

次世代放射光の計測データ解析

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(SRIS)

東北大学多元物質科学研究所

東北大学工学部機械系(協力講座)

東京大学工学部物理工学科(特定客員教授)

矢代 航

Acknowledgements

IMRAM, Tohoku University

X. Liang, C. Kamezawa, M.
Takahashi

M. Ageishi, T. Higuchi, H. Jinnai
Machine shop

Tokyo Gakugei University

W. Voegeli, E. Arakawa

*National Institute of Advanced
Industrial Science & Technology
(AIST)*

T. Shirasawa

JASRI (SPring-8)

K. Kajiwara

LASTI, University of Hyogo

T. Hattori, D. Noda

Tsukuba University

H. Kudo, K. Hashimoto, K. Fujii,
R. Ueda

Sumitomo Rubber Industries, Ltd.

R. Mashita, Y. Bito, H. Kishimoto

Saito Machine Industry Co., Ltd.

D. Kaneko

This research is supported by
JST CREST
AMED SENTAN

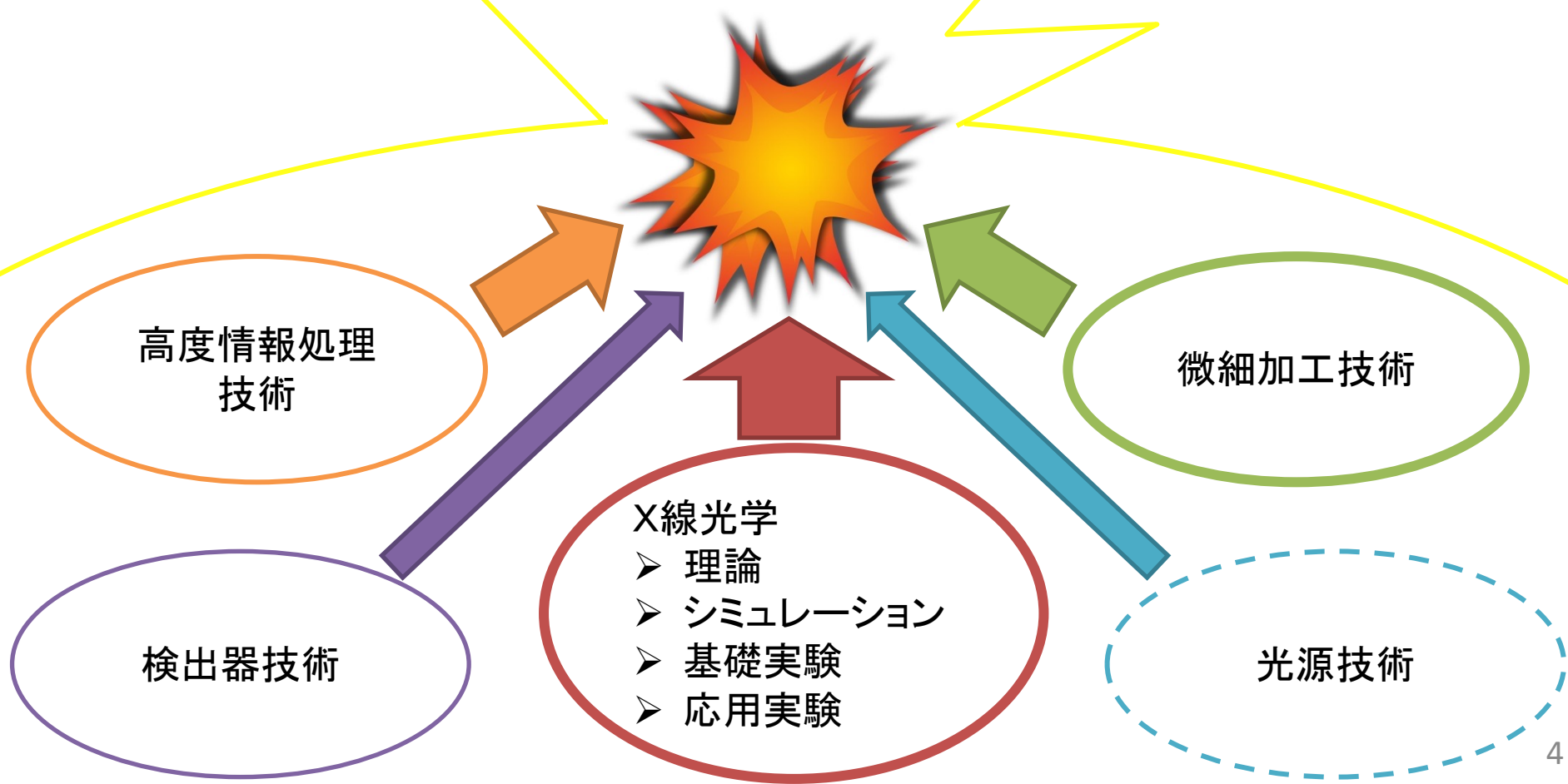
矢代航(やしろうたる) — 自己紹介



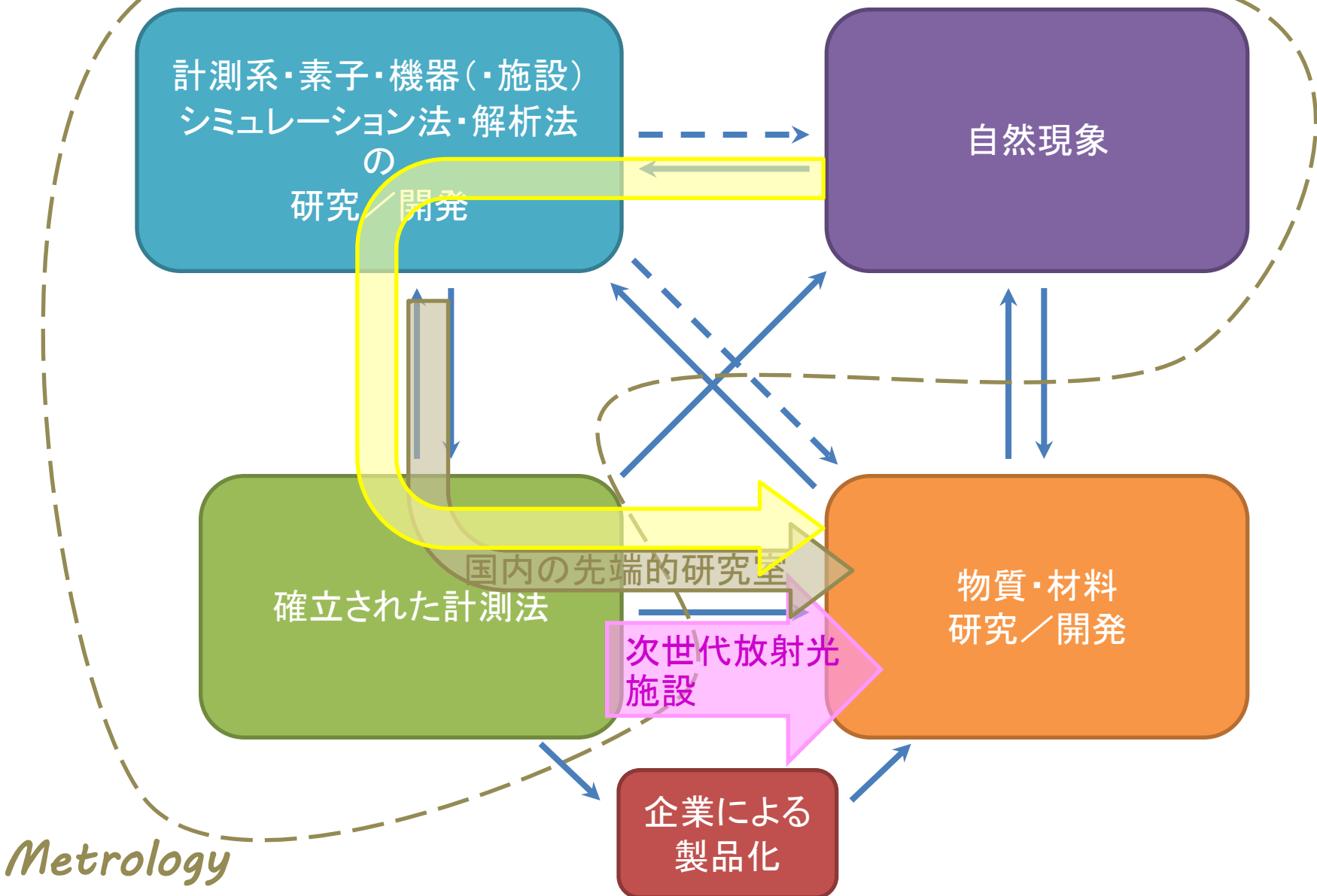
期間	所属	職名	主な受賞
1995～2000	東京大学大学院工学系研究科 物理工学専攻 (東京大学物性研究所(高橋(敏)研究室))	大学院学生	2000.3 博士号(工学)取得
		X線回折 (表面・界面構造解析)	↓
2000～2001	電気通信大学電気通信学部 量子・物質工学科(村田(好)研究室)	日本学術振興会 特別研究員(PD)	
2001～2004.12	産業技術総合研究所 ナノテクノロジー研究部門 物質・材料研究機構 ナノマテリアル研究所	特別研究員	日本放射光学会奨励賞(2005)
		微細加工 (結晶成長含む)	
2004.12～2012.6	東京大学大学院 新領域創成科学研究科	産官学連携研究員 助手 助教	コニカミノルタ 画像科学奨励賞(2011)
		X線イメージング	
2012.7～2021.3	東北大学 多元物質科学研究所 国際放射光イノベーション・スマート研究センター (2020.1～2021.3)	准教授	Himac(工機ホールディングズ)賞 (2018) 光設計優秀賞(2020)
	京都大学 客員准教授(2020.4～2021.3)		光・量子エレクトロニクス業績賞 (宅間宏賞)(2021)
2021.4～現在	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 多元物質科学研究所 大学院工学研究科ファインメカニクス専攻(協力講座)	教授	
	東京大学 特定客員教授(2021.4～現在)		

【資格】
第一種放射線取扱主任者免許
エックス線作業主任者免許 3

研究テーマ： 量子ビーム(主に硬X線)計測技術の フロンティアの開拓



計測法の開発

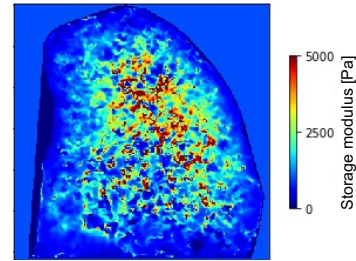


最近の研究紹介

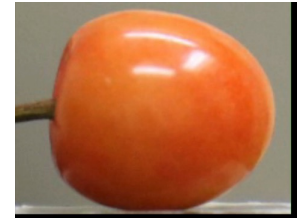
「一期一会」の4D世界の開拓

- ミリ秒時間分解能4DX線CTの開発
JST CREST (2017.10~2023.3)

「硬さ」(貯蔵弾性率)の3D可視化



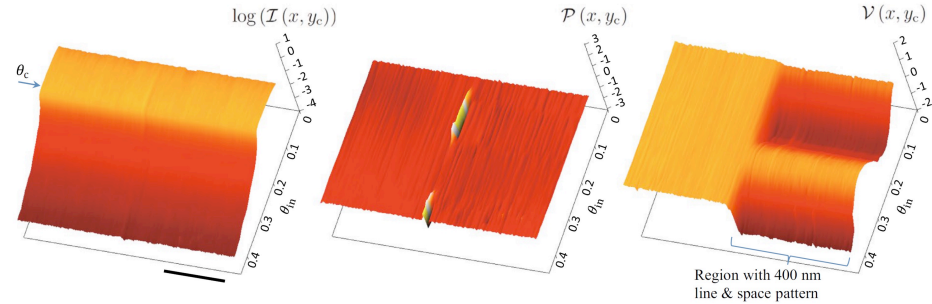
小角X線散乱(SAXS)コントラストイメージング



Opt. Express (2010) (引用件数:341)

- X線エラストグラフィの開発
AMED先端計測(2017.8~2020.3)
科研費基盤A(2021.4~2024.3)

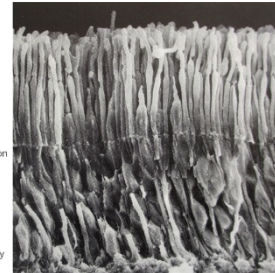
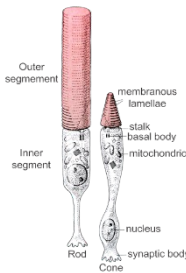
「各画素で」X線表面・界面構造解析



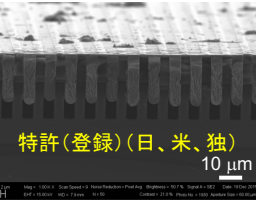
Sci. Rep. (2019) (日本光学会「2019年日本の光学研究」に選出)

- X線イメージングと構造解析の融合技術の開発

- 量子ビーム光学素子・システムの開発

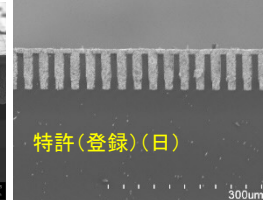


金属ガラスによる
冷熱中性子用回折格子



特許(登録)(日、米、独)

超遠心充填による
X線用回折格子



特許(登録)(日)

<http://www.eng.eyemds.co.il/index.php?dir=site&page=content&cs=3007>

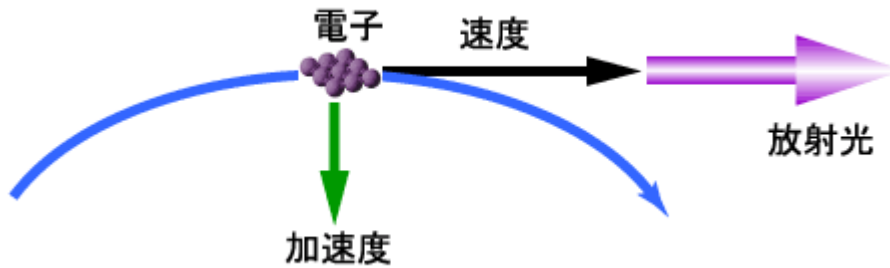
Himac賞(2018)

- 量子現象を利用したイメージング技術のフロンティアの開拓

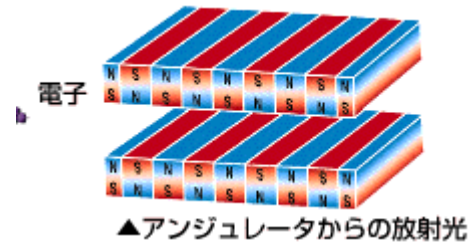
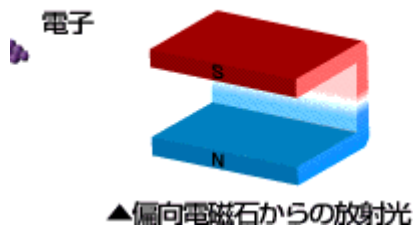
アウトライン

- 放射光とは？ SPring-8、NanoTerasu
- 放射光を活用した主な計測方法
- 放射光計測のデータ
- データ解析（イメージングの例）
- 現状の課題 & 将来展望（イメージングの例）
 - データ量の問題
 - データ解析の課題
 - 構造化データ・標準化
 - 将来展望
- まとめ

放射光とは？



制動放射：
荷電粒子が加速度運動をする
と電磁波を放出する現象



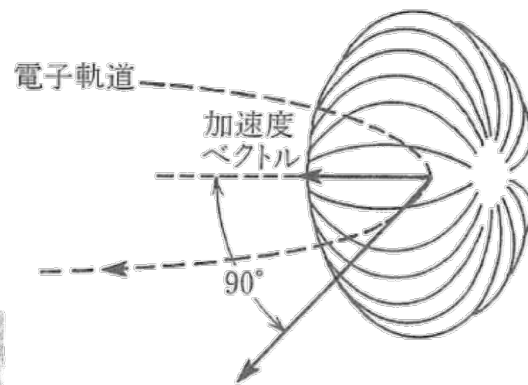
特殊相対性理論の効果で 「X線ビーム」になる

光速不変の原理

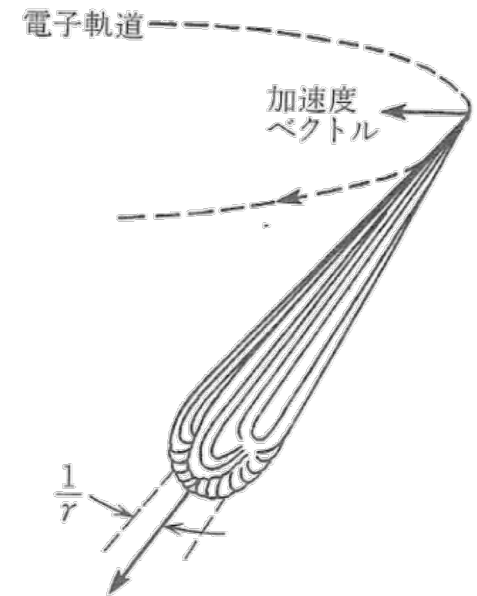
(どのような速度の系で光速を測定しても一定)

→『特殊相対性理論』

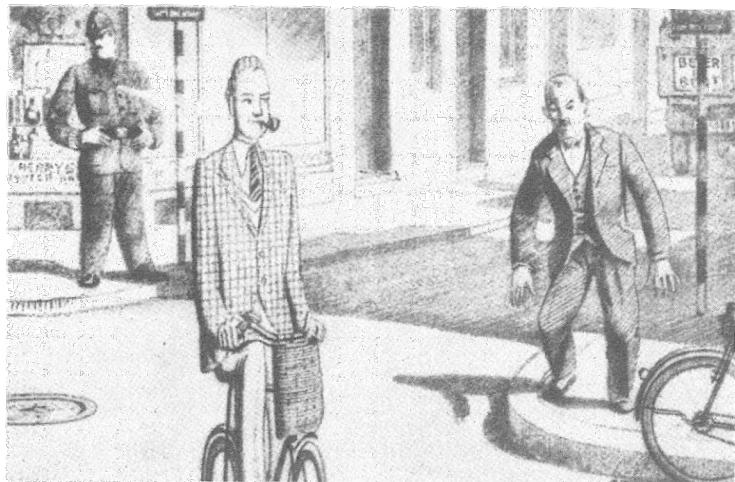
- 空間が縮む
- 時間の経ち方が異なる



非相対論的な場合



相対論的な場合
(電子が光速に近い速さで運動)
※Spring-8の場合: 光速の99.9999998%



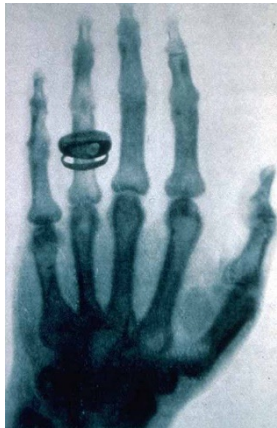
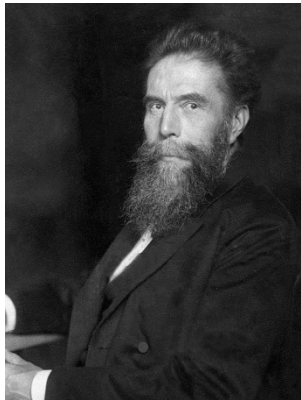
信じられないほど平たくなって。

ジョージ・ガモフ著「不思議の国のトムキンス」

X線とは？

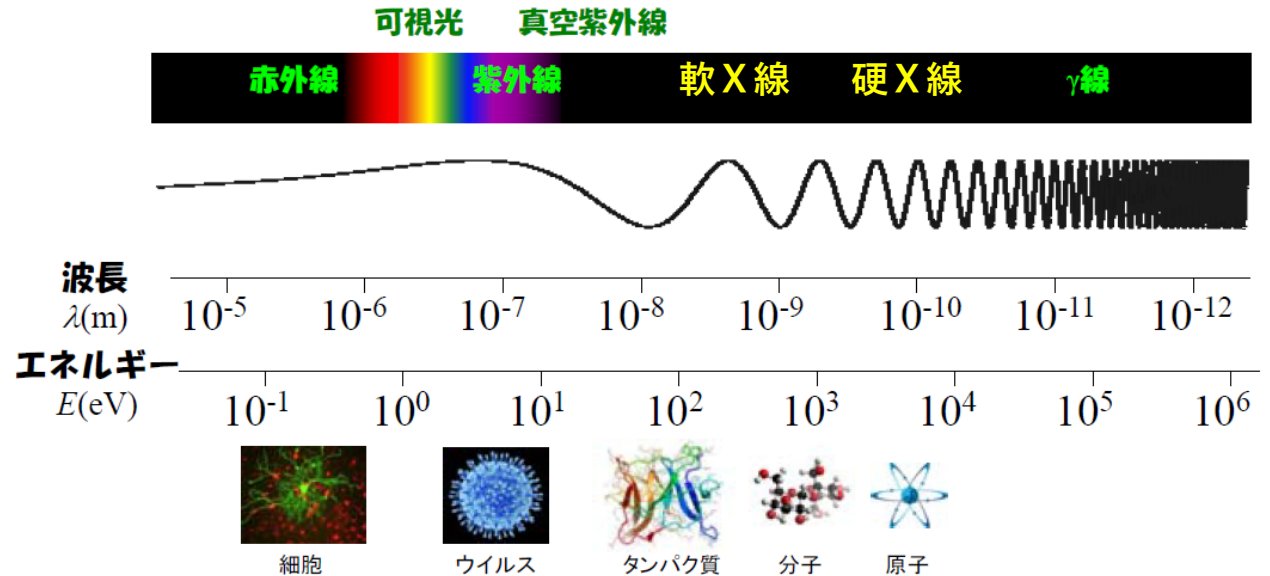
—波長が $10^{-8} \sim 10^{-11}$ m程度の電磁波—

1895年にW. C. Röntgenにより発見
(1901年にノーベル賞)

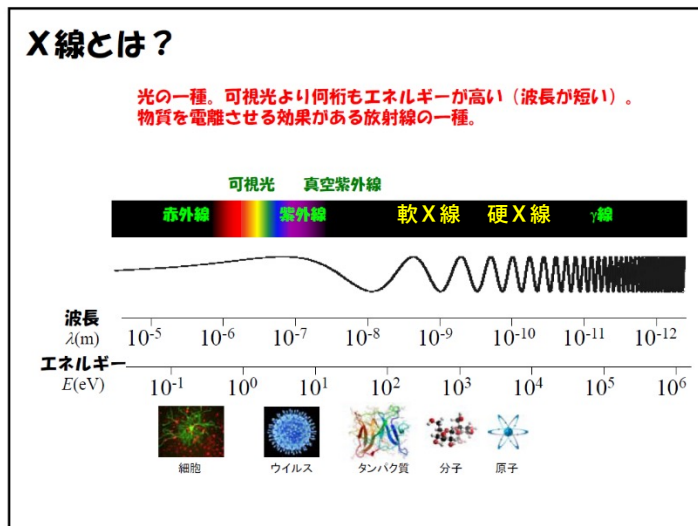


X線とは？

光の一種。可視光より何桁もエネルギーが高い（波長が短い）。
物質を電離させる効果がある放射線の一種。



軟X線と硬X線の違い



1 mm = 10^{-3} m

1 μ m(マイクロメートル(ミクロン)) = 10^{-6} m

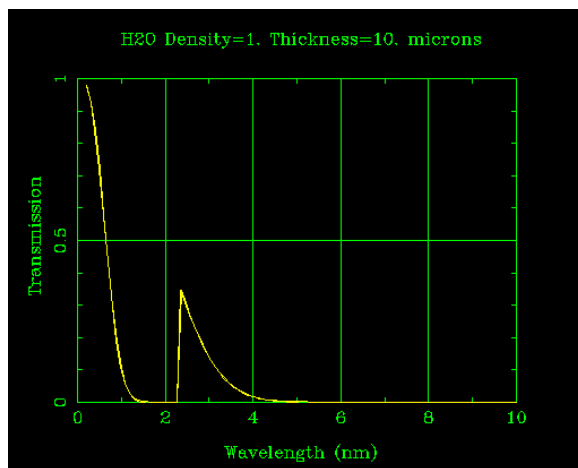
1 nm(ナノメートル) = 10^{-9} m

1 Å(オングストローム) = 10^{-10} m

軟X線 (ソフトX線)

透過率: 非常に低い(表面に敏感)

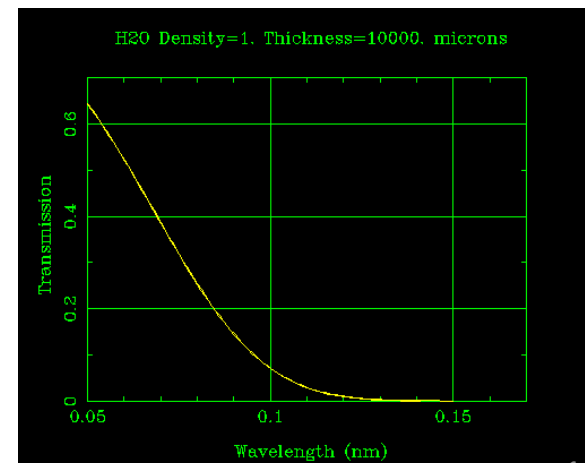
10 μ m厚の
水の透過率



硬X線 (ハードX線)

