

# 第6回日本放射光学会若手研究会 「コヒーレント X 線が拓く構造可視化の新しい世界」 報告

高橋幸生 (大阪大学大学院工学研究科/理化学研究所放射光科学総合研究センター)

日本放射光学会主催の第6回若手研究会「コヒーレント X 線が拓く構造可視化の新しい世界」が、理化学研究所放射光科学総合研究センター（以下、理研放射光センター）ならびに日本顕微鏡学会若手研究部会「様々な極微イメージング技術研究部会」共催の下、平成26年8月22日（金）、23日（土）の二日間にわたり、SPring-8 キャンパス内の SACLA 実験棟 2 階大会議室において開催されました。本研究会は、理研放射光センターの星野大樹氏、慶應義塾大学工学部の荳口友隆氏、筆者の3名で企画されました。北は札幌、南は福岡まで90名の方にご参加いただき、大盛況のうちに無事閉会いたしました。講演者の皆様、ご参加いただきました皆様に深く感謝申し上げます。

日本放射光学会若手研究会は、若手研究者のリーダーシップの育成およびサイエンスを通じた新しい人的ネットワークの形成に貢献するとともに、独創的・萌芽的な研究テーマの発掘およびその研究促進を目的として、日本放射光学会が毎年2月から3月にかけて公募しているものです。これまで毎年1件されるとというのが通例となっていました。今年の特例として本研究会を含めて2件が採択され、第6回と第7回が開催される運びとなりました。

第6回目にあたる本研究会は、コヒーレント X 線による構造可視化技術について議論することを主題として企画されました。近年、放射光施設における蓄積リングの低エミッタンス化や X 線自由電子レーザー (XFEL) の登場など X 線光源の技術的な進展により、X 線のコヒーレントフラックスが増大しています。これに伴い、コヒーレント回折イメージング、フーリエ変換ホログラフィー、光子相関分光など、X 線領域の光の 1 次コヒーレンス（可干渉性）を利用した計測が比較的容易に実施可能になってきました。コヒーレント X 線を利用したこれらの計測手法は、従来の X 線構造可視化技術では得られないユニークなナノメートル分解能の構造情報を提供してくれることから、次世代放射光源の開発計画において、常に重要なテーマとして位置付けられ、バイオイメージング・構造物性研究への展開が大いに期待されています。このような状況下で、コヒーレント X 線による構造可視化技術について議論する研究会を開催することは極めて有意義であると言えます。

コヒーレント X 線利用研究には、先端的な X 線光源技術が必要であることは言うまでもありませんが、計測・解

析に必要とされる技術が日増しに高度になり、単一グループの研究で成果を挙げるのが難しくなりつつあります。また、電子線や可視光レーザーなどのプローブを用いたコヒーレンス技術も急速に進展しており、X 線手法のみに目を向けていては、世界最先端の研究を行うことが容易でなくなりつつあります。このような状況を鑑みて、本研究会では、放射光、XFEL に加えて、電子線、可視光レーザーなどの光源・プローブ形成技術、それを用いたコヒーレント回折・散乱計測技術、計算科学・光学理論に携わる若手研究者が一堂に会し、それぞれの専門の枠を超えた議論を行うことを目的としました。

研究会の会場は、SPring-8 キャンパス内の SACLA 実験棟 2 階会議室に選定いたしました。その理由としては、2012年3月より供用運転が開始された XFEL 施設 SACLA の見学を本研究会の目玉としたかったことに加え、懇親会を研究会会場と同じ SACLA 実験棟内で開催可能なこと、SPring-8 ゲストハウスを宿泊施設として利用可能なこと等が挙げられます。SPring-8 は、これまでの若手研究会の開催地と比べ、必ずしもアクセスが良くありません。遠方からの参加でもなるべく一泊二日の出張で済むように、遅めの開会、早めの閉会（開会：22日13時30分、閉会：23日15時45分）としました。代わりに、初日の懇親会後にランプセッション、二日目にランチミーティングを設けるなどして、参加者の議論できる時間の確保を心がけました。

