

2020.2.26@御茶ノ水ソラシティ
光ビームプラットフォームシンポジウム

X線吸収分光の標準化状況の総合報告

高エネルギー加速器研究機構(KEK)・物質構造科学研究所
木村正雄

発表の内容

- 背景（問題意識）

なぜ、今 ラウンドロビン(RR)実験？

- ラウンドロビン実験(硬X線吸収分光)の概要

- データベースの整備状況

1st ~ 4th Database workshop, in Japan

- まとめ・今後の展開

X線吸収分光における ラウンドロビン・データベースを巡る状況

プログラム

1. 提案理由説明 木村正雄 (KEK)
2. 光ビームプラットフォームでの取り組み概要 渡辺義夫 (あいちSR)
3. 硬XAFSラウンドロビン実験 君島堅一 (KEK)
4. 軟XAFSラウンドロビン実験 太田俊明 (立命館)
5. 硬XAFSデータベース 朝倉清高 (北大)
6. 材料データベース 石井真史 (NIMS)
7. 産業利用でのラウンドロビン・データベースへの期待 山口浩司 (住友電気工業(株))

発表の内容

- 背景（問題意識）

なぜ、今 ラウンドロビン(RR)実験？

- ラウンドロビン実験(硬X線吸収分光)の概要

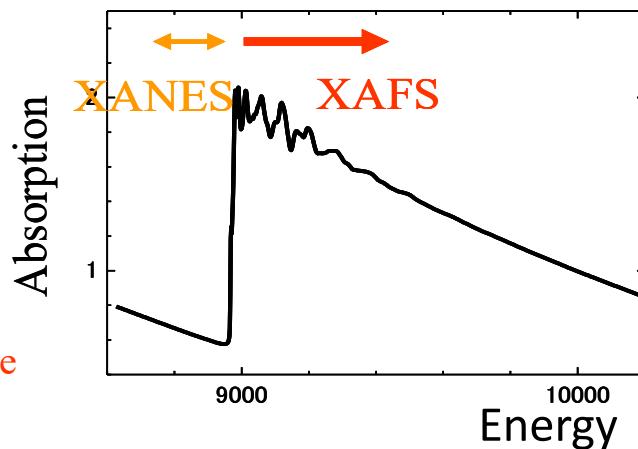
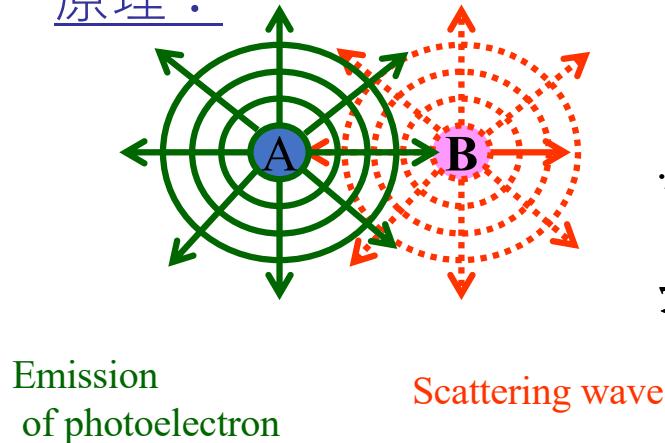
- データベースの整備状況

1st ~ 4th Database workshop, in Japan

- まとめ・今後の展開

放射光 XAFS (X-ray Absorption Fine Structures)

原理 :



特徴 :

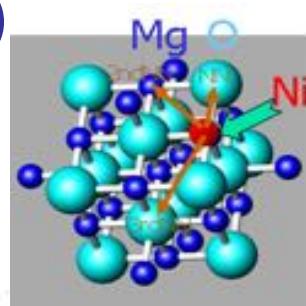
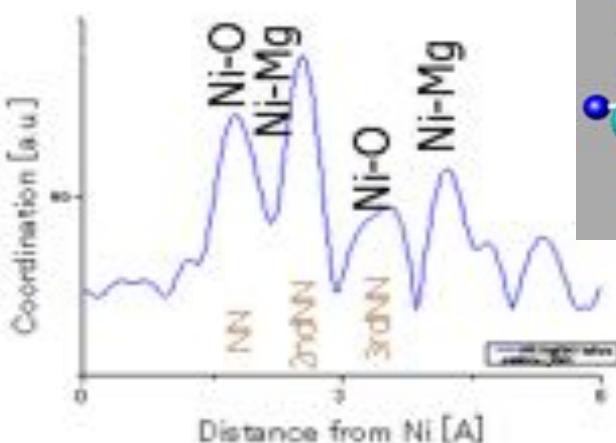
- 微細粒・非晶質でも可
- 溶液・ガス中でも可
- ✗低分解能