透過率: 高い(内部の観察が可能)

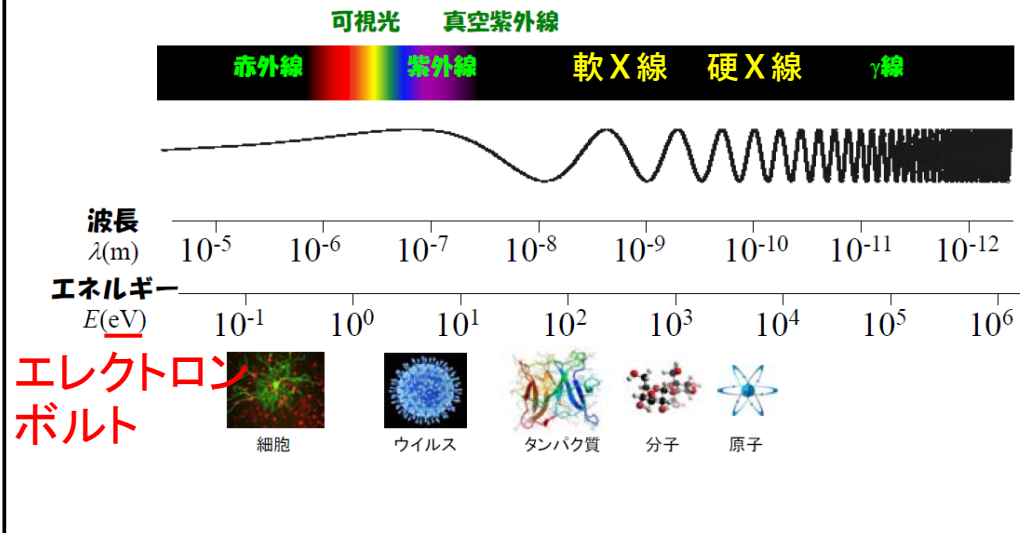
10 mm厚の
水の透過率



X線の波長とエネルギーの関係

X線とは？

光の一種。可視光より何桁もエネルギーが高い（波長が短い）。
物質を電離させる効果がある放射線の一種。



$$\lambda(\text{\AA}) = \frac{12.398}{E(\text{keV})} = \frac{12398}{E(\text{eV})}$$

λ : 波長
 E : エネルギー

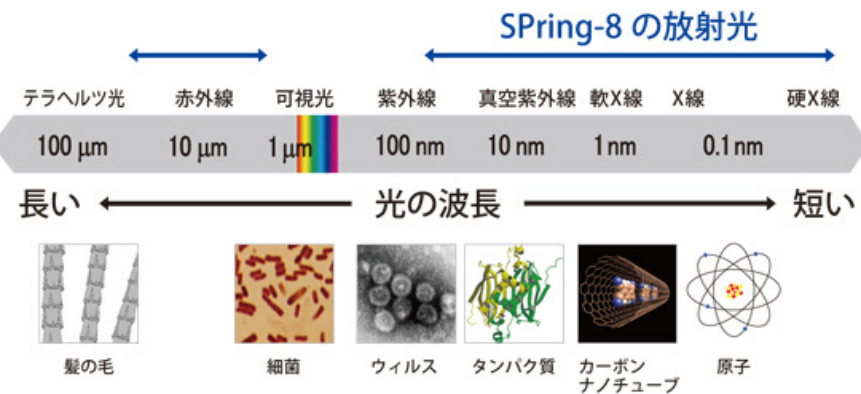
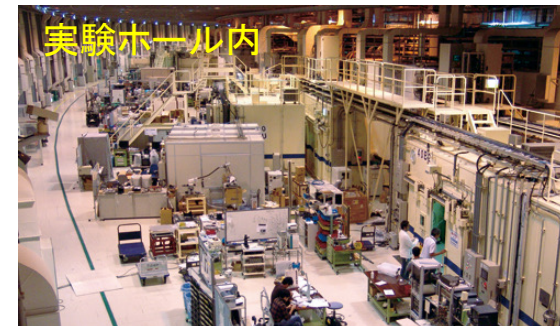
例えば

$$1\text{\AA} = 0.1\text{ nm} \rightarrow 12.398\text{ keV} = 1.2398 \times 10^4\text{ eV}$$

$$10\text{ nm} \rightarrow 1.2398 \times 10^2\text{ eV}$$

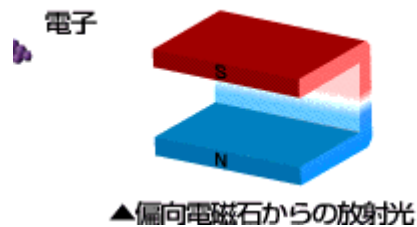
放射光施設 (SPring-8の例)

8 GeV (ギガエレクトロンボルト)
ほぼ光速で電子を周回

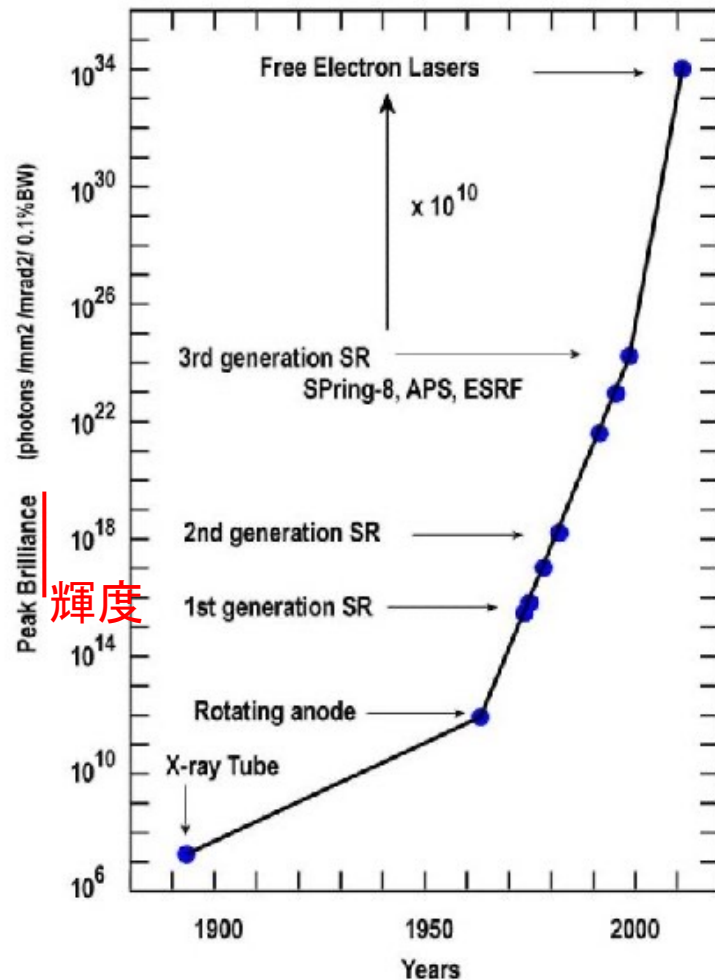
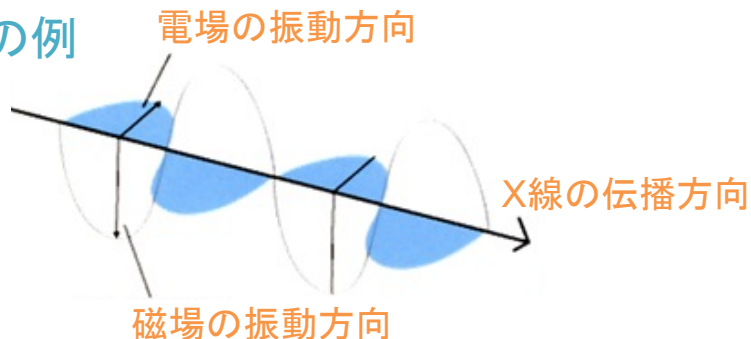


放射光の特徴

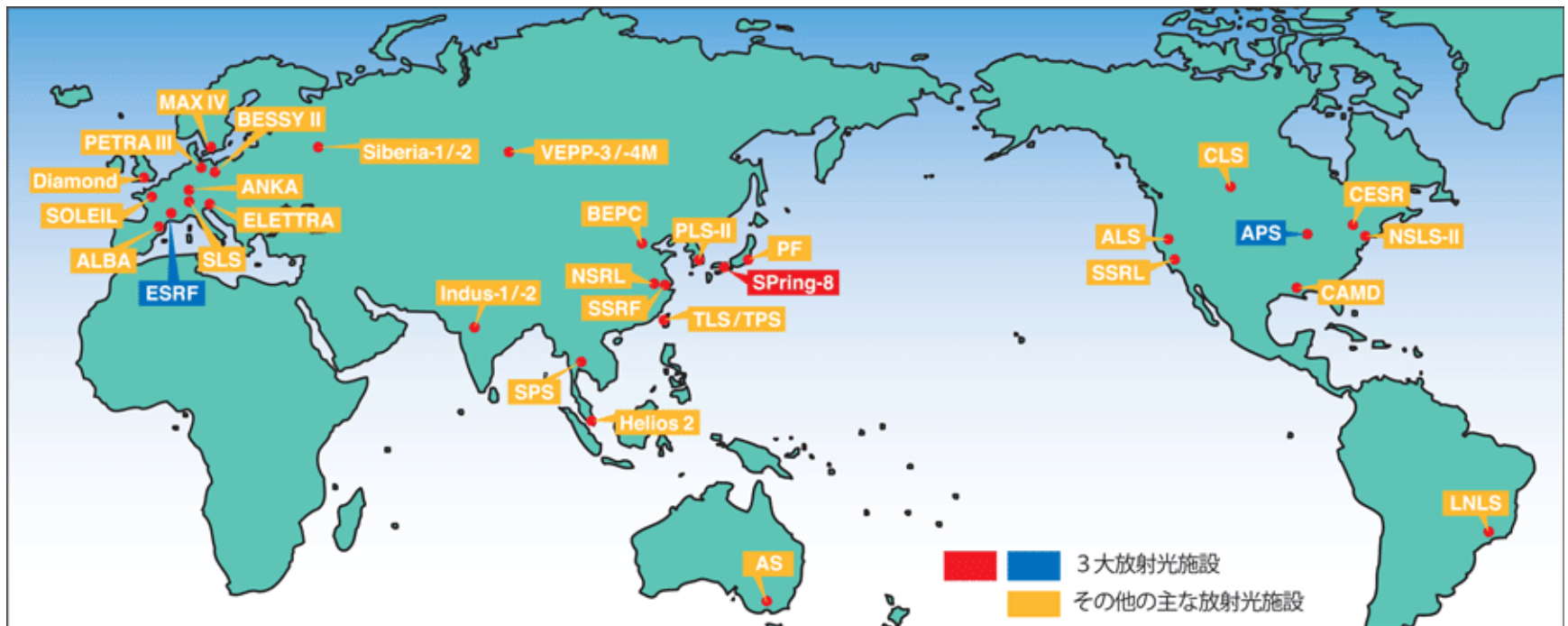
- 大強度
- 指向性 ← 特殊相対論的効果
ジョージ・ガモフ著
「不思議の国のトムキンス」
- 連続スペクトル(波長選択性)
- パルス性
- 偏光制御性



直線偏光の例



世界の放射光施設



日本の放射光施設



次世代放射光施設@東北大学青葉山新キャンパス (2024年度から運用開始予定)

Tohoku University in Sendai city, Japan



Location
-North-east of Japan,
in the Tohoku region
-Sendai-Tokyo: 352 km,
1h34min by bullet train



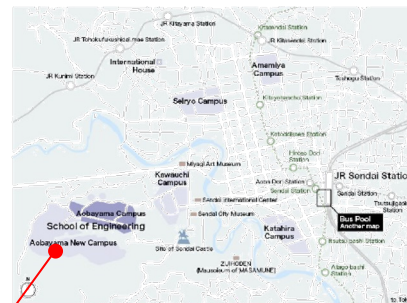
Size of Sendai
-Area: 783,54 km²=New-York city
-Population: 1,073,681
-Population density: 1 301 inhab/km²
; 1/5 of Tokyo
Latitude: 38°16' ; same as Athens, Palermo,
Sacramento, San Francisco,
Washington DC, Tianjin



東北大学 工学研究科・工学部
SCHOOL OF ENGINEERING, TOHOKU UNIVERSITY
Copyright © 2015 School of Engineering, Tohoku University. All Right Reserved.

Five campuses

Main Campus of Tohoku University is located in Sendai. Sendai is the largest city and the center of Tohoku district. It is about 350 kilometers north of Tokyo, a less than two-hour bullet train ride from the metropolis.



BUS
Buses leaves the bus terminal at the JR Sendai Station (bus stop No. 9) every 30 minutes for the 20- minutes trip to the "Kogakubu-chuo" bus stop in front of the School of Engineering. The fare from the station to the "Kogakubu-chuo" bus stop is 230 yen (as of 2014), paid when leaving the bus.

Taxi
You may take a taxi to the School of Engineering from Sendai Airport or Sendai Station. Fares are about 6,000 yen from Sendai Airport and 1,600 yen from Sendai Station. Taxi can be found at the taxi stands in front of Sendai Airport or Sendai Station.

東北大学 工学研究科・工学部
SCHOOL OF ENGINEERING, TOHOKU UNIVERSITY
Copyright © 2015 School of Engineering, Tohoku University. All Right Reserved.

New 3 GeV Synchrotron Facility
(under construction)



NanoTerasu (ナノテラス)

令和4年6月6日
一般財団法人光科学イノベーションセンター

【お知らせ】ナノテラス（次世代放射光施設愛称）の発表について

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構：QST（理事長：平野俊夫）と、一般財団法人光科学イノベーションセンター：PhoSIC（理事長：高田昌樹）は、官民地域パートナーシップにより仙台市の東北大学青葉山新キャンパス内に整備を推進している次世代放射光施設の愛称を発表いたしました。

次世代放射光施設愛称

- ・英語表記：NanoTerasu
- ・日本語表記：ナノテラス
- ・愛称選考理由：

NanoTerasu（ナノテラス）という愛称は、次世代放射光施設が研究や観察の対象としている、物質の「ナノ（10億分の1）の世界」を示し、さらに放射光がナノの世界を明るく照らして観察する強力な光であるという、施設の大きな特徴を良く表している。

また愛称応募者から「日本神話で世の中を照らす「天照大御神」（あまてらすおおみかみ）のように、この施設で行われる研究やその成果が、世界の学術や産業にも豊かな実りをもたらして欲しいという願いから付けた」という説明も選考された理由である。

- ・愛称応募者：甘利友朗 氏（埼玉県在住の会社員）

愛称披露式は、6月6日東北大学青葉山新キャンパスにおいて、文部科学省 田中秀之副大臣、宮城県 村井嘉浩知事、仙台市 郡和子市長、東北大学 大野英男総長、東北経済連合会 海輪誠会長らを迎え開催されました。

披露式では、応募総数 598 点の中から、「ナノテラス」を応募した甘利友朗さんに、愛称選考委員会の永宮正治委員長（理化学研究所研究顧問）より感謝状が贈られました。

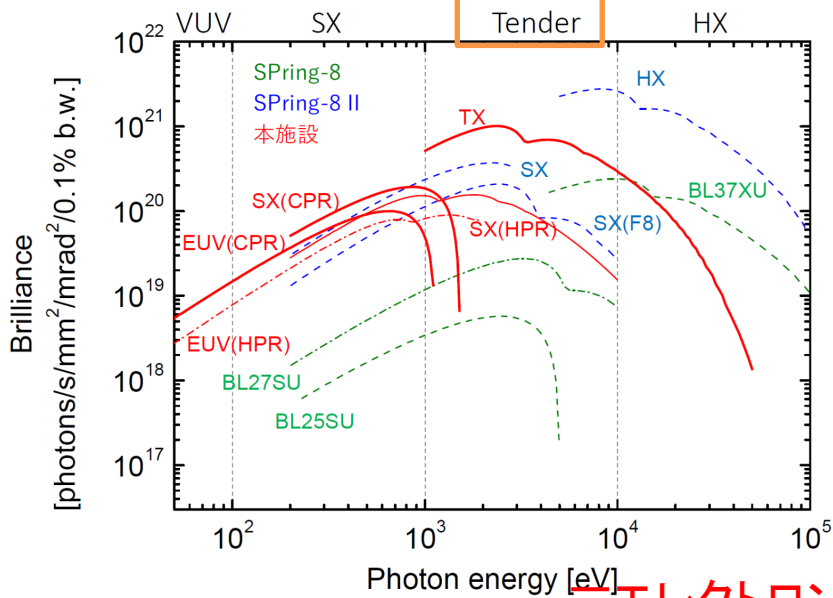
また披露式では、シンボルマークとロゴについても募集を開始する予定であることを発表いたしました。



次世代放射光施設の輝度

アンジュレータ

柔X線(テンダーX線)



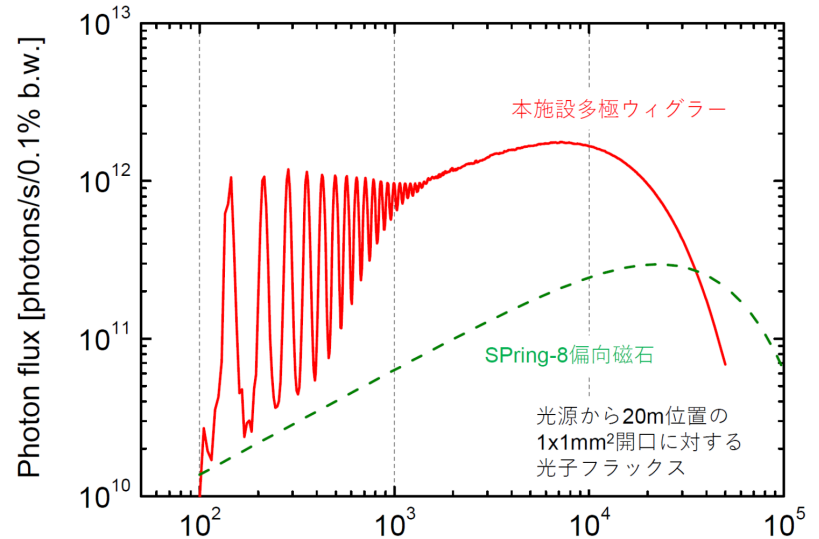
— エレクトロンボルト

$$\lambda(\text{\AA}) = \frac{12.398}{E(\text{keV})} = \frac{0.012398}{E(\text{eV})}$$

λ : 波長

E : エネルギー

多極ウィグラー



- 軟X線、テンダーX線領域で高輝度
- 硬X線領域で大面積 & 高輝度

例えば

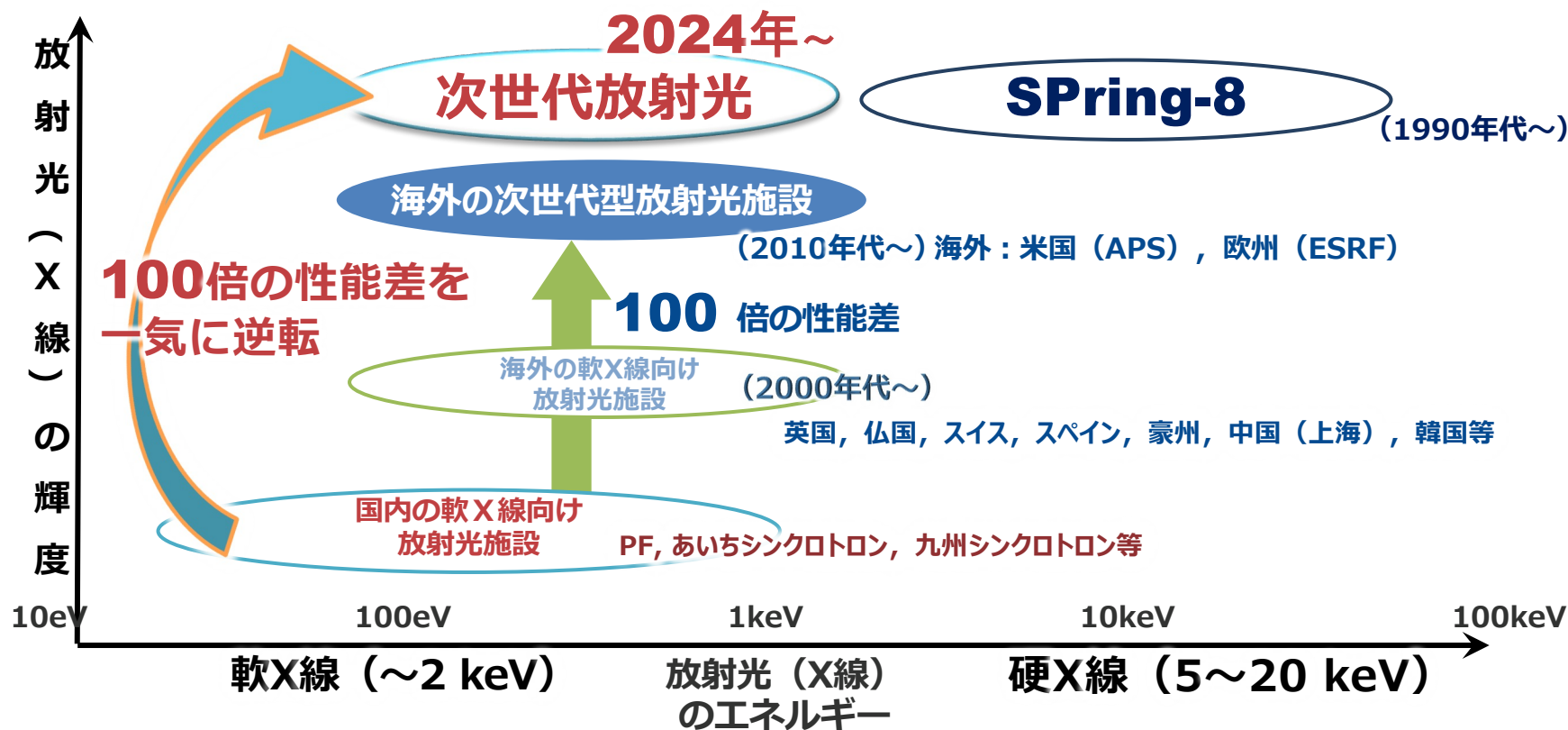
$$1\text{\AA} = 0.1\text{ nm} \rightarrow 12.398\text{ keV} = 1.2398 \times 10^4\text{ eV}$$

$$10\text{ nm} \rightarrow 1.2398 \times 10^2\text{ eV}$$

次世代放射光施設とSPring-8の比較

官民地域パートナーシップによる次世代放射光施設の推進

※輝度とは放射光の明るさ。輝度が高いと、様々なものがよりくっきりと見える。より短時間で、より微小な領域を、詳細に観察できる。

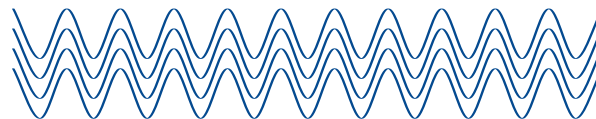


次世代の放射光光源とは？

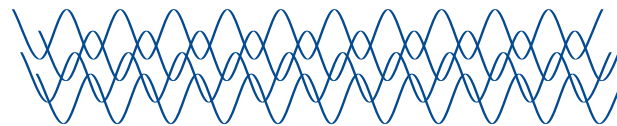
次世代の放射光光源の特長は、

1. 強度が高い（光子の数）
2. 輝度が高い（光の拡がり方が小さい，低エミッタンス）
3. 位相が揃っている成分多い（高コヒーレンス）

位相が揃っている光の波



位相が揃ってない光の波



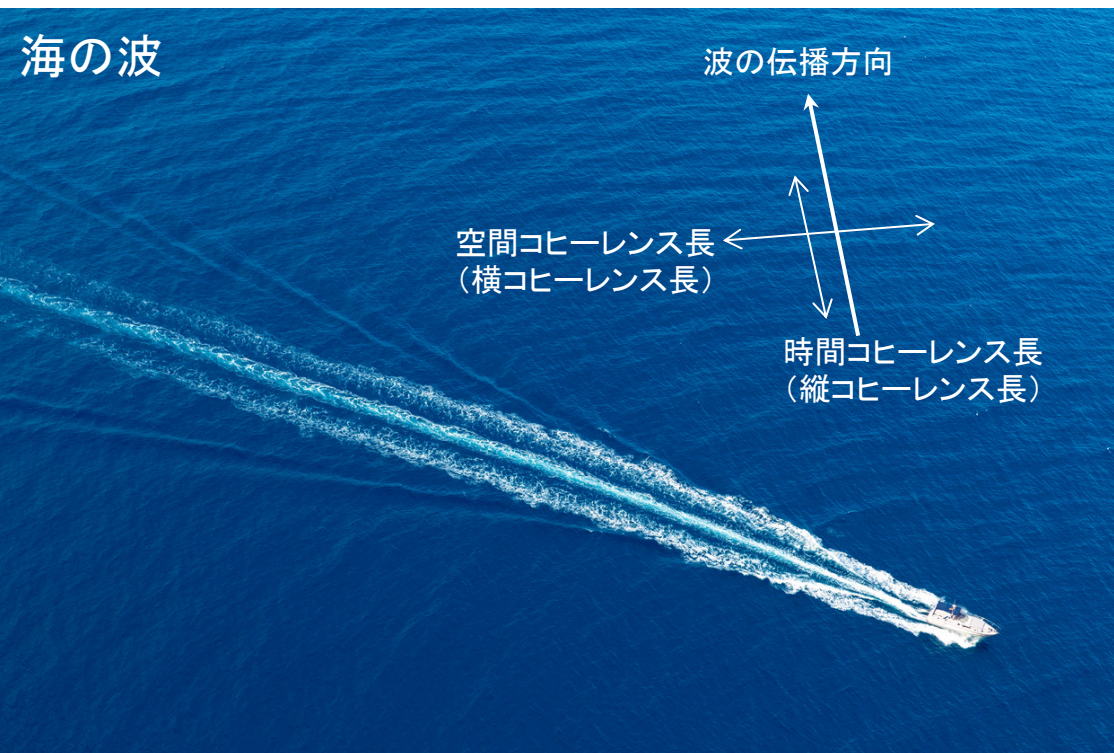
コヒーレンス(可干渉性)

波の山はどこまでも続く?

