、その電子構造及びスピン構造の観測を行った。

3. 結果と考察

Fig. 1は、フェルミ準位からの結合エネルギー100 meV における3次元運動量空間の光電子強度をプロットした もので、電子状態の等エネルギー面に相当する。測定面内 の k_x , k_y 方向ばかりではなく励起光エネルギーを変え k_z 方向を観測すると、 $k_y \sim 0$ Å⁻¹の平面のみに電子が集中し ているような直線的な状態密度強度を示していることが分 かった。このことから、この電子状態は k_y のみを良い量 子数とする、擬1次元的な電子状態だといえる。

Fig. 2(a)はこの擬1次元的な電子状態の k, 方向のエネ ルギー分散を測定した結果である。非常に急峻な分散形状 をしており,また占有-非占有状態間でギャップが開いて いることが測定から判明した。このギャップ幅は直接ギャ ップの場合150 meV 程度と,室温程度の温度領域で起こ る熱励起エネルギーよりも大きく,将来の電子デバイスと しての応用が期待できる材料といえる。

さらにスピン分解測定では、**Fig. 2(b,c)**に示す x-スピン 偏極度(P_x)の運動量分布関数(MDC)から分かるよう に、大きくx方向にスピン偏極していることが分かっ た。この x-スピンは、 $k_y=0$ Å⁻¹と E_F に関してスピン偏 極方向が反転しており、このスピン描像は、1次元ラシュ バ系や1次元トポロジカル系で見られる波数ベクトル (k_{11})と垂直方向かつ k_{11} の符号反転に伴い反転するスピ



Fig. 2 (a) k_x~0Å⁻¹における E-k_yバンド分散。(b)結合エネル ギー(B.E) が−80 meV における, x-スピン偏極度(P_x) の運動量分散曲線(MDC)。(c) B.E = 170 meV における x-スピン偏極度(P_x)MDC。

ン偏極構造と一致している。

4. まとめ

放射光等を用いた ARPES 測定を通して, Bi/InSb (001)の電子状態の観測を行い, B.E=100 meV 近傍の電 子状態が,擬1次元的な電子構造を持つことも明らかに した。また,その電子状態は,室温以上のギャップ幅を持 つ急峻な分散を持ち,SARPES 測定から,この急峻な分 散に対して垂直方向に大きくスピン偏極していることが判 明した。このような特異な1次元スピン偏極電子状態 は,低次元電子物性に関する基礎科学・スピントロニクス 等の応用両面から興味深い内容である。

参考文献

- 1) A. Manchon *et al.*: Nat. Mat. **14**, 871 (2015).
- M. Z. Hasan and C. L. Kane: Rev. Mod. Phys. 82, 3045 (2010).



岸 潤一郎 大阪大学大学院理学研究科物理学専攻修 士課程 2 年 [略歴] 2015年 3 月大阪大学理学部物理学科卒 業。 2015年 4 月大阪大学大学院理学研究科 物理学専攻入学

2017年3月同専攻修了予定

[受賞のコメント]

この度は,JSR2017学生発表賞という栄えある賞を賜り,大変 光栄に存じます。日頃からご指導いただいております大坪嘉之 助教,木村真一教授,渡邊浩助教,渡辺純二准教授ならびに共 同研究者の皆様に,心から感謝を申し上げます。本賞を今後の 励みとして,一層精進していきたいと思います。

JSR2017学生発表賞 第 2 分野

受賞者:高根大地(発表番号:4B004)
題 目:トポロジカル線ノード半金属 HfSiS の高分解能
ARPES
講演者:高根大地 ¹ , Zhiwei Wang ² , 相馬清吾 ³ , 中山耕
輔 ¹ , C. X. Trang ¹ , 佐藤宇史 ¹ , 高橋隆 ^{1,3} , 安藤
陽—2
所 属: ¹ 東北大院理, ² ケルン大学, ³ 東北大 WPI

