

粉末・単結晶回折分科会 主査 木村 宏之 (東北大学)

粉末・単結晶回折分科会副査 神山 崇 (KEK)

有馬 孝尚 (東京大学)

森 初果 (東京大学)

鈴木 昭夫 (東北大学)

八島 正知 (東京工業大学)

亀卦川 卓美 (KEK)

永井 隆哉 (北海道大学)

### § 1 はじめに

本装置SENJUは大強度パルス中性子源を用いて結晶構造解析と磁気構造解析を行うための中性子単結晶回折装置であり、J-PARC MLFのBL-18に設置された。MLFにおけるSENJUの位置付け (設置目的) は

1. 単位格子50Å以下の低分子有機化合物や磁性物質の微小 (0.5mm角以下) 単結晶を用いた結晶および磁気構造解析。

2. 温度、磁場、圧力、電場、光 (レーザー) 照射などの多重極限環境下での構造解析および局所構造解析。

である。

本装置の設置から5年を経過したため、下記の項目に従って中間評価を行った。

### § 2 装置の建設、維持および技術開発などに関する事項

・前述の設置目的のうち、1. についてはある程度確立されてきたと思われる。限られたビームパワー、ビームタイム、スタッフの中で、ここまで実現したことは非常に高く評価できる。2. についても、バックグラウンドの低減をはじめとした技術開発も概ね計画通りに進んでいる。特殊環境下での微小単結晶回折という、汎用構造解析と差別化を図った完成度の高いビームラインを建設し、維持していると評価できる。

・ユーザー数の拡大により様々な実験環境の整備が進められ、当初目指していた低温、高温、高圧、磁場下などの多重極端条件下での「回折実験」はできるようになってきたことは高く評価できる。高精度の構造解析 (例えばMEM、フーリエ合成などによる原子核密度イメージング) にはまだ至っていないが、これは、ゴニオの精度が悪い、ソフトウェアが使いにくい、TOF法の強みである短い面間隔d領域のデータを十分に構造解析に生かすことができていない、などが理由であろう。今後の技術開発が望まれる。更なるS/Nの改善による定量性の向上や、MEMなどを組み合わせた解析技術の確立も期待したい。d値の小さいところでの消衰効果や吸収補正など、きちんと標準データを取得して補正の最適化、およびそのためのソフトウェア開発を行ってほしい。特に解析技術に関しては、専任のスタッフなどを配置するなど、抜本的な組織改革についても検討する必要があると思われる。

・ガイド管設計、回折装置本体、検出器選択が適切であった。代表者をはじめ先行していたiBIX開発の一翼を担ってきた研究者獲得とJAEAの中性子基盤セクションが進めていた検出器などの技術を活用し、結晶学を専門とするポスドクが集中して、この技術をSENJUに導入できた点も大きく、評価できる。

### § 3 当初計画に対する装置性能の達成度 (世界の類似装置を含めた位置づけを含む)

・同一施設内の専用ビームラインであるBL3 (iBIX) とは異なる性能を有し、すでに実験室X線で使用するサイズ、即ち0.1 mm<sup>3</sup>の微小単結晶試料での構造解析が実現しており、当初の目標を達成している。

その結果、これまで中性子では不可能であった様々な試料における構造解析ができています。今後、加速器の出力が1MWになれば、更に小さい単結晶での構造解析も視野に入り、世界に類を見ない構造解析装置になると期待できる。

- ・低温・磁場・高圧といった極端条件の試料環境整備については目標の数値には達していないが、振動コリメータ等の導入により、通常の課題を実施するには十分となっており、総合的な達成度は高い。現状では、「磁場+低温」、「高圧+低温」などで成果が上がっているが、今後、更なる整備を行って、超低温、超高圧、超高温、光照射などの多重場の拡張を目指してもらいたい。偏極中性子を用いた測定・解析技術の開発も磁性研究においては極めて重要であり、実現を期待する。

- ・世界の類似装置として生物用、構造物性用の7台が提示されているが、TOF回折装置との比較だけではなく、角度分散型回折装置を含めて比較し、本装置の有用性、独創性、革新性について示してもらいたい。