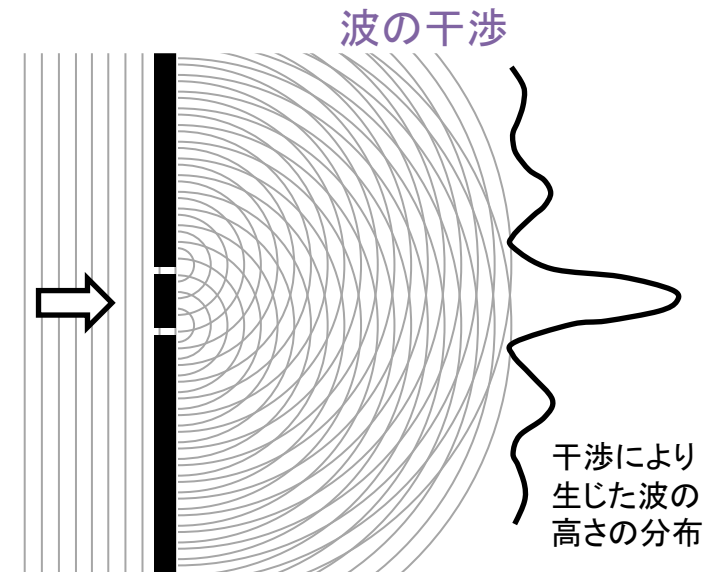
↓

No!

波の位相に相関があるのは、有限の距離内のみ
(遠くの波の位相はランダム) → 波連 (wave train)



なぜ必要?



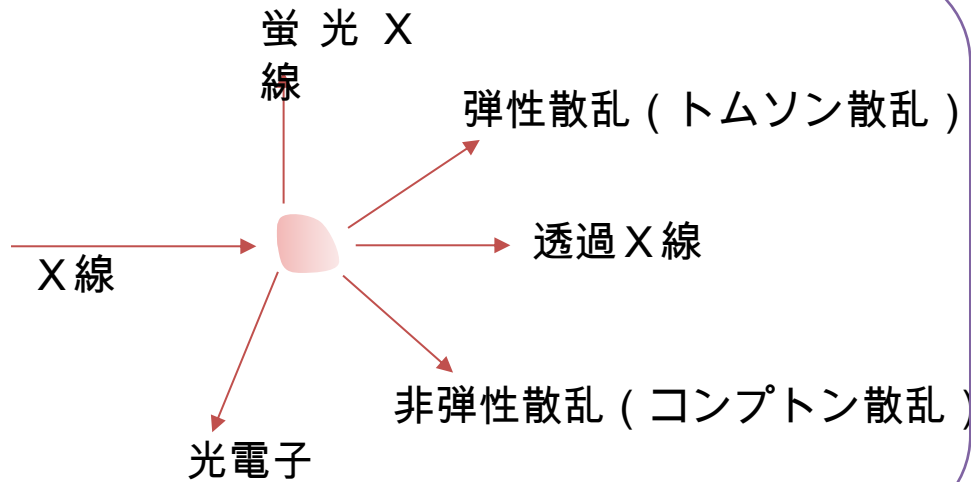
波面のそろった波を入射しないと
波の干渉パターンは生じない。

干渉パターンの「鮮明度
(Visibility)」から波のコヒー
レンス度が分かる。

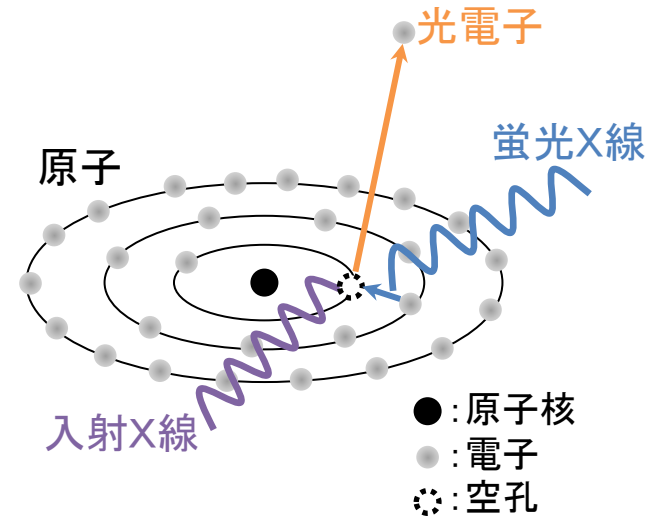
放射光を活用した主な計測手法

X線と物質（原子）との相互作用

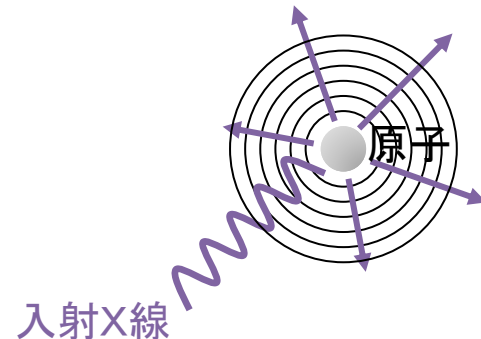
X線は基本的に原子の中の電子と相互作用する



光電吸収と蛍光X線 & 光電子放出



弾性散乱(トムソン散乱)



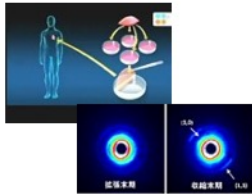
X線、電子、中性子(量子ビーム)

量子ビーム	主な散乱体	相互作用の大きさ	透過率
X線	電子	硬X線:小 軟X線:大	硬X線:大 軟X線:小
中性子	原子核 磁気モーメント	小	大
電子	原子核+電子 (ポテンシャル)	大	小

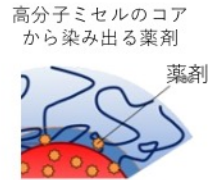
ミュオン、陽電子、レーザー、...

社会に貢献する放射光

生命科学

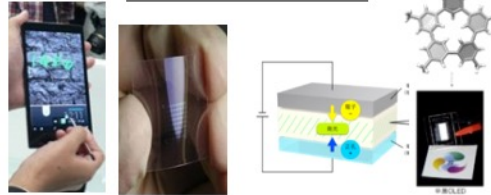


iPS細胞による心筋再生療法開発への応用
国立循環器センター
阪大 2015年



高性能なナノ粒子DDS開発の指針
北九州市大、慈恵医大等
2013年

物質・材料科学



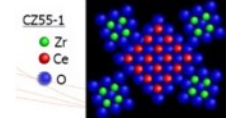
軟X線光電子分光によるIGZO製造プロセスの開発
東工大 2007年

単一層からなる有機ELダイオードの開発
東北大学 理研・JST
2015年

産業

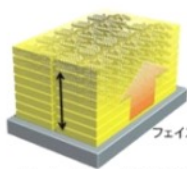


インテリジェント触媒の機能解明
ダイハツ 2003年

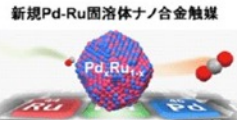


環境にやさしい高性能三元触媒を実用化
トヨタ 2009年

物理・化学

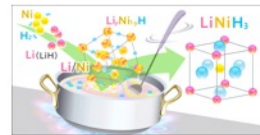


塗布型有機薄膜太陽電池の高性能化
理研・JST 2013年



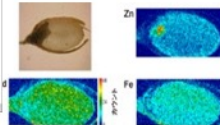
新規Pd-Ru固溶体ナノ合金触媒
人工ロジウムの開発に成功 ~価格は1/3に、性能はロジウムを凌駕
京大・JST 2014年

エネルギー・環境科学

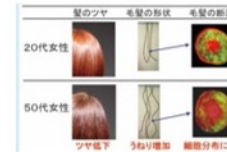


ペロブスカイト型水素化物の形成過程を解明

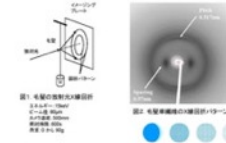
<水素>を利用した新たな機能材料の開発
東北大学 2013年



1ppmのCdを添加して栽培した玄米中のCd分布
東理大 2005年



ヘアケア商品「セグレタ」の開発
花王 2008年



くせ毛やうねりを素直な髪に変える機構解明
P&G 2006年



虫歯予防ガムの開発
江崎グリコ 2010年



軽量気泡コンクリート建材の高品質化
旭化成 2009年

放射光の利活用例

http://www.slitj.tagen.tohoku.ac.jp/outline/application_list.html

を理解するための基礎知識

放射光を利用した主な計測手法

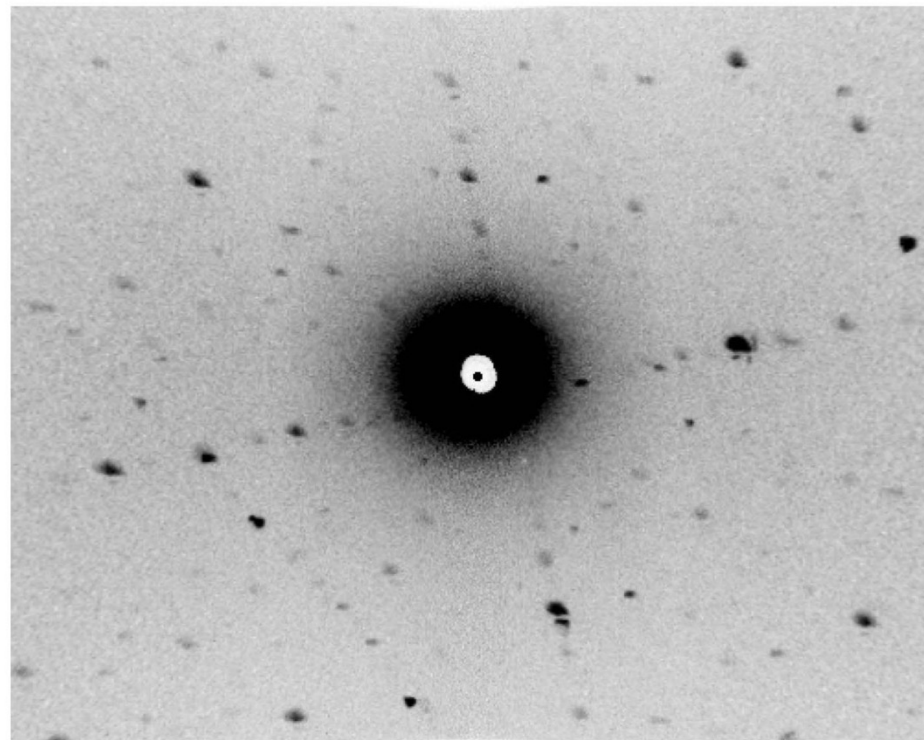
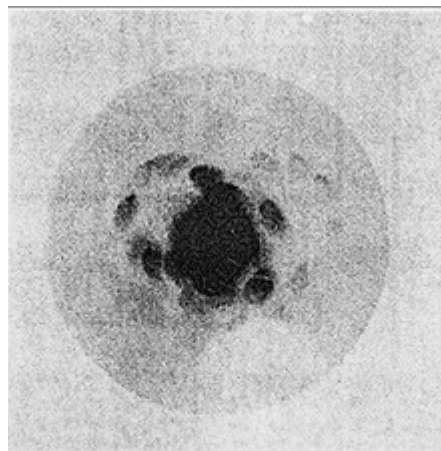
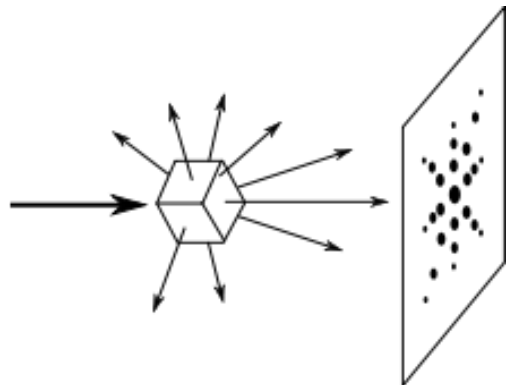
利用する現象	計測手法	取得できる情報
X線回折・散乱	結晶構造解析 (XRD)	原子配列 (Åオーダー)
	小角X線散乱 (SAXS)	平均的な構造情報 (nm~ μ mオーダー)
	X線トポグラフィ	単結晶中の欠陥
X線の吸収	X線吸収分光 (XAS)	元素、結合状態
	X線吸収微細構造 (XAFS)※	電子状態 ある元素のまわりにある原子の数、結合距離
	X線磁気円偏光二色性 (XMCD)	磁化
X線、電子の放出	蛍光X線分析 (XRF)	元素
	光電子分光 (XPS) 光電子顕微鏡 (PEEM)	電子状態 表面の元素、結合状態
	光電子回折 (PED)	表面の原子配列

※蛍光X線の利用も可能。

- ◆ それぞれの方法に対してマッピングが可能→「イメージング (2D or 3D)」
- ◆ 「3Dイメージング」は「トモグラフィ」と呼ばれる。

X線回折・散乱と それを利用した計測手法の例

結晶によるX線回折



Si結晶のLaue写真

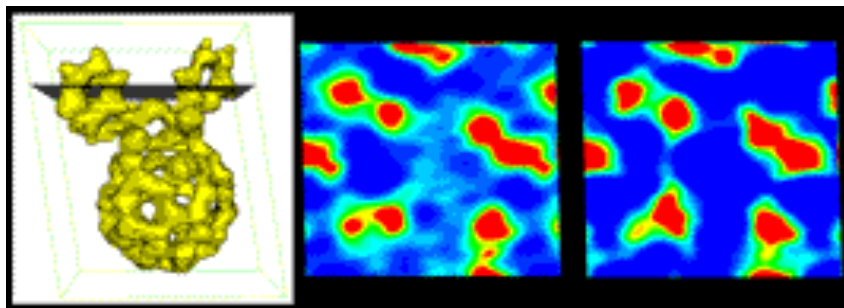
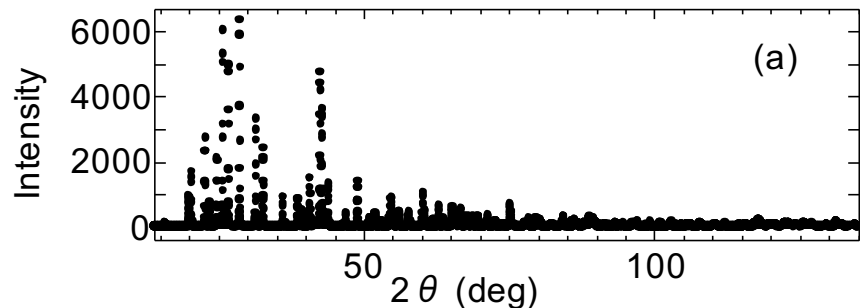
Max von Laue (1879-1960)らによって撮影された
1914年ノーベル物理学賞 世界最初のX線回折写真
(硫化亜鉛結晶; 1912)

<https://ja.wikipedia.org/wiki/X%E7%B7%9A%E5%9B%9E%E6%8A%98>
<https://ja.wikipedia.org/wiki/%E3%83%9E%E3%83%83%E3%82%AF%E3%82%B9%E3%83%BB%E3%83%95%E3%82%A9%E3%83%B3%E3%83%BB%E3%83%A9%E3%82%A6%E3%82%A8>
http://www.geo.shimane-u.ac.jp/akasaka/5000Hit/Kagaku1_Kaito.htm

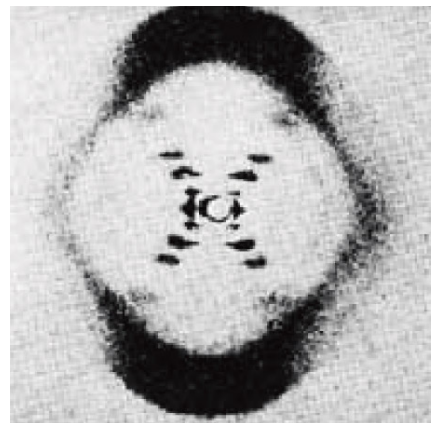
結晶構造解析

何が分かるか？

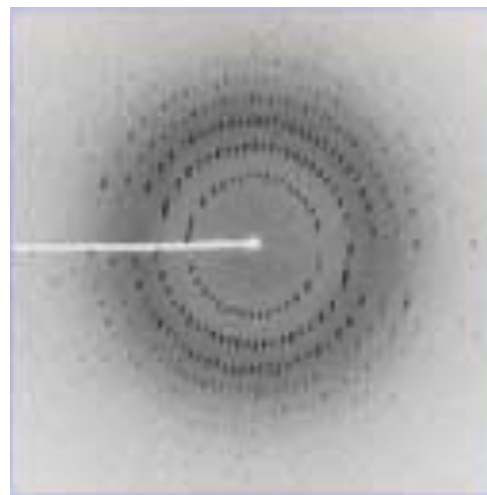
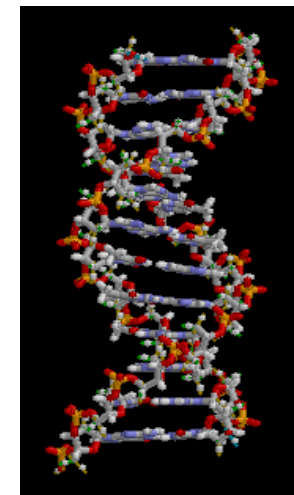
→結晶中の原子配列(Åオーダー)



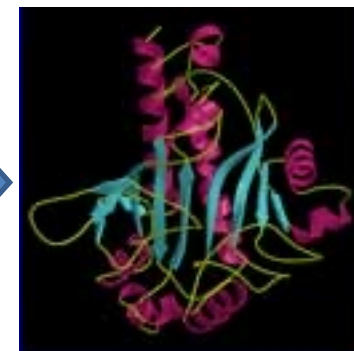
水素分子内包フラーレン



DNA



たんぱく質



<http://pfwww.kek.jp/sawa/research.html>

<http://www.chinokiyoten.pref.aichi.jp/Science/nano/nano03.html>

<https://ja.wikipedia.org/wiki/%E3%83%87%E3%82%AA%E3%82%AD%E3%82%B7%E3%83%AA%E3%83%9C%E6%A0%B8%E9%85%B8>

http://www.pharm.kyoto-u.ac.jp/structbl/technique/xray_outline1.jpg

小角X線散乱

(Small-Angle X-ray Scattering (SAXS))

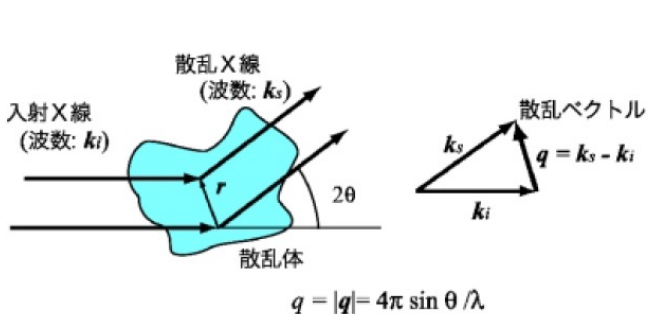


Fig. 1 Schematic view of X-ray scattering.

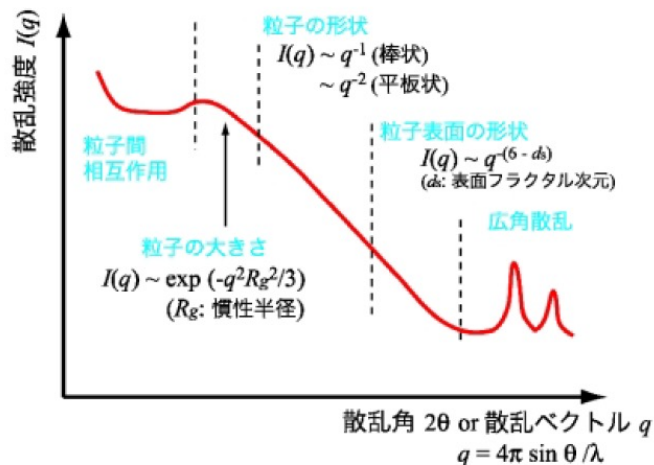


Fig. 2 Typical information on particulate sample obtained by SAXS.

何が分かるか?
→ nm ~ μm オーダーの平均的な構造情報 (結晶化は不要)

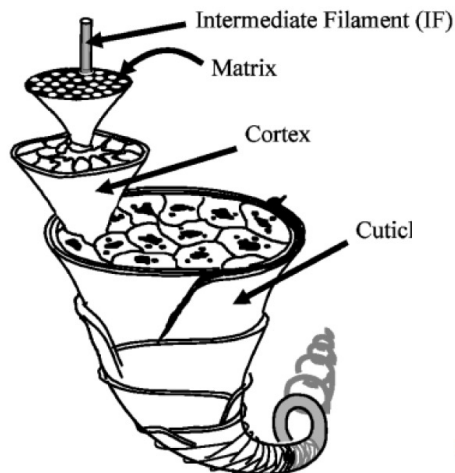


Fig. 1 Hierarchical Structure of hair.

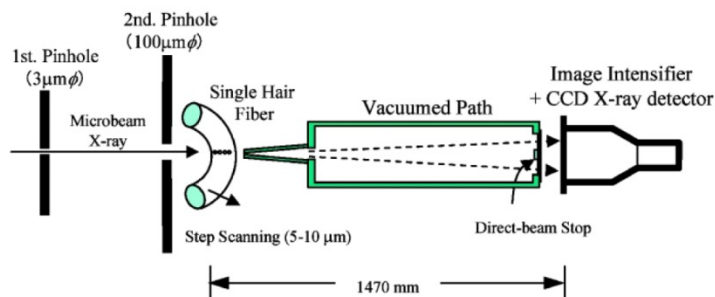


Fig. 2 Measurement of small angle X-ray scattering (SAXS) pattern from a human hair single fiber at BL40XU in SPring-8.

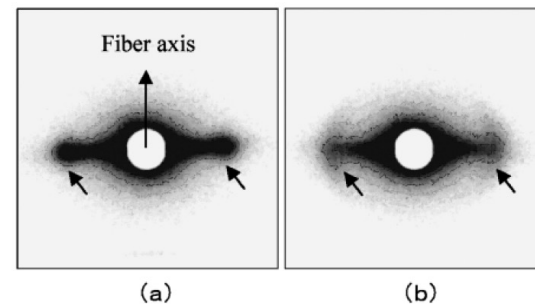
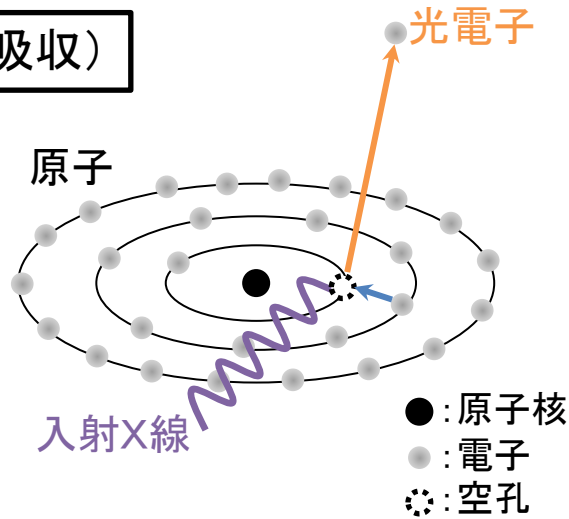


Fig. 4 Typical SAXS patterns obtained from a curly African hair fiber, measured at (a) the inner side and (b) the outer side of the curvature. Short arrows point at the intensity maxima attributed to the IFs arrangement.

