

平成 29 年 6 月 2 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13402

研究課題名（和文）X線動的回折顕微法の開拓

研究課題名（英文）Study on Dynamic X-ray Diffraction Microscopy

研究代表者

篠原 佑也（Shinohara, Yuya）

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・助教

研究者番号：60451861

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,100,000円

研究成果の概要（和文）：本研究はコヒーレントX線回折実験を用いて物質中のダイナミクスを可視化するための新しい測定・解析の方法論「X線動的回折顕微法」を提案することを目的として実施した。本研究では散乱像の時系列データに対して時間方向の情報冗長性を活用して、物質中のダイナミクスに関する前提知識なしにX線散乱実験で失われる位相情報を回復して実空間動画像の再構成に成功した。本格的な研究成果は今後の研究動向を待つ必要があるが、挑戦的萌芽研究として、時間方向の冗長性を活かした解析手法の可能性を先駆的に示すことができた。

研究成果の概要（英文）：In this work, we proposed a new scheme for visualizing a movie of dynamical structures in real space from a series of X-ray scattering images taken with coherent X-rays. To recover the phase information that is lost in the scattering measurement, we have utilized redundancy in time, which resembles the use of redundancy in space in X-ray ptychography. We have successfully recovered a movie of randomly moving particles from a series of speckle scattering patterns. This work shows a way to utilize coherent X-ray scattering for visualizing microscopic dynamics in real space.

研究分野：X線回折物理

キーワード：コヒーレントX線 量子ビーム 回折顕微法

1. 研究開始当初の背景

近年の放射光 X 線源の発展に伴う X 線測定技術の高度化により、コヒーレント X 線を利用した研究が注目を集めている。特にコヒーレント X 線回折と位相回復アルゴリズムとを組み合わせたコヒーレント回折イメージング (CDI) は、非晶性試料の X 線波長分解能での実空間構造解析、可視化を目的として精力的に研究が進められている。しかし、その対象は主に静的な構造に限られており、時間変化する動的構造の可視化は対象とされていない。一方、申請者はこれまでコヒーレント X 線を用いたダイナミクス測定法として X 線光子相関分光法 (XPCS) を開拓してきたが、あくまでも逆空間でのダイナミクス測定に留まっており、動的な構造の可視化、すなわち構造変化・揺らぎの動画撮影には至っていない。

次世代の放射光 X 線源では、よりコヒーレントな X 線が可能になると期待されている。このコヒーレント X 線を活かした新規測定手法の重要性は広く認識されており、動的構造の X 線波長分解能での可視化は、構造解析における目標の 1 つとして測定手法の開拓が望まれるものである。

X 線の回折像 (逆空間構造) から実空間構造を再構成するためには、「測定の際に失われてしまう位相情報をいかに復元するか」という、位相問題として古くから知られている問題を解決する必要がある。実空間の電子密度分布を $\rho(r)$ とすると、試料に X 線を照射して得られる散乱強度 $I(q)$ は、 $\rho(r)$ の Fourier 変換 (散乱振幅) の絶対値を 2 乗したものに对应する。絶対値の 2 乗をとる際に、位相情報が失われ情報が欠損する。したがって散乱強度から逆 Fourier 変換を用いて散乱振幅を一意に定めることはできず、散乱実験から $\rho(r)$ を一意に求めることができないことになる。試料が結晶の場合には種々の手法により位相問題の解決法が示されており、X 線回折実験から試料の実空間構造を求めることができる。試料が結晶ではなく非晶性試料の場合にも、1999 年に実験で実証されたように孤立物体を対象として試料の構造推定に対して条件を課した反復法を通して位相回復を実施することで、散乱実験から試料の実空間構造を再構成できることが示された (CDI)。孤立物体ではない試料に対してもタイコグラフィ (Ptychography) と呼ばれる手法を用いて、情報量の欠損を補うことで実空間構造を回復できることが示された。この手法ではコヒーレントな X 線を試料上で走査しながら散乱像を測定し、その際に X 線の照射位置に空間的

な重なり合いをもたせる。これにより情報の冗長性が確保され、孤立物体ではない試料を対象として散乱像から実空間構造が回復できることが示されている。しかしこれまでの研究は主に静的な試料を対象としている、刻一刻と構造変化する、あるいは構造揺らぎを示す試料への適用は困難であった。