1. はじめに

近年、トポロジカル絶縁体を始めとする「トポロジカル 物質」が注目を集めている。一般に、トポロジカル物質は バルクの価電子帯と伝導帯の一部がエネルギー的に反転 (バンド反転)しているような物質系を指す。物質の結晶 の対称性に応じて様々なトポロジカル電子状態が実現し, それに対応して多くの新奇物性の発現が期待されている。 バンド反転領域全体に渡ってエネルギーギャップが開いて いる「トポロジカル絶縁体」の他に、ブリルアンゾーンの 特定の点でバンドが縮退し、その他の領域ではギャップが 開く「ディラック/ワイル半金属」という物質も提案され ている。これまで、角度分解光電子分光 (ARPES) によ る電子状態の直接観測を通して、これらのトポロジカル物 質相が多くの物質で報告されている¹⁻³⁾。一方で,バンド の縮退が、ある線上において対称性に保護されるような 「トポロジカル線ノード半金属 (TLNSM)」については, ARPES による物質報告が PbTaSe₂⁴⁾とごく最近報告され た ZrSiS⁵⁾の2つのみと未だに少ない。また、トポロジカ ル物質はその物質系ごとに特異な表面状態をもつことが知 られており、トポロジカル絶縁体やワイル半金属では、そ の特徴的な表面電子構造が理論、実験の双方から確認され ている。しかし, TLNSM については表面状態を予見す るトポロジカルな原理が確立しておらず、その実験的な観 測もごく少数に限られているのが現状である4,5)。以上の ことから、今回我々は高分解能 ARPES による新たな TLNSM の発見とその電子構造の詳細な観測が重要であ ると考え、理論的に TLNSM である可能性が示唆されて いる HfSiS⁶⁾について高分解能 ARPES 実験を行った。

2. 実験

本実験は高エネルギー加速器研究所 Photon Factory BL28A にて高分解能 ARPES 実験を行った。HfSiS の純 良単結晶を 1×10^{-10} Torr 以下の超高真空下で,(001)面 において劈開することで,実験に必要な清浄試料表面を得 た。励起光は hv = 48-80 eV を用い,実験中の試料温度は 40 K とした。

3. 結果と考察

Fig. 1(a)に,励起光に hv = 48 eV の右回り円偏光を用い て得られた ARPES スペクトルの,等エネルギー面上にお ける強度プロットを示す。各等エネルギー面において四角 形の同心構造が観測されており、これは HfSiS が四角形 型の線ノードをもつことを反映している。また、線ノード を垂直に切った cut A, B, C における ARPES スペクトル を Fig. 1(b)にそれぞれ示すが、いずれの cut においても明 瞭な直線的な分散が観測され、これは縮退点が一次元的に 延びていることを表している。以上の実験結果は、HfSiS が新たな TLNSM であることを示している。

次に, HfSiS の表面電子構造について述べる。Fig. 1(a) において X 点付近に観測された円形のフェルミ面は,ラ シュバ分裂による二重構造を示すことから表面状態である ことが明確にわかる。我々はこの他に、線ノード付近 (Fig. 2(a)) において,フェルミ面の上と下のブランチを 繋ぐような X1 バンドを見出した。Fig. 2(b)に示す, cutA におけるバンド分散を見ると、X1バンドはHf由来のバ ンドから折れ曲がるように存在していることがわかるが, バルクバンド計算6)にはこれに対応するようなバンドは存 在しないことから,X1バンドは新たな表面状態由来のバ ンドであると考えられる。同じ実験を励起光を左回り円偏 光にして行った結果が Fig. 2(c), (d) であり, X1 バンドと は明確に異なる新たな X2 バンドが観測されていることか ら,表面状態はその二つのバンドで構成されていることが わかる。また、面内波数とエネルギーからなる3次元空 間内で、これらの表面状態の分散構造を実験結果から決定 した結果を Fig. 2(e) に示す。今回発見した新しい表面状態 は、全体としてX字型で、一次元的な縮退線が F-M 方向



Fig. 1 (a) HfSiS における各等エネルギー面上での ARPES スペ クトルの強度プロット。(b) cut A, B, C における ARPES スペクトル。



Fig. 2 (a)hv=48 eV 右回り円偏光での ARPES スペクトルの E_F 上での強度プロット。(b)cutA, B, Cにおけるバンド構造。(c),(d)は同じプロットを左回り円偏光について行ったもの。(e)波数とエネルギーの三次元空間での X1, X2 バンドの分散の模式図。

に伸びるアーク型の構造をとっていることがわかった。我 々はこの新奇表面状態を Dirac node arc と名付けた。 Dirac node arc の縮退線が伸びる $\overline{\Gamma}$ - \overline{M} 線上は結晶の映進

