

戦略的国際共同研究プログラム(SICORP)

日本ードイツ国際産学連携共同研究

終了報告書 概要

1. 研究課題名：「超解像 X 線位相イメージングの開発」
2. 研究期間：2018 年 10 月～2022 年 3 月
3. 主な参加研究者名：
日本側チーム

	氏名	役職	所属	研究分担
研究代表者	百生 敦	教授	東北大学 多元物質科学研究所	取り纏め 装置開発
主たる 共同研究者	川上 博己	主任部 員	浜松ホトニクス(株)	X線源開発
研究参加者	呉 彦霖	助教	東北大学 多元物質科学研究所	装置開発
研究参加者	上田 亮介	助教	東北大学 多元物質科学研究所	ソフトウェア 開発
研究参加者	池松 克昌	博士研 究員	東北大学 多元物質科学研究所	装置開発・実験
研究参加者	岡田 知幸	グルー プ長	浜松ホトニクス(株)	X線源開発
研究期間中の全参加研究者数			15名	

相手側チーム

	氏名	役職	所属	研究分担
研究代表者 (~2019.8)	Jürgen Mohr	Senior scientist	Institute of microstructure technology, Karlsruhe Institute of Technology	Project proposal and management
研究代表者 (2019.9~)	Martin Börner	Senior scientist	Institute of microstructure technology, Karlsruhe Institute of Technology	Project management
主たる 共同研究者	Joachim Schulz	Managing director	microworks GmbH	Technology Transfer Coordinator
研究参加者	Pascal Meyer	Senior scientist	Institute of microstructure technology, Karlsruhe Institute of Technology	Fabrication and experimental characterization
研究参加者	Pouria Zangi	PhD student	Institute of microstructure technology, Karlsruhe Institute of Technology	Fabrication, simulation and experimental characterization
研究参加者	Otto Markus	Engineer	microworks GmbH	Manufacturing of gratings
研究期間中の全参加研究者数			18名	

4. 国際共同研究の概要

X線位相イメージングは、通常のX線画像ではコントラストが生成されにくい軽元素からなる物体（高分子材料や生体軟組織など）に有効である。X線透過格子を用いるX線位相イメージング技術では、使用する格子の周期（数 μm ）で空間分解能が制限される。この問題を克服するために発案した超解像X線位相イメージングを実験室装置で実現するために、日本側のX線位相イメージング技術、および、相手側のX線光学素子開発技術を融合させる国際共同研究を行った。日本側における光学系の発案と光学素子基本設計に基づき、相手側はX線リソグラフィにより三角位相格子を開発した。これにマイクロフォーカスX線源からの球面波X線を照射して微細なニードルビーム配列を形成し、試料によるニードルビーム配列の変位をさらに下流に配置した振幅格子で解析して微分位相像を生成した。さらに、試料をニードルビーム配列に対してサブ周期ステップで移動させて微分位相像の計測を繰り返し、その結果から超解像微分位相像を構成した。ポリマー製のテスト試料を用いて、超解像X線位相イメージングを原理実証した。

5. 国際共同研究の成果

5-1 国際共同研究の学術成果および実施内容

X線透過格子を用いたTalbot干渉計によるX線位相イメージングの達成可能空間分解能は、使用するX線格子の周期で制限され、通常は $10\mu\text{m}$ 弱となる。この限界を超えるためのアプローチとして、超解像X線位相イメージングを考案し、その実現に取り組んだ。位相感度を確保するために、通常のX線撮影と異なり、試料と検出器の間に十分な距離を確保しなければならない。この要請のもとで超解像撮影を実現するために、非Talbot条件（self-imaging効果が生じない条件）のもとで、三角位相格子を用いる光学系（図1）を設計し、格子開発と撮影システムの構築を進めた。マイクロフォーカスX線源からの球面波X線を三角位相格子に照射すると、細いニードルビームの配列が形成される。これに試料を配置すると、試料による屈折・散乱・吸収によってニードルビームの配列が変化を受け、画像検出器前に配置する振幅格子を通して撮影すると、モアレ画像が記録される。縞走査法を適用することにより、モアレ画像から試料による微分位相像が取得できる。ニードルビームの配列に対して試料をサブ周期ステップで移動させてこれを繰り返すことにより、超解像微分位相像形成のためのデータが取得できる。