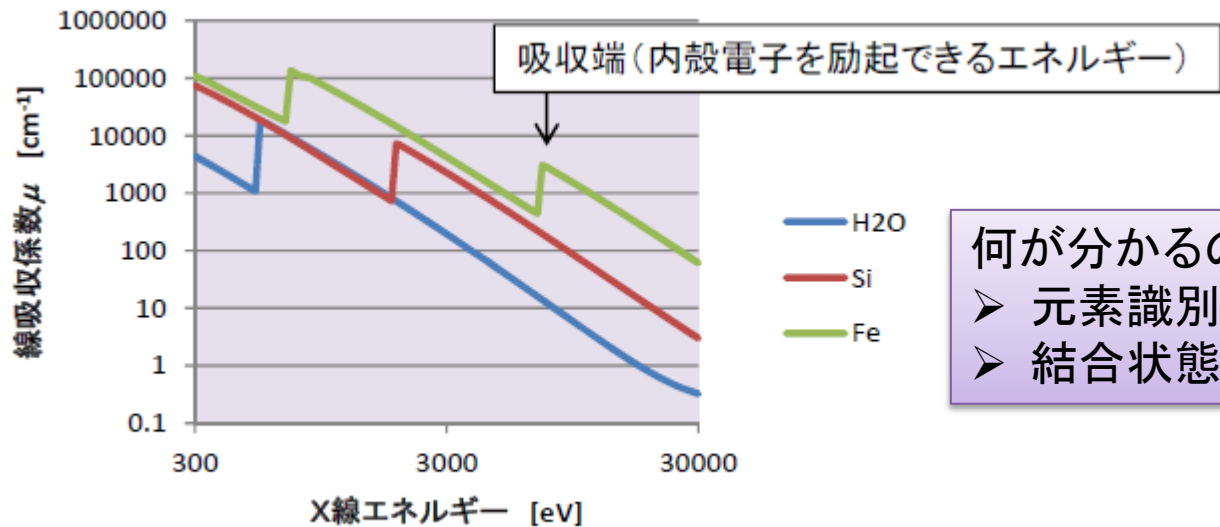
X線の吸収を利用した計測手法の例

吸収端

X線の吸収(光電吸収)



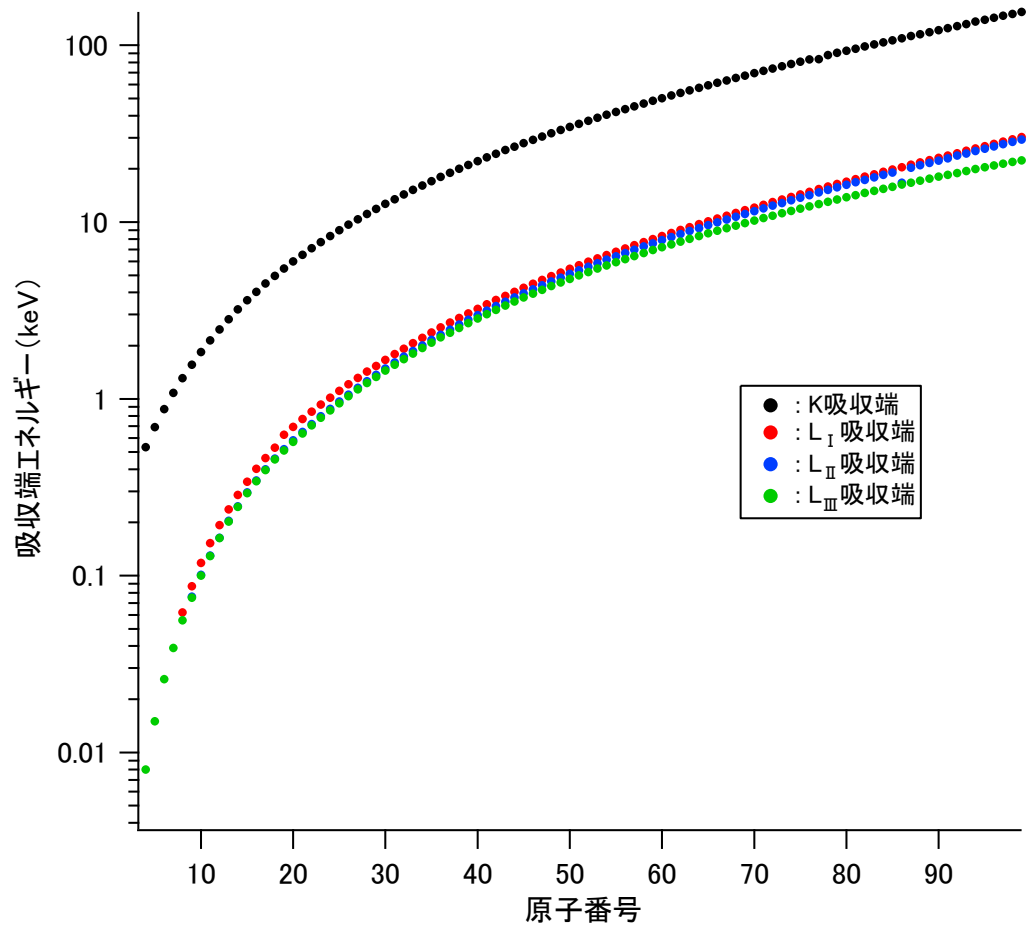
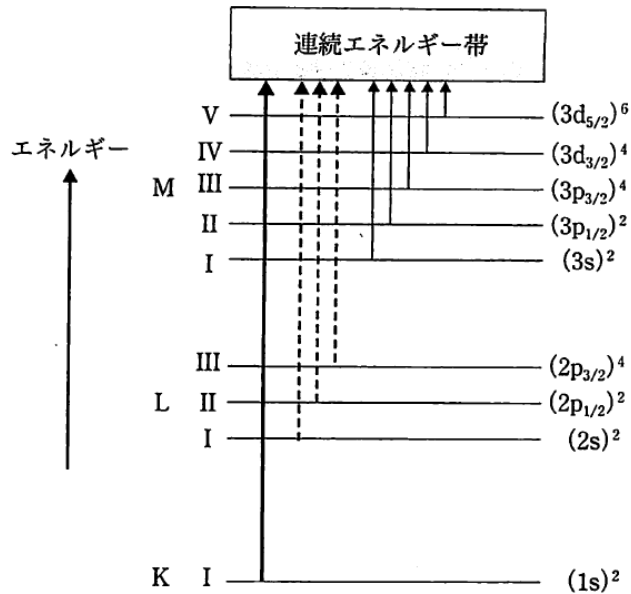
吸収端



何が分かるのか？

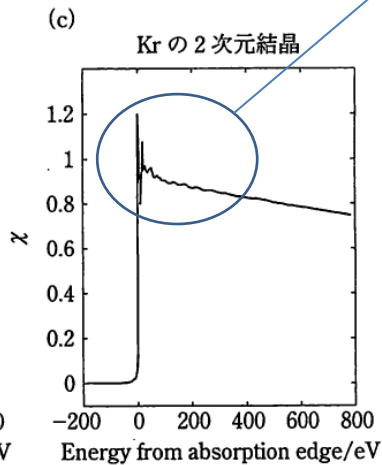
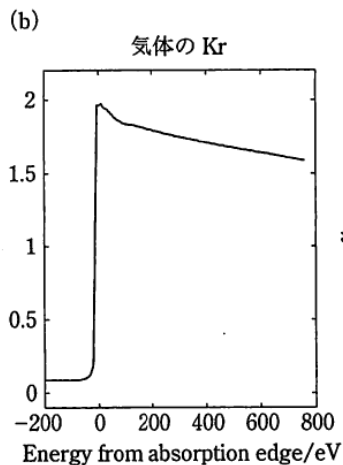
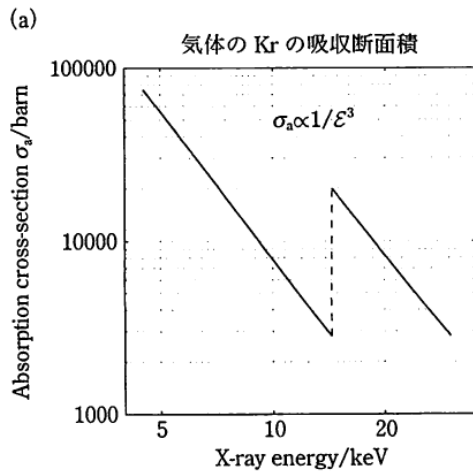
- 元素識別
- 結合状態識別

吸収端エネルギーの原子番号依存性



X線吸収微細構造

X-ray Absorption Fine Structure (XAFS)



XAFS

X線吸収端近傍構造
X-ray Absorption Near Edge Structure (XANES)

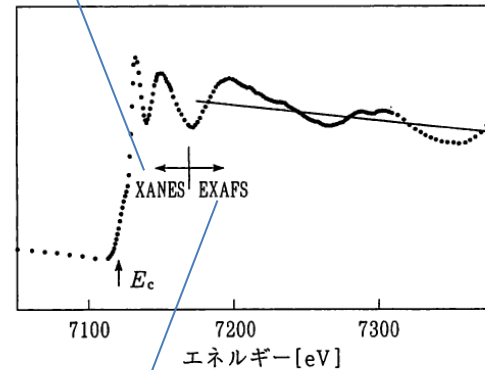
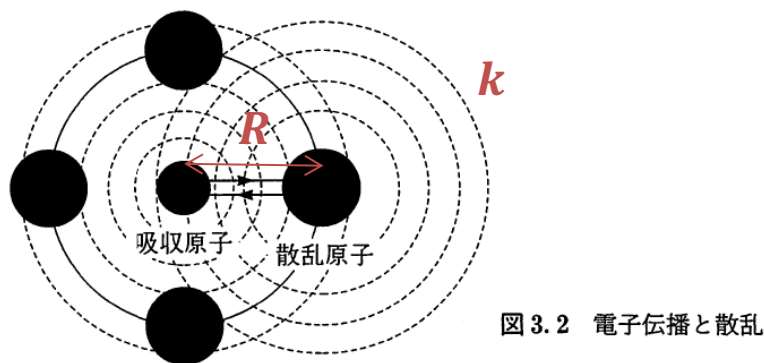
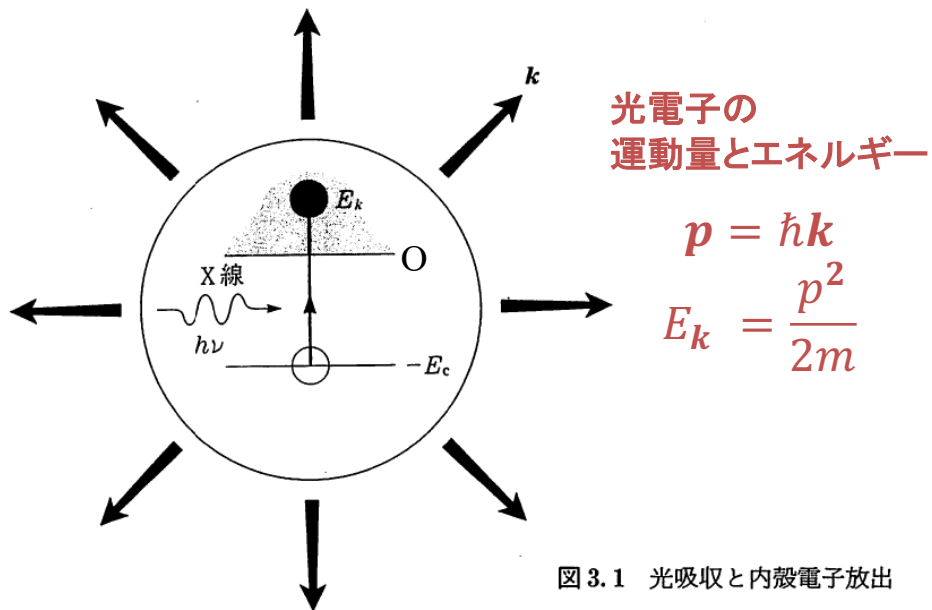


図 3.3 光吸収のエネルギー依存性²⁾:
 $K_3Fe(CN)_6$ における鉄の K-XAFS.

広域X線吸収微細構造
Extended X-ray Absorption Fine Structure (EXAFS)

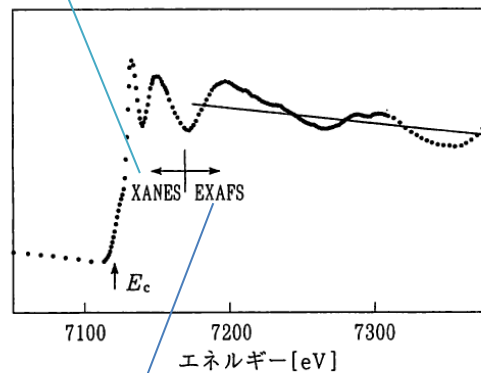
X線吸収微細構造

X-ray Absorption Fine Structure (XAFS)



XANES
 $kR \leq 2\pi$

何が分かるか？
→電子状態



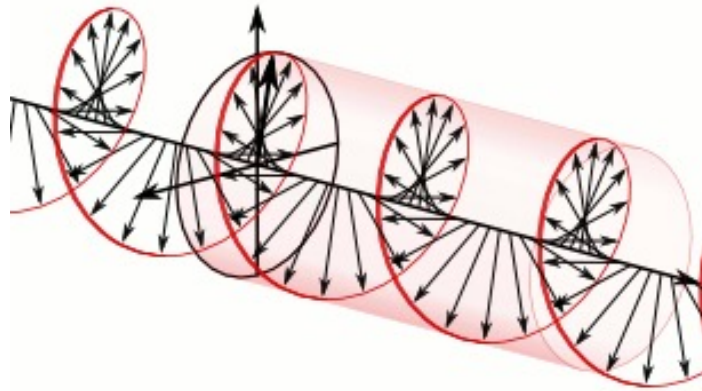
EXAFS
 $kR > 2\pi$

何が分かるか？
→ある原子の周りの局所構造

- 結合距離
- 配位数(まわりの原子の数)

X線磁気円二色性 (XMCD)

円偏光

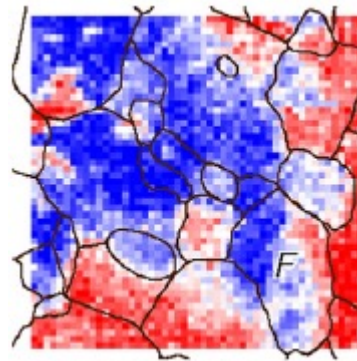


左円偏光 右円偏光



X線磁気円二色性 (X-ray Magnetic Circular Dichroism (XMCD))

左円偏光と右円偏光で
X線の吸収率が異なる
現象を利用

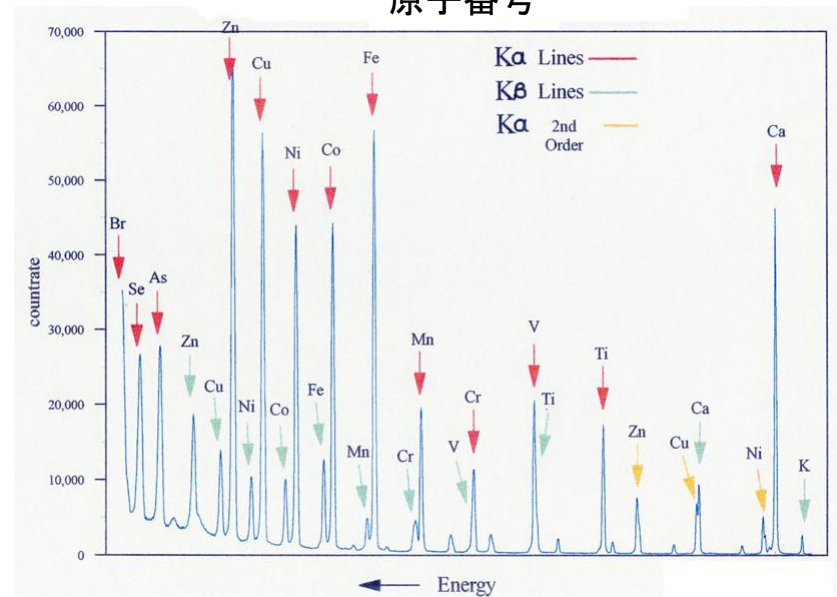
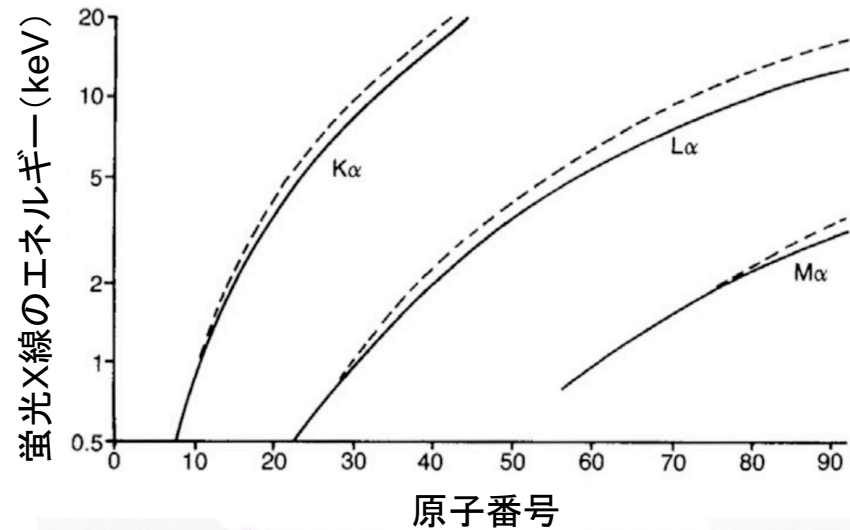
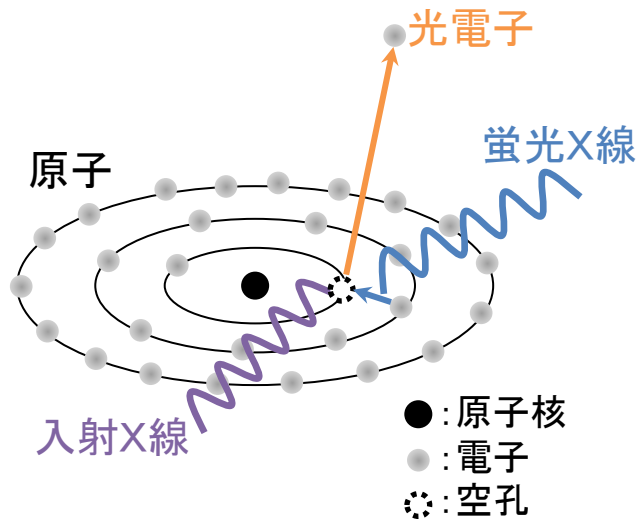


何が分かるのか？
→磁化 (磁区構造)

X線照射によって放出されるX線、電子
を利用した計測手法の例

蛍光X線分析 (XRF)

蛍光X線のエネルギー
→ 元素が識別できる。



光電子分光 (XPS)

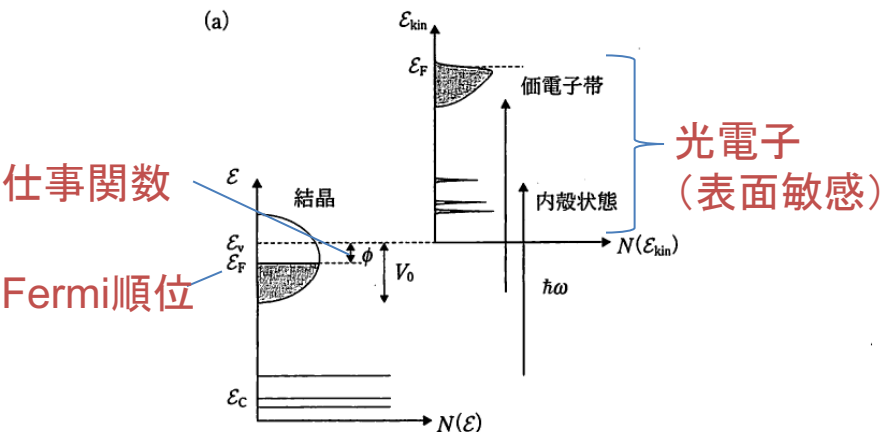
何が分かる？

→ 電子状態

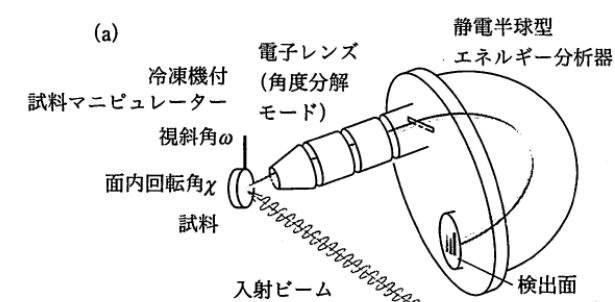
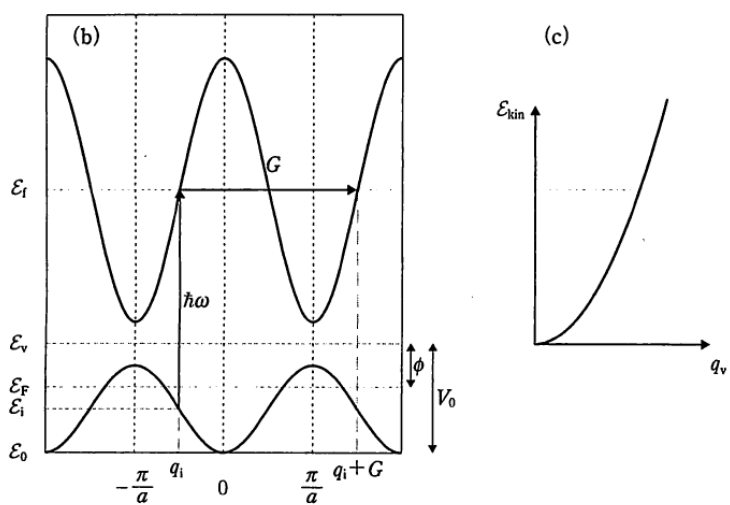
(半導体デバイスなどの特性を決定)

角度分解光電子分光

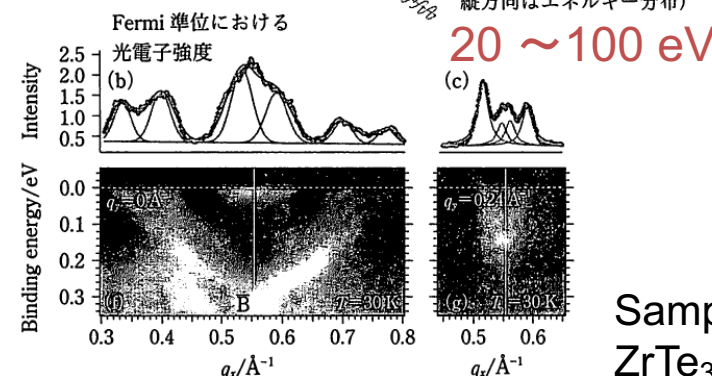
Angle Resolved Photoemission Spectroscopy (ARPES)



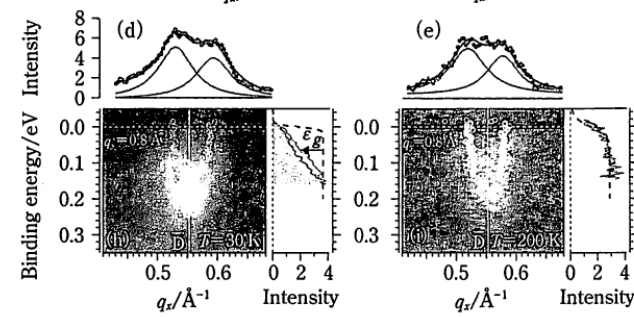
分散関係



検出面 (横方向は角度分布, 縦方向はエネルギー分布)



Sample: ZrTe3



「X線物理学の基礎」(講談社サイエンティフィック、2012).