JSR2017学生発表賞 第3分野

受賞者:関口優希(発表番号9P026)
夏 目:XFEL コヒーレント回折イメージング実験にお
けるデータ解析の高度化と酵母細胞核の三次元構
造解析への適用
冓演者 :関口優希 ^{1,2} ,小林周 ^{1,2} ,岡島公司 ^{1,2} ,
苙口友隆 ^{1,2} ,中迫雅由 ^{1,2} ,山本雅貴 ²
所属: ¹ 慶應・理工, ² RIKEN SPring-8 Center

1. はじめに

Coherent X-ray Diffraction Imaging (CXDI) は、数 μ m 程度の非結晶試料を数nm~数+nmの分解能で可視化す る手法である¹⁾。CXDIでは、コヒーレントX線を用いて 試料の回折パターンを測定し、位相回復計算により電子密 面上であることから,これまで考えられてこなかった新た な対称性に守られた表面状態である可能性があることや, 精密な調整なしにディラックコーンのディラック点に化学 ポテンシャルがある時のような特異な電気伝導が観測され る可能性があるなど今後の研究が期待される。

以上をまとめると今回我々はHfSiSが3つ目となる TLNSMであることを決定するとともに,X点付近の表 面バンドに加え,新奇な表面状態Dirac node arcの観測に 成功した。この発見は,TNLSMのトポロジカル物性に 新たな知見を与えるものであると考えられる⁷⁾。

参考文献

- 1) Y. L. Chen et al.: Science 325, 178 (2009).
- 2) Z. K. Liu et al.: Science 343, 864 (2014).
- 3) S.-Y. Xu et al.: Science **349**, 613 (2015).
- 4) G. Bian et al.: Nat. Commun. 7, 10556 (2016).
- 5) L. M. Schoop et al.: Nat. Commun. 7, 11696 (2016).
- 6) Q. Xu et al.: Phys. Rev. B 92, 205310 (2015).
- 7) D. Takane *et al.*: Phys. Rev. B **94**, 121108(R) (2016).



高根大地 東北大学大学院理学研究科物理学専攻博 士前期課程1年

[略歴] 2016年3月東北大学理学部物理学科卒 業。2016年4月より東北大学大学院理 学研究科博士前期課程在学。マルチディ メンジョン物質理工学リーダー養成プロ グラム生

[受賞のコメント]

学生発表賞に選出頂き大変光栄に思っております。研究をご指 導いただいております高橋隆教授,佐藤宇史准教授,相馬清吾 准教授,中山耕輔助教授ならびに共同研究者のケルン大学の Zhiwei Wang 研究員,安藤陽一教授にこの場を借りて深く御 礼申し上げます。今回の受賞を励みとしてさらに研究を発展さ せていきたいと思います。

度分布を得る。試料を加工せずに比較的高分解能で構造可 視化できるため、特に生体粒子の構造解析手法として期待 されている。我々はこれまで、SACLAの超高輝度・高空 間コヒーレントX線を用いて生体・金属粒子のCXDI実 験を行ってきた²⁾。

2. SACLA で得られるデータ

SACLA の集光 X 線パルスの輝度は非常に高いため, 試料粒子は1度の露光で破壊される(ただし,回折現象 は粒子破壊前に起こる³⁾)。このため,我々が開発した測 定装置「高砂六号」⁴⁾は,粒子を大量に散布した薄膜上を 集光パルスで走査することで,照射野に新鮮な粒子を連続 的に導入して測定を行う。装置下流の MPCCD 検出器⁵⁾に より,粒子の回折パターンを画像データとして取得する。



Fig.1 SACLA で得られる様々な回折パターン。

30 Hz での測定が可能となっており、一回のビームタイム で250万以上のパルスを薄膜に撃ちこめる。

250万の画像データは、その全てが解析(位相回復計算) に適している訳ではない。これらの画像には、集光ビーム が粒子に当たらなかったもの、凝集粒子の非常に細かい回 折パターン、薄膜の亀裂からのパターン、コンタミネーシ ョン粒子のパターン、検出器の飽和が甚だしいものなどが 多数含まれる(Fig.1)。真に解析に値するデータは、集光 ビームの中心に運良く粒子が1つ孤立して存在していた もののみで、全体の1%程度しかない。パターンの「良し 悪し」の定量化は非常に難しく、価値ある1%のデータを 取り出すには、回折強度の弱い(パルスが粒子に当たって いない)ものを除いた後⁶⁰、データを1つ1つ目で見て良 いものを選び出すほかないのが現状である。この作業は多 大な手間を要し、構造解析の律速となる。