- ・散漫散乱などによる局所構造解析も本装置のターゲットになっているが、まだ解析法も含めて発展途上である。パワーユーザーを呼び込むことも検討するべきである。

- ・現状、構造解析の精度の指標である、R因子は5%~10%の間である。このレベルではMEMやフーリエ合成などのイメージングには十分耐えられない。前述の通り、消衰効果や吸収補正、試料のハンドリングなど、更なる改善が必要である。

#### § 4 利用者支援に関する事項

- ・1つの一般課題に対して装置グループから担当者を2名（主担当と副担当）を割り当てて測定計画、測定実施、データ処理と構造解析まで多岐にサポートしており、利用者への支援が手厚く行われていることは評価できる。一方、装置の特殊性や未経験ユーザーの受け入れのため、実験のセットアップから構造解析までをサポートする必要があり、支援スタッフの負担がかなり大きくなっている。支援スタッフ自身もSENJUを使ったサイエンスおよび構造解析技術開発を推進するべきであり、そのために人員の確保、マシンタイムの確保が必要であると考えます。

- ・講習会などを開催し、多くのユーザーの底上げを図ると共に、装置に習熟したパワーユーザーを育てていく努力も必要では無いか。そうして育てたパワーユーザーには、マシンタイムを優遇するなどの思い切った取り組みがあっても良い。ユーザが自力で実験を遂行できるような、ハードとソフトの整備に関してサポートが必要である。

- ・解析ソフトウェアの開発とそのソフトウェアのユーザーへの支援は、成果に繋げるためにも極めて重要で、そのための専門スタッフを雇用しても良い。

- ・成果の創出には、実験時のサポートのみならず、実験後の解析のサポートも重要である。人員を増やして現場作業の負担を減らし、効率化を図り、解析から成果創出（論文発表）までのサポートを手厚くする必要はある。

#### § 5 得られた成果に関する事項

- ・Nature Comm. などの高IF誌を含め、原著論文を10報ほど出版している。単結晶中性子構造解析ならではの成果が出ている。しかしながら、成果の数はまだまだ物足りない印象である。原因調査と改善が必要だが、その為の対策などに報告書に記載がなかったのが残念である。今後、ビームパワーの増大に伴ってさらなる成果創出が期待されるが、そのためには、サポート体制のいっそうの充実が望まれる。論文の出版などの成果に関して短期、中期および長期の数値目標を立てて、それを実現し、世界で最も成果が上がっている単結晶中性子回折装置を目指すべきである。

- ・ビームタイムや強度に問題があるのは理解できるが、低温・高圧・磁場各装置の配分バランスが均等過ぎるのも気になる点で、総花的な課題実施を行っているのであれば、インパクトのありそうな課題（或いはインパクトを与えられる研究提案をしているユーザー）に対して集中的にマシンタイムやサポートを行うなどの工夫も必要であると思われる。

- ・論文になった課題のほとんどは一回の実験（一発勝負）で行われた課題である。一発勝負を強いられる状況が、成果が少ない原因であるとともに、BL18を用いた研究で学位論文が少ないことにも繋がっており、改善が望まれる。

- ・装置スタッフが責任者として主導しているサイエンスが成果として増えてきてほしい。成果創出には、ユーザーの拡大と内部スタッフの研究環境充実の両輪が必須である。

## § 6 今後の装置運営・管理・高度化および学術研究テーマに関する事項

・スタッフの異動や不幸が重なり、現状、スタッフの数がとても不足している。一刻も早く人員の補充が必要である。ユーザーの多くが未経験者で、実験から解析までの手厚いサポートが必要で、マンパワーが足りていない。現状ではほぼ全てのスタッフがユーザーサポートを行っているが、スタッフの役割をもう少し明確に区別して、それぞれの役割に集中できる体制を作るべき。その意味では人員の補充ではなく、拡充が必要である（これは施設側への要望である）。

