# 放射光によるミリ秒オーダー X 線トモグラフィ

矢代 航<sup>1,2,3</sup>, 梁 暁宇<sup>2</sup>, 虻川匡司<sup>1,2</sup>, Wolfgang Voegeli<sup>4</sup>, 荒川悦雄<sup>4</sup>, 白澤徹郎<sup>5</sup>, 間下 亮<sup>6</sup>, 尾藤容正<sup>6</sup>, 岸本浩通<sup>6</sup>, 小川紘樹<sup>7</sup>, 梶原堅太郎<sup>8</sup>, 藤井克哉<sup>9</sup>, 上田亮介<sup>9</sup>, 橋本 康<sup>9</sup>, 工藤博幸<sup>9</sup>

1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 〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1

2東北大学多元物質科学研究所 〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1

3東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻 〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1

4東京学芸大学教育学部 〒184-8501 東京都小金井市貫井北町 4-1-1

5産業技術総合研究所計量標準総合センター 〒305-8563 茨城県つくば市梅園 1-1-1

6住友ゴム工業株式会社 〒651-0071 兵庫県神戸市中央区筒井町 2-1-1

7京都大学化学研究所 〒611-0011 京都府宇治市五ケ庄

8財団法人高輝度光科学研究センター 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

9筑波大学システム情報系 〒305-0006 茨城県つくば市天王台 1-1-1

要旨 本稿で紹介するミリ秒オーダー放射光トモグラフィは、我々が生きている 4D (三次元+時間) 世界の瞬間的な現象を捉える新しいアプローチである。非平衡系の 4D 現象の統計データを高いスループットで取得できる特長を活かせば、近い将来には、ビッグデータ解析による「非平衡系マテリアルズ・インフォマティクス」といった新たな展開もみえてきた。本稿では、筆者らが世界に先駆けて開発してきたミリ秒オーダー放射光トモグラフィの位置づけ、これまでの開発の経緯と現状、さらにそこからみえてきた将来展望について紹介する。

#### 1. はじめに

"Like painting, which passed within a century from Ingres's classicism to impressionism, and later to different forms of abstract art, science alternates between periods of upheaval and periods of strengthening." 10.

本稿で紹介するミリ秒オーダー放射光トモグラフィは、 我々が生きている 4D (三次元+時間)世界の「瞬間的で 儚い」現象を、放射光の一瞬の煌めきとして捉える今世紀 の新しいアプローチである。非平衡系の 4D 現象の統計 データを高いスループットで取得できる特長を活かせば、 近い将来には、ビッグデータ解析により「背後にあるシン プルな物理的本質」を捉えることも可能になると期待され、「非平衡系マテリアルズ・インフォマティクス」といった新たな展開もみえてきた。絵画に喩えれば、印象派から抽象芸術に向かう一筋の光、とも言えるであろう。

本稿では、筆者らが世界に先駆けて開発してきたミリ秒 オーダー放射光トモグラフィの位置づけ、これまでの開発 の経緯と現状、さらにそこからみえてきた将来展望につい て紹介する。

## 2. 三次元可視化技術としての放射光トモ グラフィ

X線トモグラフィは、いわゆる X線 CT(Computed Tomography)のことで、1972年に Houndsfield らによって発表された方法である。多くの方向から撮影した試料の投影像から、試料内部を三次元的に可視化できる。Fig. 1は、不透明な試料内部を三次元的に可視化する方法を概略的にまとめたものである $^5$ )。横軸は時間分解能、縦軸は空間分解能であり、試料のサイズ(厚さ)は空間分解能の1,000倍程度としてある。右上方向が高時間分解能かつ高空間分解能に対応しており、「小さいものほど速くみたい」という人間社会のニーズは右肩上がりの帯で表現されている。一方で、空間分解能と時間分解能の間には一般にト

レードオフの関係があり、ニーズと概ね直交する方向にある。図中の破線はその一例で、時間分解能が空間分解能の2乗に反比例するとした場合を示しているが、この破線の限界を右上に押し上げるのは容易ではなく、イメージング技術の進歩の歴史は、この限界をいかに押し上げるか、という努力の歴史であると言っても過言ではない。

医療診断では、MRI (Magnetic Resonance Imaging), PET (Positron Emission Tomography) などがよく用い られるが、これらと医療用 X線 CT (図中の Laboratory X-ray CT に含まれる)を比べた場合の特長は高い空間分 解能にある。実験室X線源ではなく放射光源を用いれ ば、視野とのトレードオフはあるが、空間分解能も時間分 解能ともに向上できる(図中の Synchrotron CT, Synchrotron X-ray Microscopy (結像型の場合), Coherent Diffraction Imaging など)。このように図示すると、放射 光源の出現がいかに画期的であったか一目瞭然であろう。 特に、1990年代後半の第三世代放射光源の出現以降、空 間コヒーレンスを活かしたX線位相コントラストイメー ジング、コヒーレント回折イメージングなどの方法が世界 的に広く普及し、新たな時空間領域が開拓された。しかし ながら, 自然界の動的現象を観察したい, というニーズ (図中の Spatio-temporal domain suitable for observation of spatiotemporal correlated structures in nature) に対して は、必ずしも応えてこなかった。ここで「動的現象」と述 べたのは、おもに非平衡系でも定常状態(さらにはそれに 準ずる状態)ではないような系での現象を指しており、こ れまで「4DX線CT」として報告されてきた研究成果の多 くは、変化の瞬間そのものを捉えたものではなかった。