3. 機械学習による「良い」データの抽出

機械学習は、大量のデータをコンピュータに学習させ、 データの分類ルールなどを発見・構築する技術である⁷⁾。 今回、著者が予め解析に値する(good)・値しない(bad) と分類した回折パターンを、コンピュータに学習させるこ とで分類ルールを作り、これを用いて高速かつ高精度な データ抽出を試みた。

分類ルールの構築にはニューラルネットワーク(NN) を用いた。NNは、脳の神経細胞ネットワークを模したモ デルである。回折パターン毎にその特徴を表す7つのパ ラメータ(最大強度など)を入力すると、その回折パター ンが good/bad である確率を計算する NN を構築する。こ の NN の構造を Fig. 2 に示す。7 つのパラメータを入力す



Fig. 2 パラメータ7つから回折パターンが good/bad である確率 を計算する NN。

ると、各矢印を通って4つのノードに入り、更に4ノー ドの出力から2つの最終出力(good/bad である確率)が 計算される。各ノードは単純な演算器であり、矢印毎に重 みを入力値に掛け算し、定数項を足したものを総入力とす る。ノードの出力は、総入力を変数とした非線形関数(活 性化関数)の値である。NN は単純な演算器の組み合わせ に過ぎないが、あらゆる関数を表現できる⁸⁾。予め分類し た good/bad データから計算した7パラメータを入力する と、good/bad データである確率が1に、bad/good デー タである確率が0になるよう重みと定数項を調整する。 これを学習と呼ぶ。学習には時間を要するが、学習したパ ラメータを使った確率の計算は速い。NN の実装には Google 社のライブラリ TensorFlow⁹⁾を用いた。

2015年7月に測定した酵母細胞核の回折パターンのう ち、十分な強度を持つ35,073(うちgoodは1,092)デー タを用いて学習を行った。学習はパソコン上でも3分程 度で終わる。学習した NN を用いて、2016年7月に測定 した酵母細胞核のパターン(十分な強度のものが 515,337、うちgoodは4,854)の分類を行うと、goodの うち97.4%が正しくgoodと分類され、badを誤ってgood とした割合は18.1%であった。goodの大半を正しく抽出 しつつ、badをかなり除けることがわかる。しかしこれで も、元々badの方が圧倒的に多いため、goodと分類され た97,292データのうち真にgoodのものはおよそ5%しか ない。

更に高精度の分類を行うべく, Fig. 2 で good と分類されたデータを Fig. 3 の NN に入力する。この NN は言わば,回折パターンに対する「画像認識」を行うもので,各パターンを表現する16,384個のピクセルの値を入力としてgood/bad である確率を計算する。Fig. 2 の NN で good と判定された97,292データで学習を行う。この中に含まれるgood/bad データの一部を学習に使用せずに除けておき,



16,384 nodes

Fig. 3 回折パターンのピクセル16,384個の値から good/bad であ る確率を計算する NN。

学習で得た NN の交差検定に用いる。Fig. 2 の NN に比べ パラメータ数が40万倍以上になっているが,パソコンで も半日で学習できる。この結果,good のうち84.5%が正 しく good と分類され,bad を誤って good とした割合は 14.8%となった。

4. まとめと展望

最終的に、十分なシグナル強度を持つデータ(うち good は約1%)に対し、二段階の NN による自動分類を 行うことで、good のロスを20%程度に留めながら、bad を98%排除できるようになった。最終的に good と分類さ れたもののうち、真に good なものは25%程度である。こ れはすなわち、1つ1つ目で見なければならないデータの 数を1/25にできたことを意味する。

NN をより多層化し、いわゆるディープラーニング⁷⁾と

JSR2017学生発表賞 第3分野

受賞者	:谷直哉(発表番号:9P027)
題目	:X線レーザー回折イメージングのための脂質二
	重膜マイクロチャンバーの開発
講演者:	:谷直哉1,木村隆志1,鈴木明大1,城地保昌2,
	別所義隆 ³ ,西野吉則 ¹
所属	: ¹ 北大電子研, ² JASRI/SPring-8,
	³ Academia Sinica