放射光計測のデータ

SPring-8ビームラインマップ



- 同様の計測法のビームラインが点在
- 計測ソフトウェアはビームラインごとにバラバラ
- 標準的な解析ソフトウェアのシステムティックな配布はなし

5年ほど前から
改善に向けた取り組みが加速

放射光を利用した主な計測手法

利用する現象	計測手法	取得できる情報
X線回折・散乱	結晶構造解析 (XRD)	原子配列 (Åオーダー)
	小角X線散乱 (SAXS)	平均的な構造情報 (nm~μmオーダー)
	X線トポグラフィ	単結晶中の欠陥
X線の吸収	X線吸収分光 (XAS)	元素、結合状態
	X線吸収微細構造 (XAFS)※	電子状態 ある元素のまわりにある原子の数、結合距離
	X線磁気円偏光二色性 (XMCD)	磁化
X線、電子の放出	蛍光X線分析 (XRF)	元素
	光電子分光 (XPS)	電子状態
	光電子顕微鏡 (PEEM)	表面の元素、結合状態
	光電子回折 (PED)	表面の原子配列

回折

分光

イメージング

※蛍光X線の利用も可能。

- ◆ それぞれの方法に対してマッピングが可能「イメージング (2D or 3D)」
- ◆ 「3Dイメージング」は「トモグラフィ」と呼ばれる。

日本放射光学会 (JSSRR)

放射光計測データ構造化諮問委員会

(2022.4～)

委員名簿(敬称略)

朝倉清高	北海道大学触媒科学研究所	矢橋牧名	理研
高橋幸生	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	初井宇記	理研 データ処理系開発チーム
矢代航	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	熊坂崇	JASRI タンパク質結晶解析推進室 JSSRR渉外幹事
若林裕助	東北大学理学研究科	為則雄祐	JASRI 分光推進室
仁谷浩明	高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所	登野健介	JASRI 散乱・イメージング推進室
山田悠介	高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所	玉作賢治	JASRI 回折・散乱推進室
木村正雄	高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所	松本崇博	JASRI
五十嵐教之	高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所	木下豊彦	JASRI
石井真史	物質・材料研究機構	藤森伸一	日本原子力研究開発機構 原子力科学研究部門
西堀英治	筑波大学 数理物質系 物理学域	松尾光一	広島大学放射光科学研究センター
松井文彦	分子科学研究所極端紫外光研究施設 JSSRR庶務幹事	廣沢一郎	九州シンクロトロン光研究センター
岡島敏浩	あいちシンクロトロン光センター	米山明男	九州シンクロトロン光研究センター
田淵雅夫	名古屋大学	東純平	佐賀大学 シンクロトロン光応用研究センター
稲田康宏	立命館大学生命科学部	原野貴幸	日本製鉄/日鉄ケミカル&マテリアル
栗栖源嗣	大阪大学蛋白質研究所	横山利彦	陪席 分子科学研究所 JSSRR会長
小野寛太	大阪大学工学研究科		

委員長:朝倉清高(北大、前JSSRR会長)

- ◆ 回折分科会(代表:五十嵐教之(KEK))
- ◆ スペクトル(分光)分科会(代表:為則雄祐(JASRI))
- ◆ イメージング分科会(代表:矢代航(東北大))

JSSRR放射光計測データ構造化諮問委員会

— 分科会 —

分科会名称	データの例	確立された方法 データ標準化の取組例	課題
回折	逆格子空間データ	結晶構造解析*1 ➤ 解析結果(原子座標)の データベース化*2 ➤ データ量小 *1たんぱく結晶構造解析を含む。 *2IUCr(国際)	➤ SAXSなど他の手法に ついては試行錯誤中
スペクトル (分光)	エネルギースペクトル	XAFS ➤ Δ XAFSスペクトルの データベース化*3 ➤ データ量小 *3日本XAFS研究会(国内)	➤ 他の手法については 目立った活動なし ➤ 測定方法の標準化 ➤ データの信頼性
イメージング	実空間データ	医療診断画像 (\neq 放射光利用) ➤ X線CT、MRIなどの 複数モダリティに対応*4 ➤ データ量大 *4DICOM(US)	➤ 測定の多様性 ➤ データフォーマットの 多様性 ➤ データの多次元性

SPring-8における自動測定

BL38B1
(粉末X線回折)

タンパク質結晶構造解析

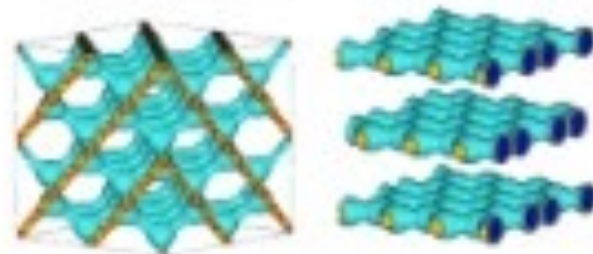
タンパク質の立体構造を原子レベルに解明する最先端手法



BL02B2
(粉末X線回折)

放射光粉末X線回折

粉末材料の結晶構造だけでなく、電子密度のレベルまで解析

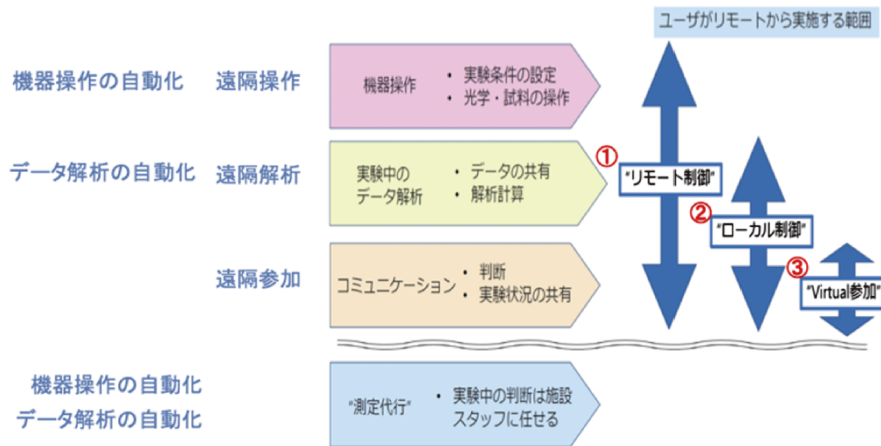


日本放射光学会 リモート実験等諮問委員会2021

表1 リモート実験の名称と分類

名称	測定者	実験責任者のリアルタイム参加	試料送付	備考
来所測定	ユーザ	要	不要	放射線登録
遠隔制御測定 (遠隔測定)	ユーザ + ソフトウェア	要	要	リモート制御
スタッフ支援遠隔参加測定 (支援測定)	施設スタッフ	要	要	Virtual参加
有人代行測定 (代行測定)	施設スタッフ	不可	要	おまかせ測定(測定時間帯は任意) 実験内容の事前確認が必須
無人自動代行測定 (無人測定)	施設ソフトウェア	不可	要	おまかせ測定 Virtual参加なら遠隔測定も?

「リモート実験」の種類



※ 現場の人手が必要な「手動」実験も、常に一定割合存在

図1 (Color online) リモート実験の種類 (理研の矢橋牧名先生のご提案に基づく)

- 実験に責任を負う者の視点で整理した。(実験者の単なる Virtual 参加は考慮していない)
- 遠隔解析は測定を含まないので本分類からは除外している。

データ解析（X線イメージングの例）

- ◆ 確立された従来法
- ◆ 最先端の方法

X線イメージング

イメージング

Mapping signal in space

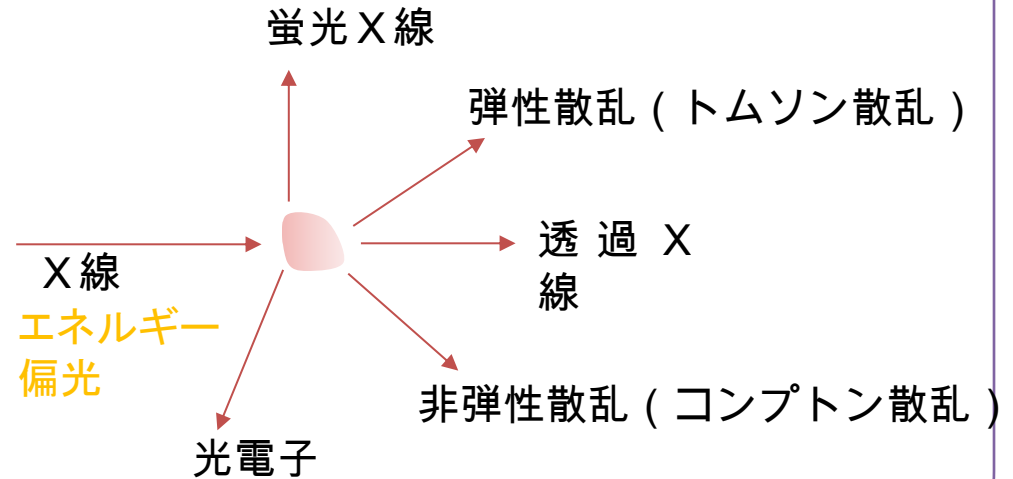


Mapping structure and /or property

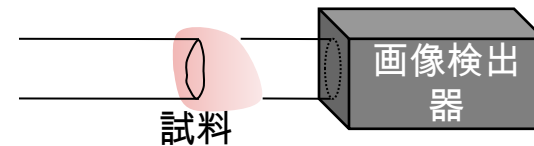
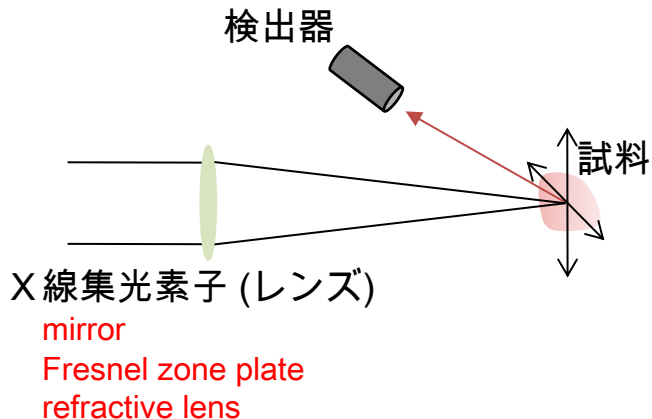


Understanding function

X線と物質の相互作用



マッピングの方法

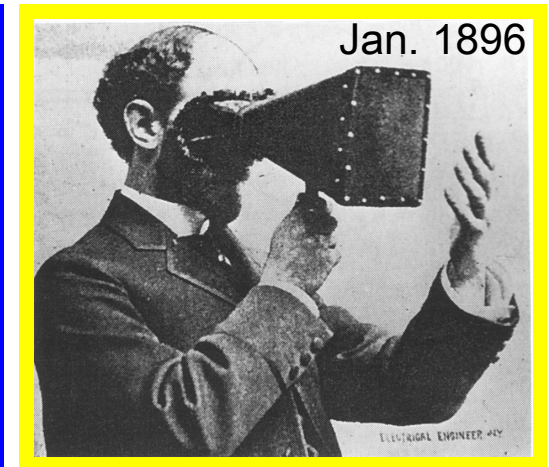
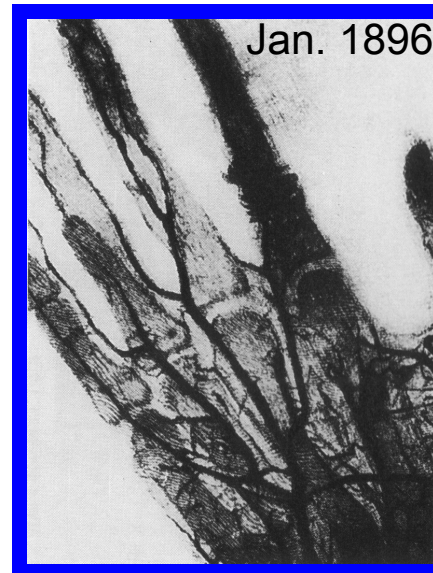


広義のX線イメージング

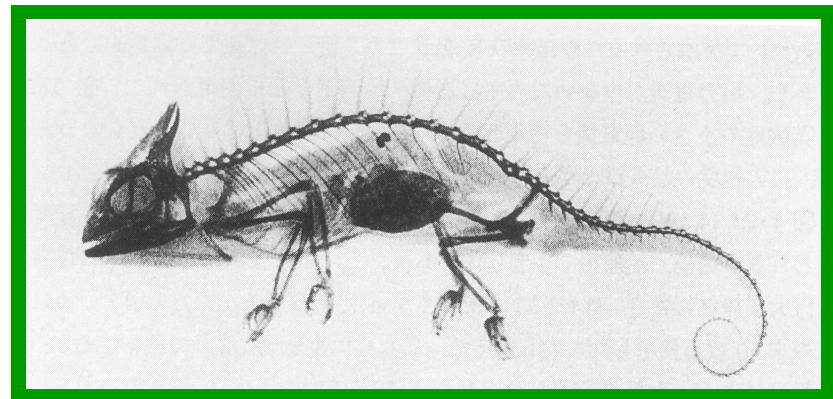
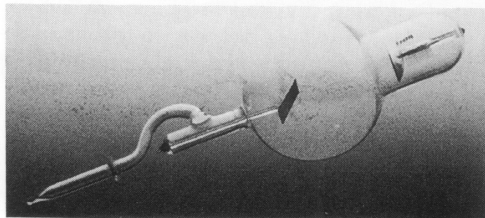
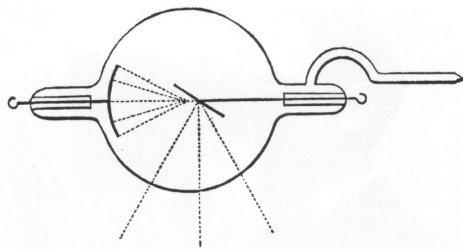
手法	キーワード
透過X線イメージング	ラジオグラフィ、CT、白色、単色、2D、3D、硬X線、軟X線、吸収コントラスト、位相コントラスト、散乱コントラスト、XAFS、X線画像検出器
コヒーレント回折イメージング	コヒーレント回折イメージング、タイコグラフィ、ホログラフィ、2D、3D、硬X線、テnderX線、軟X線、XAFS、X線画像検出器
蛍光X線イメージング	硬X線、軟X線、蛍光X線、エネルギー分解型X線検出器
結像X線顕微法	2D、3D、硬X線、軟X線、吸収コントラスト、位相コントラスト、Zernike型、X線画像検出器
走査型透過X線顕微法	STXM、硬X線、軟X線、吸収コントラスト、位相コントラスト、散乱コントラスト
XRDイメージング	XRDイメージング、応力測定
XMCDイメージング	2D、3D
光電子顕微鏡	PEEM、2D
コンプトン後方散乱イメージング	
X線トポグラフィ	白色、単色
蛍光X線ホログラフィ	白色、単色

2D imaging (Projection Radiography)

Discovery of X-rays (Nov 1895 by W. C. Röntgen)



Fluoroscope



2D imaging + time (Projection Radiography)

X-ray radiography

Mosquito sucking blood (from Kikuchi et al.)

Blood is enhanced with iodine whose absorption edge is about 33 keV.
Propagation-based 'phase-contrast' is used.

Continuous mode pumping

All sequences analyzed

Aedes mosquitoes

X-ray video from Argonne National Laboratory

Burst mode pumping

Representative sequence

Aedes mosquitoes

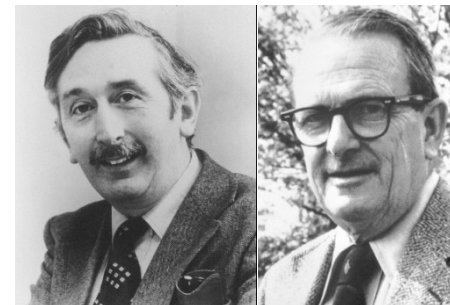
X-ray video from Argonne National Laboratory

μs order temporal resolution

3D imaging (tomography)

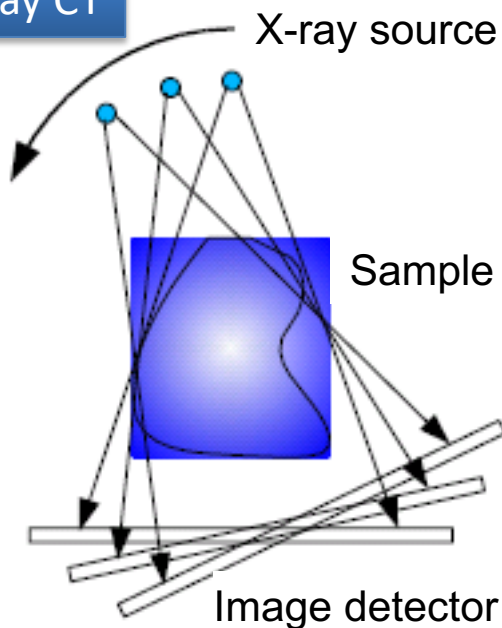
X-ray computed tomography (CT) is a computerized method of calculating the cross-sectional area inside a sample by irradiating the sample with X-rays from various directions and capturing all the transmitted images.

X-ray CT has been widely used mainly in the medical field since it was developed by Hounsfield et al. in **1972**. It is also used for non-destructive testing of products.

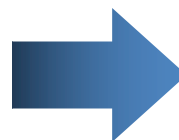


Godfrey Hounsfield & Allan Cormack
Nobel Prize in Physiology or Medicine 1979

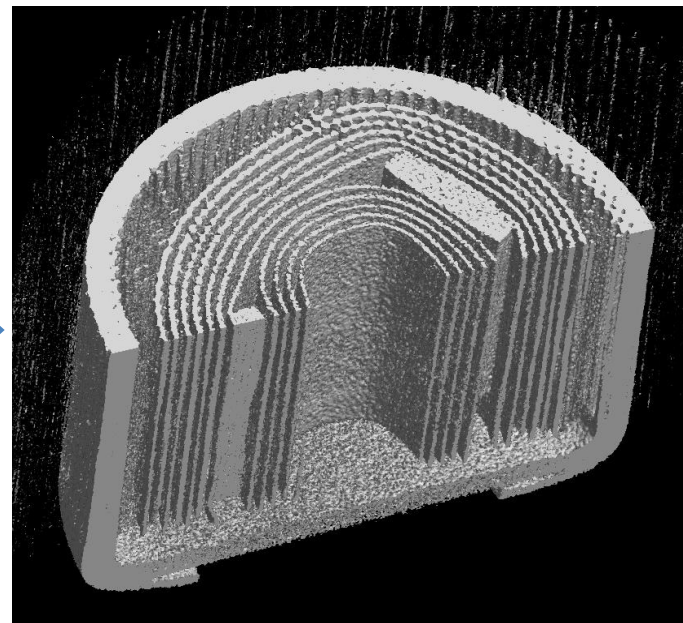
X-ray CT



Capacitor



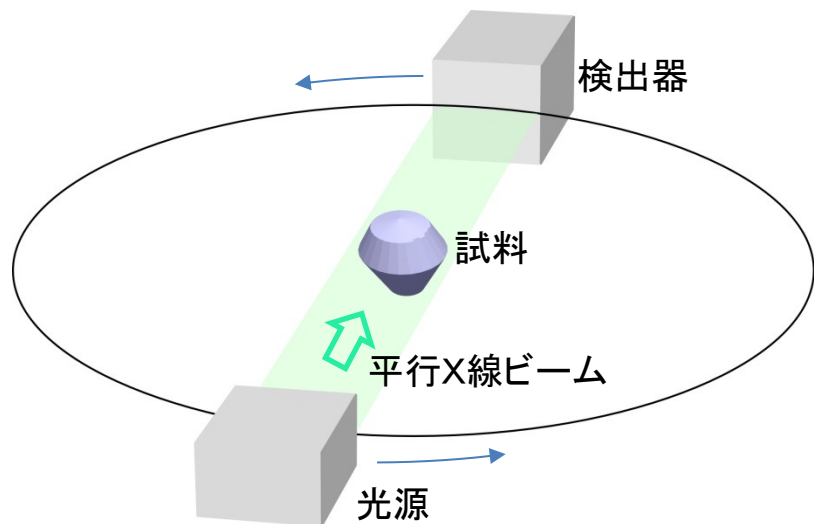
3D structure



Computed Tomography (CT)

— Sinogram —

CTスキャンの配置の例



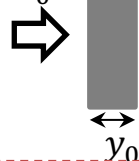
Lambert-Beerの法則

⇒ 吸収CTの場合にはこの法則を利用

均質な試料

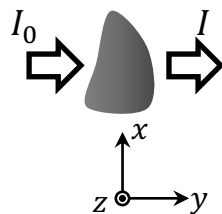
入射X線強度: I_0

透過X線強度: I



透過率: $\frac{I}{I_0} = e^{-\mu y_0}$
 μ : 線吸収係数

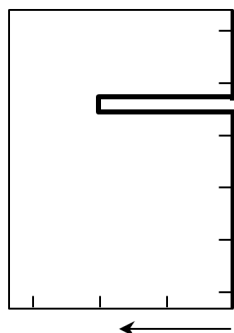
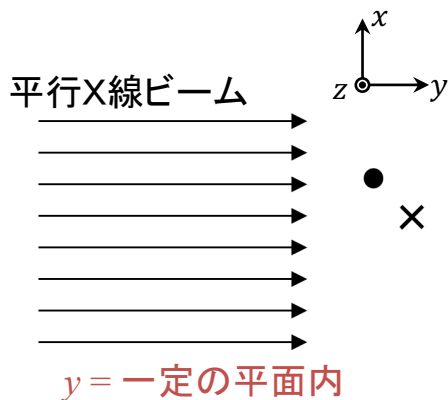
μ に分布がある試料



透過率:

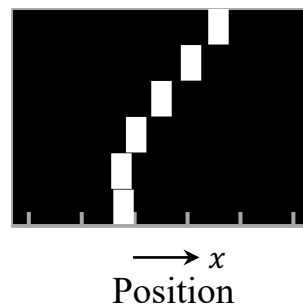
$$\frac{I(x, z)}{I_0(x, z)} = \exp \left[- \int_{-\infty}^{\infty} \mu(x, y, z) dy \right]$$

μ の投影

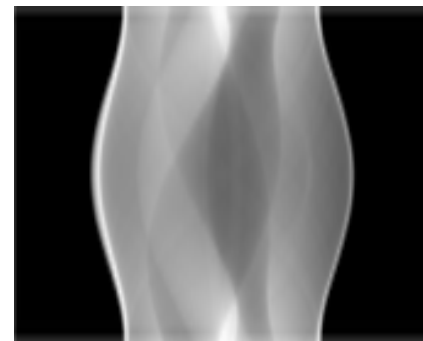


$$-\ln \left(\frac{I}{I_0} \right) = \int_{-\infty}^{\infty} \mu(x, y, z) dy$$

Sinogram



実際のsinogramの例*



*https://en.wikipedia.org/wiki/Radon_transform

Computed Tomography (CT)

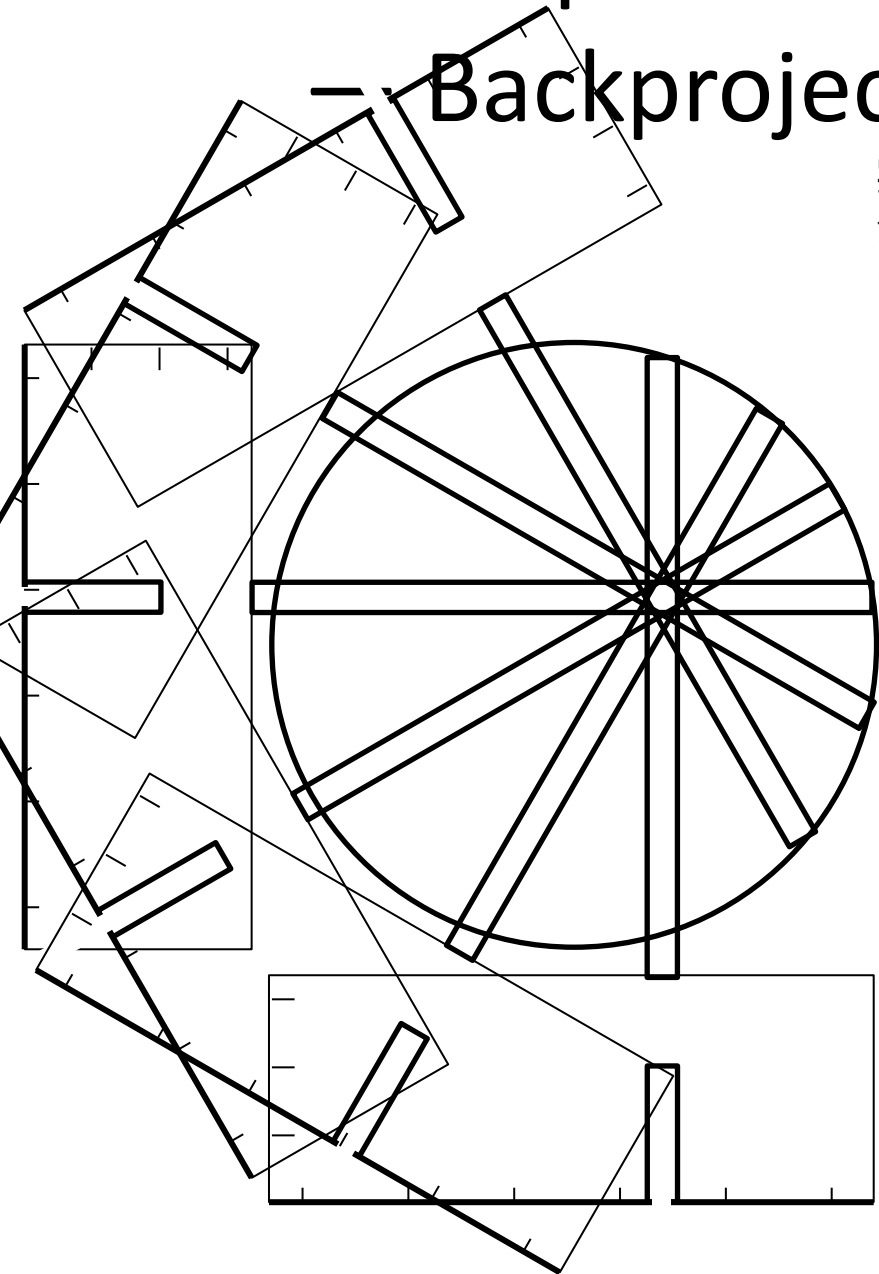
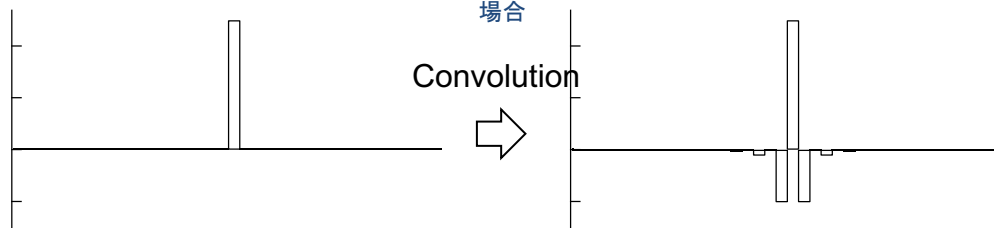
— Backprojection (逆投影) —