表1に本研究会のプログラムを示します。研究会初日は、趣旨説明の後のオープニングセッションに、理研放射光センターの石川哲也センター長に「X 線とコヒーレンス」と題する特別講演をお願いしました。石川先生は、放射光学会会員であれば皆がよく知る X 線光学の第一人者でおられます。Photon Factory で行った X 線の空間コヒーレンス長の測定、SPring-8 の 1 km 長尺ビームラインの建設、大阪大学と共同で行った全反射鏡の開発、超高分解能モノクロメータの開発、強度干渉法の研究、動力学回折によるコヒーレンス伝播の解析など、X 線領域のコヒーレンス利用の先駆的研究についてお話されました。多くの参加者が、石川先生がこの分野を牽引されてきたことを再認識したことと思います。最後のスライドで、「光子は Boson であり、電子は Fermion であるため、同じコヒーレンスといっても意味合いが異なる。Boson では生起

表1 研究会のプログラム

1日目:8月22日(金)

区分	講演者	所属	講演タイトル(時間:分)
開会の挨拶・趣旨説明	高橋幸生		
オープニングセッション	石川哲也	理研放射光センター	特別講演: X線とコヒーレンス(45)
セッション1:新しいコヒーレント光源・プローブ形成技術の最前線	田中隆次	理研放射光センター	XFELと次世代蓄積リングにおける光源性能(25)
	三村秀和	東京大学	X線レーザーのためのナノ集光技術とその将来展望(25)
	桑原真人	名古屋大学	スピン偏極パルスTEMにおけるコヒーレンス(25)
	小澤祐市	東北大多元研	レーザー光におけるベクトルビーム発生と応用(25)
ポスターセッション			
懇親会			
ランプセッション	郷原一寿	北海道大学	基調講演: X線・電子線領域の回折と原子分解能イメージング(30)

2日目:8月23日(土)

区分	講演者	所属	講演タイトル(時間:分)
セッション2:コヒーレント光学が拓く微視的世界	篠原佑也	東京大学	X線光子相関分光の現状と将来展望(25)
	高山裕貴	理研放射光センター	SPring-8・SACLAでの非結晶生体粒子低温コヒーレントX線回折イメージング(25)
	木村隆志	北海道大学電子科学研究所	超短パルスX線レーザーによる溶液中試料構造の可視化と応用(25)
	山崎順	大阪大学超高压電子顕微鏡センター	電子線の空間コヒーレンス測定と電子線回折イメージング(25)
	山本和生	ファインセラミックスセンター	電子線ホログラフィーによる電場、磁場の可視化(25)
	鈴木基寛	高輝度光科学研究センター	X線レンズレスホログラフィーイメージング(25)
ランチミーティング			
セッション3:理論計算とコヒーレント光学の融合	中島伸治	静岡大学	基調講演:位相回復問題—光の分野から見た歴史と現状—(35)
	塩谷浩之	室蘭工業大学	情報論的アプローチによる位相回復法(25)
	笠口友隆	慶應義塾大学	XFELによる生体超分子の新規構造解析法の提案及びシミュレーション(25)
	吉留崇	横浜市立大学	マニフォールドを用いた新規画像分類法(25)
	澤田桂	理研放射光センター	次世代コヒーレンス技術のためのX線光学理論(25)
総合討論・総括	高橋幸生		

し、Fermionでは生起しない(あるいはその逆の)コヒーレンス関連現象は?」とお示しになったのは、コヒーレンスを真に理解することがその利用研究において何より重要であると、若手研究者に向けられたメッセージのように読み取れました。

コーヒーブレイクを挟んでのセッション1「新しいコヒーレント光源・プローブ形成技術の最前線」では、理研放射光センターの田中隆次氏、東京大学の三村秀和氏、名古屋大学の桑原真人氏、東北大多元研の小澤祐市氏にご講演いただきました。田中氏からは、「XFELと次世代蓄積リングにおける光源性能」というタイトルで、XFELと放射光の発光原理と光源性能について大変分かりやすくご