現在市販されている医薬品の多くが膜タンパク質をター ゲットとしていることからも分かるように、新たな創薬に は細胞膜中の膜タンパク質の機能をより深く理解すること が必要である。そのために脂質二重膜に埋め込まれ活性を 維持した状態での膜タンパク質の観察が求められている。 これを将来的に実現する手法の一つとして、フェムト秒の 超短パルスを持つX線自由電子レーザー(X-ray freeelectron laser: XFEL)と、真空中でも溶液試料を保持す ることが可能なマイクロ液体封入アレイ (micro-liquid enclosure array: MLEA) チップと呼ばれる試料ホルダを利 呼ばれるほどの規模にすることで、更に高精度で分類できると期待される。精度が十分高くなると、SACLAで測定したその場でgoodデータを自動・高速抽出できるようになり、解析がよりスムーズに行えるだろう。

参考文献

- 1) J. Miao et al.: Science. 348, 530 (2015).
- T. Oroguchi *et al.*: J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 48, 184003 (2015).
- 3) R. Neutze *et al.*: Nature **406**, 752 (2000).
- 4) A. Kobayashi et al.: Rev. Sci. Instrum. 87, 053109 (2016).
- 5) T. Kameshima et al.: Rev. Sci. Instrum. 85, 033110 (2014).
- 6) Y. Sekiguchi et al.: J. Synchrotron Rad. 21, 600 (2014).
- 7) 岡谷貴之:『深層学習』,講談社,東京(2015).
- 8) G. Cybenko: Math. Control Signals Systems 2, 303 (1989).
- 9) https://www.tensorflow.org/



関口優希

慶應義塾大学大学院理工学研究科博士課 程3年 [略歴]

2014年4月より博士課程在籍。日本学 術振興会特別研究員(DC2)。4月から はIT 会社勤務。

[受賞のコメント]

学生発表賞に選出して頂き大変恐縮して おります。本研究は、中迫教授、山本部門長をはじめとする多 くの皆様のご尽力により SACLA で膨大なデータが測定可能に なって初めて結実したものです。この場をお借り致しまして、 SACLA での実験の際にお世話になっている皆様方に深く感謝 申し上げます。



Fig. 1 蛍光色素を閉じ込めた脂質二重膜マイクロチャンバーの蛍 光顕微鏡像。

用したパルス状コヒーレントX線溶液散乱(pulsed coherent X-ray solution scattering: PCXSS)法¹⁾が挙げられ る。PCXSS法では溶液中という生体内の環境に近い状態 での試料を,無損傷でナノレベルイメージングが可能であ る。膜タンパク質をPCXSS法で測定するためには,膜タ ンパク質由来の微弱なコヒーレント回折パターンを優れた 信号対雑音比で検出するための光源・集光性能の向上に加



Fig. 2 (a) SACLA で取得した200 nm の SiO₂ ビーズ由来のコヒーレント回折パターン。(b) 位相回復計算を適用し 再構成を行った試料像。

え、MLEA チップに膜タンパク質を埋め込む機構を開発 することが必要である。本研究では、人工脂質膜形成技 術²⁾を応用し、PCXSS 法による膜タンパク質の観察を可 能にする脂質二重膜マイクロチャンバーを MLEA チップ 内に開発した。さらに、開発した脂質二重膜マイクロチャ ンバーを試料ホルダとして用い、XFEL 施設 SACLA³⁾に おいてコヒーレント回折パターンの取得実験を行った。

MLEA チップ中のマイクロチャンバーはフォトリソグ ラフィ技術を用いて作製した。アモルファスフッ素樹脂 CYTOP, ポジ型フォトレジストOFPR-5000の順に MLEA チップにスピンコーターを用いて塗布し、チャン バーとなる位置のレジストを露光,現像した。その後,露 出した部分の CYTOP を酸素プラズマでエッチングを行 い,親水性の MLEA 表面を露出させた。レジストを除去 した後のCYTOPは疎水性であり、この疎水性/親水性の 構造がマイクロチャンバーとなる。脂質二重膜は水、リン 脂質入りのクロロホルム、水の順に溶液をマイクロチャン バー上に連続で流すことで作製可能である。脂質二重膜マ イクロチャンバー内に蛍光色素 Sulforhodamine B を封入 し、蛍光顕微鏡で観察を行った結果を Fig. 1 に示す。マイ クロチャンバー位置に局在した蛍光は、脂質二重膜が形成 されたことを示している。次に、脂質二重膜マイクロチャ ンバーに膜タンパク質であるαヘモリシンを埋め込み, 活性の評価を行った。マイクロチャンバー内に蛍光色素 Alexa488を封入し、αヘモリシンを脂質二重膜に埋め込 んだ後、蛍光顕微鏡を用い観察を行った。その結果、脂質 二重膜に埋まったαヘモリシンのチャネルによる蛍光色 素の拡散を確認できたため、活性を保った膜タンパク質を 脂質二重膜に埋めることに成功したと言える。最後に、開 発した脂質二重膜マイクロチャンバーを PCXSS 測定に用