実際には、投影像に対して $h(n\Delta)$ で畳み込み積分 (Convolution) を行ってから逆投影を行う。

※ n : 整数、 Δ : 画素サイズ

$$h(n\Delta) = \int_{-\frac{1}{2\Delta}}^{\frac{1}{2\Delta}} |\omega| e^{2\pi i \omega (n\Delta)} d\omega$$

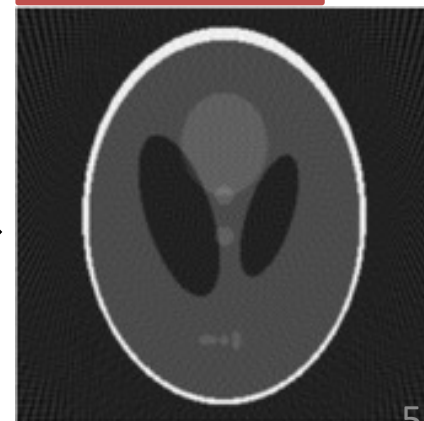
※ Ramachandran-Lakshminarayananフィルタの場合



Sinogram

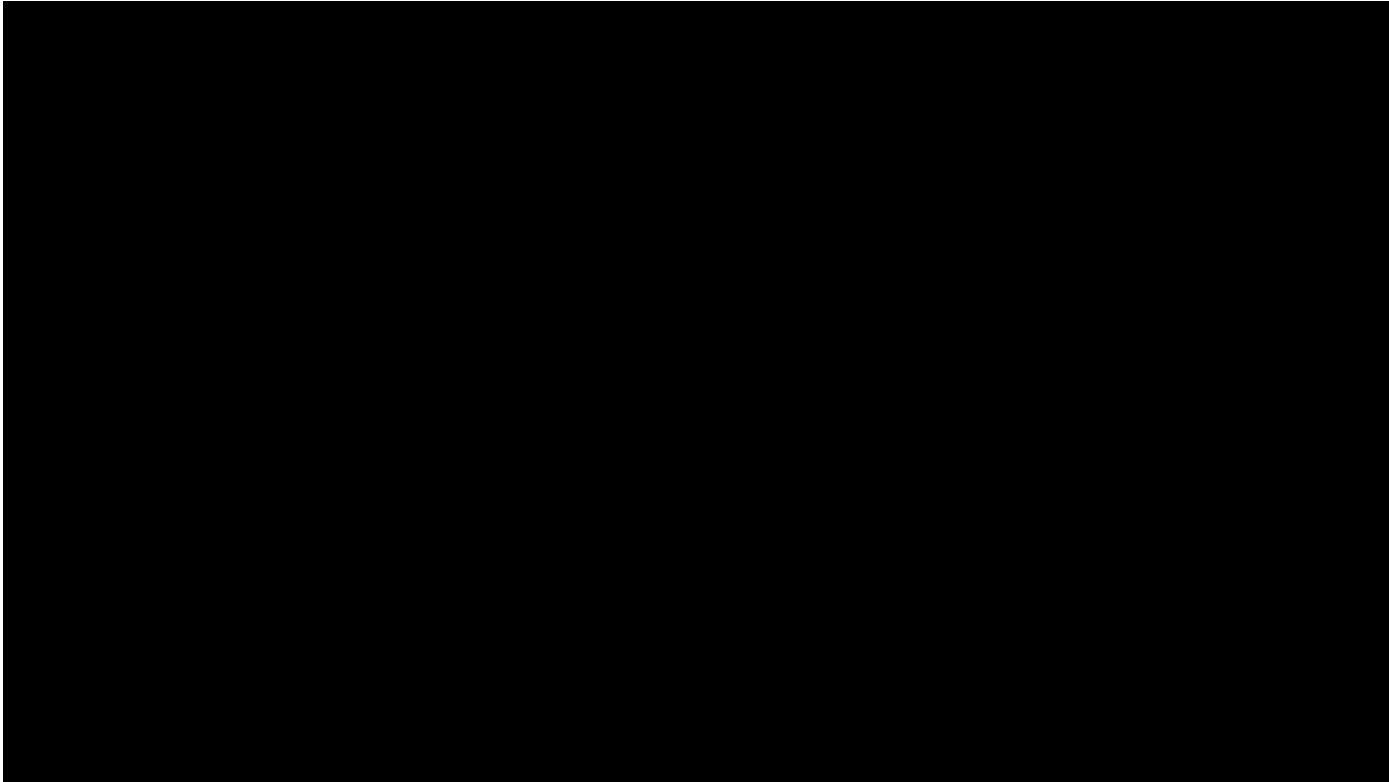


CT再構成結果
(Tomogram)



High-speed 4D X-ray CT for repeatable motion

Fly flapping its wings

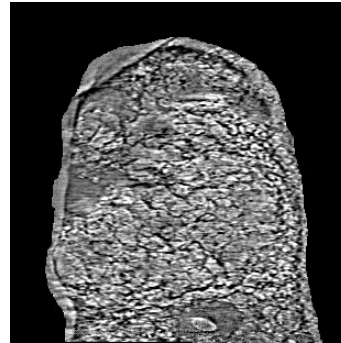


Obtained by Dr. Marco Stampanoni (Swiss Light Source (SLS))

4D X-ray CT for Repeatable Motion (X-ray Elastography)

CT cross-sectional image
(coronal image)

Oscillation frequency: 256 Hz
Measurement time: 0.5 s

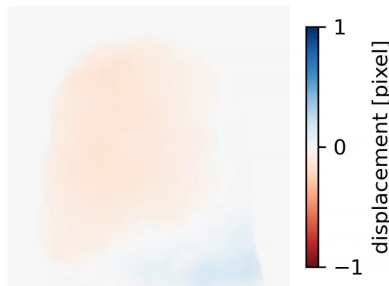


6.2 mm

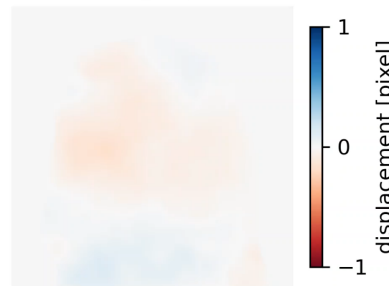
Specimen:
porcine lung

Displacement maps

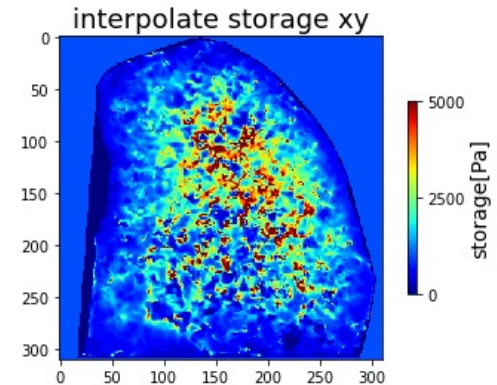
Vertical



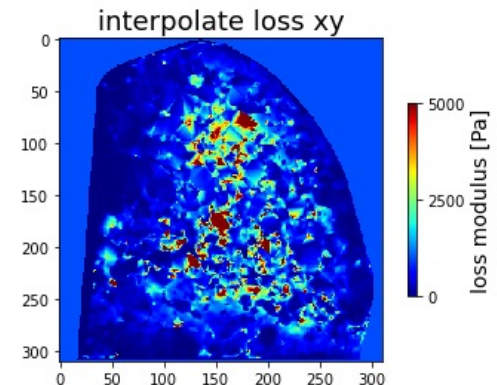
Horizontal



Storage modulus

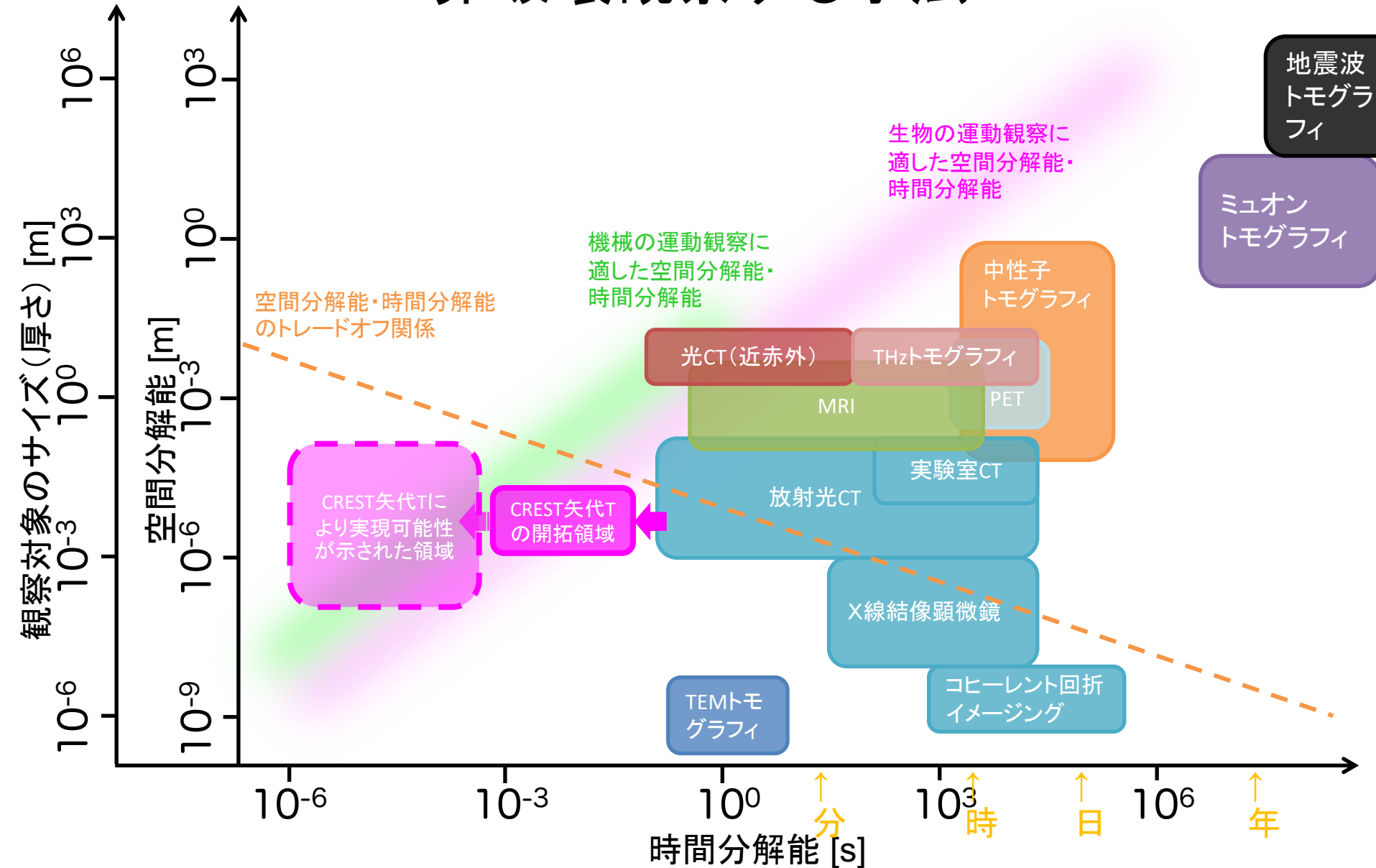


Loss modulus

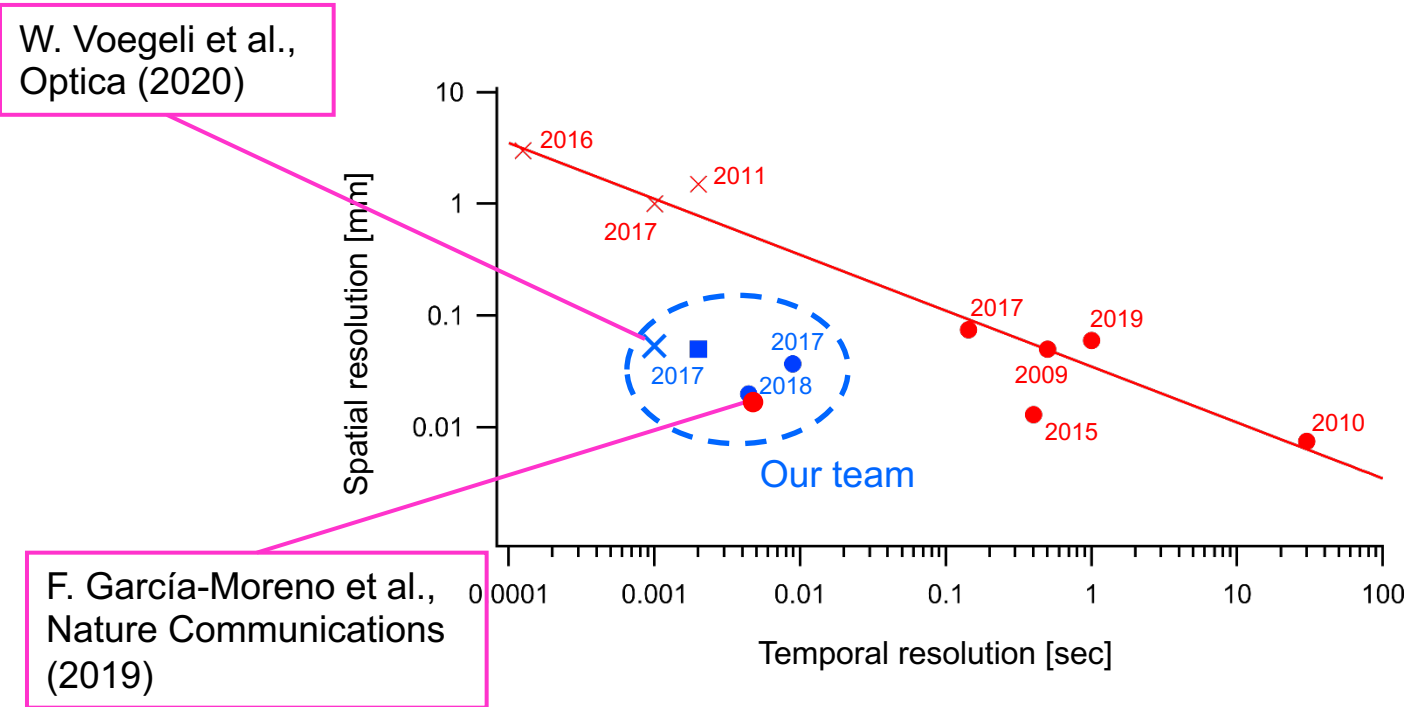


*Spatial resolution: 20 μm

試料内部の非繰り返し現象を 3D非破壊観察する手法

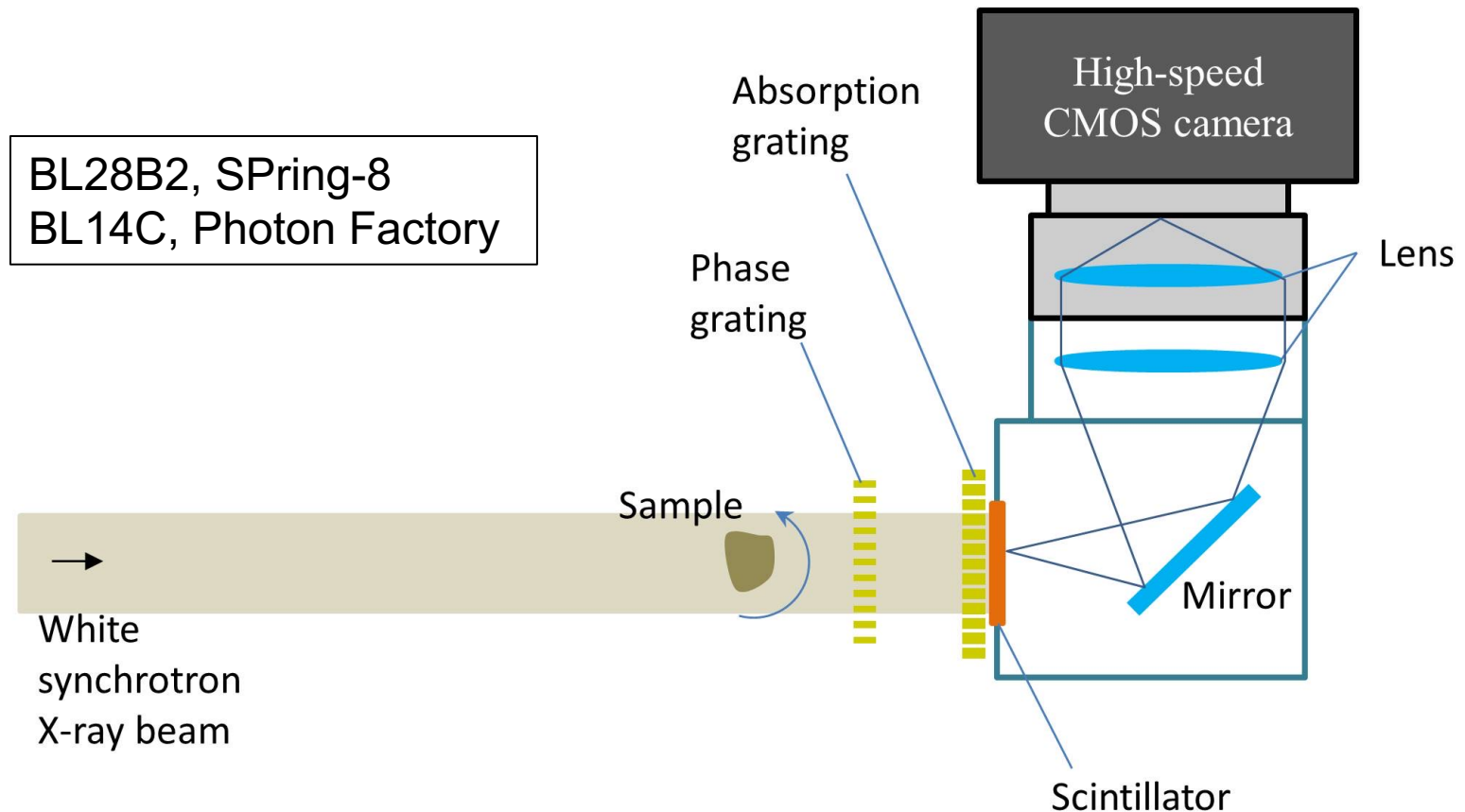


Comparison with previously published papers on High-speed (4D) X-ray tomography



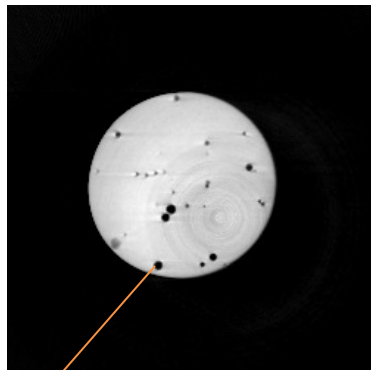
- ×: without sample rotation (lab source)
- : with sample rotation (SR) (■: using compressed sensing)
- Blue: our papers
- Red: other papers (line: a tradeoff between spatial & temporal resolutions)

Experimental setup of high-speed X-ray tomography with sample rotation

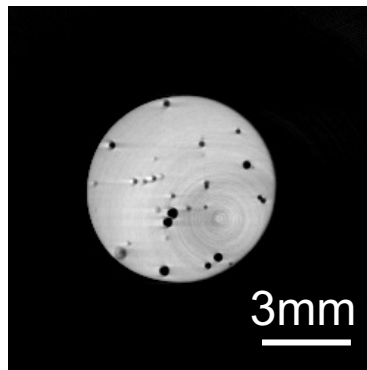


4D phase tomography of glue

Observation of irradiation effect
(temporal resolution: 0.5 sec)

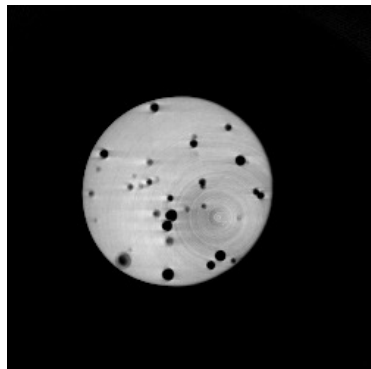


0 sec

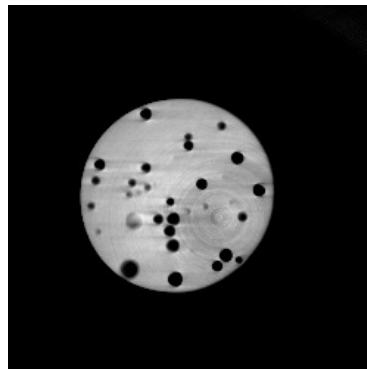


3mm

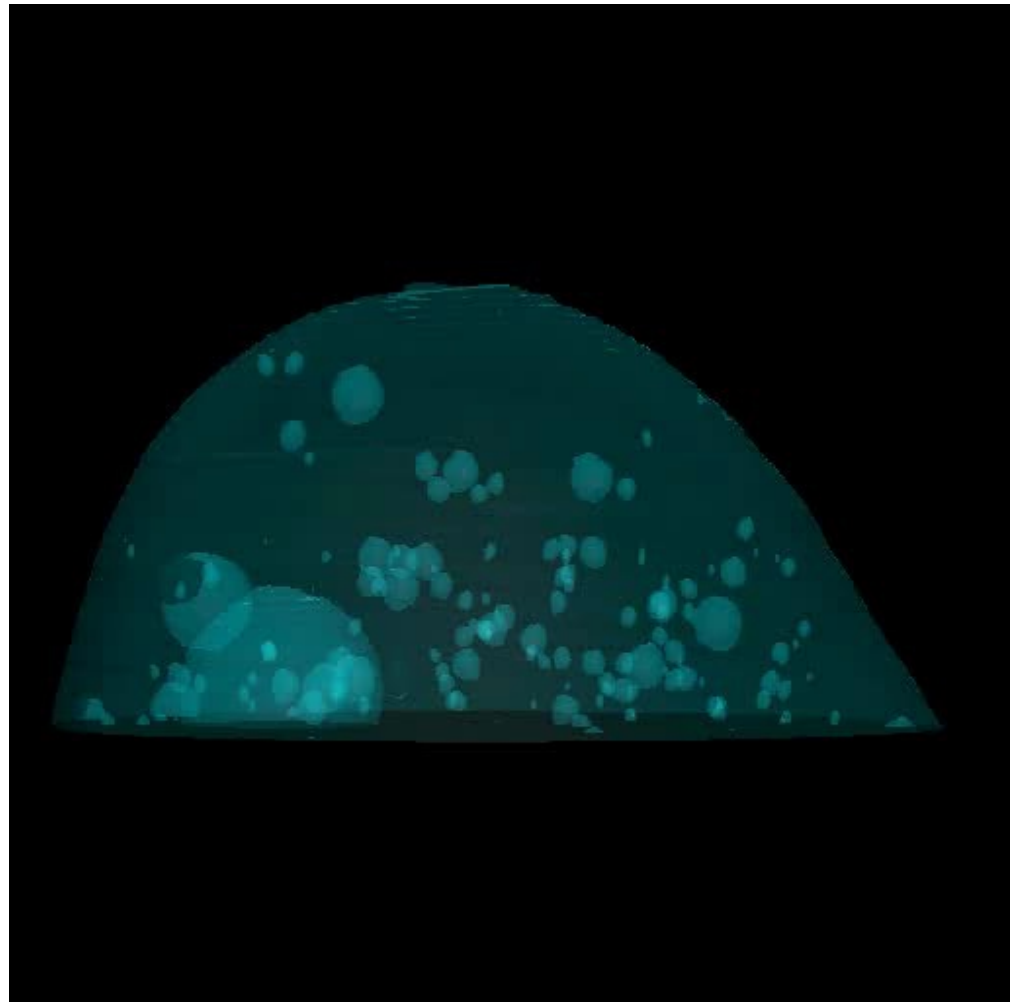
2 sec



4 sec



6 sec

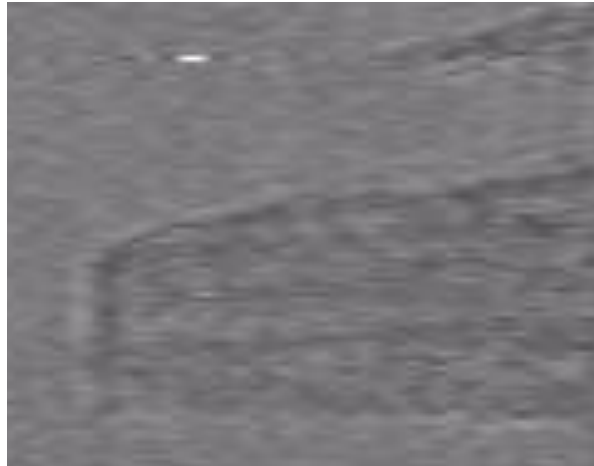


Exposure time: 1 ms/frame
0.5 sec/180 deg

Sub-10 ms X-ray tomography @SPring-8 BL28B2 (sample: a piece of wood)