筆者らは世界に先駆けて、2015年以降、「動的現象」を観察したいというニーズに応える新たな時空間領域(ミリ 秒オーダー時間分解能、 $10\,\mu\mathrm{m}$  オーダー空間分解能)を開

拓してきた(図中の Spatio-temporal domain pioneered)。 これらの一連の研究で、将来的にはマイクロ秒オーダーの 時間分解能の実現可能性もみえてきた(図中の Spatiotemporal domain shown to be feasible by our research)。 以下では、試料を高速回転してミリ秒オーダー時間分解能 を実現する試料高速回転法と、放射光をマルチビーム化し て複数の方向から同時に撮影するマルチビームイメージン グ法について紹介していく。

### 3. 試料高速回転法

#### 3.1 高速 X 線 CT

X線CTを実現するためには、多くの方向から試料の投影像を撮影する必要がある。医療診断用のCTスキャナと異なり、放射光でX線CTを行うには、放射光ビームに対して試料を回転する必要がある。ミリ秒オーダーの時間分解能を実現するためには、高フラックスの放射光と、試料の高速回転、さらには高フレームレートの画像検出器が必要である。試料が軽元素から構成されている場合には、X線位相コントラストを利用した高感度化も有効である。

Fig. 2 に、世界ではじめてのミリ秒オーダー X 線 CT の 実験配置を示す $^{6-8}$ 。実験は SPring-8 の偏向電磁石ビーム ラインである BL28B2 の白色放射光を用いて行った。ミリ秒オーダーの時間分解能の実現のため、試料を数1,000~数10,000 rpm で回転した。 X 線画像検出器としては、 $10~\mu$ m オーダーの空間分解能を実現するために、シンチレータを用いた間接撮像型を用いた。シンチレーション光に対してレンズカップリング系を構成し、可視光用の高速 CMOS カメラで画像を取得した。なお、高感度化のため、X 線位相コントラストイメージング系を導入した。すなわち、試料下流側に 2 枚の回折格子から構成される回折

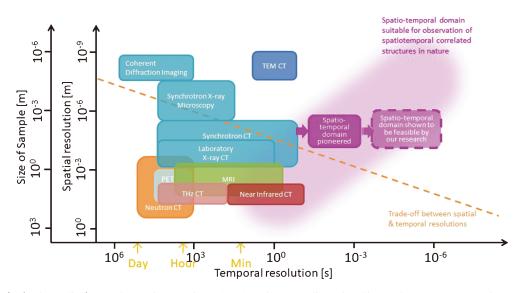
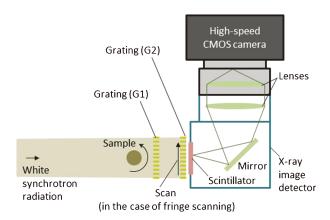


Fig. 1 (Color Online) Non-destructive techniques for observing three-dimensional internal structures of samples opaque to visible light<sup>5)</sup>.



**Fig. 2** (Color Online) Experimental setup of millisecond-order X-ray CT using white synchrotron radiation at BL28B2 of SPring-8 (side view)<sup>6-8)</sup>.

格子干渉計(Talbot 干渉計<sup>9)</sup>)を配置し、X線位相コントラスト像を取得した。回折格子干渉計は、エネルギーバンド幅の広い白色光でも定量的な位相コントラスト像が取得できるため、高いフラックスを活かした高時間分解能 X線 CT に適している。放射光ビームの鉛直方向の高い空間コヒーレンスを活かすため、回折格子のラインは水平方向とした。また、回折格子干渉計により取得される微分位相像から直接 CT 再構成を行うため、試料回転軸も水平方向とした。

Fig. 3 の左図は、Fourier 変換法<sup>11)</sup>という方法を用いて投影像(微分位相像)を取得し、CT 再構成を行った結果である(左上:アキシャル像;左下:サジタル像;右上:コロナル像、試料:広葉樹の木片)。Talbot 干渉計においては、Fig. 2 の配置において、1 枚目(上流側)の回折格子の周期と同程度以上の空間コヒーレンス長を有する光を照射することで、いわゆる Talbot 効果<sup>12,13)</sup>により生じる自己像を用いる。試料によって光が屈折されると、伝播方

向が変化し,この自己像が変形する。伝播方向の変化は, 光の位相シフトの微分に対応する。Talbot 干渉計では, 自己像に吸収型回折格子を重ねることにより、モアレ縞の 変形として伝播方向の変化を検出する。Fourier 変換法で は、非常に周期の小さいモアレ縞を生成し、画像を Fourier変換して1次のFourier成分のまわりのみを抜き出し た後に(1次成分のピーク位置を原点に移動して)逆 Fourier 変換することによって、1次の Fourier 成分によ り搬送されるシグナルを画像化する。逆 Fourier 変換によ って求まる画像の各画素におけるシグナルは、一般に複素 数であるが、その偏角がモアレ縞の変形(モアレ縞の位相 変化), すなわち光の伝播方向の変化に対応する。このよ うにして、試料の微分位相像を求めることができる。微分 位相像を積分すれば位相像が求まるが、各画素で求まる位 相シフトは、試料の屈折率の1からのずれ $\delta$ をその投影 方向に積分した量に等しいため、CT 再構成アルゴリズム を適用すると、 $\delta$ の三次元分布が得られる。なお、CT再 構成においては、ramp フィルター(Ramachandran-Lakshminarayanan フィルターなど) の代わりに Hilbert フィ ルターを用いれば、微分位相像から直接 $\delta$ の三次元分布 を再構成できる14)。