いることができるかを検証するため、チャンバー内に大き

さが既知である直径200 nm のSiO₂ビーズを封入し, SACLA にてコヒーレント回折パターンを取得した(Fig. 2a)。取得したコヒーレント回折パターンに位相回復計算 を適用し試料像を再構成した結果,試料として用いた SiO₂ビーズのサイズや形状と整合性のある試料像を得る ことに成功した(Fig. 2b)。すなわち,脂質二重膜マイク ロチャンバーが PCXSS 測定に利用可能であると実証でき た。今後は現在開発中である,より集光度を高めた XFELを用いて脂質二重膜マイクロチャンバーに埋め込 んだ膜タンパク質由来のコヒーレント回折パターンの計測 を目指す。

参考文献

- 1) T. Kimura *et al.*: Nat. Commun. 5, 3052 (2014).
- 2) R. Watanabe et al.: Nat. Commum. 5, 4519 (2014).
- 3) T. Ishikawa et al.: Nat. Photon. 6, 540 (2012).



JSR2017学生発表賞に選出して頂き,大変光栄に思います。本 研究を進めるにあたり,多くの方にお力添えを頂きました。日 頃よりご指導頂いている西野吉則教授をはじめ,木村隆志助 教,鈴木明大助教,並びに共同研究者の方々に心から感謝申し 上げます。本賞を励みに,今後もより一層研究に邁進していき ます。

JSR2017学生発表賞 第3分野

受賞	資者 :	山田純平(発表番号3F001)
題	目:	: 小型かつ大倍率を実現する X 線結像ミラー光学
		系の開発
講演	観者 :	:山田純平1,松山智至1,安田周平1,香村芳樹2,
		矢橋牧名²,石川哲也²,山内和人¹
所	属:	1大阪大学大学院工学研究科,2理研放射光科学総
		合研究センター

1. はじめに

結像型 X 線顕微鏡では,用いる結像素子がその性能を 大きく左右する。Fresnel Zone Plate (FZP)を結像素子に 用いた結像型 X 線顕微鏡の開発例¹⁾では~12 nm の空間分 解能を達成したと報告されているが,FZP は原理的に色 収差の影響を無視することができない。これに対し我々 は,全反射ミラーが色収差の問題を解決し得ることに着目 し,Advanced Kirkpatrick-Baez (KB)ミラー結像光学系²⁾ を用いた結像型 X 線顕微鏡の開発を行ってきた。これま でに,色収差無く50 nm の空間分解能を達成している³⁾。 Advanced KB ミラー光学系では,楕円・双曲形状を持つ 2 枚の凹ミラーペアを2 組,互いに直行直列配置すること で2 次元結像を実現している。しかしながらこの光学系 では,適切な拡大倍率を得るために約50 m の長いミラー-カメラ間距離が必要であった。

この問題を解決すべく,我々は小型かつ大倍率が実現可 能な楕円凹・双曲凸ミラーによるX線結像光学系を提案 し,計算機シミュレーションによりその有効性を確認して きた⁴⁾。本稿では光学系の解説とSPring-8 BL29XUL に て実施した実証実験について報告する。

2. 楕円凹・双曲凸ミラーによる X 線結像光学系

本光学系では,楕円凹ミラーと双曲凸ミラーのペアを2 対,互いに直行直列配置している(Fig.1(a))。倍率の決 定基準となる焦点距離は,焦点から主面までの距離で定義 される。主面は光学系に入射する光線と出射する光線の延 長が交わる面で与えられる。このため本光学系では,Fig. 1(b)に示すように,光学系の主面が物点側に近づき,拡大 倍率が飛躍的に向上する。1次元的には楕円と双曲の幾何 学的焦点が一致しているため,光路長一定の条件且つアッ べの正弦定理を近似的に満たしており,球面・コマ収差が ほとんど存在しない。