説明いただきました。田中氏はX線光源の今後の展開として、蓄積リングの低エミッタンス化、XFELにおけるシーディングおよびパルス圧縮について言及されました。三村氏からは、「X線レーザーのためのナノ集光技術とその将来展望」と題して、これまで取り組んでこられたEEM加工と補償光学を駆使して実現した硬X線領域のナノビーム形成や2段集光による高光子密度XFELパルスの形成についてお話いただきました。また、最近取り組んでおられる軟X線集光用回転楕円ミラーの開発の進捗についての報告もありました。桑原氏は、「スピン偏極パルスTEMにおけるコヒーレンス」というタイトルで、独自に開発されたスピン偏極パルスTEM装置の原理および電

子線の輝度やコヒーレンスの詳細な解析結果についてお話されました。小澤氏からは、「レーザー光におけるベクトルビーム発生と応用」というタイトルでご講演いただきました。ベクトルビームとは、ビーム横断面において偏光が不均一に分布した光ビームのことであり、小澤氏らは、レーザー光の偏光分布だけでなく、空間的な強度分布も制御した高次横モードでの径偏光ビームの発生が可能であり、これを用いることで、従来のレーザー光ビームに比べて、より小さな集光スポットを形成可能であることをお話されました。高次横モードでの径偏光ビームは、共焦点レーザー走査顕微鏡システムや2光子励起レーザー顕微鏡システムにも応用されているとのこと。X線領域におけるベクトルビーム形成に関する研究は存在しますが、小澤氏のご講演はベクトルビームがX線光学のフロンティアとなることを予感させるものでした。

セッション1終了後、SACLA実験棟1階において全体写真を撮影し(図1)、XFEL施設SACLAの見学ツアーへと移動しました。見学の案内役は、理研放射光センターの矢橋牧名グループディレクターにお願いしました。8月22日はSACLAの運転停止期間中であったため、通常入ることのできない加速器トンネル内に入り、全長約700メートルからなる電子銃、加速管・アンジュレーター群を間近に見ることができました。著者を含め多くの参加者にとってSACLA加速器トンネル内に入るのは初体験であり、世界一コンパクトなXFEL施設とは言え、そのスケールの大きさに圧倒されたのではないのでしょうか。

SACLA見学ツアー終了後は、SACLA実験棟2階のホールでポスターセッションを行いました。ポスターセッションでは、大学院学生および新進気鋭の若手研究者から11件の発表(コヒーレント回折イメージング5件、光子

相関分光3件、X線光学2件、CTR散乱1件)がありました。セッション1で時間を超過してしまったため、1時間を予定していたポスターセッションの時間が40分程になってしまい、講演者にはご迷惑をお掛けしました。どのポスターも盛況で、ポスターの前で白熱した議論をしている様子を垣間見ることができました。

ポスターセッション終了後、SACLA実験棟1階のエントランスホールにて懇親会を開催しました。冒頭に日本放射光学会の村上洋一会長にご挨拶と乾杯の音頭をいただきました。今回は放射光コミュニティ以外からの参加者が比較的多く、懇親会は参加者間の親睦を深める場となったのではないかと思います。閉会の挨拶は、理研放射光センターの高田昌樹副センター長にいただきました。そして、懇親会の熱気が冷めやらぬまま、参加者は再びSACLA実験棟2階の大会議室へと移動し、ランプセッションを行いました。ランプセッションでは、北海道大学の郷原一寿先生に「X線・電子線領域の回折と原子分解能イメージング」と題する基調講演をお願いしました。郷原先生は、最近では電子線を用いたコヒーレント回折イメージングを精力的にご研究されていることで知られていますが、X線結晶学の専門家でもあります。学生時代は、動力学的回折理論で著名な名古屋大学の故：加藤範夫先生の研究室に在籍し、水晶の $\alpha$ - $\beta$ 相転移のX線による研究で博士の学位を取得されております。郷原先生からは、今年が世界結晶年(LaueのX線回折現象の発見(1912年)と、Bragg親子がX線回折現象を利用して食塩の結晶構造の解析に成功したこと(1913年)による現代結晶学誕生から100年)であることが紹介されました。また、同時期に逆格子と反射球の概念を導入して、Laueの回折条件とBraggの結晶面からの回折が同じ結果を表していることを



図1 全体集合写真



図2 講演会の様子 (ランプセッション)



