

令和 4 年 6 月 22 日現在

機関番号：13903

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02747

研究課題名(和文) 逆畳み込み・畳み込み法による粉末X線回折データ処理ソフトウェアの開発

研究課題名(英文) Development of a software system for treatment of powder X-ray diffraction data based on deconvolution-convolution procedures

研究代表者

井田 隆 (Ida, Takashi)

名古屋工業大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：80232388

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 8,000,000円

研究成果の概要(和文)：申請者は半導体X線検出システムを搭載した実験室型の粉末X線回折装置の赤道収差に関する二次近似に基づく代数モデルと高効率な数値計算法を導き、実測のX線回折データから赤道収差の影響を除去するための実用的なデータ処理アプリケーションを開発した。さらに医薬品の薬効成分を含む比較的低分子量の有機化合物の分析への応用に展開することを計画し、その目的に沿ってピーク形状モデル関数システム開発を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

粉末X線回折測定は、天然鉱物や金属・セラミックス等の実用材料、医薬品の分析等に広く用いられる分析手法である。2000年代から実験室型の粉末X線回折測定装置にアレイ型PINフォトダイオードをセンサーとするX線検出システムが搭載されるようになり、粉末X線回折測定システムのパフォーマンスが飛躍的に向上することになった。しかし、従来型の測定装置とはわずかに実質的な部品配置が異なることにより、従来用いられた理論モデルを使うことができない一方で、正しい理論モデルの提案されていない状況が続いていた。本研究はこの問題を解消し、現代的な粉末X線回折測定技術の理論的な基盤の整備を実現した意義がある。

研究成果の概要(英文)：The applicant has derived arithmetic models and efficient algorithms about the equatorial aberration of laboratory X-ray diffraction measurement systems attached with semiconductor X-ray detectors, and also developed practical application softwares for analysis of powder diffraction data.

The applicant is planning the development of analytical methods for small molecular compounds including pharmaceuticals.

研究分野：物理化学，分析化学

キーワード：X線回折

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

粉末 X 線回折法は、天然鉱物や金属・セラミックスなどの実用材料、医薬品の分析等に広く用いられてきた分析手法である。2000 年代から実験室型の粉末 X 線回折測定装置にアレイ型 PIN フォトダイオード (半導体ストリップ型 X 線検出器 semiconductor strip type X-ray detector; SSXD) をセンサーとする X 線検出システムが搭載されるようになり、シンチレータと光電子増倍管を組み合わせた X 線センサー (シンチレーション・カウンター) を用いる従来型の装置と比較して短時間に高い統計精度を持つ X 線回折強度データが取得されるようになった。

SSXD を一定角速度で連続回転させながら、検出ストリップのカウントする X 線光子を、検出ストリップのオフセット角に応じて該当する回折角でのカウント数として積算する駆動方法 (連続走査積算法 continuous-scan integration; CSI) と組み合わせることにより、短時間で高いカウント数が得られるだけでなく、粉末試料中の結晶粒が回折条件を満たして観測回折強度に寄与する確率が高くなることも総合的な統計精度の向上に大きな寄与がある。

しかし、従来型の装置と比較して装置部品の幾何学的な配置がわずかにことなるものとなり、赤道方向に沿った X 線ビームの発散に由来する装置収差 (赤道収差) に関して従来用いられていた理論モデルは適用できないものである一方で、適切な理論モデルも提案されていない状況であった。

### 2. 研究の目的

本研究ではアレイ型 PIN フォトダイオードの装備された粉末 X 線回折測定装置の赤道収差の数学モデルを導出し、このモデルに基づいた逆畳込・畳込処理により、装置収差の影響を正しく評価・修正するための方法論を確立し、実用的なアプリケーション・ソフトウェアを開発・公開することを目的とする。

### 3. 研究の方法

赤道収差について二次近似に基づく代数モデルを導出し、さらに高次の近似に相当する数値計算により赤道収差の数学モデルを導く。これらのモデルに基づいたコンピュータ・シミュレーションと実測の粉末 X 線回折データの解析を行い、これらのモデルの妥当性について検証する。

赤道収差の装置函数の数学的な形式を明らかにし、この形式に基づいて高速フーリエ変換アルゴリズムを利用した逆畳込・畳込計算によって装置収差の 1 階と 3 階のキュムラントの影響を除去することにより、装置収差に由来するピーク位置シフトとピーク形状の非対称な変形の要因の主要部分を修整する実用的なアプリケーション・ソフトウェアを開発する。

