

令和 5 年 6 月 12 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K12504

研究課題名（和文）高度情報処理技術との融合による走査型硬X線顕微鏡の高分解能化

研究課題名（英文）Informatics-aided resolution enhancement of scanning x-ray microscope

研究代表者

大隅 寛幸（Ohsumi, Hiroyuki）

国立研究開発法人理化学研究所・放射光科学研究センター・専任研究員

研究者番号：90360825

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：物質の性質や機能を可視化できる走査型X線顕微鏡を高分解能化するために、冗長性を持たせて測定した顕微観察データに確率的情報処理を適用し、デノイズング、ブレ除去、アップサンプリング、ブラインド・デコンボリューションにより空間分解能を向上させる手法を開発した。高度な情報処理技術と計測技術の融合により、試料温度を変化させても破綻しない分析イメージングが可能な走査型X線顕微鏡を実現した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ハードウェアの高精度化や繰り返し測定による統計量抽出の代替手段として、確率的情報処理が走査型X線顕微観察装置に対しても有効であることを示し、新たな装置高性能化の方向性を提示した。また、試料温度を変化させても破綻しない物性や材料機能の分析イメージングを実現し、エネルギー問題や環境問題に大きく貢献できるメソスコピックな物質構造科学研究のツールとして一段階進化させることに成功した。

研究成果の概要（英文）：Probabilistic information processing techniques have been developed to improve spatial resolution of a scanning x-ray microscope that visualizes material properties and functions. Denoising, deblurring, upsampling and blind deconvolution are applied to micrographs measured with redundancy. Integration of informatics and instrumentation has enabled scanning x-ray microscopy under variable temperature.

研究分野：放射光科学

キーワード：走査型X線顕微鏡 ブラインド・デコンボリューション マルチフレーム超解像

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

X線集光技術の進展により、試料の局所分析手段として、X線分光による電子状態解析やX線回折による原子配列計測が利用可能になってきた。これら手法をラスタ走査測定へと発展させることで、物性と深く関わる電子状態や構造対称性をコントラストとした分析イメージングを実現することができる。複素屈折率をコントラストとしたX線イメージング手法とは可視化される物理量が異なるため、走査型X線顕微鏡の高分解能化により観察対象および応用範囲の拡大が期待できる。ところが、試料温度可変性を備えた装置は熱絶縁が必要なため、集光光学系と振動モードを一致させることが難しく、集光ビームサイズの微小化が観察像の歪により空間分解能の向上に直結しない問題に直面していた(図1参照)。この状況を打開する為に、高度情報処理技術によりハードウェア由来の観察像の歪を低減し、空間分解能を改善する走査型X線顕微鏡観察の手法開発を計画した。

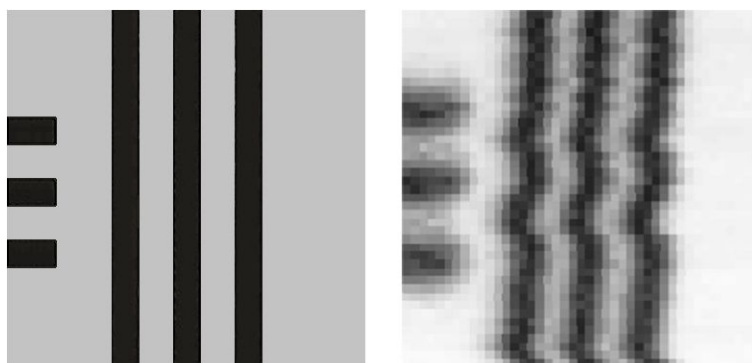


図1 (左図) テストチャートパターン 黒帯の幅は 280 nm
(右図) その走査型 X 線顕微鏡観察像 集光ビームサイズは
H250×V300 nm² (FWHM)

2. 研究の目的

本研究は、測定操作に忠実な計測モデルへの確率的情報処理適用による画像回復の技術開発と、その性能を最大限引き出すために必要な計測技術の高度化を目的とした。それにより、走査型X線顕微鏡装置のハードウェア的限界を超えた性能向上を達成し、物性の温度変化を可視化する利用研究に繋ぐことを目指した。