Fourier 変換法の利点は、1 枚のみのモアレ縞の画像から微分位相像が求まる点にあるが、モアレ縞の周期で空間分解能が決まってしまうという欠点がある。モアレ縞を細かくするほど周期方向の空間分解能を上げられるが、画像検出器の点拡がり関数などにより、周期が細かいほどモアレ縞のビジビリティが低下する。Talbot 干渉計においては、微分位相像の統計誤差がモアレ縞のビジビリティの1乗に、またモアレ縞の平均強度の1/2乗に反比例することが知られている15,16。すなわち、例えば、ビジビリティが半分に低下すると、微分位相像に寄与する有効フォトン数が4分の1になる。そのため、モアレ縞を細かくして空間分解能を上げるほど、一般にS/N が低下してしまう。

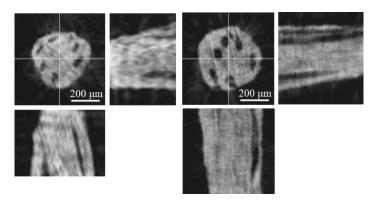


Fig. 3 Phase tomograms of pieces of wood obtained by millisecond-order synchrotron tomography with sample rotation. (left) Phase tomograms reconstructed from projection images obtained by Fourier transform method (upper left: axial plane, lower left: sagittal plane, upper right: coronal plane, measurement time: 8.9 ms). (right) Phase tomograms reconstructed from projection images obtained by fringe scanning method (upper left: axial plane, lower left: sagittal plane, upper right: coronal plane, measurement time: 4.4 ms).

Fig. 3 左図は、有効画素サイズ $10 \, \mu m$ 、半値全幅 $21 \, \mu m$ の点拡がり関数の間接撮像型X線画像検出器を用い、モ アレ縞(回転モアレ) 周期を38 μm (ビジビリティ:7%) として Fourier 変換法により微分位相像を求め、Hilbert フィルターにより CT 再構成を行った結果である。試料の 回転速度は3,371 rpm, CMOS カメラのフレームレートは 100,000 fps (128 pixel×96 pixel; 試料位置における有効 視野:1.27 mm×0.95 mm) とした。放射光ビームはほぼ 平面波であるため、試料半回転にかかる時間が撮影時間 (8.9 ms) に相当する。回転軸を含む面内(サジタル像, コロナル像) における回転軸方向の空間分解能がモアレ縞 の周期できまっており、アキシャル像に比べて低空間分解 能になっていることが分かる。しかしながら, 10 ms 以下 の撮影時間,数 $10 \mu m$ の空間分解能でX線 CT を行った 例は当時はなく、有機物のみから構成される木片が造影な しで撮像できることが実証できたことで、さらなる展望が 開けた。

Fourier 変換法の代わりに縞走査法<sup>17,18)</sup>と呼ばれる方法 を用いると、空間分解能、S/Nをともに向上させること ができる。Fig. 3 右図は、同じ種類の広葉樹の木片に対し て、縞走査法を適用してCT再構成を行った結果である7) (左上:アキシャル像;左下:サジタル像;右上:コロナ ル像)。縞走査法においては、同じ投影方向に対して、複 数(3枚以上)の画像を撮影する(二枚の回折格子のうち の一枚を平行移動してモアレ縞の位相の異なる画像を複数 枚取得する)。縞走査法の場合、空間分解能はモアレ縞の 周期に依存しないため、モアレ縞の周期を十分に大きくし て、高いビジビリティで撮影ができる。Fig. 3 右図では、 試料を高速回転するとともに,二枚目(下流側)の回折格 子を平行移動(走査)しながら投影像を撮影した19)。具 体的には,試料が3回転する間に,二枚目の回折格子が 一周期平行移動するように走査し、モアレ縞の位相の異な る三枚の画像を取得して、微分位相像を求めた。試料回転 速度は33,850 rpm, CMOS カメラのフレームレートは 127,500 fps(128 pixel×64 pixel;試料位置における有効 視野:1.27 mm×0.64 mm) とした。試料2.5回転で3枚 の投影像が取得できるため、撮影時間は4.4 ms である。 モアレ縞の周期を十分に大きくしてビジビリティ31%で 撮影を行った。Fourier変換法の結果(Fig. 3 左図)と比 べると、撮影時間が短いにもかかわらず、空間分解能, S/N ともに向上しているのが分かる。すなわち、Fourier 変換法の場合に比べて数倍高速で回転してよい場合には、 縞走査法の方がはるかに良質な画像が得られることが示さ れた。一方で、同じ試料回転速度に対しては、Fourier 変 換法の方が時間分解能を数倍高くできる。

#### 3.2 圧縮センシングによるスパース・ビュー CT

Fig. 3 の CT 撮影をさらに高速化するためには、試料を さらに高速で回転する必要がある。しかしながら、さらな

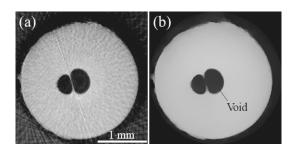


Fig. 4 Phase tomograms of 3/32-inch diameter polypropylene (PP) sphere obtained with high-speed sample rotation (measurement time: 2.0 ms). (a) Phase tomogram reconstructed by the filtered back-projection (FBP) method. (b) Phase tomogram reconstructed by a total-variation (TV) regularization method based on compressed sensing.