今回開発した1次元結像光学系は、約2mの全長においても321倍の大きな倍率、かつ1.6×10⁻³の開口数を有している。このため小型なセットアップながらも10keVにおいてSub-50 nm分解能の達成が見込まれる。楕円凹,双曲凸ミラーはそれぞれミラー長8.2,8.6 mmである。ミラー作製には独自に開発したイオンビーム加工システム⁵⁾を用い、2 nm peak-to-valley (PV)の形状精度で作製を完了した。







Fig. 2 X線のエネルギー10 keV における実験結果。(a)ワイヤス キャン法により得られた PSF。(b)グレーチング干渉計に より得られた反射波面誤差。

3. SPring-8 における実証実験と結果

作製した1次元結像ミラーを用い, SPring-8 BL29XUL にて縮小結像による実証実験を行った。本実験では、10 keVのX線を用いて、10 µm幅の仮想光源が縮小結像 (集光) され,結像ミラーの主面から6.5 mm の位置に像 を結ぶ。縮小像サイズは幾何倍率により約30 nm に,回折 限界により約40 nm に制限される。そこでまず縮小像プロ ファイル,即ち結像ミラーの point spread function (PSF) をワイヤスキャン法により評価した。結果を Fig. 2(a) に示 す。従来型の光学系の場合には幾何倍率により約100 nm に制限される集光径を突破し、ほぼ回折限界条件下で半値 幅42.7 nmのPSFを取得した。また集光後,発散するX 線に対して Single-grating 干渉計⁶⁾を構築し,波面誤差を 計測した。Talbot 次数0.5,格子周期2.5 µm, 焦点-格子 間距離25.7 mmの条件で、25ステップ縞走査法により取 得した波面誤差を Fig. 2(b) に示す。計測された波面誤差に はコマ収差に由来する3次関数形状はほとんど存在せ ず,全体としても PV 値でλ/4 程度であった。この結果 からも高精度に光学系が構築されたことが示された。さら に実験では+/-0.7 mrad ずつ入射角を変化させながら波 面誤差を計測したが、ほぼ変化は見られず、広い視野に渡ってコマ収差の無い結像が可能であることを確認した。中 周期の特徴的な波面誤差は、ミラー上の空間波長0.1-0.3 mm 領域の形状誤差に起因している。この高周期形状誤差 を1nm レベルまで修正することが、高分解能顕微鏡の構 築へ向けた喫緊の課題となる。

以上のように,従来までの倍率の制限を突破できる本手 法を用いれば,全反射現象の色収差無し・高効率といった 特徴を持つ高分解能 X 線結像顕微鏡を汎用的に利用する ことが可能となる。また本実験のような集光光学系として も,短い全長でナノ集光を達成できるという特徴を活か し,次世代放射光のビームライン開発に貢献していくこと を期待する。

参考文献

- 1) W. Chao et al.: Opt. Express 17, 17669 (2009).
- 2) R. Kodama et al.: Opt. Lett. 21, 1321 (1996).
- 3) S. Matsuyama *et al.*: under revision.
- 4) J. Yamada et al.: Appl. Opt. 56, 967 (2017).
- 5) J. Yamada *et al.*: Rev. Sci. Instrum. 86, 093103 (2015).
- 6) S. Matsuyama et al.: Opt. Express 20, 24977 (2012).



山田純平

大阪大学大学院工学研究科精密科学·応 用物理学専攻博士後期課程1年 [略歴]

2014年3月大阪大学工学部応用自然科 学科卒業。2016年3月大阪大学大学院 工学研究科精密科学・応用物理学専攻博 士前期課程修了。2016年4月より同博 士後期課程に在籍。日本学術振興会特別

研究員 (DC1)。 **[受賞のコメント]**

JSR2017学生発表賞という大変名誉ある賞を頂きまして,心よ り光栄に存じます。これもひとえに御指導を頂いている山内和 人教授,松山智至助教のおかげであり,この場を借りて厚く御 礼申し上げます。また共同研究者である理研の石川哲也セン ター長,矢橋牧名グループディレクター,香村芳樹ユニット リーダー,並びに共に実験に取り組んだ阪大の安田周平氏,徳 岡郁美氏に深く感謝申し上げます。本賞を励みに,今後もより 一層精進致します。