3. 研究の方法

大型放射光施設 SPring-8 の BL19LXU に設置された走査型硬 X 線顕微鏡における測定操作を要素分解し、実態に即した計測モデルに落とし込み確率的情報処理アルゴリズムを構築した。具体的には、Kirkpatrick-Baez ミラーにより集光された放射光 X 線 (焦点サイズは 120×120 nm² 程度) を用いて、焦点位置における試料の局所 X 線応答をラスタ走査測定していることから、観察像を劣化させる原因として、入射ビーム強度の変動・振動モードの不一致に起因する試料と焦点の相対位置関係の変動・光子数計測におけるショットノイズおよび電気ノイズを想定した。

光子数計測におけるショットノイズはポアソン分布に従うことから、確率的情報処理を適用して画像回復を行う方針を採用し、劣化前の原像 (潜在変数) を最尤推定期待値最大化法によって再構成する反復計算を、GPU による並列処理も取り入れた形でインプリメントした。その内容は、ポアソン分布の下で観測像が得られる確率を最大にする期待値 (原像とビームプロファイルのコンボリューション) の推定と、その期待値を実現する原像を求める逆問題の求解とから構成されている。再構成された原像は最尤推定量になっていて、ショットノイズを含まずビームプロファイルもデコンボリューションされている。

ビームタイムが限られる放射光実験では、測定対象のナイキストレートに合わせた標準化ピッチでラスタ走査測定を行い、エイリアシングを回避しつつ測定時間の短縮化が図られる。そのため、デノイズングによるノイズフロアの低下で再構成像のカットオフ周波数が高周波数側にシフトすると、途端にナイキスト基準が満たされなくなりエイリアシングが発生してしまう。この問題は、最尤推定期待値最大化法によって再構成する原像の高解像度化で解決できるが、採用されている計測モデルと整合した形でデータ収集が行われている必要がある。情報処理技術と計測技術の双方を高度化することにより、走査型硬 X 線顕微鏡の高分解能化を目指した。

4. 研究成果

(1) 情報処理アルゴリズムによるハードウェア的制約の克服

試料の局所分析手段として分光測定のみならず回折測定にも対応可能かつ試料温度可変な走査型 X 線顕微鏡装置は、二軸回折計構成や熱絶縁構造をも備える必要があるため、大掛かりかつ複雑なものにならざるを得ない。集光光学系と二軸回折計は同一の光学定盤に設置されているが、Kirkpatrick-Baez ミラーの姿勢制御機構ならびに集光 X 線の焦点位置に回折計の回転中心を一致させる機構などが必要のため、定盤上面から 630 mm の高さにビームが位置する。装置主材(アルミ)の線膨張係数 23×10^{-6} から試料位置の温度変動が約 $14 \mu\text{m}/\text{K}$ にも及ぶと試算されるものの、集光ビーム(焦点サイズが $120 \times 120 \text{ nm}^2$ 程度)の照射位置を必要な精度でモニターすることは技術的に困難である。また、慣性負荷があるためピエゾステージの位置を高速にフィードバック制御することも難しい。図 2 に慣性負荷の影響により、50 nm を 6 ms で走査するよう制御信号を与えても、on-the-fly 測定の結果が不等間隔格子データになってしまう様子を示した。このように、走査型 X 線顕微鏡のハードウェア改良のみで、歪みのない観察を実現することは極めて困難と予想される。さらに、入射ビーム強度の変動をリアルタイムかつ高信号対雑音比でモニターすることも、Kirkpatrick-Baez ミラーのワーキングディスタンスが短く適切なイオンチェンバが設置できないため困難である。

ハードウェア的限界を克服するために、最尤推定期待値最大化法を適用する計測モデルに集光ビームの照射位置を潜在変数として加え、ブラインド・デコンボリューションにより観察像の歪みを補正するアルゴリズムを構築した。再構成される原像は、等間隔格子データにリサンプリングされることから、慣性負荷による歪みの解消も同時に実現することができた。本研究の成果は、高分解能変位計の設置や振動モードマッチングを前提とした、これまでの走査型 X 線顕微鏡の設計方針では対応できない種々の放射光実験装置に、情報処理技術の活用による顕微鏡化という新たな可能性を提示するものと言える。一方、高分解能変位計を備えた既存の走査型 X 線顕微鏡に対しても、集光ビーム照射位置擾乱への許容度を高める効果が期待できることから、温度変化あるいは外場印加等の新たな可能性を拓く技術と位置付けることができる。