⇒ナノクラスター観察に最適
(溶液反応、触媒反応)

得られる情報 : 特定の元素周りのナノ構造

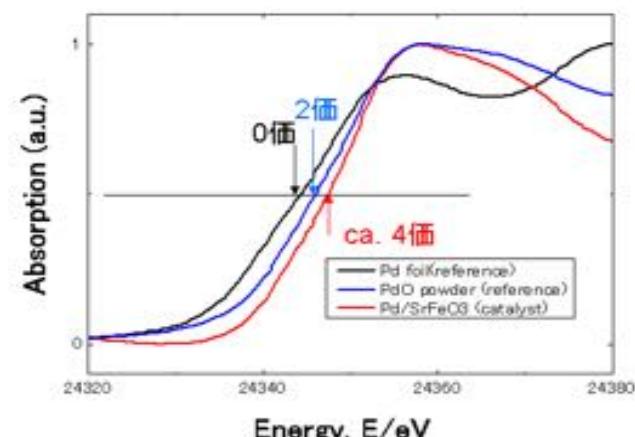
【動径分布関数】

- ・配位距離 (vs XRD)
- ・配位数 (vs NMR)



【電子状態・立体構造】

- ・価数 (vs XPS, NMR)



背景（問題意識）

1. ユーザーにとっての目安が欲しい

「正しく測定できている？」

「報告例と違うけど、試料のせい？測定法？施設のせい？」

* XAFSがメインでない(特に企業)研究者で重要

* 新たなユーザー拡大のためにも

2. 施設スタッフにとっても目安があると良い

* 自身の測定法の妥当性の確証、高度化の基準、…

* より親切なユーザ対応

「＊＊施設で測定したデータなんですけど、…」

3. データベース構築、データの情報科学処理化、への対応

ラウンドロビン実験 @光ビームプラットフォーム

<https://photonbeam.jp>



光ビームプラットフォーム

高エネルギー加速器研究機構 PHOTON FACTORY	科学技術振興機構 あいちシンクロトロン光センター
佐賀県立九州 シンクロトロン光研究センター SAGA Light Source	兵庫県立大学 ニュースノリス放射光施設
高輝度光科学研究センター SPring-8	東京理科大学社会研究機構 赤外自由電子レーザー研究センター
立命館大学 SRRCセンター	大阪大学 レーザー科学研究所

放射光施設と大型レーザー施設がネットワークを形成し、
産学官の皆様による施設のご利用をより一層推進しようするネットワーク
(平成28年度から2期目の活動を開始)

標準化⇒ラウンドロビン実験

同一試料を用いた実験を行い、施設間の実験データを比較

- ・硬X線XAFS（九州SR、SPring-8、あいちSR、KEK-PF）、**2016年度開始**
- ・軟X線XAFS（九州SR、兵庫県立大、立命館SR、あいちSR、KEK-PF）、**2017年度開始**
- ・光電子分光（硬X線：SPring-8、Tender-X線：あいちSR）、**2016年度開始**
- ・SAXS（**2018年度開始**）

各施設がこれまでに取り組んでいるラウンドロビン実験のビームライン

	KEK PF	JASRI SPring-8	SAGA-LS	newSUBARU	RitsSR	AichiSR
硬X線XAFS	BL-9A BL-12C AR-NW10A	BL14B2	BL07 BL11	—	BL04	BL5S1 BL11S2
軟X線XAFS	BL-7A BL-11A BL-11B BL-16A	—	BL10 BL11 BL12	BL05A BL05B	BL02 BL11 BL13	BL1N2 BL6N1 BL7U
PES(3 keV) HAXPES(6 keV～)	—	BL46XU (6 keV～)	—	—	—	BL6N1 (3 keV)
SAXS	—	BL19B2	—	—	—	BL8S3

発表の内容

- 背景（問題意識）

なぜ、今 ラウンドロビン(RR)実験？

- ラウンドロビン実験(硬X線吸収分光)の概要

- データベースの整備状況

1st ~ 4th Database workshop, in Japan

- まとめ・今後の展開

ラウンドロビン実験 @光ビームプラットフォーム

<https://photonbeam.jp>



光ビームプラットフォーム

PF 高エネルギー加速器研究機構 PHOTON FACTORY	科学技術交流財団 あいちシンクロトロン光センター
佐賀県立九州 シンクロトロン光研究センター SAGA Light Source	兵庫県立大学 ニュースノリ放射光施設
SPring-8 高輝度光科学研究センター	東京理科大学総合研究機構 赤外自由電子レーザー研究センター
立命館大学 SRセンター	大阪大学 レーザー科学研究所