・下方向の90度散乱角近傍の検出器の増設は回折データの取得効率を飛躍的に向上させられるので、導入を積極的に進めてほしい。更に、ゴニオメーターの精度を上げることで、小さいd領域のデータを構造解析で利用できるような改善が必要である。装置の試料環境制御装置の開発については的確な目標が設定されている。測定温度をさらに高くする、雰囲気と同時に制御するということを検討しても良い。

・データの定量性については、S/Nの向上や補正技術など、まだまだ開発・向上の要素があると思われる。構造解析の一つのゴールとして、原子核密度分布の可視化（或いはもっと進んでスピン密度分布の可視化）があると思われるが、これを目指す上で、高い確度・精度を持つデータの取得（あるいは処理）は必須である。偏極中性子フィルターの導入による磁気構造解析は、放射光ではできない、中性子ならではの手法であり、これも必ず実現されるべき事項である。

・学術研究テーマについては、提案されているテーマ（局所構造解析、複雑（長周期）磁気構造解析、イメージング）を是非進めていただきたい。更に、放射光やミュオンなど、他の量子ビームとの相補利用を高度化させるプロジェクトなども是非立ち上げていただきたい。

・3次元イメージングや、3次元局所構造解析など、単結晶構造解析から新たな手法への展開など意欲的な計画が描かれていることは評価できる。優れたサイエンス、魅力的なサイエンスを持ったユーザーを世界中から取り込んで、世界の構造科学を牽引して行って欲しいし、そのポテンシャルは十分にあると考える。

・スタッフによって個々に外部資金が獲得されているが、継続的な高度化のためには、より大型の研究費獲得をスタッフ全員のみならず、ユーザーコミュニティも含めて検討すべき。資金調達に関して明確な戦略・ビジョンを持つべきである。

## § 7 施設への要望

・人員の早急な補充・拡充が必須。

・採択率が3割程度の、非常に人気が高い装置であり、採択数を増やすためには、一日も早いフルスペックでの安定したビーム運転の実現が必須である。

・成果創出のためのビームタイム追加配分や、人材育成（学位取得）のための継続的なビームタイム配分、装置スタッフ自身が推進する研究のための配分などビームタイム枠は不足気味である。現状の10%の装置裁量枠について、活用法の改善や枠の増加などを検討すべきである。

## § 8 総評

限られたビームパワー、ビームタイムにおいて、スタッフの不断の努力により装置建設が順調に進み、微小単結晶構造解析、及び多重極限環境下における構造解析の両方が、計画通り概ね達成されつつあり、これまでは実験不可能であった物質の構造解析もできるようになってきている。建設・維持スタッフの不断の努力に敬意を表したい。装置の維持および回折装置本体・試料環境デバイスの整備改良、新たなデータ処理法などの技術開発も着実に実行されており、現時点で既に海外の同系装置に全く引けを取らない優れた装置になっていると評価できる。

現在、スタッフの数が2名減の状態でもビームラインを運営しており、このままでは利用者支援に支障をきたす可能性が高い。早急に本来のスタッフ数を確保していただきたい。

今後、世界をリードする装置にして行くために、第一には、構造解析の精度を上げる、具体的には原子核密度分布のイメージングに耐えうる精度まで上げて行くことが必要である。そのための方策も既に検討事項に挙げられているので、着実に実行して行って欲しい。第二に、多重極限環境について、超低温、超高压、超高温、光照射などの多重場の拡張を進めて欲しい。これら以外にも、偏極中性子回折の実現、検出器増設等、多岐にわたる開発課題があるが、今後の計画に詳細が記述されており、

それに沿って進めていけば、世界でも類を見ない高性能の中性子構造解析装置になって行くと期待できる。

成果創出については、スタッフが自らサイエンスを提案し、それを実現する為の装置改良、高度化を目指して成果に繋げてもらいたい。また、論文の出版などの成果に関して、短期、中期および長期の目標を立てて行くことも検討に値すると思われる。

以上の評価から、本分科会では、SENJUIについて、今後も運営・管理を継続し、装置高度化、ビーム利用を進めて行かれるべき装置であると判断する。