る高速回転に対応するために、CMOS カメラの高速化が不可欠になる。CMOS カメラのフレームレートと視野の間にはトレードオフの関係があるため、投影数か、視野のどちらかを犠牲にしなければならない。試料が視野からはみ出ていても試料内部をCT 再構成できるインテリアCT 再構成アルゴリズムも近年大きく進歩しているが21)、試料全体を再構成したい場合には、投影数を少なくせざるを得ない。

Fig. 4 は、撮影時間2.0 ms で CT 再構成を行った結果で ある。直径 3/32インチのポリプロピレン球を29,605 rpm で回転して,投影像を37,500 fps (256 pixel×256 pixel; 試料位置における有効視野: 2.53 mm×2.53 mm) で撮影 した。試料は視野内にギリギリ入る大きさであったが、こ の実験では回転軸上において試料位置を微調整する機構を 導入するのが困難であったため、ここでは試料1回転で 全投影像を取得する、いわゆるオフセット CT 撮影を行っ た。すなわち、試料の回転軸を視野の端付近に移動し、回 転軸に垂直な方向の視野を2倍弱拡大した。また、時間 分解能を優先するため、Fourier変換法を用いた(モアレ 縞の周期: $47 \mu m$ )。Fig. 4(a)は、従来から広く用いられて いるフィルター逆投影法(Filtered Back-Projection (FBP) 法)によりCT再構成を行った結果である。投影 数が180°あたり38と少ないため、ストリーク状のアーテ ィファクトが顕著にみられる。

投影数が少なかったり、試料が視野からはみでていたり、さらには角度欠損があったり、といった場合(それぞれ、スパース・ビュー CT、インテリア CT、角度欠損 CT と呼ばれている)に、CT 再構成をいかに行うか、という問題は、「不完全投影データ CT」 再構成問題と呼ばれており、前世紀は解決困難な問題と考えられていた。しかしながら、今世紀に入り、いわゆる「圧縮センシング」の概念が提唱され $^{21,22}$ 、不完全投影データ CT 再構成問題の解決にプレイクスルーをもたらした。

「圧縮センシング」は、原データに内在する疎性(スパース性)を利用して、非常に少数の観測データから高次元信

号を復元する方法である<sup>23)</sup>。 我々が日頃みている画像(例えば,写真画像)は,一般に疎性を内在している。例えば,写真画像を Wavelet 変換して,振幅の大きい上位数%のみを用いて逆変換しても,元の画像とほとんど区別できない画像が得られる(お手持ちのパソコンで簡単に実験できる<sup>24)</sup>)。 Wavelet 変換がデータ圧縮に用いられることはよく知られているが,圧縮センシングという言葉は,データ圧縮の概念に近く,計測(センシング)と解析をうまくデザインすれば,非常に少数のデータのみ観測すればよい(センシングの圧縮ができる),という着想に由来する。原データに疎性が内在していれば,ナイキスト周波数を超える信号復元も可能であり,シャノンのサンプリング定理(1949年)以来の大きな前進と言われている。

画像復元問題には,トータル・バリエーション(TV) ノルムの疎性を利用するアルゴリズムがよく用いられてきた。画像データ X(二次元の画像データの画素値を一列に並べた一次元ベクトル)に対して,TV ノルム $\|X\|_{TV}$  は以下のように定義される。

$$||\boldsymbol{X}||_{\text{TV}} \equiv \sum_{j} \sqrt{(\boldsymbol{h}_{j}^{\text{T}} \boldsymbol{X})^{2} + (\boldsymbol{v}_{j}^{\text{T}} \boldsymbol{X})^{2}}$$

$$\min_{\boldsymbol{X}} f(\boldsymbol{X}) = ||A\boldsymbol{X} - \boldsymbol{b}||^2 + \beta ||\boldsymbol{X}||_{\text{TV}}$$

ここでXは求めたいCT再構成画像,AはXから投影像を生成する行列,bは実験で得られた(複数の)投影像,

 $\beta \|X\|_{\text{TV}}$  は TV ノルム正則化項, $\beta$  はハイパーパラメータで,TV ノルムの「強さ」の調整パラメータである。このようにして,実験で得られた投影像との差が小さく,かつエッジが強力に保存されたなめらかな CT 再構成像が得られる。

Fig. 4(b)は、上記の TV ノルムを利用したアルゴリズムにより得られた CT 再構成像である。ストリーク状のアーティファクトのないなめらかな画像が得られていることが分かる。なお、TV ノルムを用いる方法(TV 正則化)法の欠点は、staircase アーティファクトと呼ばれるパッチ状のアーティファクトが生じることである。staircase アーティファクトは投影数が少なすぎると顕著になる。最近では、実験的に比較的容易に得られる先験情報を取り入れたり、真の再構成像をより忠実に再現できる正則化項を与えたりする方法が提案されており、実用レベルの汎用性の高い方法も提案されている。