硬X線吸収分光ラウンドロビン実験

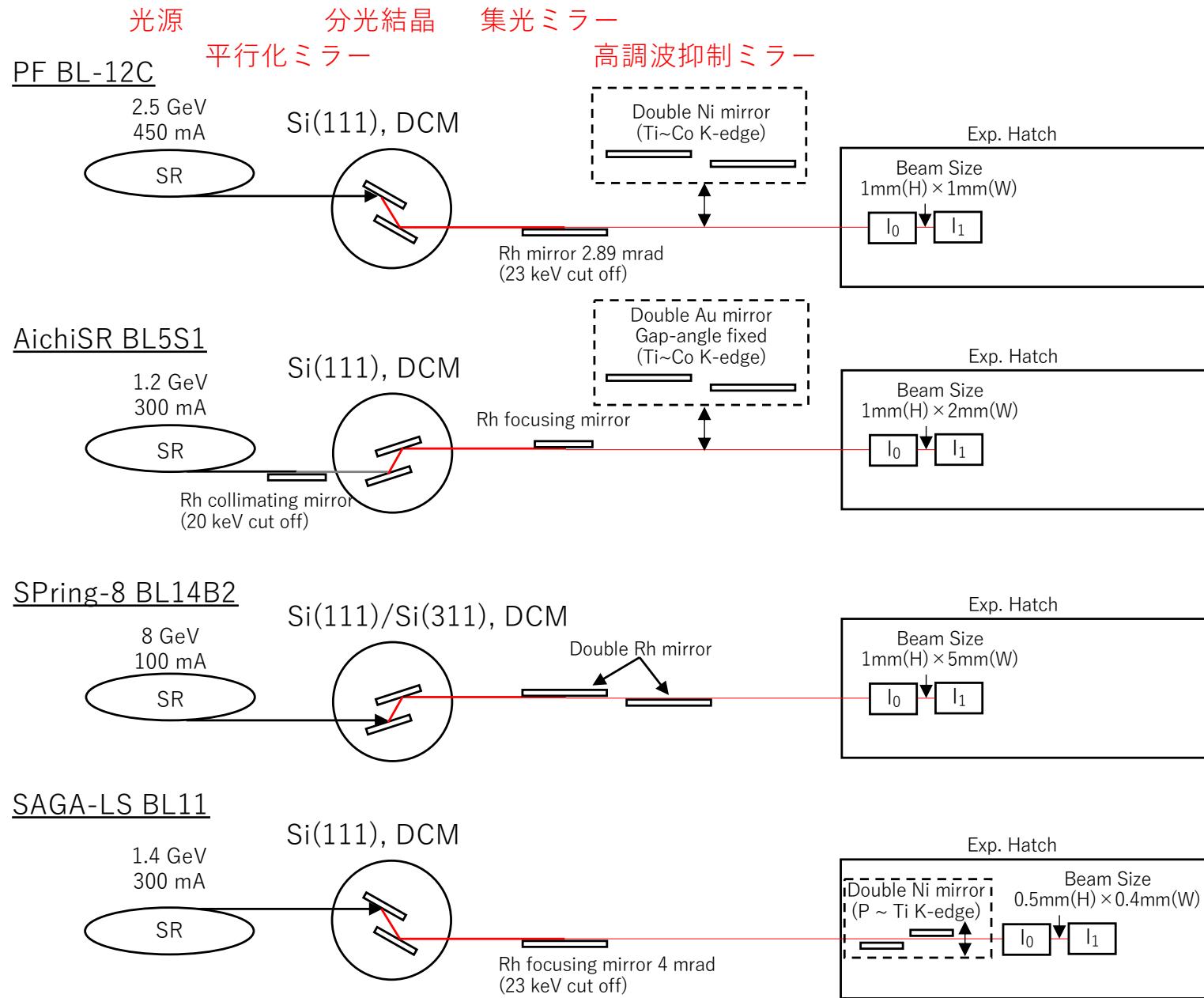
君島堅一¹, 濑戸山寛之², 渡辺剛³, 上原康⁴
阿部仁¹, 岡島敏浩², 木村正雄¹, 廣沢一郎³, 竹田美和⁴, 渡辺義夫⁴

¹KEK-IMSS-PF, ²SAGA-LS, ³JASRI, ⁴AichiSR

XAFSラウンドロビンの進め方

	公開	非公開
測定限界を明確にする		<ul style="list-style-type: none">微量サンプルの測定実試料の測定 ex.標準試料 <p>蛍光XAFS, 微量</p>
守備範囲内だが、 その差(特徴)を 明確にする	<p>Phase 3 2018FY末を目指に 検討を進める</p> 	<p>Phase 2 2017FY～2018FY</p>  <p>透過XAFS, quick</p>
確実に測定できる内容、 お互いの施設を知る ことがメイン		<p>Phase 1 ～2016FY</p>  <p>透過XAFS, foil</p>