相手側では、X線リソグラフィにより三角位相格子が製作された。ただし、図1に示すように、実際は傾斜矩形格子を製作し、格子パターンの対角線方向にX線を入射することで三角形状の位相プロファイルを実現した。周期 $8\mu\text{m}$ の三角位相格子を用いたシステムにおいて、超解像微分位相像の取得に成功した。

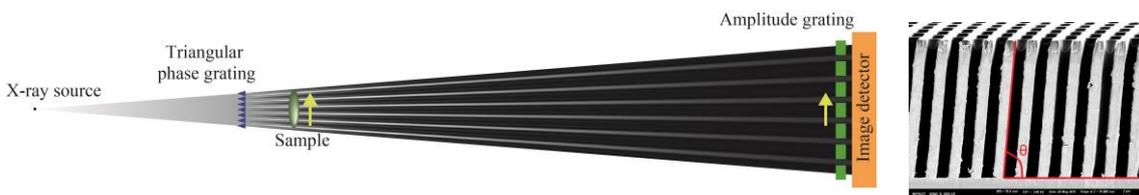


図1 超解像X線位相イメージングの光学構成：左、および、三角位相格子（傾斜矩形格子）：右。

5-2 国際共同研究による相乗効果

本研究で中心的に検討した三角位相格子に加えて、より高度な超解像位相イメージングにつながる新規格子にも研究の範囲が広がった。例えば、空間分解能をさらに向上させるためのパラボラ位相格子の適用である。また、今回のデモンストレーションでは、一方向のみで超解像効果を示しただけであるが、縦横二方向において位相感度および超解像効果を達成すべきであり、それを目的としたピラミッド位相格子、あるいは、回転放物面

位相格子の開発も開始した。双方が単独で研究を進めるだけでは興らなかった研究の方向性が見いだされた。

5-3 国際共同研究成果の波及効果と今後の展望

原理実証を行った超解像 X 線位相イメージングの実用化に向けては、撮影系の安定性の向上、撮影時間の短縮、適用先の市場調査など、解決しなければならない課題が残されている状況にある。そのために、今後も本国際共同研究を継続することに双方で同意しており、超解像 X 線位相イメージングをより実用化に近いレベルに引き上げた後にライセンス化の議論ができると考えている。

Strategic International Collaborative Research Program (SICORP)
 Japan – German Joint Research Program
 Executive Summary of Final Report

1. Project title : 「Development of hyper-resolution X-ray phase imaging」
2. Research period : 10/2018 ~ 03/2022
3. Main participants :
 Japan-side

	Name	Title	Affiliation	Role in the research project
PI	Atsushi Momose	Professor	Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University	project proposal and management, apparatus development
Co-PI	Hiroki Kawakami	Chief	Hamamatsu Photonics K. K.	X-ray source development
Collaborator	Yanlin Wu	Assistant Professor	Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University	apparatus development
Collaborator	Ryosuke Ueda	Assistant Professor	Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University	software development
Collaborator	Katsumasa Ikematsu	Postdoctoral Fellow	Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University	apparatus development, experiment
Collaborator	Tomoyuki Okada	Group leader	Hamamatsu Photonics K. K.	X-ray source development
Total number of participants throughout the research period:				15

Partner-side

	Name	Title	Affiliation	Role in the research project
PI (until Aug. 2019)	Jürgen Mohr	Senior scientist	Institute of microstructure technology, Karlsruhe Institute of Technology	Project proposal and management
PI (since Sep. 2019)	Martin Börner	Senior scientist	Institute of microstructure technology, Karlsruhe Institute of Technology	Project management
Co-PI	Joachim Schulz	Managing director	microworks GmbH	Technology Transfer Coordinator

Collaborator	Pascal Meyer	Senior scientist	Institute of microstructure technology, Karlsruhe Institute of Technology	Fabrication and experimental characterization
Collaborator	Pouria Zangi	PhD student	Institute of microstructure technology, Karlsruhe Institute of Technology	Fabrication, simulation and experimental characterization
Collaborator	Otto Markus	Engineer	microworks GmbH	Manufacturing of gratings
Total number of participants throughout the research period:				18