#### 3.3 4DX線CT

3.1節, 3.2節で紹介した CT 再構成結果は,ミリ秒オーダーの撮影時間での三次元再構成であった。三次元に時間を加えた 4DX線 CT も実現できている。上述の,試料を高速で回転する方法では,試料まわりの環境制御が一般に容易ではないが,筆者らは二軸から構成される高速同期回転 CT 装置を開発し,ソフトマテリアルの引張破壊過程の4DX線 CT 撮影に成功した。筆者らが開発した高速同期 CT 装置は,回転軸を共有する二つのインバータモーターから構成されており,二つのモーターを同期回転しながら両者の間の距離を変えられるため,試料を高速回転しながら引張・圧縮できる。

**Fig. 5** はタイヤゴム(住友ゴム工業株式会社提供)の引張破壊過程の 4DX 線 CT の結果である $^{25)}$ 。試料を $^{3}$ ,000 rpm で回転し,画像検出器の有効画素サイズ  $^{5}$   $\mu$ m, $^{12}$ ,800 fps( $^{1024}$  pixel× $^{1024}$  pixel;試料位置における有効視野: $^{4}$ .61 mm× $^{4}$ .61 mm)で投影像を取得した。なお,二軸の回転中心は $^{\pm}$   $^{2}$   $\mu$ m 以内に調整した。試料を半

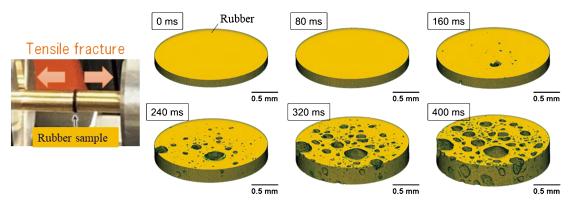


Fig. 5 (Color online) Example of results of 4D X-ray tomography of tensile fracture of tire rubber (temporal resolution: 10 ms).

回転する時間( $10 \, \mathrm{ms}$ )が時間分解能であり、能動的に試料を破壊した試料高速回転  $4\mathrm{DX}$  線  $\mathrm{CT}$  では世界最速であった。

Fig. 5 は試料を約1.2 mm/s で引張破壊した結果であるが、引張によりボイドが成長する様子が明瞭にみられる。数10秒オーダーの時間分解能でゆっくり引張破壊したときの 4DX 線 CT の結果 $^{26}$ と比べると、ボイドの形状がいびつで(球形からずれており)、サイズのバラツキも大きい結果が得られた。引張を途中で止めた後もボイドの成長がみられたことから、Fig. 5 では非平衡系状態の 4D 可視化が実現できていると考えられる。ミリ秒オーダー時間分解能の 4DX 線 CT の特長の一つは、このような統計データの高スループット取得が可能なことである。多くの実材料は使用環境下においては非平衡状態と考えられ、Fig. 5 のような 4DX 線 CT 再構成像のビッグデータ解析により、非平衡系マテリアル・インフォマティクスのような新たな学理の創成までみえてきたと考えている。

#### 4. マルチビーム法

#### 4.1 マルチビーム光学素子

3.3節で示したように、筆者らは10 ms という世界最速の時間分解能で引張破壊過程の4DX線CT撮影に成功した。しかしながら、さらなる高時間分解能化のためには、試料をさらに高速で回転する必要がある。タイヤゴムの場合、さらに高速で回転すると、遠心力の影響で、CT再構成が困難なほど試料が変形してしまった。ソフトマテリアルではなく、ハードマテリアルであれば、さらなる高速回転も可能であるが、フレームレートと視野の間のトレードオフの問題は依然として存在する。

このような次第で、放射光マルチビーム化によるミリ秒オーダー時間分解能 X線 CT という着想に至った。すなわち、偏向電磁石からの横長の放射光ビームから多くのマルチビームを生成するという方法である。マルチビーム化

により、試料の回転が不要になり、流動性のある試料にも適用可能なだけでなく、様々な試料環境の導入も容易に実現できる。また、X線画像検出器のフレームレート自体で時間分解能が決まるため、比較的安価なkHzオーダーのCMOSカメラでミリ秒時間分解能が実現できる。

Fig. 6 に、SPring-8 の偏向電磁石ビームライン BL28B2 の白色放射光 (約50 mm (横) ×約5 mm (縦)) のため に開発したマルチビーム光学素子(左図,中図),および 1 ms の露光時間での三次元 CT 再構成の原理実証の結果 を示す  $(右図)^{27}$ 。Fig. 6 のマルチビーム光学素子は,単結 晶による X線の Bragg 反射を利用したものであり、微細 加工技術で特殊な形状の100 µm 厚 Si 単結晶を作製し, 双 曲柱面に沿って下部を湾曲させたものである。具体的に は、多数の小さい単結晶板(以下「ブレード」と呼ぶ)が 太さ200 µm のネックで長方形の下部につながっている形 状で、Fig. 7にその微細加工プロセスを示す<sup>28)</sup>。白色の放 射光ビームが入射すると、入射角が各ブレードに対して異 なるため、異なるエネルギーのX線が異なる角度に Bragg 反射される。双曲柱面を適当に設計すれば、各ブ レードから反射されたビームをすべて試料に照射でき, そ れぞれの角度に対して投影像が取得できる。