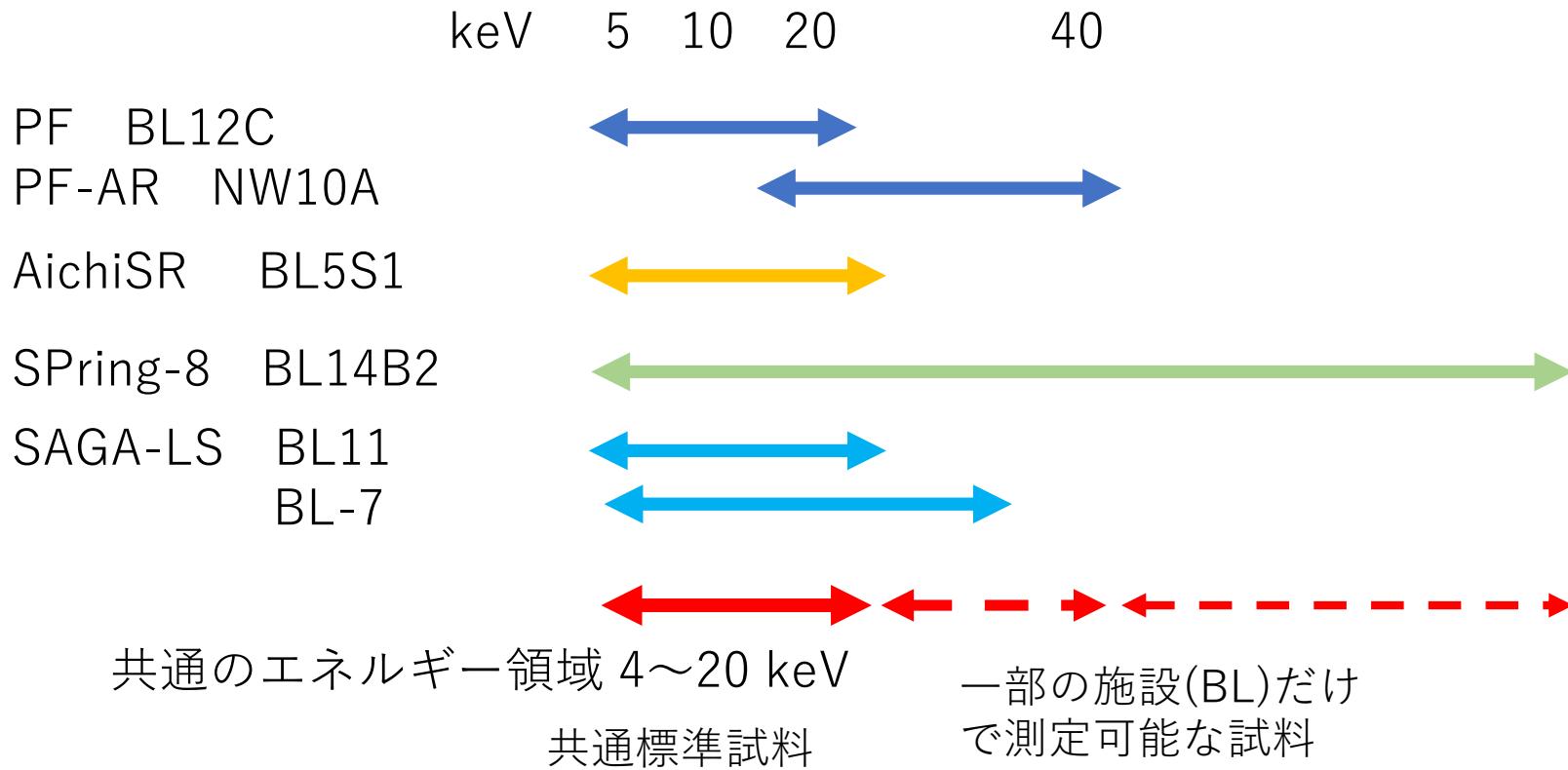
各施設の代表的HX-XAFSのビームラインの構成



※信号計測系は割愛

IC-
I/Vアンプ-
V/Fコンバータ-
パルスカウンタ

phase 1 : 共通標準試料



吸収端	物質
Ti K	Ti foil, TiO ₂
Cu K	Cu, CuO
Pt L3	Pt foil
Pb K	PbO
Zr K	Zr foil, ZrO ₂

ex.
SP8 BL14B2 は、独自に1000種
以上のスペクトルを公開

phase 1：結果(共通的なものの例)

phase 2：施設間の違い～希薄試料～ EXAFS CuO 1～1000ppm

phase 3：実材料

(結果は論文執筆中につき割愛)

