

第 15 回 X 線顕微鏡国際会議 (XRM2022) 報告

公益財団法人高輝度光科学研究センター
放射光利用研究基盤センター
散乱・イメージング推進室 竹内 晃久

1. はじめに

2022 年 6 月 19 日より 6 日間の日程で、第 15 回 X 線顕微鏡国際会議 (15th International Conference on X-ray Microscopy, XRM2022) が、台湾新竹市の National Synchrotron Radiation Research Center (NSRRC) の主催により開催された。本会議は、第 1 回が 1983 年にドイツ Göttingen で開催され、以降 3 年に一度開催されていた。2008 年以降は X 線顕微鏡の急激な発展に伴い 2 年に一度の開催となった。今回の会議は本来 2020 年に開催されるはずであったが、新型コロナウイルス感染症の影響により 2 年の延期を経た後、今年オンラインで開催された。Closing remark でも言及されていたが、パンデミックその他世界情勢が急激に変化していく中で、本会議は多くの初の試みとして、延期、バーチャル開催、2 会議分の運営、時差を考慮したスケジュール等々…を断行し、にも関わらず大過なく 24 日に無事に全日程を終えた。会議関係者の皆様には、多くの困難や無念を乗り越え無事に開催して頂いたことにこの場をお借りして篤く御礼申し上げたい。

オンライン会議進行に関しては、Whova システムを会議のポータルサイトとして利用し、ここでスケジュール確認や各セッション・発表へのリンクへアクセスできるようになっていた。口頭発表は Webex、ポスター発表は Gather Town で実施された (図 1)。Gather Town では自分のアバターを作成し、ポスターが展示された仮想空間を十字キーで目的地に移動させる。その世界観と操作感はちょっとした RPG ゲームのそれで楽しく便利であったが、なにせリアル自分には職場にいる。傍目の人からもゲームをやっているように見られ、その都度いやいや誤解ですこれ仕事なんですよと説明するのは多少難儀した。4 年越しということもあってか、そして、オンラインで時差を考

慮してということもあってか、いつにましてみっちりとした会議スケジュールであった。期間中はほぼ朝 9 時半から夜 23 時過ぎまで。もちろん途中昼食や夕食のブレイクはあるが、このサイクルが月一金の間続き、あまりの濃密さに翌週半ばくらいまで疲れが取れなかった程だ。幸い、日本は台湾と時差が 1 時間しかないため、大きく生活習慣が乱されることはなかったが、通常業務と多くの時間が重なるため集中しての視聴がなかなか難しいところもあった。口頭発表数は、plenary 6 件、invited 28 件、contributed 70 件、また、オンラインのため企業展示の代わりに sponsor presentation が 3 件 (JTEC Co., Optique Peter, Thermo Fisher Scientific) 組まれた。plenary と invited の一部以外は 2 つのセッションに別れ並行して進行した。ただし今回はオンラインで各国参加者の時差を考慮したということもあり、多くの発表はビデオ録画され見逃し配信により後で視聴可能だった (最長 2022 年 7 月 31 日まで) のは有り難かった。ポスター発表には 113 件のエントリーがあった。オンラ



図 1 Gather Town によるポスターセッションの様子。上下左右キーにより自分のアバターを移動させる。町人のように見えるのは自分以外の参加者のアバター。これらのアバターやポスターのシンボルに近づくことでエンカウント。

イン開催のためバンケット等は省略されたが、最終日の休憩時間にはビデオに小粋にまとめられた NSRRC バーチャルサイトツアーが上映された。なお、今回に関しては全てのセッションの座長を台湾 NSRRC または Tamkang 大学の現地スタッフが務めた。

本稿については、前述のように殆どの口頭発表は期間限定で録画視聴可能であるため、期間中のほぼ全ての話題について触れることも原理的に可能である。が、紙面と労力の都合でここでは筆者が印象に残った所のみピックアップして報告したい。