4. Summary of the international joint research

X-ray phase imaging is effective for objects consisting of light elements (polymer materials, biological soft tissues, etc.), which cannot generate sufficient contrast in conventional X-ray imaging. The spatial resolution of grating-based X-ray phase imaging is limited by the periods of gratings (several microns). This international collaboration combining the X-ray phase imaging technology on the Japanese side and the microfabrication technology for X-ray optical elements on the German side was conducted to develop a laboratory-based apparatus of super-resolution X-ray phase imaging and overcome the spatial resolution limit. Based on the proposal of the optical configuration and the basic design of optical elements by the Japanese side, the German side developed X-ray triangular phase gratings by X-ray lithography. The triangular phase grating generates an X-ray needle beam array by illuminating spherical-wave X-rays from a microfocus X-ray source. A sample is hit by the needle beams, and a differential phase image of the sample was obtained by analyzing the deformation of the needle beam array by scanning an amplitude grating placed downstream. Furthermore, this measurement was repeated by synchronizing the sub-period stepwise displacement of the sample, and a super-resolution differential phase images was constructed. The proof-of-concept of super-resolution X-ray phase imaging was demonstrated by observing a polymer test sample.

5. Outcomes of the international joint research

5-1 Scientific outputs and implemented activities of the joint research

The spatial resolution limit of the X-ray phase imaging by a Talbot interferometer consisting of X-ray transmission gratings is limited by the period of the gratings, the practical value of the spatial resolution is around 10 μm. As an approach for overcoming this limit, we proposed and realized super-resolution X-ray phase imaging. To ensure phase sensitivity, it is needed to keep a certain distance between a sample and an image detector, unlike conventional X-ray imaging. To realize super-resolution imaging under this configuration, an optical alignment using a triangular phase grating (Fig. 1) was designed under non-Talbot condition (or without causing self-imaging effect), and the development of the gratings and imaging system was conducted. The triangular phase grating generates an array of X-ray needle beams by illuminating spherical-wave X-rays from a microfocus X-ray source. The

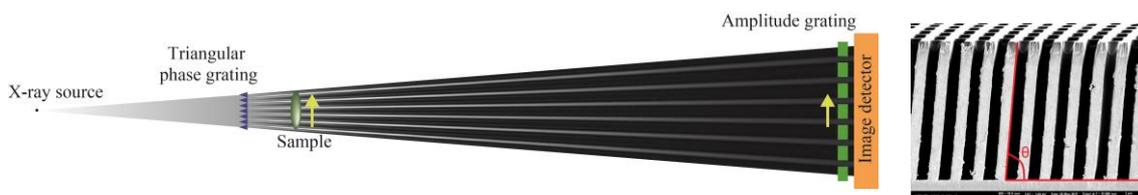


Fig. 1 Setup of super-resolution X-ray phase imaging (left) and triangular phase grating (inclined rectangular phase grating) (right).

needle beam array passing through a sample is modulated by refraction, scattering, and absorption by the sample. A moiré pattern is observed by recording the needle beam array through an amplitude grating placed downstream and in front of an X-ray image detector. By applying the fringe-scanning method, a differential phase image is generated. This measurement is repeated by synchronizing the sub-period stepwise displacement of the sample against the needle beams, data set for constructing a super-resolution differential phase image is obtained.

The German side fabricated the triangular phase grating by X-ray lithography. Concretely, as shown in Fig. 1, an inclined rectangular grating was fabricated; a triangular phase-shift profile is realized by introducing X-rays along the diagonal line of the inclined rectangle. Super-resolution X-ray phase imaging was demonstrated by using a triangular phase grating with a period of 8 μm .

5-2 Synergistic effects of the joint research

In addition to the triangular phase grating, our research scope extended to the development of new gratings for more advanced super-resolution X-ray phase imaging. For instance, the use of parabola phase gratings is considered to improve the achievable spatial resolution. Secondly, in the present work, the super-resolution effect was demonstrated in one direction only. We should aim at two-directional phase sensitivity and super-resolution effect, and for this purpose, the development of pyramid phase gratings and/or rotary paraboloid phase gratings has been started. Thanks to this international collaboration, we could find this research direction and initiate preliminary study, which had not been put into practice by each only.