単結晶の動力学的回折効果により、Bragg 反射の共鳴幅は一般に非常に小さいため(入射角の幅に換算して10 μrad 程度)、入射放射光ビームのスペクトルのほとんどは透過する。通常の放射光用モノクロメータではこの透過成分は使用しないが、筆者らの光学系では、湾曲結晶を Fig. 6 左下図のように三段配置にし、透過 X 線を再利用することで、放射光ビームを可能な限り有効に使用する工夫をした。筆者らが開発した三段型マルチビーム光学系は、横方向に長いビームを、すべて試料位置に集めるデザインであるため、横長のビームの新しい活用法にもなっている。なお、試料に近い側の Si 単結晶は、曲率が大きいため、左右二つに分割されている。

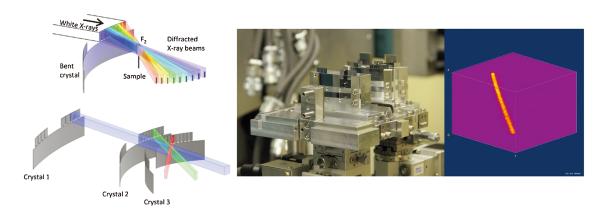


Fig. 6 (Color Online) (Left) Principle of multibeaming. (Middle) Photo of multi-beam optics. (Right) Result of proof-of-concept of 3D CT reconstruction (sample:  $50 \mu m$ -diameter tungsten wire, measurement time:  $1 \text{ ms})^{27}$ ).

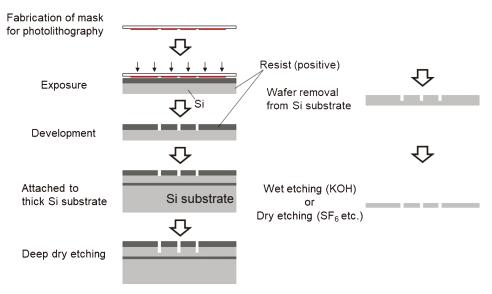


Fig. 7 (Color online) Fabrication process of multi-blade crystals by microfabrication technology<sup>28)</sup>.

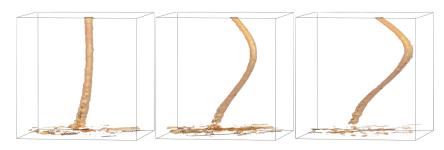


Fig. 8 (Color online) 4D X ray tomography of tungsten wire with diameter of 50  $\mu$ m being slowly bent (temporal resolution: 8 ms; every 4,000 ms for three figures)<sup>30)</sup>.

#### 4.2 マルチビーム CT

Fig. 6 右図は、中図の写真に示すマルチビーム光学素子により32ビームを生成し、各ビームにより取得された投影像により、1 ms の撮影時間で CT 再構成の原理実証に成功した例である(試料は直径50  $\mu$ m のタングステンワイヤー)。CT 再構成には TV 正則化に基づくアルゴリズム(スパース・ビュー・角度欠損 CT 再構成アルゴリズム)を用いた $^{29}$ 。画素サイズ $^{20}$   $\mu$ m で光学系を改良した結果、空間分解能は、点拡がり関数の半値全幅で $^{38}$   $\mu$ m まで改善された $^{30}$ )(現在では、空間分解能約 $^{10}$   $\mu$ m で $^{0.5}$  msでのマルチビーム同時撮影 X 線 CT も実現できている)。なおビームサイズは、ダイレクトビームおよび散乱角の小さい 4 ビームは 5 mm×5 mm、それ以外は 2 mm(水平方向)×5 mm(鉛直方向)とした。

**Fig. 8** は、各ビームの投影像を独自に開発したマルチビーム X 線画像検出器 $^{31}$ )により同時に取得して、4DX 線 CT 撮影のデモンストレーションを行った結果である $^{30}$ )。 直径 $^{50}$   $\mu$ m のタングステンワイヤーの先端をゆっくり押して曲げながら  $^{4D}$  X 線  $^{4D}$  X 線  $^{4D}$  X 線  $^{4D}$  X は  $^$ 

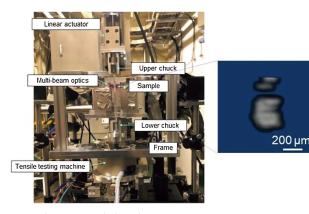


Fig. 9 (Color online) (right) Tensile fracture tester incorporated in the multibeam optical system and (left) CT reconstruction results (3D rendered image) of voids created during the tensile fracture process of tire rubber.