2. 会議の様子

以前の XRM では、新しい手法や光学系の紹介、空間分解能の更新等に関するトピックが会議の度に目白押しであったが、40 周年を間近に迎えるにあたり、特にここ 10 年ほどで話題はアプリケーションが多くを占めるようになってきた。それは X 線顕微イメージング技術が成熟してきたことを意味するのだろう。我々のような装置屋からすると少し寂しさのようなものを感じる…というのがここ最近の報告書のテンプレートであったが、今回は 4 年間の蓄積もあつてか、些か趣が違った。確かに、従来のスペックを大きく超えていくような報告や、画期的な素子や光学系の報告は無かったものの、それらをブラッシュアップしていくアイデアや、特に目立ったのは幾つかの測定技術を統合したイメージング技術の報告であった。例えば、high-/hyper-/multi-/dimension…といったキーワードが目についた。高い透過力、様々な相互作用といった X 線の特色を活かすには 2 次元、3 次元だけでなく、4 次元、或いはそれ以上の情報量を、という流れは当然のことであろう。証拠に、今回の発表で出てきた X 線像は殆どがカラーであった。「X 線写真はモノクロ」といった認識はもはやすっかり過去のものになりつつある。3 次元空間の吸収/位相にプラスして、時分割、蛍光 X 線、吸収端微細構造、X 線回折、x-ray excited optical luminescence (XEOL)、x-ray beam induced current (XBIC) などのスカラー量の付与の他、磁区、結晶構造、歪、テンションの向きといったベクトルをコントラストとして表示する報告が急激に増えている。ベースとなる光学系は、様々な信号を同時測定できる走査型 X 線顕微鏡が多かった。しかし

測定に時間がかかるため 3 次元空間のイメージングに不向きである。その点で理化学研究所の香村氏が発表したシートビーム顕微鏡は面白い試みである。シートビームによる照射なので試料を 1 次元に走査するだけで XEOL 等の二次信号の 3 次元像が取得できる。

その他キーワードとしては、correlative imaging も頻発していた。これは X 線と他のプローブによるイメージングを組み合わせる方法でたとえば X 線と電子顕微鏡、STED の組み合わせが発表されていた。

3. 光学素子開発関連

光学素子の開発に関する口頭発表は 10 件あった。

PSI の A. Kubec は X 線アクロマートレンズを紹介した。可視光では、特性の異なる凸レンズ凹レンズの組み合わせによる色収差補正レンズがあるが、これを X 線用の凸レンズと回折型光学素子である Fresnel zone plate (FZP) の組み合わせで実現しようというものである。FZP 単独では $\Delta E = 25 \text{ eV}$ に対して、凸レンズとの組み合わせで $\Delta E = 1 \text{ keV}$ 、全体の効率 24% (6.2 keV) を実現した。用いたタンデム凸レンズは近赤外レーザーを使った 3 次元プリンティング技術で作成されたもので、同じ技術で作成された 3 次元イメージング評価用 Siemens Star パターンも印象的であった。

ETH Zürich の L. Romano 氏は高アスペクト比(パターン深さ/幅比) 光学素子のためのシリコン微細加工技術について講演し、その中で Metal-assisted chemical etching (MACE、または Mac-Etch) を利用した高アスペクト比 FZP の紹介があった。MACE FZP については SLAC の R. Akan 氏からも報告があった。高い利用効率と高空間分解能の両立には高アスペクト比構造が必須であるが、従来の製作技術ではアスペクト比 10 程度が限界だったのに対して MACE は一気に 100 オーダーの製作が可能な方法として注目されている。両氏ともアスペクト比 30-100 の FZP を紹介していたが、回折効率はまだ理論との乖離が大きく、更なる製造技術改善が望まれる。

名古屋大学の松山氏からは advanced Kirkpatrick-Baez (AKB) ミラーベースの結像顕微鏡の開発状況が報告された。AKB ミラーは水平垂直それぞれで 2 枚の反射面を使うことで光学系が安定し、軸外収差を抑

えた結像素子として用いることができる光学系である。鏡面のマルチレイヤーコートによる高 NA 化を、X 線干渉計を利用した超精密加工技術によって 1 nm 以下の形状誤差、0.2 Å 以下の D-spacing 誤差で実現し、空間分解能 14 nm が期待できるとのこと。更にはピエゾを並べた deformable ミラーによる補償光学系の導入と波面検出による収差補正により 5 nm 以下の空間分解能も可能であることが紹介された。何かと大型になりやすい X 線光学系の小型化技術にも言及し、Wolter III 型光学系（後述）の導入によって従来の 20 分の 1 以下の鏡筒長を実現（45 m⇒2 m）したことや、LiNbO₃ 単結晶を用いた deformable ミラーの小型化（150 mm⇒50 mm）が説明された。なお、Wolter III 型ベースの AKB ミラーについては大阪大学の山田氏、deformable ミラー補償光学によるサブ 5 nm 空間分解能についての詳細は大阪大学の井上氏より別途口頭発表があった。