アプリケーション・ソフトウェアの開発には、比較的最近広く利用されるようになった Python 言語を用いた。

### 4. 研究成果

粉末 X 線回折測定装置の赤道収差について二次近似に基づく代数モデルを導出した。

さらに高次の近似に相当する数値計算により、二次近似モデルの適用に限界があることを示した。装置函数の 4 階以下のキュムラントを計算するための実用的な形式を導き、4 階以下のキュムラントに関しては正確な処理を可能とする実用的な数値計算アルゴリズムを考案し、このアルゴリズムを搭載したデータ処理アプリケーション・ソフトウェアを開発した。

これらの研究成果は、学術論文および国際会議、プロシーディング記事として発表された。[T. Ida, J. Appl. Cryst., 53, 679 (2020); T. Ida, Powder Diffr., 36, 169 (2021)] さらに医薬品の薬効成分を含む比較的分子量の有機化合物の分析への応用に展開することを計画し、その目的に沿って開発を行ったピーク形状モデル函数システムについても発表した。[T. Ida, Powder Diffr., 36, 222 (2021)] 有機化合物の X 線に対する透過性の影響を明確にし、その処理法と処理後のデータのモデル化について発表した。[T. Ida, Powder Diffr., 37, 13 (2022)] 本研究の進行にとも

なって開発されたアプリケーション・ソフトウェアは筆者の管理する web サイトから公開されている。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5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 T. Ida	4. 巻 53
2. 論文標題 Equatorial aberration of powder diffraction data collected with an Si strip X-ray detector by a continuous-scan integration method	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 J. Appl. Crystallogr.	6. 最初と最後の頁 679-685
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1107/S1600576720005130	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Ida	4. 巻 53
2. 論文標題 Equatorial aberration of powder diffraction data collected with an Si strip X-ray detector by a continuous-scan integration method	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Applied Crystallography	6. 最初と最後の頁 166-177
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1107/S1600576720005130	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Ida	4. 巻 36
2. 論文標題 Equatorial aberration of powder diffraction data collected by continuous-scan integration of a silicon strip X-ray detector	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Powder Diffraction	6. 最初と最後の頁 169-175
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1017/S0885715621000403	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Ida	4. 巻 36
2. 論文標題 Continuous series of symmetric peak profile functions determined by standard deviation and kurtosis	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Powder Diffraction	6. 最初と最後の頁 222-232
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1017/S0885715621000567	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 -

1. 著者名 T. Ida	4. 巻 37
2. 論文標題 Convolution and deconvolutional treatment on sample transparency aberration in Bragg-Brentano geometry	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Powder Diffraction	6. 最初と最後の頁 13-21
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1017/S0885715622000021	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 T. Ida
2. 発表標題 Equatorial Aberration for Powder Diffraction Data Collected by Continuous Scan of a Silicon Strip X-ray Detector
3. 学会等名 Denver X-ray Conference (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 井田隆
2. 発表標題 シリコンストリップ型X線検出器の連続走査積算により収集された粉末回折データにおける赤道収差
3. 学会等名 日本結晶学会2020年度年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 井田隆
2. 発表標題 集中法反射型粉末回折測定における有限厚さ試料の透過性の効果
3. 学会等名 日本結晶学会2021年度年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 T. Ida
2. 発表標題 Effect of finite width of specimen on sample transparency aberration in Bragg-Brentano geometry
3. 学会等名 Denver X-ray Conference (国際学会)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

粉末回折データ前処理アプリ extern2 <a href="http://takashiida.floppy.jp/downloadjp/extern2-exe/">http://takashiida.floppy.jp/downloadjp/extern2-exe/</a> Powder XRD Preprocessor extern2.exe <a href="http://takashiida.floppy.jp/en/download/pxrd-preprocessor-extern2-exe/">http://takashiida.floppy.jp/en/download/pxrd-preprocessor-extern2-exe/</a> 粉末回折データ前処理アプリ extern3 <a href="http://takashiida.floppy.jp/downloadjp/extern3/">http://takashiida.floppy.jp/downloadjp/extern3/</a> Preprocessor application... : extern3 <a href="http://takashiida.floppy.jp/en/download/extern3/">http://takashiida.floppy.jp/en/download/extern3/</a>
--

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
---------	---------