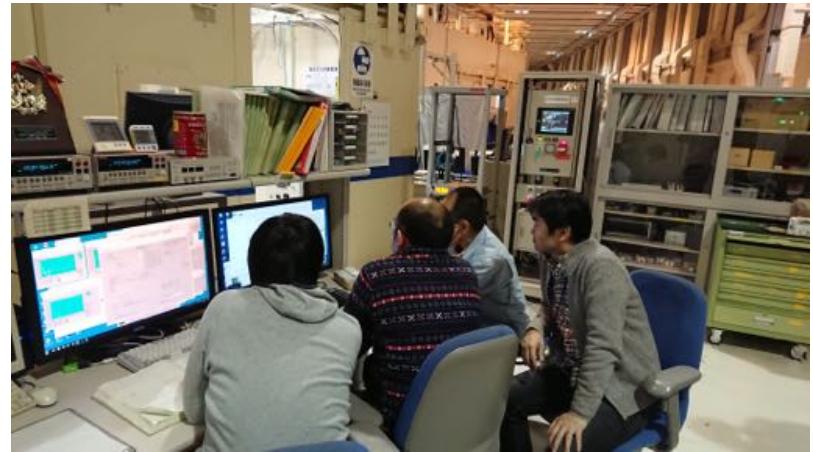
RRの成果&これからの課題

0. 施設スタッフのnetwork

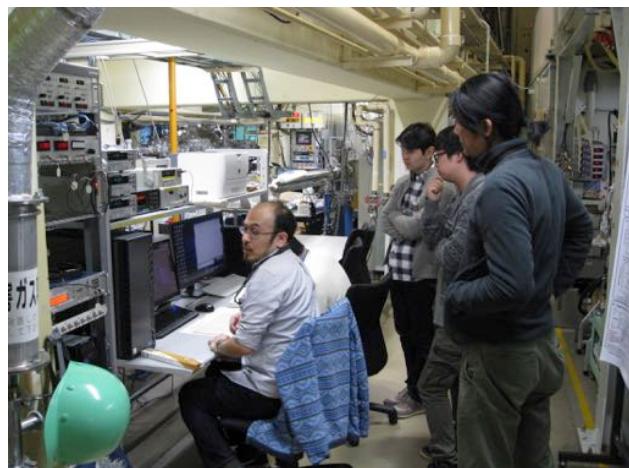
実験風景



Aichi SR BL5S1



SPring-8 BL14B2



KEK IMSS PF BL-12C



SAGA-LS BL11

RRの成果＆これからの課題

0. 施設スタッフのnetwork

1. エネルギー校正方法の標準化

- * 各施設で流儀(標準的ルーチン)が違う
(edge毎での補正の有無, …)

2. 測定系の高度化への feedback

- * 各施設で 測定条件の ‘適正’範囲は違う(≠分解能競争)
(Quickでのスキャン速度, …)

- * 低濃度の測定のS/Nを上げる工夫の共有
(ソーラースリット(vs ROI), …)

3. 標準試料の共有 * 相互チェック、国際RRの動きもあり



q2xafs2017 workshop



JOURNAL OF
SYNCHROTRON
RADIATION

ISSN 1600-5775

The challenge of constructing an international XAFS database

Kiyotaka Asakura,^{a,*} Hitoshi Abe^{b,c} and Masao Kimura^{b,c}

J Synchrotron Radiation 25(4): 967-971.



q2xafs2017 workshop



JOURNAL OF
SYNCHROTRON
RADIATION

ISSN 1600-5775

A call for a round robin study of XAFS stability and platform dependence at synchrotron beamlines on well defined samples

Christopher T. Chantler,^{a,*} Bruce A. Bunker,^b Hitoshi Abe,^c Masao Kimura,^d Matthew Newville^e and Edmund Welter^f

J Synchrotron Radiation 25(4): 935-943.

RRの成果＆これからの課題

0. 施設スタッフのnetwork

1. エネルギー校正方法の標準化

- * 各施設で流儀(標準的ルーチン)が違う
(edge毎での補正の有無, …)

2. 測定系の高度化への feedback

- * 各施設で 測定条件の ‘適正’範囲は違う(≠分解能競争)
(Quickでのスキャン速度, …)
- * 低濃度の測定のS/Nを上げる工夫の共有
(ソーラースリット(vs ROI), …)

3. 標準試料の共有 * 相互チェック、国際RRの動きもあり

4. その他のHX-XASビームラインへの 展開

5. 解析の標準化

- * 解析ソフトのRR? (BG等)