2. 研究の目的

本研究では、コヒーレント X 線回折実験を用いて物質中のダイナミクスを可視化するための新しい測定・解析の方法論「X 線動的回折顕微鏡法」を提案する。具体的には (A) ダイナミクスを測定するための X 線光子相関分光法、(B) 回折 X 線像から実空間像を可視化するコヒーレント回折イメージング、というコヒーレント X 線回折を用いた 2 つの手法を融合し、さらに新たなアルゴリズムを導入することにより、物質の動的構造を可視化した動画を実空間で再構成する方法論の提案を目的とする。放射光 X 線や X 線自由電子レーザーなどで利用可能な X 線輝度の向上、コヒーレント X 線強度の増大が見込まれる中、それらの将来展開を見越して、コヒーレント X 線を活かした新規解析手法としての実空間動画再構成法の提案を目指す。

3. 研究の方法

本研究では物質の動的構造を可視化するための難点を、XPCS 測定と類似の測定を実施し、位相回復操作と組み合わせることで解決することを目指した。タイコグラフィでは試料上での X 線の照射位置を変える、すなわち空間走査することで情報の冗長性を得ている。本研究では時間方向に走査することで情報の冗長性を得て、位相回復計算を通じた実空間構造の再構成および X 線波面の回復をする。

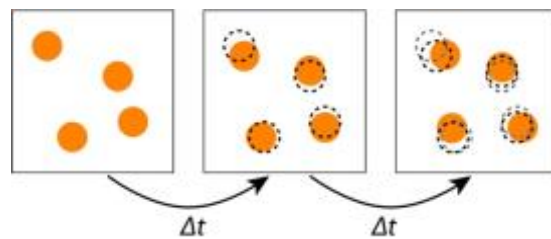


図 1：時間方向の情報冗長性を利用した実空間動画再構成の概念図。

図 1 に時間方向の情報冗長性を利用した再構成の概念図を示す。モデル試料として球形粒子がランダムに動き回る系を考える。粒子の運動を特徴付ける時間 τ よりも短い時間間

隔 Δt 毎に粒子配置を図示すると、図のように 1 つ前のフレームと比較して各粒子の位置がずれている。したがってフレーム間の実空間像を比較すると、粒子の存在している位置に相関がある。すなわちフレーム間で粒子の存在している位置に相関があるような時間間隔 Δt を選択すると、時間方向での情報の冗長性が生じる。タイコグラフィでは各照射位置で得られた散乱像を用いた反復計算により実空間像の再構成が行われるが、これを時間方向に応用し、本研究では時系列の散乱像を用いた反復計算により実空間像の再構成を実施する。

4. 研究成果

(1) 実空間像再構成アルゴリズムの構築

i 番目のフレームにおける試料透過関数を $T^i(\mathbf{r})$ 、ビームの波面を $P(\mathbf{r})$ と表すと、X線の透過波面 $\psi^i(\mathbf{r})$ 、散乱強度 $I^i(\mathbf{q})$ はそれぞれ次式のように表される。

$$\begin{aligned}\psi^i(\mathbf{r}) &= T^i(\mathbf{r})P(\mathbf{r}) \\ I^i(\mathbf{q}) &= |\Psi^i(\mathbf{q})|^2\end{aligned}$$

ただし、 $\Psi^i(\mathbf{q})$ は $\psi^i(\mathbf{r})$ のフーリエ変換である。実空間像再構成アルゴリズムにおいては $I^i(\mathbf{q})$ を入力として、反復法を用いて $\psi^i(\mathbf{r})$ を求める。反復毎に連続した別フレームの散乱強度を入力として用い、各反復において逆空間における情報更新は $\Psi^i(\mathbf{q})$ の振幅部分を入力 $I^i(\mathbf{q})$ の平方根で置き換えることで実施する。実空間における情報更新に関して $T^i(\mathbf{r})$ の情報更新には前回の同一フレームの $T^i(\mathbf{r})$ の情報および 1 つ前の反復における $P(\mathbf{r})$ の情報を用いる。これにより $P(\mathbf{r})$ を介して異なるフレーム間での情報の冗長性を利用することができる。本研究では Python を用いて実装してモデルデータに適用したが、実行速度などが重要となる実際の応用では、別の言語を用いて実装すべきであろう。