Projection images

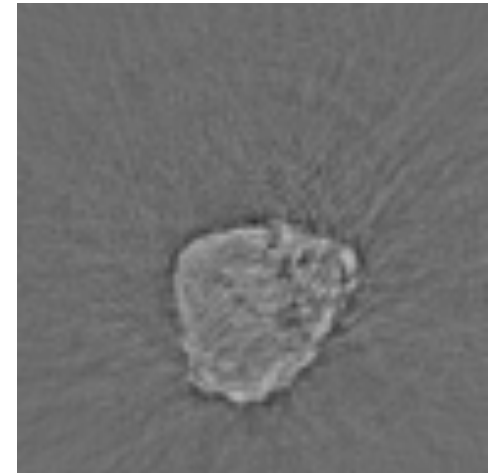
Transmittance
images



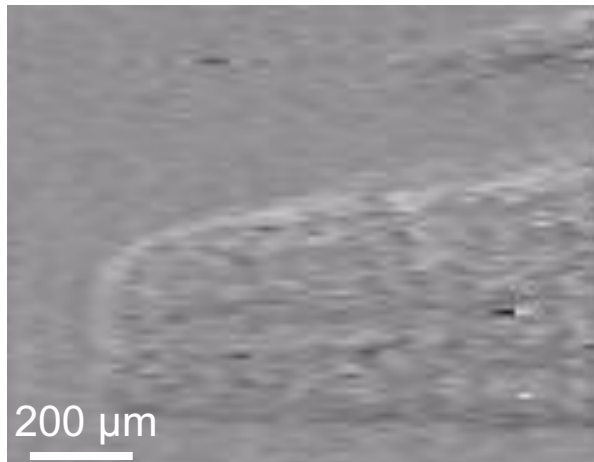
Tomograms

Absorption
(defocus)
tomogram

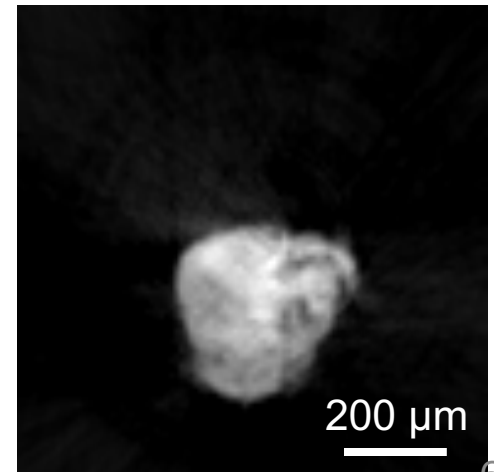
Measurement time:
8.90 msec



Differential phase
images



Phase
tomogram

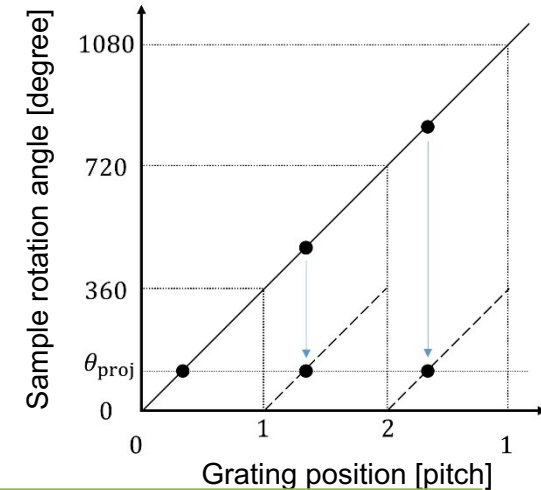


Spatial resolution:
38 μm

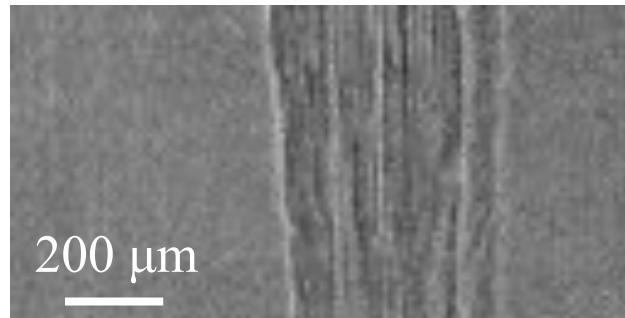
Millisecond-order X-ray tomography with fringe scanning@SPring-8 BL28B2

Sample : a piece of wood
Rotation speed: **0.886 msec (113 projs)/half turn**
Frame rate: 127,500 fps
Scintillator: 40 μm -thick GAGG ($\text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}$ (Ce))
Effective pixel size@sample: 9.9 μm (**spatial resolution: 21 μm**)
Projection Image size: 128 pixel \times 64 pixel
3-step fringe scan (**2.5 turns = 4.43 ms**)
Visibility of moiré fringes: 31 %

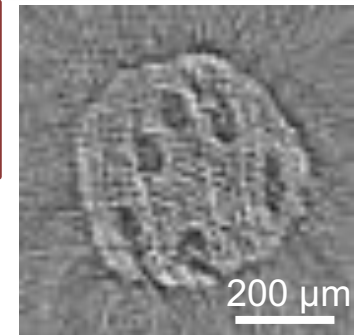
Image acquisition sequence



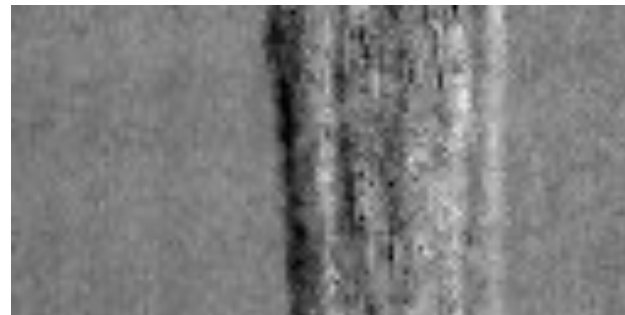
Transmittance images



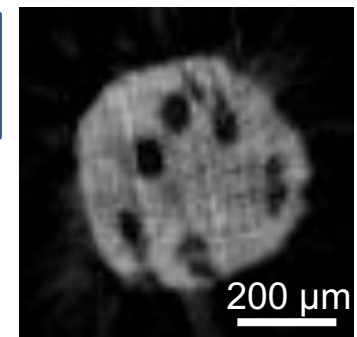
Absorption (defocus) tomogram



Differential phase images



Phase tomogram



Measurement time: 4.43 msec

A problem arises for a higher temporal resolution

Sample: 3/32-inch diameter Polypropylene sphere

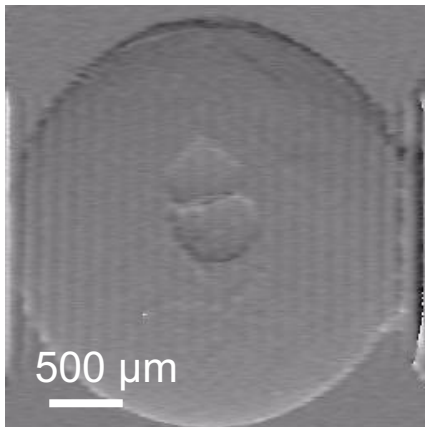
Record: 37,500 fps

(26.7 μsec /frame; exposure time: 6.67 μsec /image)

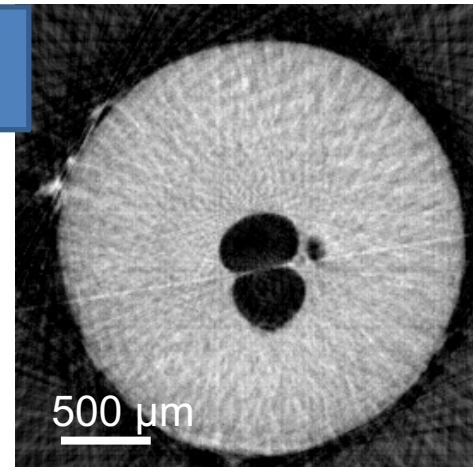
Rotation speed: **2.0 msec** (75 projs)/half turn

Period of moiré fringes: 4.9 pixel (47 μm)

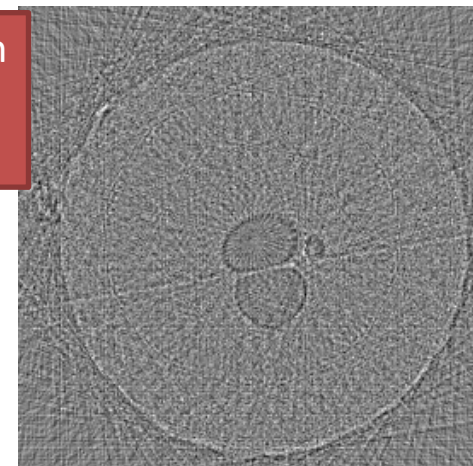
Diff. phase images



Phase tomogram



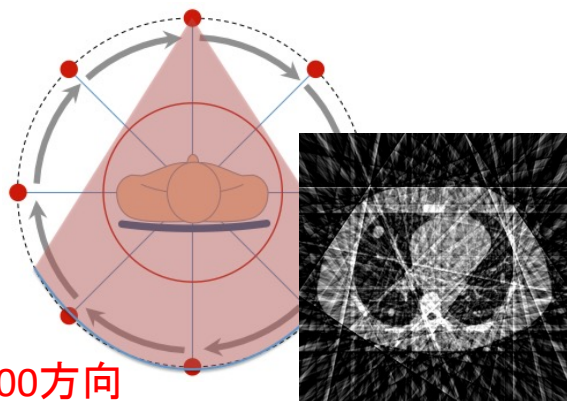
Absorption
(defocus)
tomogram



不完全投影データトモグラフィ問題

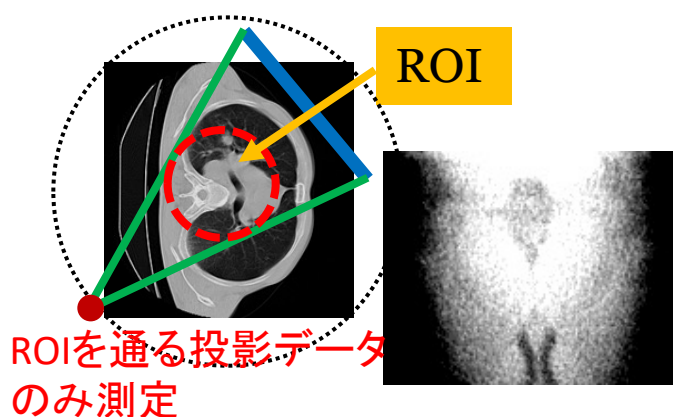
スパースビューCT

少数方向の投影データ



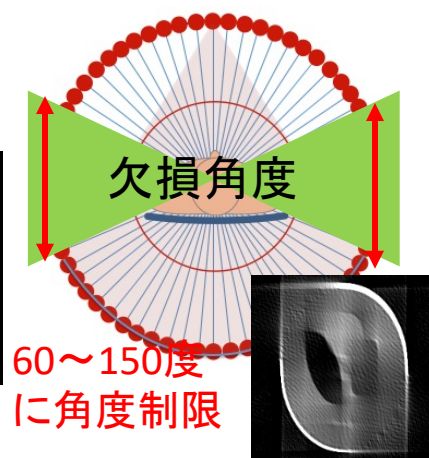
インテリアCT

関心領域 (ROI) のみにX線照射



角度欠損CT

投影角度範囲が制限



『圧縮センシング』(Donoho, Candes *et al.*, 2005 ; Donoho, 2006 (引用件数12,000以上))
不足した測定データから高精度で信号復元を行う逆問題の新解法を発見

圧縮センシング

圧縮センシング:

原データ(信号、画像)に内在する疎性(スパース性)を利用し、非常に少数の観測データから高次元信号を復元する手法

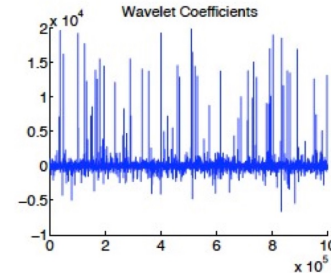
↓
「観測データ数<原信号次元」のときに、原信号が疎である(ゼロ成分が多)と仮定して解を求める。

自然画像のスパース性*2

原画像



基底変換



情報削減画像



多階調ピクセルの画像を wavelet基底で表現

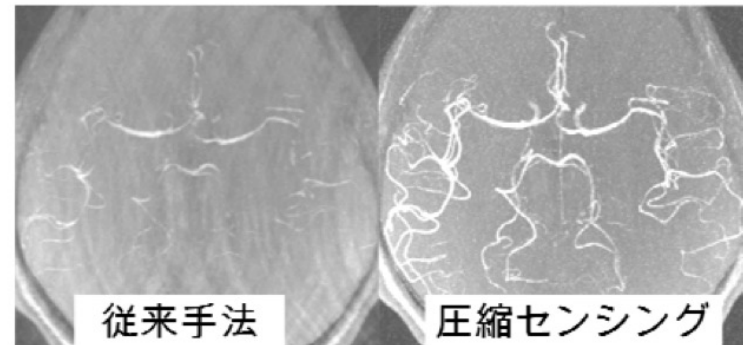
振幅の大きい成分(上から2.5%程度)のみを用いて逆変換

$$M \begin{Bmatrix} \mathbf{y} \end{Bmatrix} = \begin{matrix} \mathbf{A} \\ M \times N \text{ 行列} \end{matrix} \begin{Bmatrix} \mathbf{x} \end{Bmatrix}_N$$

K 個非零

圧縮センシングの応用例*3

脳血管のMRI画像



仮定:

$$M < N$$

$$M > K$$

※ただし、非零成分がどこにあるかは未知。

実験データからスパースな解を効率よく求める方法の例

→ l_1 ノルム正則化法 (LASSO)

*2中島千尋博士(東北大AIMR)のご厚意による。

*3科研費 研究成果報告書 課題番号 23791414 研究代表者: 藤本 晃司

*1竹田晃人、日本物理学会誌 (2014).

Application of compressed sensing (Sparse-view CT)

Total Variation regularization

Tomogram without
streak artifacts

$$\text{minimize } \underbrace{\|\vec{y} - A\vec{x}\|^2}_{\substack{\text{Projection} \\ \text{image}}} + \beta \underbrace{\|\varphi(\vec{x})\|_1}_{\substack{\text{Image we want} \\ \text{to obtain}}}$$

L_1 norm

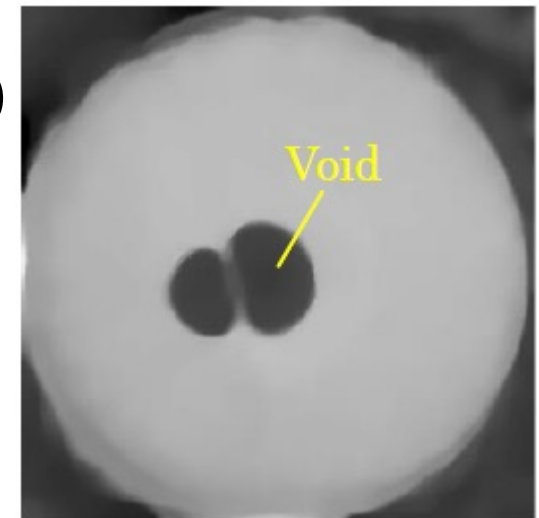
Sample: 3/32-inch PP sphere
(number of projections: 38)

$\|\vec{x}\|_{\text{TV}}$ (Total Variation norm) was used for $\varphi(\vec{x})$

$$\|\vec{x}\|_{\text{TV}} \equiv \sum_j \sqrt{(\vec{h}_j^T \vec{x})^2 + (\vec{v}_j^T \vec{x})^2}$$

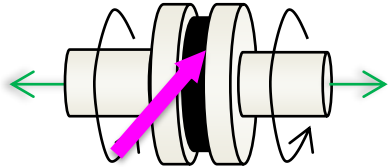
Difference in horizontal direction
Difference in vertical direction

Edges are conserved, but image is smoothed

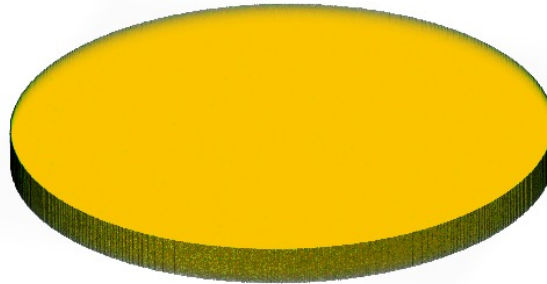


Measurement time: 2 ms

10 ms時間分解能X線トモグラフィ — ゴムの引張破壊過程 —



- 10 ms時間分解能 & 4.5 μm 画素サイズを実現
- この数倍で高速回転すると遠心力で変形してCT再構成不可



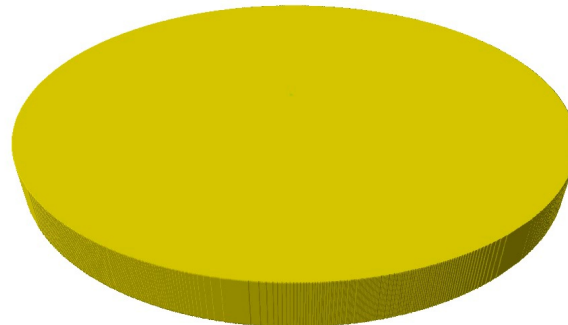
(試料の真ん中付近の3D像)

0.5 mm

R. Mashita et al., J. Synchrotron Rad. **28** (2021) 322-326.

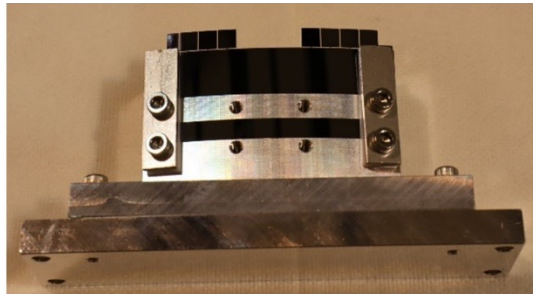
低速で伸縮した場合(住友ゴム工業(株)提供)
時間分解能: 30 s ※縮めて次に伸ばすまでの待機時間: 5 min

伸長 0.0%

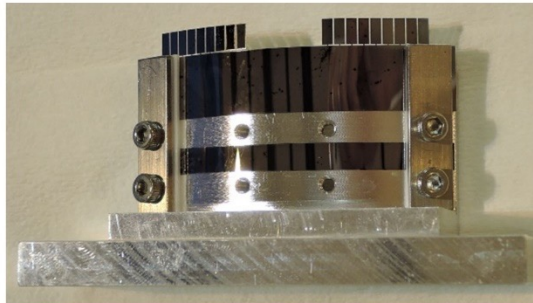


$\pm 70^\circ$ Multi-beam imaging optics (2018~2019)

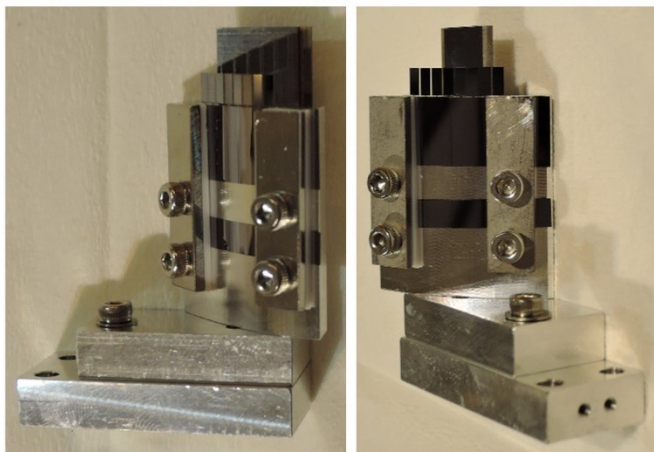
Long focus



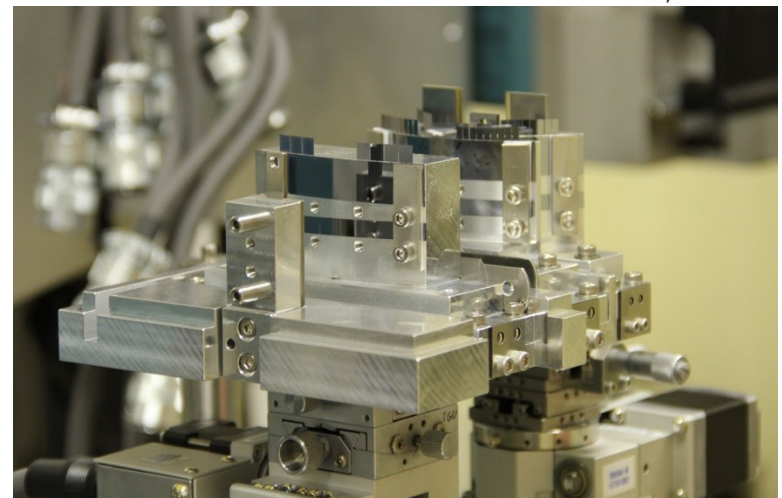
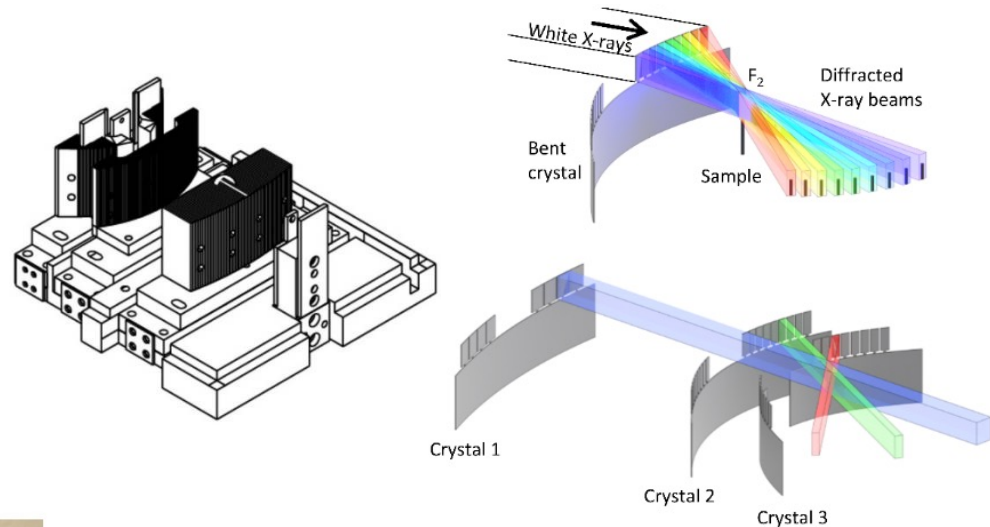
Medium focus



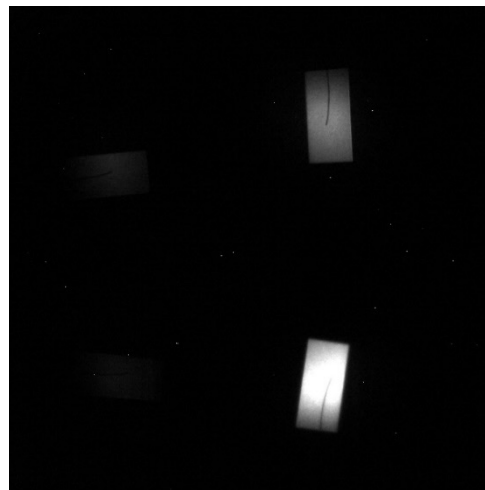
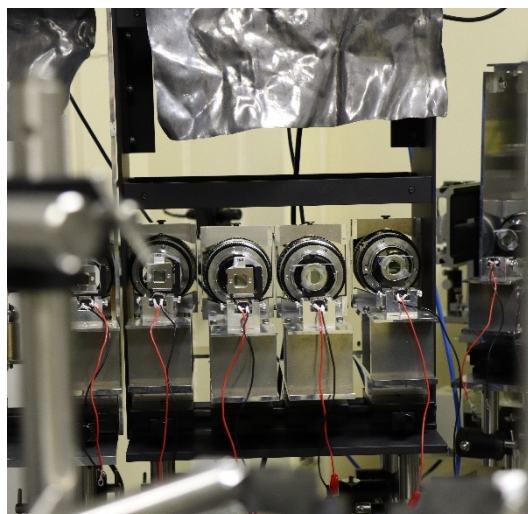
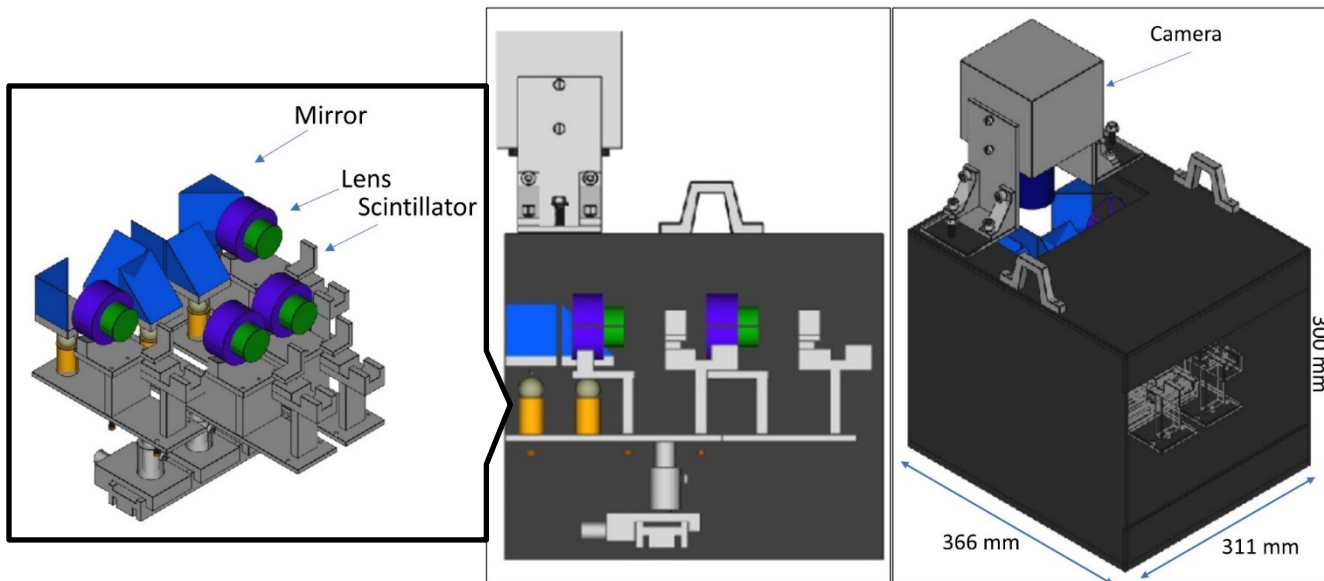
Short focus