図3 SACLA 見学ツアーの様子

証明した Ewald の存在も忘れてはならないと述べられました。さらに、国際結晶学連合で Ewald の功績を讃えて 1987年より設けられた Ewald 賞の歴代受賞者の中で、第 1 回：J. M. Cowley, A. F. Moodie, 第 3 回：加藤範夫, 第 8 回：D. Sayre を取り上げ、Cowley と Moodie によるマルチスライス法、加藤による動力学的回折理論は共に物質中での波動場を記述したもので、Sayre の指摘したオーバーサンプリング位相回復により物質中での波動場が可視化可能になったのだと、これら偉大なる先人達の研究の関係について考察されました。これは、X 線結晶学、コヒーレント回折イメージングに精通した郷原先生ならではの考察であり、私を含め多くの参加者が深く感銘を受けました。ランプセッションをもって、初日のプログラムは全て終了しましたが、その後も SACLA 実験棟 1 階のエントランスホールで深夜まで活発な議論が行われました。

二日目の午前中のセッション 2「コヒーレント光学が拓く微視的世界」では、東京大学の篠原佑也氏、理研放射光センターの高山裕貴氏、北海道大学電子科学研究所の木村隆志氏、大阪大学の山崎順氏、ファインセラミックスセンターの山本和生氏、高輝度光科学研究センターの鈴木基寛氏にご講演いただきました。篠原氏からは、「X 線光子相

関分光の現状と将来展望」というタイトルで、X 線光子相関分光は不透明な構造の微小スケールでのダイナミクスを解析するツールであり、100 ns-1 ms の未開拓領域を解析するには時間分解能の向上が必要であることをお話されました。また、今後、X 線光子相関分光により X 線マイクロロロジーを開拓し、複雑な系のダイナミクスを解明していきたいと述べられました。高山氏には「SPRING-8・SACLA での非結晶生体粒子低温コヒーレント X 線回折イメージング」について、ご講演いただきました。コヒーレント X 線回折イメージングは細胞や細胞内小器官等の非結晶生体粒子イメージングで威力を発揮します。高山氏からは、凍結水和試料の低温コヒーレント X 線回折イメージング技術により水和状態での細胞観察が実現し、放射光実験ではトモグラフィによる三次元構造解析、XFEL 実験では放射線損傷が生じる前の高分解能投影像の取得が可能であると説明がありました。木村氏からは「超短パルス X 線レーザーによる溶液中試料構造の可視化と応用」というタイトルでお話いただきました。木村氏からは、液体試料を封入可能な試料ホルダー（環境セル）の開発とそれを使った生きた状態のバクテリアの XFEL シングルショットイメージングのお話を聞かせていただきました。環境セルを用いた XFEL イメージングは生物試料に限らず、ナノ材料合成中の in-situ イメージングなどその応用範囲は広く、今後益々の発展が期待されます。コーヒープレイクを挟んで、山崎氏からは「電子線の空間コヒーレンス測定と電子線回折イメージング」についてご講演いただきました。山崎氏は、電子線と X 線のコヒーレント回折イメージングを比較され、電子線が優位である点として物質中の電場・磁場が可視化できることと、1  $\mu\text{m}$  以下サイズの試料を原子分解能で観察可能であることを強調されました。また、山崎氏が開発された制限視野回折による非孤立試料の観察法とその応用についてもお話されました。最後に、電子線を用いたコヒーレント回折イメージングと収差補正透過電子顕微鏡を比較され、収差補正透過電子顕微鏡には分解能を制限する様々な要因があり、コヒーレント回折イメージングの方が高分解能を得る可能性があると力強く述べられました。山本氏からは、「電子線ホログラフィーによる電場、磁場の可視化」というタイトルでご講演いただきました。最初に、電子線ホログラフィーは、電子レンズの収差を補正するために Gabor が発明した方法であり、近年では、電場や磁場を観察する透過型電子顕微鏡技術の一つとして定着しているとの説明がありました。その後、電子線ホログラフィーによる Li イオン電池内部の電位分布計測や隕石中の磁場の可視化について紹介いただきました。鈴木氏からは、「X 線レンズホログラフィーイメージング」というタイトルで X 線を用いたフーリエ変換ホログラフィーのご研究についてご発表いただきました。軟 X 線領域で円偏光を用いた Co/Pt 多層膜の磁区構造のその場観察によるバルクハウゼン