5-3 Scientific, industrial or societal impacts/effects of the outputs

For the practical application of the super-resolution X-ray phase imaging demonstrated in this work, problems are remained to be solved in stabilizing the imaging system, shortening scan time, surveying application cases, and so forth. For this purpose, the both sides agree with keeping collaboration relationship, and we expect that the discussion on technology transfer can be initiated after raising the super-resolution X-ray phase imaging to a level closer to practical use.

国際共同研究における主要な研究成果リスト

1. 論文発表等

*原著論文 (相手側研究チームとの共著論文) 発表件数 : 計 3 件

・査読有り : 発表件数 : 計 3 件

1. Talgat Mamyrbayev, Katsumasa Ikematsu, Pascal Meyer, Alexey Ershov, Atsushi Momose, Jürgen Mohr, "Super-Resolution Scanning Transmission X-Ray Imaging Using Single Biconcave Parabolic Refractive Lens Array," Sci. Rep. 2019, 9, 14366, DOI: 10.1038/s41598-019-50869-8
2. Talgat Mamyrbayev, Alexander Opolka, Alexey Ershov, Josephine Gutekunst, Pascal Meyer, Katsumasa Ikematsu, Atsushi Momose, Arndt Last, "Development of an Array of Compound Refractive Lenses for Sub-Pixel Resolution, Large Field of View, and Time-Saving in Scanning Hard X-ray Microscopy," Appl. Sci. 2020, 10(12), 4132, DOI: 10.3390/app10124132
3. Talgat Mamyrbayev, Katsumasa Ikematsu, Hidekazu Takano, Yanlin Wu, Kenji Kimura, Patrick Doll, Arndt Last, Atsushi Momose, Pascal Meyer, "Staircase array of inclined refractive multi-lenses for large field of view pixel super-resolution scanning transmission hard X-ray microscopy," J. Synchrotron Rad. 2021, 28(3), 732-740, DOI: 10.1107/s16005775210015

*原著論文 (相手側研究チームを含まない日本側研究チームの論文) : 発表件数 : 計 0 件

*その他の著作物 (相手側研究チームとの共著総説、書籍など) : 発表件数 : 計 0 件

*その他の著作物 (相手側研究チームを含まない日本側研究チームの総説、書籍など) : 発表件数 : 計 0 件

2. 学会発表

*口頭発表 (相手側研究チームとの連名発表)

発表件数 : 計 6 件 (うち招待講演 : 0 件)

*口頭発表 (相手側研究チームを含まない日本側研究チームの発表)

発表件数 : 計 5 件 (うち招待講演 : 5 件)

*ポスター発表 (相手側研究チームとの連名発表)

発表件数 : 計 3 件

*ポスター発表 (相手側研究チームを含まない日本側研究チームの発表)

発表件数 : 計 0 件

3. 主催したワークショップ・セミナー・シンポジウム等の開催

1. 5th International Conference on X-ray and Neutron Phase Imaging with Grating (XNPIG2019)、主催者 : 百生敦 (東北大・教授)、仙台国際センター、仙台、日本、2019 年 10 月 20 日~24 日、参加人数 146 名
2. The 15th Symposium of Japanese Research Community on X-Ray Imaging Optics (XIO2019)、主催者 : 百生敦 (東北大・教授)、トラストシティ仙台、仙台、日本、2019 年 10 月 25 日~26 日、参加人数 64 名

4. 研究交流の実績（主要な実績）

【合同ミーティング】

- ・2018年10月30日：キックオフミーティング、東北大学多元物質科学研究所、仙台、日本
- ・両国のチームメンバーを交えてオンラインミーティングを3か月毎に開催した。

【学生・研究者の派遣、受入】

コロナ禍のため該当なし

5. 特許出願

研究期間累積出願件数：0 件

6. 受賞・新聞報道等

1. 文部科学大臣表彰（研究部門）、百生敦、2020年4月14日
2. 応用物理学会 第22回光・量子エレクトロニクス業績賞（宅間宏賞）、百生敦、矢代航、横関俊介、2021年3月16日

7. その他

特になし