発表の内容

- 背景（問題意識）

なぜ、今 ラウンドロビン(RR)実験？

- ラウンドロビン実験(硬X線吸収分光)の概要

- データベースの整備状況

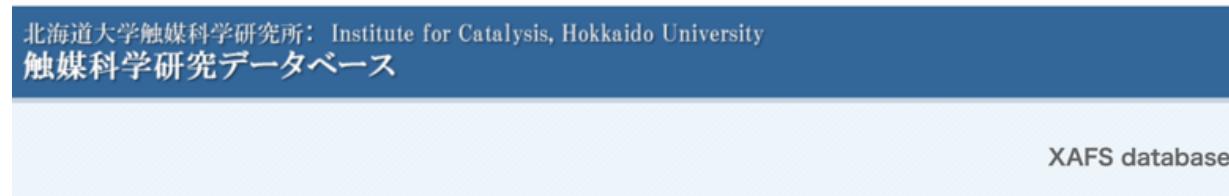
1st ~ 4th Database workshop, in Japan

- まとめ・今後の展開

XAFSのデータベース

北大・触媒研 XAFS database

https://www.cat.hokudai.ac.jp/catdb/index.php?action=xafs_login_form&opnid=2



Spring-8 JASRI <https://support.spring8.or.jp/xafs/standardDB/standardDB.htm>



PF XAFS Database <https://pxafs.kek.jp/xafsdata/list.j>

XAFS database

Registered data list

Registered data number: 84 Reload

登録日時 Registered date	ビームライン Beamline	試料名 Sample name	吸収端 Absorption ed
2018-05-11 15:57:41	BL9C	6um Cu foil	Cu - K edge

IXAS Database <http://ixs.iit.edu/database/>



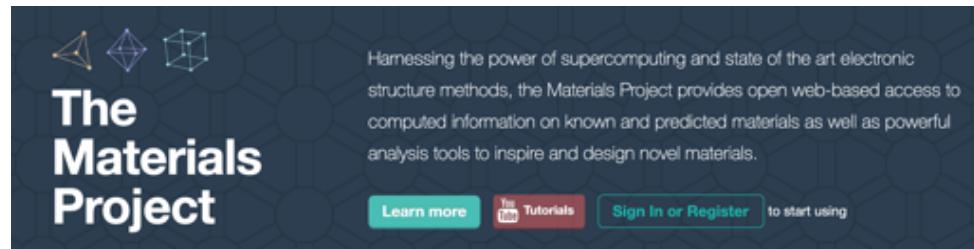
最近のデータベース

統合型→AI, Machine learning

NIMS 物質・材料データベース (MatNavi) <https://mits.nims.go.jp>



The Materials Project <https://materialsproject.org/>



Materials Genome Initiative <https://www.mgi.gov/>



XAFS Database Workshop

第1回2018.9.5@北大(JXAESの後) (北大・朝倉清高先生、KEK・木村ら提案)

> Databaseを取り巻く環境の議論

第2回2019.3.1@秋葉原(光ビームプラットフォームシンポの前)

> Database構築の具体的検討 (どこで、誰が、どの様に)

第3回2019.9.2@京大(JXAESの前)

> 具体的なDatabase format等の議論

第4回2020.1.9@名古屋(JSSRRの前)

> 運用案の検討。

メタデータ案、Benten(JASRI)活用、NIMS 材料DBと連携

→2020.9.10JXAES迄に確定してβ版として始動

XAFS Database Workshop

第1回2018.9.5@北大(JXAESの後) (北大・朝倉清高先生、KEK・木村ら提案)

> Databaseを取り巻く環境の議論

第2回2019.3.1@秋葉原(光ビームプラットフォームシンポの前)

> Database構築の具体的検討 (どこで、誰が、どの様に)

第3回2019.9.2@京大(JXAESの前)

> 具体的なDatabase format等の議論

第4回2020.1.9@名古屋(JSSRRの前)

> 運用案の検討。

メタデータ案、Benten(JASRI)活用、NIMS 材料DBと連携

→2020.9.10JXAES迄に確定してβ版として始動

【ポイント1】 どのような方針でデータを集めるか？

各施設でのデータベースの自動収集(raw data + meta data)は現実的か？

*データの収集法の両極端として、

(a)厳選されたデータを対象にする(黄色)と、(b)自動収集で集める(青色)
の両極端がある。(下表参照)

表 どのような方針でデータを集めるか？

方針	何でも集める	データの質の(一定の)検証と共にデータを集める
メリット/ デメリット	<ul style="list-style-type: none">・(XAFS 分野外の人ができる) big data の提供になる・但し、機関でのデータ扱いボリュームの確認が必要	<ul style="list-style-type: none">・人/Gr名、内標準的データ、meta data (特に sample 素性 : link でも可)) を合わせて deposit (→これを義務/自動化できるのが理想)・共通の DOI を付与する (→incentive と、 data の質の確保)
データ形式	各機関バラバラでも(汎用的であれば)OK	統一