現象の可視化は大変興味深い結果でした。また、コヒーレント回折イメージングと比較してフーリエ変換ホログラフィーの優れている点として、再生像が一意に決定でき、計算量も圧倒的に少ないことを挙げられました。最後に、新しいホログラフィー計測法として時間コヒーレンスを活用した時間ドメインホログラフィーを提案されました。

セッション2終了後、ランチミーティングをSACLA実験棟1階のエントラスホールにて行いました。これは、冒頭でも述べたように、2日間という短い期間に参加者になるべく多く議論してもらうことが狙いです。どのテーブルも終始和やかな雰囲気の中で議論を楽しんでいる様子で狙い通りだったように思います。2日目午後からのセッション3「理論計算とコヒーレント光学の融合」では、最初に静岡大学の中島伸治先生に「位相回復問題 一光の分野から見た歴史と現状」というタイトルで基調講演をいただきました。中島先生は、修士課程在籍中の1978年に位相回復問題と出会い、その後、一貫して、解析的アプローチによる位相回復法の研究を行ってきた方で、日本における位相回復問題研究者の草分け的存在であると言えます。中島先生からは、光学における位相回復研究の歴史について大変分かりやすくお話いただきました。中島先生が現在取り組んでおられる開口アレイフィルタによる位相回復の研究のお話も大変興味深いもので、今後、X線領域への拡張することで更なる展開があるように思えました。最後のスライドで、1912年のLaueのX線回折現象の発見から始まり、1948年のGaborのホログラフィーの発明、1970年代のGerchberg, Saxton, Fienupによる反復的位相回復法の創案と25年～35年毎に新しい手法が誕生しており、そろそろ新しい位相回復法が誕生するかもしれないと述べられました。この発言に何とも言えない説得力を感じたのは筆者だけではないと思います。

中島先生の基調講演の後、休憩を挟んで、室蘭工業大学の塩谷浩之氏、本研究会の世話人の一人である慶應義塾大学の荳口氏、横浜市立大学（現：東北大学）の吉留崇氏、理研放射光センターの澤田桂氏より、ご講演をいただきました。塩谷氏からは、「情報論的アプローチによる位相回復法」というタイトルでお話いただきました。塩谷氏は、情報理論の観点からFienupの位相回復法の原理について考察された後、最大エントロピー法を組み合わせた位相回復法やK平均化法に基づくオブジェクトサポート形成法についてお話されました。最後に、位相回復法をアルゴリズム・理論からもう一度考えることの重要性を指摘され、これにはコヒーレント回折イメージングを研究している参加者が同感したのではないのでしょうか。荳口氏からは、「XFELによる生体超分子の新規構造解析法の提案及びシミュレーション」というタイトルで、ガラス状氷板を用いた新規三次元構造解析方法についてご講演いただきました。この新規三次元構造解析法は、1000個程度の生体分子を包埋した厚さサブミクロンの薄いアモルファスな氷膜

に対して、コヒーレント回折イメージングを数回行うだけで、生体分子の投影像取得が可能という画期的なものです。これを用いて分子レベルの構造解析を実現するためには、XFEL強度が現状の約4桁以上強くなる必要があるとのことですが、将来、標準的な方法として使われることと思います。吉留氏からは、「マニフォールドを用いた新規画像分類法」についてお話いただきました。XFELを用いたコヒーレント回折イメージング実験では短時間に膨大な量の2次元回折パターンを得ることができます。吉留氏からは、マニフォールドの概念を用いることで、実験で得られたデータから3次元構造の構築やダイナミクスの解析の可能性について述べられました。澤田氏からは、「次世代コヒーレンス技術のためのX線光学理論」というタイトルでお話いただきました。コヒーレンス度をはじめとする物理量は、何らかの相関関数として記述され、相関関数どうしの「距離」という観点から考えることで、物理量に新しい考察を与えることができるというお話でした。不勉強の著者には少々難解でしたが、極めて独創的であるように思えました。