東京大学の三村氏からは X 線顕微鏡用に開発されている軸対称電鍍ミラーについて発表があった。大きな NA が可能な軸対称型全反射ミラーは、AKB と異なりマルチレイヤーコーティング無しでもシングル nm の空間分解能が原理的に可能である。これまではボールペンのキャップのような形状の内側を高精度に研磨することが難しく高精度なものの作製は不可能であったが、三村氏らは高精度に加工した石英マンドレル 1 本で、nm レベルの面精度を持つ金属ミラーを常温電鍍法で繰り返し製作可能であることを示し、既に SPring-8 や SACLA の軟 X 線ビームラインに導入されていることが報告された。この製法で作られた軸対称 Wolter ミラーの利用例として、東京大学の木村氏からは細胞の XAFS タイコグラフィのためのアクロマート集光光学系（Coherent Achromatic Rotational Reflective Optics for pTychography, CARROT と名付けられていた。赤茶けた銅製のテーパー付き円筒形状の外観はまさに人参のそれであり、命名者に拍手を送りたい）が紹介された。同じく東京大学の竹尾氏からは X-FEL の準単色光を利用した結像顕微鏡のコンデンサと対物としての利用が報告された。こちら素子がアクロマートであることを利用し、回折格子を置くことで 100 fs 以下の時分割シングルショット分光イメージングが可能であり、細胞の

元素分布タイムラプス観測、爆発や化学反応の分光スナップショットへの利用が検討されている。

Sigray の W. Yun 氏からは、キャピラリー開発の最新情報が報告された。ラボ X 線源が商品である Sigray のミッションとして、キャピラリーを用いることで放射光レベルの X 線を実験室或いは工場に提供するとしている。放物面キャピラリーを使って、光源の発散光を一旦平行化、もう一つ別の放物面キャピラリーを使って X 線を集光、透過/XRF 結像顕微鏡、コンフォーカル XRF の照明に用いる構想が発表された。2 つのキャピラリーを使っても全体の効率 は 70% を維持し、スポットサイズは 4 μm 以下とのことである。

4. 手法関連

手法としては、coherent diffraction imaging (CDI) やタイコグラフィといったレンズレスの高分解能イメージングが応用も含めここ 10 余年で急激にトピックを増やしてきており、今回もメインのテーマとして扱った発表だけで 10 件を数えた。東北大学の高橋氏は、招待講演で分光タイコグラフィの現状を紹介し、Ce の L 端近傍の詳細な 4 次元（3 次元+XANES）イメージングが示されていた。CDI は基本的に孤立試料しか取り扱えないという測定上の制限があるが、三角形など対称性の低い形状の開口をもつスリットで照射領域を制限することによって、拡張（孤立してない）試料であってもシングルショット CDI が可能であることが示された。講演の後半では、愛称が決まったばかりの次世代 3 GeV 放射光施設「NanoTerasu」が紹介された。

兵庫県立大学の高山氏からは、マルチショット CDI 動的イメージングが報告された。試料の XY スキャンによる境界条件取得によって拡張試料の広視野 CDI 計測を可能にしたのがタイコグラフィであるのに対して、この手法は時間的なスキャンで得た情報を境界条件とすることで、拡張試料の動的 CDI 計測を可能にする。溶液中金コロイド粒子のブラウン運動の様子を 100 fps で計測した例が紹介された。

CDI やタイコグラフィの利用に関する発表を見ていく気付くのは、分光、特に利用例として触媒のその場合分光イメージングの利用報告が多いことだ。分光イメージングは利用エネルギーが吸収端近傍に限られ

ることが多く、それによって試料サイズが限定されるため実は応用が難しい側面がある(たとえば鉄の吸収端を観るには試料厚みが数 μm 以下でないと X 線が透過しない。しかもそのスケールの物体のイメージングには数十 nm レベルの空間分解能が必要)。一方、触媒のような概ね微小で且つ化学状態の追跡が重要なテーマの試料の計測には分光 CDI やタイコグラフィと特に相性が良いということだろう。