「(a)の方式でないと使って貰えるDBにならない」との意見が強かった。

特に、 dataをdepositしてもらうためのincentiveと、 dataの質の確保のため、
「all Japanとしてデータに共通のDOIを付与する」

XAFS Database Workshop

第1回2018.9.5@北大(JXAESの後) (北大・朝倉清高先生、KEK・木村ら提案)

> Databaseを取り巻く環境の議論

第2回2019.3.1@秋葉原(光ビームプラットフォームシンポの前)

> Database構築の具体的検討 (どこで、誰が、どの様に)

第3回2019.9.2@京大(JXAESの前)

> 具体的なDatabase format等の議論

第4回2020.1.9@名古屋(JSSRRの前)

> 運用案の検討。

メタデータ案、Benten(JASRI)活用、NIMS 材料DBと連携

→2020.9.10JXAES迄に確定してβ版として始動

まとめると・・・

第1回～第4回 XAFS Database workshop

【ポイント1】 どのような方針でデータを集めるか？

- ・厳選されたデータを対象にする（メタデータ）

（各施設での自動収集も、それを意識して） 集める

【ポイント2】 データ公開の方針をどう考えるか？データは誰のモノ？

- ・各施設, BL, 制度,...によって方針が大きく異なるため、可能な部分から開始。

【ポイント3】 DBをどこかに統合する？ 箱をどこに置く？ Incentive?

- ・NIMSデータベース（各施設でもNIMSでもどこでもOK）
- ・「**共通のDOIを付与する**ことと「**そのデータを閲覧・検索するエンジンを整備**」で、統一的な活用, incentive付与を目指す

【ポイント4】 他のDBとの連携？ Materials informatic (Society 5.0)への？

- ・NIMS 材料データベース

XAFS Database Format 必須メタデータ

データ創出でDPF登録に必須とするメタ例 --- mandatory meta info

分類		項目(KEY)	PF例
データ情報	data_info	データID	KEXPF-NW10A_012948 PF内データ識別ID(運用中)
		DPFC_PID	DPFC_PID
		直前のデータID	↑コピー
		関連するデータID	↑コピー
		記入者	名前 or ID KRS登録責任者名(要データ連絡)
		記入者所属	所属名 or ID KRS登録責任者所属(要データ連絡)
		データ記入(登録)日	2018/11/29 測定日
		データ連絡責任者	KEX-BMSS-PF 公開連絡先
		プロジェクトID	20180000 PF課題番号(要データ連絡)
		データの起源	experiments 運用未定義
		データ公開範囲	disclosure_category 運用未定義
		解禁日	embargo_release_date データ公開日(測定日から算定?)

日時、施設名 (BEAM CURRENT, RING ENERGY)、測定者 (代表者)

物質 (計算対象含)	material(specimen)	始状態	specimen_initial_state	サンプル名	手入力
		終状態	specimen_final_state	↑コピー	
		年月日	specimen_processed_purchased_date	年月日	手入力、そもそもいる?
		自由記述	material_description		運用未定義

サンプル名 (CAS番号, 結晶系, ロット番号, サンプル番号, 処理法など)
サンプル形態 (フォイル, 溶液)

装置 プロセス装置 計測装置 計算機	instrument processing measurement calculator	装置名	instrument_name	NW10A	ビームライン名
		装置メーカー	instrument_manufacturer	PhotonFactory	施設名
		装置型番	instrument_type	NW10A	ビームライン名
		管理組織	instrument_registered_organization	KEK	KEK
		管理部署	instrument_registered_department	IMSS	物構研
		機能1(分類)	instrument_function_tier_1	XAFS	測定手法
		機能2(詳細)	instrument_function_tier_2	Transmission	測定手法
		操作者	operator		測定者?課題責任者?
		年月日	measured/calculated_date	2018/11/29	測定日
		自由記述	instrument_description		運用未定義

吸収原子, 吸収端, 測定温度, モノクロメータ, 集光, 高調波除去ミラー有無(臨界エネルギー), デチューン有無, エネルギー校正用データ, 検出器(ガス,)