で初めての例である。Fig. 9 は、マルチビーム光学系に引張試験機を組み込んで(Fig. 9 左図)、8 ms の時間分解能でタイヤゴムの引張破壊過程を4DX線CT撮影した結果である。Fig. 9 右図は、発生したボイドを三次元レンダリ

ングした例で、スパース・ビュー・インテリア・角度欠損 CT 再構成アルゴリズムを適用した例である。現在様々な 応用研究のフィージビリティ・スタディが展開されている。

#### 5. まとめ・将来展望

本稿では、最近筆者らが開発した、試料高速回転法、およびマルチビーム法によるミリ秒オーダー放射光 CT について紹介した。筆者らが開拓した  $1 \, \text{ms}$  オーダーの時間分解能、 $10 \, \mu \text{m}$  前後の空間分解能の領域は、未開拓のブルーオーシャンであり、学術・産業応用上、極めてニーズの高い領域である。今後、非平衡系マテリアルズ・インフォマティクスなど、様々な応用研究が展開されることが期待される。

本稿では,偏向電磁石からの横長の白色放射光ビームのためのマルチビーム光学系について紹介したが,縦型ウィグラー用のスキュー反射型マルチビーム光学系 $^{32)}$ や,結晶をタンデムに数多く並べるアンジュレータ準単色( $\pm$ 100 eV 以内)ビーム用のマルチビーム光学系 $^{33)}$ も開発できており,CT 再構成の原理実証にも成功している。後者については,European XFEL 用のマルチビーム光学系を開発し, $1\mu$ s 時間分解能の実現を目指す Horizon Europeプロジェクト(2022年6月~)にも接続しており $^{35)}$ ,前人未踏の領域がさらに開拓される可能性もみえてきた。

マルチビーム光学系の各ビームのエネルギーが異なることを積極的に利用する方法も開発が進んでいる。筆者らが開発したマルチビーム系で試料を回転すれば、マルチエネルギーCTが可能であるが34)、試料回転なしで、ワンショットで各ビームのエネルギーに対応するCT再構成画像を取得するアルゴリズムも開発済みで、別の見方をすると、組成ごとのCT再構成画像を取得することも可能になっている。このアルゴリズムをアンジュレータ準単色ビーム用のマルチビーム光学系に適用すると、XAFSCTの実現も可能であると期待される。マルチビームCTの応用は多岐にわたり、材料破壊、接着界面破壊、液体や粘弾性体の挙動、蒸発、昆虫などの生きた生物(バイオミメティクス)、機械加工、摩耗・摩擦など、学術研究から産業応用まで様々な研究への展開が期待されている。

#### 謝辞

本研究は JST CREST (JPMJCR1765), 住友ゴム工業株式会社,科学研究費補助金 (15H03590,21H04530)の支援により実施されました。特に,JST CREST「計測技術と高度情報処理の融合によるインテリジェント計測・解析手法の開発と応用」領域では、雨宮慶幸研究総括((財)高輝度光科学研究センター理事長,東京大学名誉教授),北川源四郎副研究総括,さらには西野吉則アドバイザー,故高尾正敏アドバイザー,その他の皆さまから数々の貴重なご助言を賜りました。この場をお借りして厚く御

礼申し上げます。

#### 参考文献

- Pierre-Gilles de Gennes: "Fragile Objects: Soft Matter, Hard Science, and the Thrill of Discovery" (Springer New York, 1996).
- 2) Laurence Plevert: "Pierre-Gilles de Gennes: A Life in Science" (World Scientific Pub Co Inc, 2011).
- 奥村 剛:「印象派物理学入門」(日本評論社,2020).
- 4) https://en.wikipedia.org/wiki/Impressionism
- W. Yashiro, W. Voegeli and H. Kudo: Appl. Sci. 11, 8868 (2021).
- W. Yashiro, D. Noda and K. Kajiwara: Appl. Phys. Express 10, 052501 (2017).
- 7) W. Yashiro, C. Kamezawa, D. Noda and K. Kajiwara: Appl. Phys. Express 11, 122501 (2018).
- 8) W. Yashiro, R. Ueda, K. Kajiwara, D. Noda and H. Kudo: Jpn. J. Appl. Phys. **56**, 112503 (2017).
- 9) S. Yokozeki and T. Suzuki: Appl. Opt. 10, 1575 (1971).
- A. W. Lohmann and D. E. Silva: Opt. Commun. 2, 413 (1971).
- M. Takeda, H. Ina and S. Kobayashi: J. Opt. Soc. Am. 72, 156 (1982).
- 12) H. F. Talbot: Philos Mag 9, 401 (1836).
- K. Patorski: Progress in Optics XXVII. (Amsterdam: Elsevier, 1989).
- 14) G. W. Faris and R. L. Byer: Appl. Opt. 27, 5202 (1988).
- W. Yashiro, Y. Takeda and A. Momose: J. Opt. Soc. Am. A 25, 2025 (2008).
- 16) V. Revol, C. Kottler, R. Kaufmann, U. Straumann and C. Urban: Rev. Sci. Instrum. 81, 073709 (2010).
- J. H. Bruning, D. R. Herriott, J. E. Gallagher, D.P. Rosenfeld, A. D. White and D. J. Brangaccio: Appl. Opt. 13, 2693 (1974)
- 18) E. Hack and J. Burke: Rev. Sci. Instrum. 82, 061101 (2011).
- S. Kibayashi, S. Harasse, W. Yashiro and A. Momose: AIP Conf. Proc. **1466**, 261 (2012).
- H. Kudo: Proc. SPIE 11113, Developments in X-Ray Tomography XII, 111130U.
- M. Li, H. Yang and H. Kudo: Phys. Med. Biol. 47, 2599 (2002)
- 22) D. L. Donoho: IEEE Trans. Info. Theory 52, 1289 (2006).
- 23) 武田晃人:日本物理学会誌 69,522 (2014).
- 24) 矢代 航,上石正樹,陣内浩司,上田亮介,工藤博幸:光 アライアンス 30,23 (2019).
- 25) R. Mashita, W. Yashiro, D. Kaneko, Y. Bito and H. Kishimoto: J. Synchrotron Rad. 28, 322 (2021).
- R. Mashita, Y. Bito, K. Uesugi, M. Hoshino, Ikuo Kageyuki, H. Kishimoto, W. Yashiro and T. Kanaya: Sci. Rep., submitted (2023).
- 27) W. Voegeli, K. Kajiwara, H. Kudo, T. Shirasawa, X. Liang and W. Yashiro: Optica 7, 514 (2020).
- 28) W. Yashiro, W. Voegeli, T. Wada, H. Kato and K. Kajiwara: Jpn. J. Appl. Phys. 59, 092001 (2020).
- T. Wang, H. Kudo, F. Yamazaki and H. Liu: Phys. Med. Biol. 64, 145006 (2019).
- 30) W. Yashiro, X. Liang, W. Voegeli, E. Arakawa, T. Shirasawa, K. Kajiwara, K. Fujii, K. Hashimoto and H. Kudo: J. Phys.: Conf. Ser. 2380, 012121 (2022).
- T. Shirasawa, X. Liang, W. Voegeli, E. Arakawa, K. Kajiwara and W. Yashiro: Appl. Phys. Express 13, 077002 (2020).
- 32) W. Voegeli, X. Liang, T. Shirasawa, E. Arakawa, K.