走査型 X 線顕微鏡では焦点サイズが空間分解能を決めることから、集光光学系の縮小率を稼ぐためにワーキングディスタンスを長くとることができない。そのため、試料への入射ビーム強度を高精度にモニターすることは、ハードウェア構成上の制約により実現困難である。しかし、低信号対雑音比な入射ビーム強度モニター値での規格化処理は、吸収強度や回折強度を高信号対雑音比で測定する努力を意味のないものにしてしまう。そこで、試料がない状態で対照実験を行い、高精度な X 線検出器を用いて入射ビーム強度の相対標準偏差を評価し、その事前情報を考慮に入れた最大事後確率推定期待値最大化法により入射ビーム強度を推定し規格化するアルゴリズムを構築した。入射ビーム強度が高精度にモニターできない技術的困難はあらゆる走査型 X 線顕微鏡で共通の問題であることから、測定方法の最適化と情報処理技術により装置に依存せず改善が期待できる本成果の波及効果は大きい。

確率的情報処理技術の有効性はラスタ走査測定に限られるものではなく、繰り返し測定により統計量を抽出することが容易でない測定一般に有効であると考えられる。今後、そのような新たな応用展開先の開拓や、期待値最大化法に相当する逐次近似計算部分の高度化により、放射光実験への確率的情報処理技術の取り込みが進んで行くものと予想している。

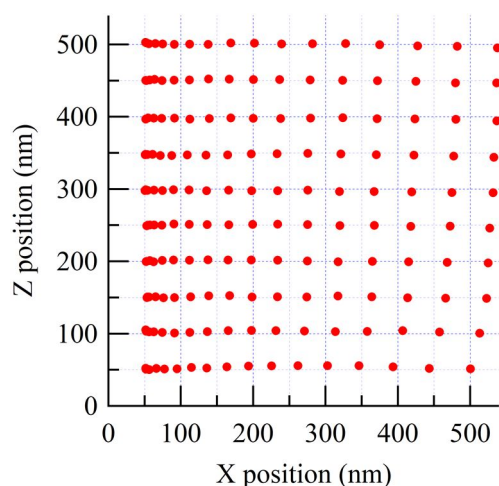


図 2 慣性負荷の影響により不等間隔格子になっている on-the-fly 測定での集光ビーム照射位置

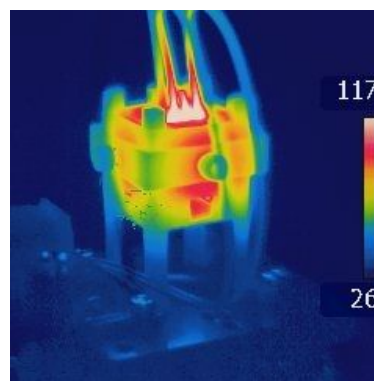


図 3 試料を 180 に加熱した状態でのポリイミド製加熱機構のサーモグラフィ

(2) 試料温度を変化させての走査型 X 線顕微観察の実現

試料を加熱したり冷却したりする操作は、装置温度安定性を大きく損なうため、走査型 X 線顕微観察装置とは極めて相性が悪い。しかし、物性や材料機能の分析イメージングの強力なツールとするために、試料温度を変化させても破綻しない走査型 X 線顕微観察の実現を目指した高度化研究を実施した。具体的には、慣性負荷の増加を最小限に抑えるために、ヒーターおよび温度センサー込みで 16.8 g のポリエーテルイミド製加熱機構を作製した。図 3 は試料を 180 °C に加熱した状態での加熱機構のサーモグラフィで、熱絶縁性が高く最下部に写っているピエゾステージの温度が室温と変わらないことを示している。ポリエーテルイミドの連続耐熱温度は 170 °C 以下とされ、180 °C では弾性率の低下により加熱機構自体が変形しやすくなっている。そのため、集光ビーム照射位置とピエゾステージのエンコーダ指示値との対応関係が崩れ、観察像が歪むようになり走査型 X 線顕微測定が破綻する。この問題を解決するために、温度擾乱による観察像の歪みを補正するアルゴリズムの構築を行った。ラスタ測定で、ビームの裾をオーバーラップさせると、現在の走査線の情報にも次に測定する走査線位置の情報が含まれることから、両者の比較により位置ずれ情報を抽出することが可能なのである。そこで、既測定領域のデータから再構成した原像とビームプロファイルのコンボリューションを計算して用意した予測データと、その後実際に測定されたデータとの間の零平均正規化相互相関を指標として位置ずれ量を評価し、温度擾乱を補正することにした。