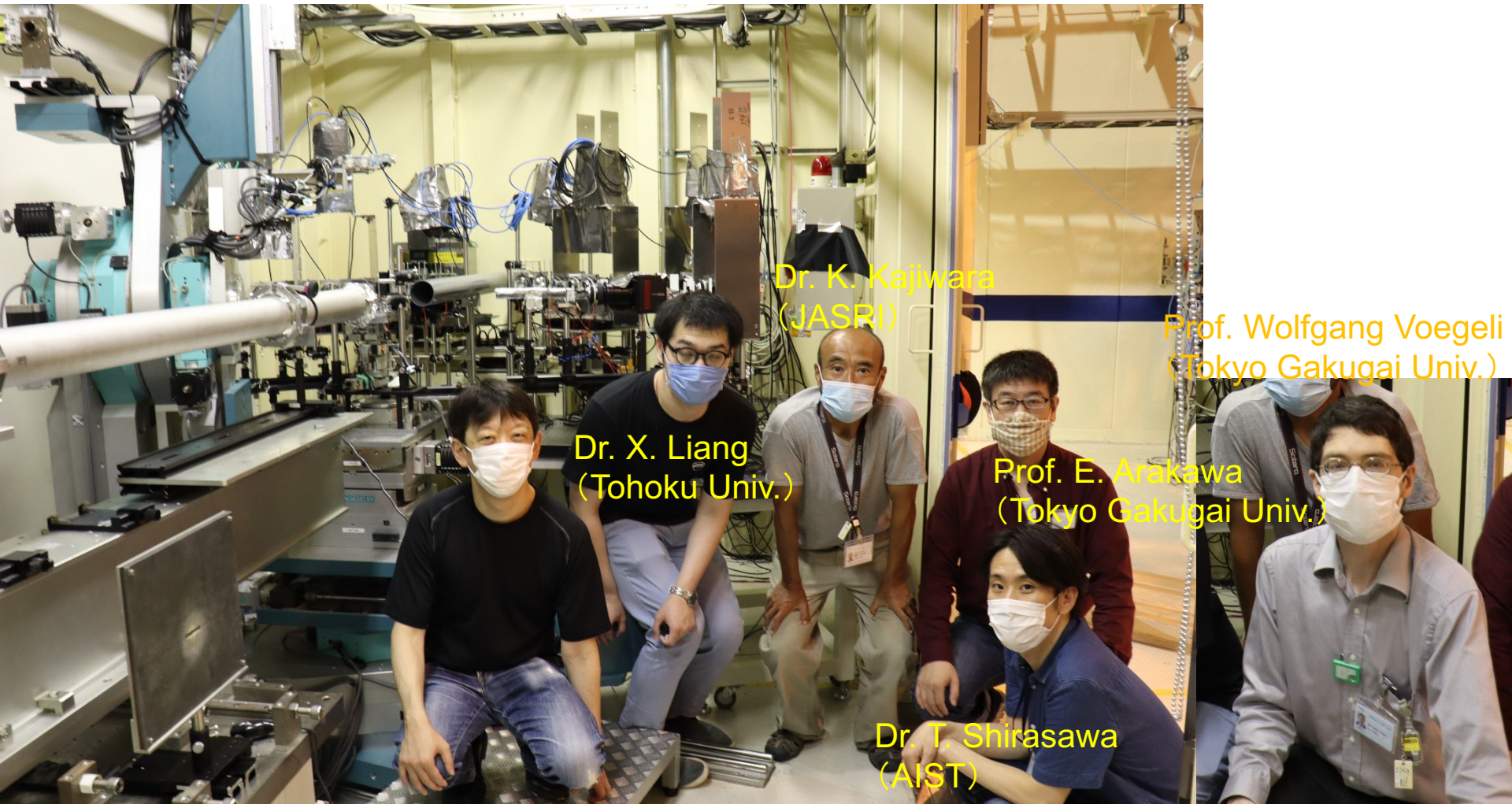
Small curvature of Si wafer
A large number of wide reflected X-ray beams
Hyperboloid \rightarrow No spherical aberration
Narrow energy-band width



可搬型のレンズカップリング型 画像検出器



Experimental setup at BL28B2, SPring-8 & our team members with masks (2020.7)



Dr. K. Kajiwara
(JASRI)

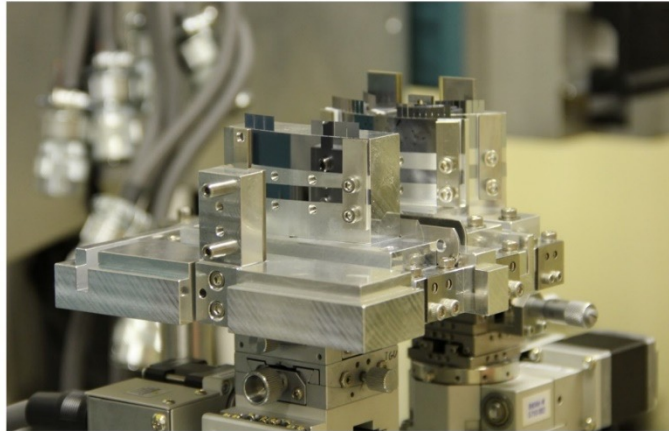
Prof. Wolfgang Voegeli
(Tokyo Gakugai Univ.)

Dr. X. Liang
(Tohoku Univ.)

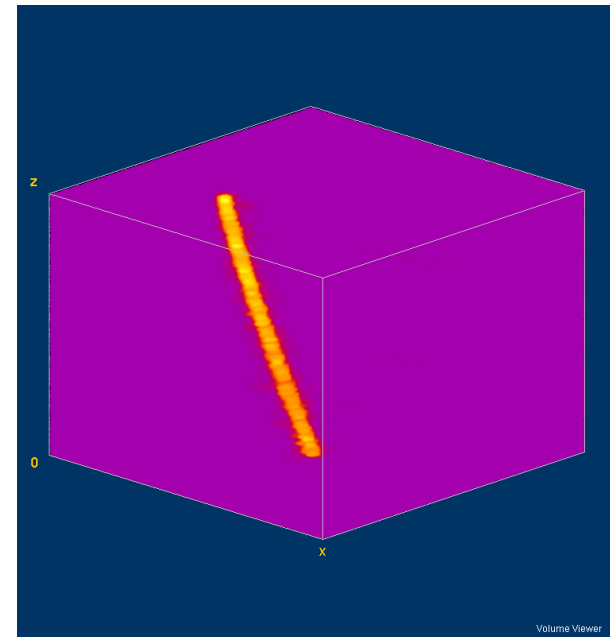
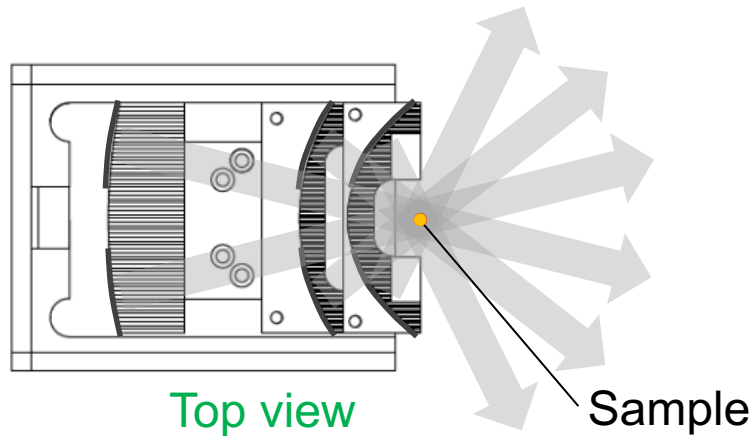
Prof. E. Arakawa
(Tokyo Gakugai Univ.)

Dr. T. Shirasawa
(AIST)

Proof-of-concept of 1 ms X-ray tomography with multi-beam imaging system

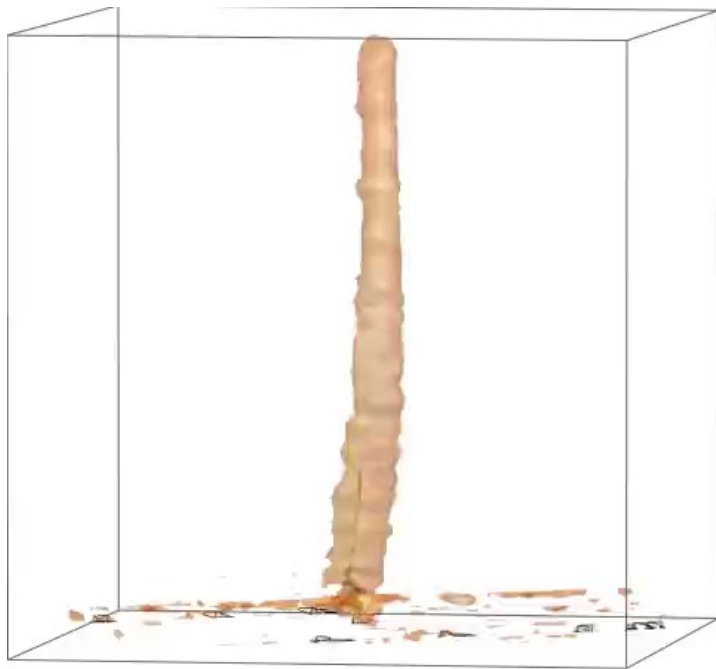


Sample: 50 μm -diameter tungsten wire
Exposure time: 1 ms
CT reconstruction: TV regularization based on super-compressed sensing



Published in *Optica* (2020) (2020IF = 11.1)

放射光マルチビーム光学系による 4D CT再構成(仮再構成結果)



4DX線CT仮再構成
(タングステンワイヤー)



4DX線CT仮再構成
(シリコンチューブ)

Sheet of images from one of the three *Monkeyshines* films (c. 1889–90) produced as tests of an early version of the Kinetoscope

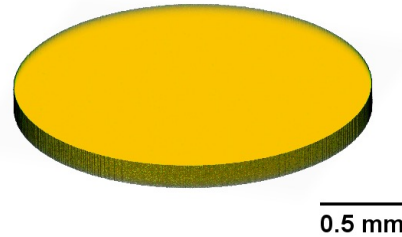


*Monkeyshines: mischievous or playful activity

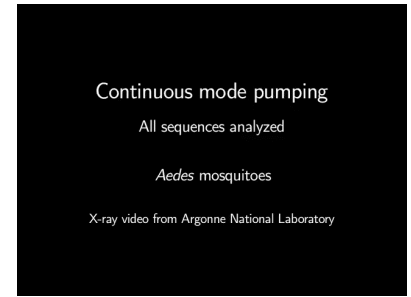
Applications of millisecond multi-beam X-ray tomography

- Breakage of soft materials
- Peeling process
 - Adhesion tape, bond
- Movement of crystal grain boundary
- Liquid
 - Collisions of liquid & liquid, solid & liquid
- Evaporation process
- Particle imaging velocimetry (PIV)
- Insects
 - Mosquito, ant, pill bug etc.
- Atomization
- Boring with drill
- Dynamical change in elastic modulus
- Fatigue, Wear

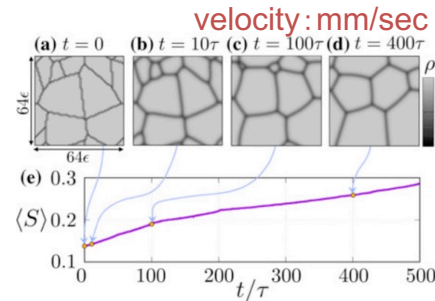
Breakage of soft materials



Mosquito sucking blood (Microfluid dynamics, Biomimetics)

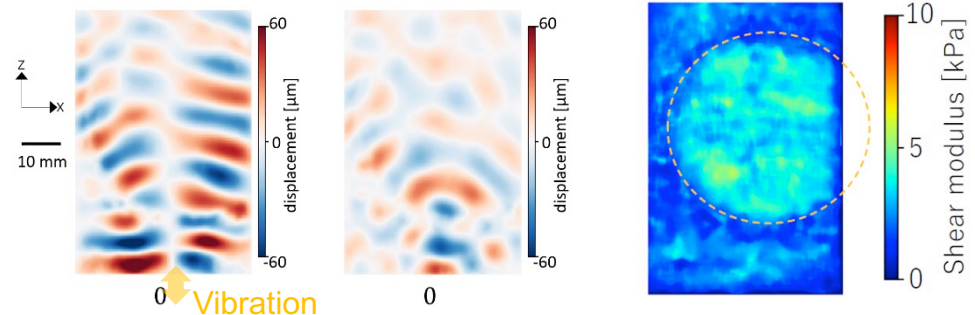


Movement of grain boundary



K. Kikuchi et al., Sci. Rep. 8 (2018) 4885.

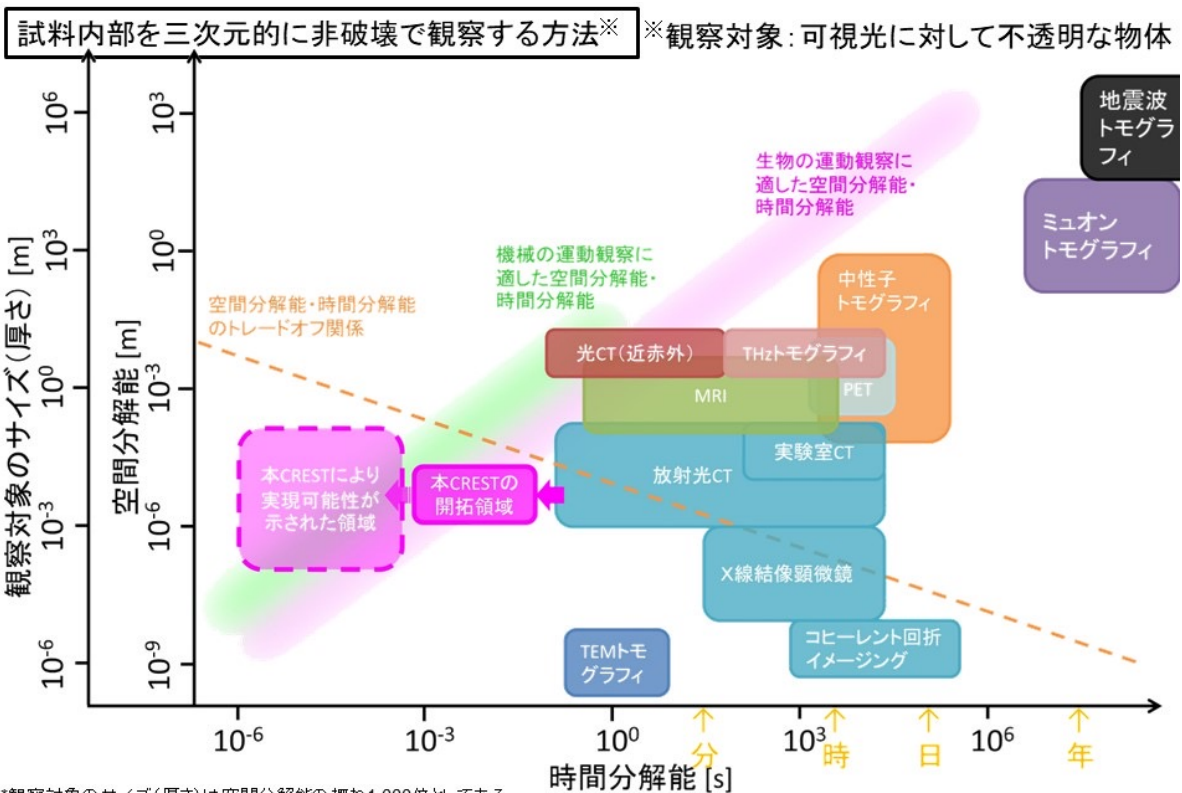
X-ray elastography



C. Kamezawa et al., Appl. Phys. Express 13 (2020) 042004.

- Difficult to observe by visible light microscope
 - ✓ Opaque
 - ✓ Thick (not within depth of focus)
 - ✓ With variable brightness
- 3D
- Spatial resolution: a few tens of μm
- Temporal resolution: 1 ms

4D放射光CTの将来展望



*観察対象のサイズ(厚さ)は空間分解能の概ね1,000倍としてある。

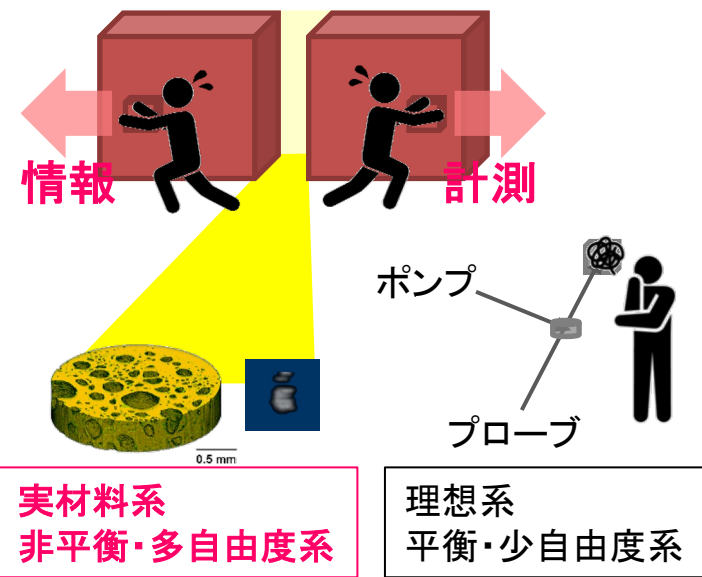


1 μ s

10~100 μ s

100 μ s

4DX線CTの時間分解能



ハイスループット
ビッグデータ解析

実材料・非平衡・多自由度系
マテリアルズ・インフォマティクスの創生へ

大型施設を利用した計測の汎用分析装置化なども期待

現状の課題 & 将来展望

- データ量の問題
- データ解析の課題
- 構造化データ・標準化
- 将来展望

4DX線CTデータ解析

(試料高速回転X線CTの場合の典型例)

Unsigned short
(16 bit)

生データ(試料あり)

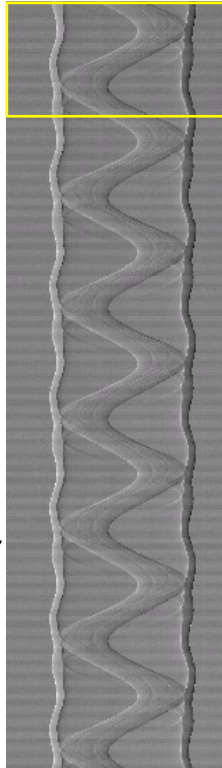
生データ(試料なし)

読み取りノイズ

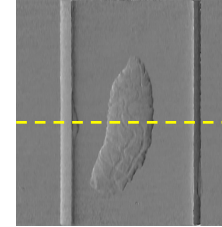
画像補正
デノイジング
など

Float (32 bit)
or
Double (64 bit)

試料回転(時間経過)
↓



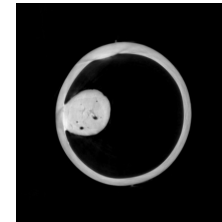
投影像



(縞走査)

サイノグラム

CT再構成像



従来法(FBP法、ART法など)
圧縮センシングに基づく方法*
深層学習に基づく方法
など

*東北大学ナレッジキャスト(株)に外注可能。

セグメンテーション

動画

3Dデータ解析



AMIRA, AVIZOなど
市販ソフトウェア

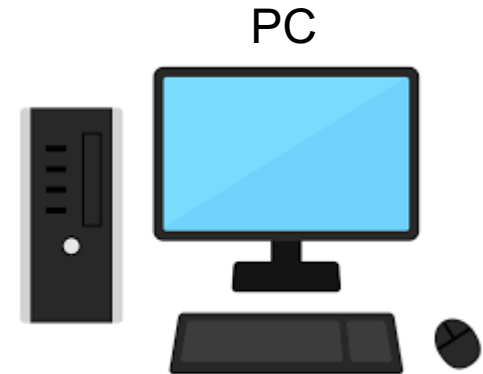
生データ量

試料高速回転4DX線CTの例

Vision Research社製TMX 6410
65,940 fps
for 1280 pixel × 800 pixel (16-bit integer)
Memory: 128 GB (撮影時間: 1.25 s)



10GbE



書き込み速度

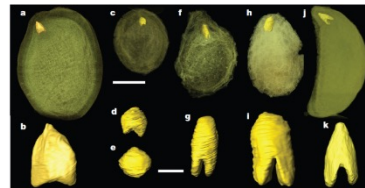
100 MB/s → 約20分
1 GB/s → 約2分

SLS TOMCAT beamlineの例

静的な3DX線CT



Nature 502 (2013) 546.



Nature 528 (2015) 551.

1 GB/sの書き込み速度の場合:

約64 GB/min → 約4 TB/h

*約100 TB/d

約1 PB/200 h

約4 PB/1000h

*SPring-8, BL28B2で、100 MB/s書き込みの場合、
試料交換手動、調整試行錯誤のため1/30倍のデータ量

データ解析の課題

- CT再構成時間 ($1K \times 1K \times 1K \times 100$ framesの例)
 - 従来法 (FBP) : 約1時間 (標準的なGPU PC)
 - 圧縮センシングに基づく方法 : 数10 ~ 数100倍
 - 将来的にはスパコン利用 ?
- 中間ファイル (float or double) のデータ容量・保存時間
 - 中間ファイルを保存しない選択肢もあり
- 4Dビッグデータ解析

構造化データ・標準化

— 計測法の多様性の問題 —

イメージング分科会サブ分科会名称案	キーワード
透過X線イメージング	ラジオグラフィ、CT、白色、単色、2D、3D、硬X線、吸収コントラスト、位相コントラスト、散乱コントラスト、XAFS、X線画像検出器
コヒーレント回折イメージング	コヒーレント回折イメージング、タイコグラフィ、ホログラフィ、2D、3D、硬X線、テンドーX線、軟X線、XAFS、X線画像検出器
蛍光X線イメージング	硬X線、軟X線、蛍光X線、エネルギー分解型X線検出器
結像X線顕微法	2D、3D、硬X線、軟X線、吸収コントラスト、位相コントラスト、Zernike型、X線画像検出器
走査型透過X線顕微法	STXM、硬X線、軟X線、吸収コントラスト、位相コントラスト、散乱コントラスト
XRDイメージング	XRDイメージング、応力測定
XMCDイメージング	2D、3D
光電子顕微鏡	PEEM、2D
コンプトン後方散乱イメージング	
X線トポグラフィ	白色、単色
蛍光X線ホログラフィ?	

当面の課題(2022.12時点)

- ◆ 国内放射光施設で共通のマシンリーダブルな標準メタデータの定義(生データに対して)

ニーズ

将来展望(線CTの例)



物質科学
生命科学

新たな知見

'Metrology'

相互理解

データサイエンス

試料提供

新たな計測法

新たな解析法

新たな解析法

試料準備

測定

CT再構成

試料の標準化

試料オートチェンジャー
高速データ転送
高速データ保存
メタデータの標準化

受注体制の整備
スパコンの利用
最先端CT再構成技術の活用

3D・4D
ビッグデータ解析

ニーズ

一部オープン化

一部オープン化

一部オープン化

新たな知見

オープンデータ
(マシンリーダブルな「知」の資源化)

まとめ

- 放射光とは？
- 放射光を活用した主な計測方法
- 放射光計測のデータ
- データ解析（イメージングの例）
- 現状の課題 & 将来展望（イメージングの例）
 - データ量の問題
 - データ解析の課題
 - 構造化データ・標準化
 - 将来展望