結像ベースの X 線顕微鏡のトピックについても触れておきたい。PSI の A. Bonnin 氏からは TOMCAT ビームラインの X 線顕微鏡の最新情報と将来プランが紹介された。この施設は放射光 X 線 CT の世界の動向を探る上でキャッチアップが欠かせない一つであり、さらに、人材育成の面でも、後述する WMI 賞受賞者を毎回のように輩出する等、目をみはる成果を出し続けている。話は X 線結像顕微 CT についてが中心であった。空間分解能は 200–300 nm と他の報告と比べるとかなり控えめであるが、むやみに空間分解能を追わず利用に徹している。セットアップや利用している光学素子、様々なスペックから、ユーザー利用やその場観察を重視した思想の端々まで、我々が SPring-8 で展開している X 線ナノ CT のそれと共通点が非常に多かった。どちらかが真似をしているというわけではないのだが、突き詰めていった結果同じようなモノになった、ということであろう。将来プランの一つとしては、フレネルレンズベースのコンデンサを開発しているとのことであった。また、別の発表で PSI の A. Menzel 氏によって紹介されていた結像光学系のセットアップを使ったフォーリエタイコグラフィを今後の高分解能化ツールとして利用するとのことであった。これは、通常の結像光学系をそのまま利用するのだが、対物素子をスキャンすることで実質的な NA を広げ、超解像が可能とのことであった。通常のゼルニケ位相コントラスト法と比較して、20 倍照射ダメージを抑えられるとのことであったが現状では測定時間が 25 倍必要らしい。

個人的に印象深かったのは Göttingen 大学の J. Soltau 氏による、FZP を使ったレンズベース CDI の話である。回折素子の一種である FZP 光学系では、通常 1 次回折光がイメージングに利用され、それ以外の回折光は不要なものとして遮蔽される。彼は、この

不要な回折次数(ここでは 0 次と -1 次)を積極利用し位相回復イメージングができることを示した。例えば、結像光学系において 1 次回折光は吸収コントラスト像を形成し位相情報は消滅するが、-1 次回折光は拡大ホログラムとして位相情報を保持しているため、この両者を使えば位相回復イメージングが可能というアイデアは以前からあった。ところが彼は 0 次光をも CDI 信号として利用し、更には 1 次光、-1 次光を単に異なるフレネルナンバーのホログラムとして使うことで位相回復ができることを示した。もはや結像でもないため、試料を物体面に置く必要もなく、FZP 近くに置く (NA が大きくなる) ことで超解像ができるメリットがある。彼は後述の 2022 年 WMI 賞にノミネートされていた。残念ながら受賞とはならなかったが、非常に面白いアイデアと感じた。

5. おわりに

Closing session では、次回 2024 年の XRM 開催地スウェーデンの Lund、次次回 2026 年の開催地ブラジルサンパウロ郊外の Campinas についての紹介プレゼンがあった。次次回の開催地は毎回、会議中に複数の立候補地のプレゼンがありその中から参加者の投票で決定されるが、今回の立候補は 1 組だけであり、自動的に Campinas が選ばれた形だ。

本学会の若手発表賞である Werner Meyer-Ilse (WMI) 賞とポスター賞の発表があった。ポスター賞は今回新たに設置され、各受賞者には 500USD が贈られる。4 名の受賞があり、その中では大阪大学の伊藤氏が“XFEL sub-10 nm focusing system based on X-ray imaging mirrors”という内容で受賞した。SACLA からの X 線の集光に Wolter III 型(後述)配置の AKB ミラーを用いることで大きな縮小率、高効率、高安定性を実現し、スポット幅 $7\text{ nm} \times 7\text{ nm}$ 、強度 $1.21 \times 10^{22}\text{ W/cm}^2$ を得たとの報告である。この場をお借りして祝意を表したい。一方、WMI 賞は口頭発表に対する賞である。少し説明すると、1999 年バークレイ開催の XRM 直前に、同会議の co-chair であった Werner Meyer-Ilse 氏が交通事故で亡くなるという不幸な出来事があった。同氏を偲び、X 線顕微鏡の発展に貢献する将来ある若手への賞として同会議にて直ちに本賞が設立された。受賞資格は学会開催までに PhD