試料を 180 °C まで加熱して測定したネオジム磁石の補正なし吸収コントラスト像、補正あり吸収コントラスト像、補正あり磁気円二色性像を図 4 に示した。確率的情報処理を適用して、オーバーラップ部分が自己無撞着になるように位置ずれ量を評価、観察像の歪みを補正するアルゴリズムが、上手く機能していることが確認できる。試料温度を変化させても破綻しない走査型 X 線顕微観察の実現という当初目標はほぼ達成され、今後温度範囲を拡大して行くことに大きな困難はないものと予想している。高温における熱消磁状態での磁区構造の観察成功は、走査型 X 線顕微鏡が物性や材料機能の分析イメージングの強力なツールとなり得ることを実証したものであり、エネルギー問題や環境問題に資するメソスコピックな物質構造科学研究に今後大きく貢献できると期待している。

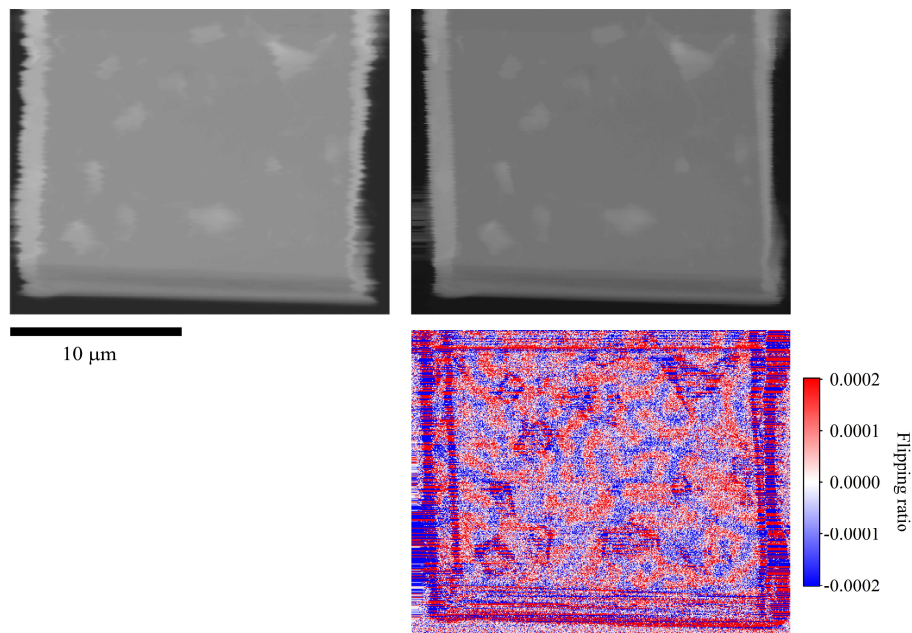


図 4 (左上図) 180 °C で測定したネオジム磁石の吸収コントラスト像
(右上図) 熱擾乱による歪みが補正された吸収コントラスト像
(右下図) 熱擾乱による歪みが補正された磁気円二色性像

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ohsumi Hiroyuki、Fujikawa Yoshinori、Liu Lihua、Kotani Yoshinori、Nakamura Tetsuya	4. 巻 94
2. 論文標題 Post-acquisition upsampling method for scanning x-ray microscopy	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 033701 ~ 033701
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0098245	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 大隅寛幸、藤川佳則、鈴木健一、劉麗華
2. 発表標題 放射光を用いた元素および結晶学的サイト選択的磁気測定
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大隅寛幸、藤川佳則、劉麗華、山田怜志、小谷佳範
2. 発表標題 走査型X線顕微測定における光電流計測法の検討
3. 学会等名 第34回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大隅寛幸、藤川佳則、劉麗華、小谷佳範、中村哲也
2. 発表標題 走査型X線顕微測定におけるサンプリングと復元
3. 学会等名 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
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------