Kajiwara, K. Hyodo, H. Kudo and W. Yashiro: J. Phys.: Conf. Ser. **2380**, 012063 (2022).

- 33) 特許(出願) EP21200564.9.
- 34) W. Voegeli, T. Shirasawa, E. Arakawa, K. Kajiwara, X. Liang and W. Yashiro: Jpn. J. Appl. Phys. 61, 098002 (2022).
- 35) https://tomoscopy.eu/



#### 著者紹介

#### **≻1て 机** 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 教授 E-mail: wataru.yashiro.a2@tohoku.ac.jp 専門:X 線光学

#### [略歴]

2000年3月東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻博士課程修了(博士(工学))。 2005年5月東京大学大学院新領域創成科学研究科物質系専攻助教,2012年7月東北大学多元物質科学研究所准教授などを経て,2021年4月より現職。光・量子エレクトロニクス業績賞(宅間宏賞)(2021年)受賞など。

# Millisecond-order temporal-resolution synchrotron X-ray tomography

Wataru YASHIRO<sup>1,2,3</sup>, Xiaoyu LIANG<sup>2</sup>, Tadashi ABUKAWA<sup>1,2</sup>, Wolfgang VOEGELI<sup>4</sup>, Etsuo ARAKAWA<sup>4</sup>, Tetsuroh SHIRASAWA<sup>5</sup>, Ryo MASHITA<sup>6</sup>, Yasumasa BITO<sup>6</sup>, Hiroyuki KISHIMOTO<sup>6</sup>, Hiroki OGAWA<sup>7</sup>, Kentaro KAJIWARA<sup>8</sup>, Katsuya FUJII<sup>9</sup>, Ryosuke UEDA<sup>9</sup>, Koh HASHIMOTO<sup>9</sup>, Hiroyuki KUDO<sup>9</sup>

International Center for Synchrotron Radiation Innovation Smart (SRIS), Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8577, Japan

<sup>2</sup>Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials (IMRAM), Tohoku University, 2–1–1 Katahira, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980–8577, Japan

<sup>3</sup>Department of Applied Physics, School of Engineering, The University of Tokyo, 7–3–1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113–8656, Japan

<sup>4</sup>Department of Physics, Tokyo Gakugei University, 4–1–1 Nukuikita-machi, Koganei, Tokyo 184–8501, Japan

<sup>5</sup>National Metrology Institute of Japan, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, 5–2–2107 1–1–1 Higashi, Tsukuba, Ibaraki 305–8565, Japan

<sup>6</sup>Sumitomo Rubber Industries Ltd,, 2-1-1 Tsutsui-cho, Chuou-ku, Kobe, Hyogo 651-0071, Japan

<sup>7</sup>Institute for Chemical Research, Kyoto University, Gokasho, Uji, Kyoto 611–0011, Japan

<sup>8</sup>Japan Synchrotron Radiation Research Institute (JASRI), 1–1–1 Kouto, Sayo-gun, Sayo-cho, Hyogo 679–5198, Japan

<sup>9</sup>Faculty of Engineering, Information and Systems, University of Tsukuba, 1–1–1 Tennodai, Tsukuba, Ibaraki 305–8573, Japan

#### Abstract

Millisecond-order temporal-resolution synchrotron X–ray tomography is a new approach to capture instantaneous phenomena in the 4D (three-dimensional+time) world in which we live. By taking advantage of its ability to acquire statistical data on 4D phenomena in nonequilibrium systems at high throughput, a new frontier of ''nonequilibrium materials informatics'' based on big data analysis can be seen in the near future. In this paper, we introduce the significance of the millisecond-order synchrotron radiation tomography that the authors have pioneered, the history and current status of its development, and the future prospects that have emerged from this development.