XAFS Database Format 計測メタデータ

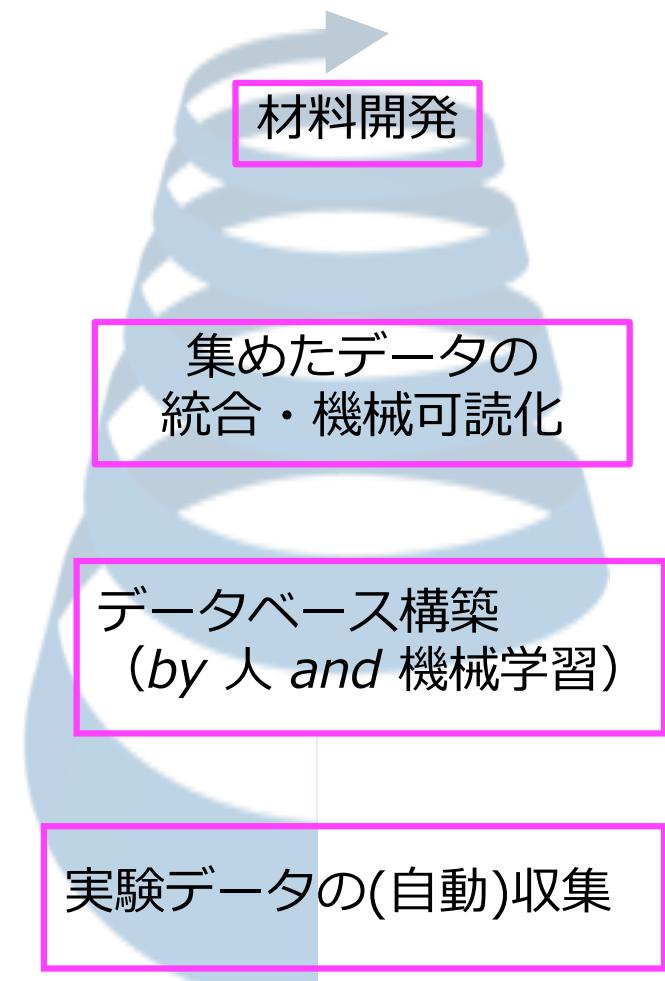
		PF例	
計測法カテゴリー	Method category	XAFS	XAFS固定
計測法サブカテゴリー	Method sub-category	Transmission	測定法
分析分野	Analysis field		
付記事項（自由記述）	Description(free)		
試料	Specimen		
測定環境	Measurement environment	Air	試料雰囲気など
対象準位_遷移_構造	Energy level_transition_structure etc. of interest		
分析年月日	Measured date	yyyy-mm-dd	日付
解析年月日	Analysis date	yyyy-mm-dd	日付
標準手順(特定する番号)	Standardized procedure (specified number)		
装置設置機関	Instrumentation site	KEK-PF	
参考文献(必要なら) (自由記述)	Reference (if needed)(free description)		

装置 プロセス装置 計測装置 計算機	instrument processing measurement calculator	装置名 装置メーカー 装置型番 管理組織 管理部署 機能1(分類) 機能2(詳細) 操作者 年月日 自由記述	instrument_name instrument_manufacturer instrument_type instrument_registered_organization instrument_registered_department instrument_function_tier_1 instrument_function_tier_2 operator measured/calculated_date instrument_description	NW10A PhotonFactory NW10A KEK IMSS XAFS Transmission 2018/11/29 運用未定義	ビームライン名 施設名 ビームライン名 KEK 物構研 測定手法 測定手法 測定者?課題責任者? 測定日 運用未定義
-----------------------------	---	---	---	---	---

吸收原子, 吸收端, 測定温度, モノクロメータ, 集光, 高調波除去ミラー有無(臨界エネルギー), デチューン有無, エネルギー校正用データ, 検出器(ガス,)

NIMS 材料Database との連携 (deposit)

Mii²i "Materials research by Information Integration" Initiative
情報統合型物質・材料開発イニシアティブ



データベース：今後の展開

- ・データベース具体的なシステム構築
- ・データの情報科学処理化への対応

連携

- > (国内外)施設間
- > 学会：日本XAFS研究会 “XAFS Database Workshop”
- > DB活動機関&Prj: NIMS

ポイント

- > 持続可能なシステム (誰が,どのように,…)
- > メタデータ (信頼性)
- > データのcredit
(DOI? 施設でのデータ取扱基準, 分野毎の事情(習慣))

発表の内容

- 背景（問題意識）

なぜ、今 ラウンドロビン(RR)実験？

- ラウンドロビン実験(硬X線吸収分光)の概要

- データベースの整備状況

1st ~ 4th Database workshop, in Japan

- まとめ・今後の展開

まとめ・今後の展開

- 背景（問題意識） なぜ、今 ラウンドロビン(RR)実験？
 1. ユーザー & 施設スタッフ にとっての目安
 2. データベース構築、データの情報科学処理化、への対応
- ラウンドロビン実験(硬X線吸収分光)の概要
 1. 光学系、作法（測定protocol）等の標準化、高度化の目安
 2. 各施設で 測定条件の‘適正’範囲は違う、その理解(PR)が重要(≠分解能競争)
- データベースの整備状況
 1. “XAFS Database Workshop”での案（データ, メタデータformat, DOI, …）
 2. 他の材料DBとの連携が重要 → NIMS databaseとの協力
- まとめ・今後の展開
 1. 広く周知・呼びかけ
 2. まずは始めるのが良い？！ 走りながら修正していく、ぜひご意見を