総括のセッションでは、日本顕微鏡学会若手研究部会「様々な極微イメージング技術研究部会」の代表を務めておられる九州大学の波多聰先生ならびに東京大学名誉教授で兵庫県参与の佐々木泰三先生にご講評いただきました。両先生とも本研究会の内容に大変満足されたようで、世話人の労をねぎらうお言葉まで頂戴いたしました。最後に、筆者より本研究会を継続して開催していくことを宣言させていただき、閉会となりました。

研究会の受付にてアンケート用紙をお渡しし、ご参加いただいた方々にアンケートにお答えいただきました。図4にアンケート結果の一部を示します。参加者の所属は、大学職員の方が31%、学生の方が26%、公的研究機関の方が29%、民間企業の方が14%という結果でした。また、参加者の内、放射光学会会員が68%（正会員51%、学生会員17%）で、非会員が32%でした。また、本研究会をどのような経緯で知りましたかという質問に対し、知人からの紹介が63%、メーリングリストが31%、ホームページが6%でした。また、今後、コヒーレントX線がご自身の研究に利用できる可能性がありますかという質問に対しては、必ず利用できるが50%、たぶん利用できるが50%でした。また、本研究会のプログラム編成は適切でしたか、講演者1人あたりの発表・質疑の時間は適切でしたかの各質問に対し、多くの方が適切であったと回答されました。また、本研究会はご自身の研究に対して参考になりましたかという質問に対しては、多くの方から参考になったという回答をいただきました。多くの方々が本研究会の内容に満足されたようで、世話人一同、安堵しております。

このような研究会の企画は、筆者にとって初めて経験でした。しかも、X線のコヒーレンス利用研究は、次世代放射光源の開発計画で常に取り上げられる重要なテーマで

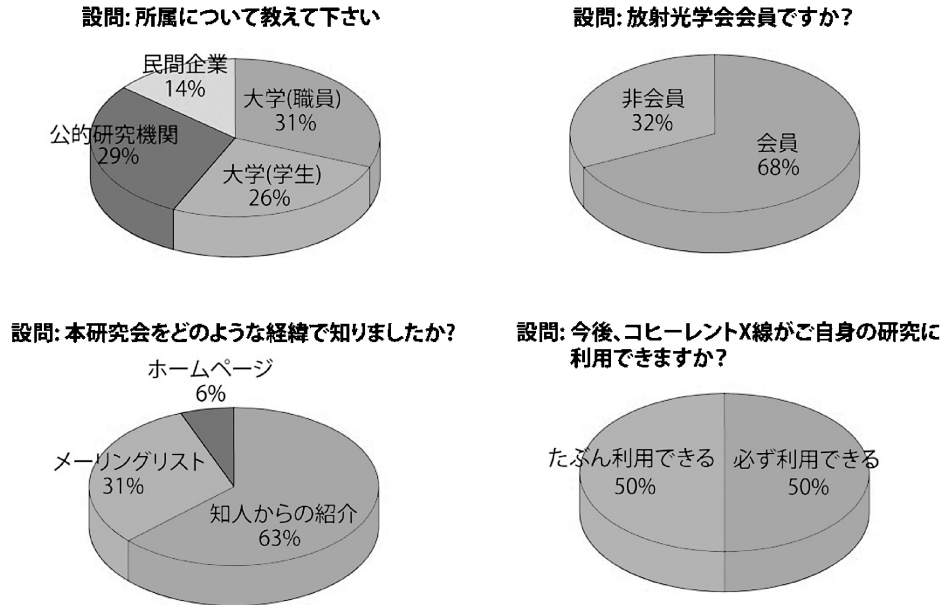


図4 参加者の皆様にご記入いただいたアンケート結果の一部

あり、それを議論する研究会を企画することは、筆者の能力を遥かに超えた仕事でした。他の世話人をはじめ、色々な方からご意見を頂戴し、何とか無事開催することができました。今後は、本研究会で形成されたコミュニティを基

に、微力ながら本分野の発展に尽力して参る所存です。最後に、研究会の開催にあたり、放射光学会事務局の佐藤亜己奈さん、理研放射光センターの秘書の方々に大変お世話になりました。この場をお借りして厚く御礼申し上げます。