取得2年以内の若手研究者となっており、推薦を受けた候補者の中から毎回1名或いは2名が選ばれる。受賞者には記念メダル並びに2000USDが贈られる。これまでの受賞者を見ると、J. Miao, D. Weiss, M. Feser, P. Thibault など錚々たる名前が連なり、20年余と歴史はまだ浅いながらもX線顕微イメージングに携わる若手研究者の登竜門として非常に権威のある賞となっている。惜しむらくは、日本人はこれまで、毎回のように候補者が出るもののまだ受賞者がいなかった。とはいえ、受賞者と候補者達の間には優劣の差は殆ど無く、ノミネートされるだけでも研究者としては相当な名誉と言えるだろう。2020年開催が延期された今回は、2020年度、2022年度それぞれのWMI賞が選考された。2022年度はAPSのY. Luo氏とSLSのJ. Kim氏が受賞した。前者は、次世代ペロブスカイト太陽電池の評価のために開発したmulti dimensional 走査型X線顕微鏡(吸収、XRF、XRD、XBIC、XEOLの5次元!)についてであった。後者は、無数の同心円状パターンが並んだグレーティングを利用した時分割散乱テンソルCTの研究についてであり、ポリマー材料等に掛けたテンションのベクトルを3次元で捉えていた。両受賞者に言えることは、2章で述べたように多次元の非常に多くの情報量が詰め込まれた鮮明なカラー画像を示していたことである。そして、2020年度のWMI賞は、大阪大学の山田氏が単独での受賞となった(図2)。アジア出身の研究者として初の快挙であり、X線顕微

イメージングに関わる日本人研究者としては、長年の悲願達成である。受賞内容は、Wolter III型とI型を組み合わせたAKBミラー光学系を使ったX線結像顕微鏡の研究についてである。従来のAKBは一体型が製作しやすいWolter I型配置と呼ばれる2つの反射面が同じ向きの配置が取られるが、これは主平面が2つの反射面の間に存在するため、使うミラーの大きさや必要な拡大率を考えるとどうしても装置が大型化するという問題があった。山田氏は、2つの反射面が対向するWolter III型と呼ばれる配置にすれば、主平面が2つのミラーの外に出てコンパクトな設計でも十分な拡大率が得られることを見出した。それだけでなく、2枚の反射面を一体型に成形できない等のこの手法独自の課題点を自ら解決し、デザイン、製造、調整方法全てを実用化まで漕ぎ着けた。もちろん、こういったアイデアは、大阪大学山内研で鍛えられた超高精度X線ミラー製作の技術力が備わって始めて実現されたものであることも付け加えておく。受賞をこの場をお借りして、改めて祝意を表したい。と同時に、今も世界のX線イメージングを牽引する錚々たる歴代受賞者達の中に、自分の名前が連なった意味を噛み締め、今後なお一層のご活躍を期待したい。…と、そんな発破掛けも彼には余計なお世話だったかも知れない。以下は受賞直後の彼の受賞コメントである(一部抜粋)“I know this award has been given to world-famous scientists, so I'm feeling somewhat pressure. I'll keep working harder and harder. … hope I'll continuously contribute to this research field.”第二、第三の山田氏がまたすぐに出てくることを祈って、この報告書の締めとしたい。

…ただ、唯一悔やまれるのが、もし、現地開催だったなら、きっと当日は大宴会だったのになあということ。オンライン開催の弊害がこんな所にも。次からはまたin-personな開催に戻ることを切に祈って。

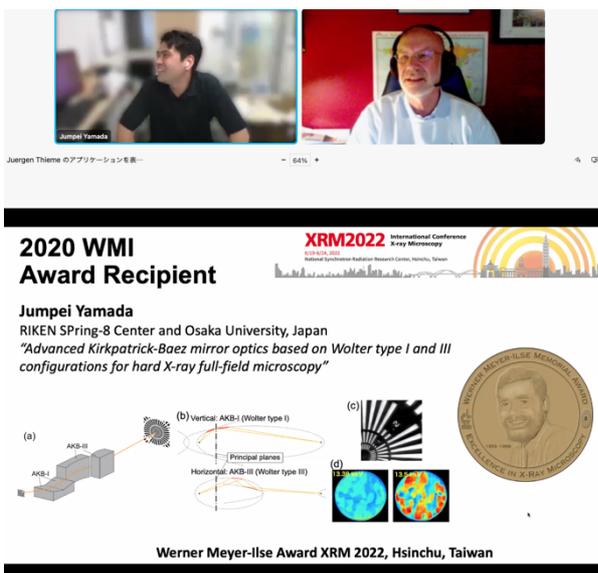


図2 山田氏(左上)のWMI授賞式の様子。右上はAward Committee ChairのJ. Thieme氏。

竹内 晃久 TAKEUCHI Akihisa

(公財) 高輝度光科学研究センター
放射光利用研究基盤センター 散乱・イメージング推進室
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0833
e-mail : take@spring8.or.jp