(2) 実空間像再構成の粒子分散系への適用

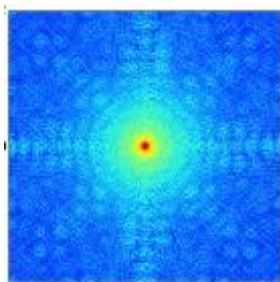


図 2：試料からの散乱像。

実空間像再構成アルゴリズムを粒子分散系

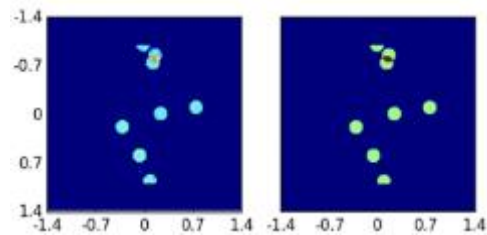


図 3：再構成に用いた試料の位相分布(右)と再構成結果(左)。32 フレームのうちの 1 枚。

に適用し妥当性を確認した。粒子間相互作用がなく各粒子が 2 次元面内でランダムに動き回る系を対象とした。粒子の衝突も考慮せず、複数の粒子が重なりを持つ際にはその領域での電子密度分布は単純に足しあわされるものとした。これは有限の厚みのある試料の場合に、電子密度を X 線の進行方向に投影していることに対応する。実空間像の再構成にはランダムに動き回る粒子の瞬間像を 35 枚用いた。入射 X 線として、空間的、時間的にコヒーレントなものを用い、ビームのモード数は 1 とした。さらに、入射 X 線の波面の位相分布は時間的に不変であるという条件を課し、散乱像の計算においては光子統計を無視した。また弱位相物体近似を用い、X 線の試料への入射後、粒子による振幅変化は無く、位相のみが影響を受けるとした。図 2 に試料からの X 線散乱像(計算)を示す。各フレームに関してこのような散乱像を計算し、その散乱像を用いて実空間像再構成を実施した。各フレームに関して 820 回の反復計算を行い、一連の画像に対して合計で 35 フレーム \times 820 回/フレーム = 28,700 回の反復計算を実施した。図 3 に再構成アルゴリズムの適用結果を示す。図から明らかなように、粒子の実空間構造が再構成された。各フレームについて同様に実空間構造が再構成できたため、各実空間像を並べることで、時系列の散乱像のみを用いて実空間像の動画を再構成することに成功した。

実空間像の再構成に関して、フレーム数依存性、フレーム間の粒子の移動量依存性を検討した。その結果、真の像と再構成像との各ピクセルにおける差分の平均二乗和によって評価した再構成の質は、フレーム数が大きくなるほど向上することが明らかになった。その一方で、再構成結果の粒子の移動量依存性に関しては、ある最適値があることが定性的に示されたが、高速な再構成アルゴリズムを用いた大規模な検討を要することが明らかになった。これに関しては今後の課題となる。

実際の実験に応用するにあたっては、コヒ

ーレント X 線の強度が有限であることを考慮にいれなければならない。このため入射 X 線の光子数を規定し、光子統計を導入した際の再構成についても検討した。その結果、再構成に用いられる散乱像の X 線光子数が 10^6 程度あれば、試料の条件にも大きく依存するものの、ビームサイズが 2 ミクロン径の X 線を用いた散乱実験により得られた情報から再構成に成功することがわかった。将来的な応用を考える上では、照射損傷との兼ね合いを検討する必要があるだろう。

今回の結果により、刻一刻と構造が時間変化するような系に対して、コヒーレント X 線の散乱を時間分割測定することを通して、非晶性試料であっても実空間構造を再構成することの可能性を拓くことができた。本研究は挑戦的萌芽研究であるため、本格的な研究成果は今後の研究動向を待たなければならないが、時間方向の冗長性を活かした実空間動画再構成の可能性を先駆的に示した点が大きな成果であると考えている。

5. 主な発表論文等

〔学会発表〕(計 3 件)

- ① 篠原佑也、「コヒーレント X 線の散乱を用いた非晶性試料の構造解析」第 381 回 CBI 学会講演会、2017 年 2 月 16 日、東京大学山の上会館（東京都文京区）
- ② 篠原佑也、「コヒーレント X 線を用いた小角散乱研究」PF 研究会、2016 年 3 月 30 日、高エネルギー加速器研究機構（茨城県つくば市）
- ③ 篠原佑也、雨宮慶幸「量子ビームの総合 & 最大活用 - 真なる Frontier Softmatter を目指して --」FSBL 成果報告会、2016 年 1 月 18 日、名古屋工業大学（愛知県名古屋市）

6. 研究組織

(1) 研究代表者

篠原佑也 (SHINOHARA, Yuya)

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・助教

研究者番号：6 0 4 5 1 8 6 1

(2) 研究協力者

佐々木誓良 (SASAKI, Chikara)

東京大学大学院新領域創成科学研究科