

結晶 X 線干渉計を用いた Z_{eff} イメージング法の開発

米山明男¹, 竹谷敏², 兵藤一行³, 武田徹⁴

¹ (株) 日立製作所中央研究所, ² 産業技術総合研究所計測フロンティア研究部門,

³ 物質構造科学研究所, ⁴ 北里大学医療衛生学部

Development of Z_{eff} imaging using crystal X-ray interferometer

Akio YONEYAMA¹, Satoshi Takeya², Kazuyuki HYODO³, Tohoru TAKEDA⁴

¹Central Research Laboratory, Hitachi Ltd.,

²Research Institute of Instrumentation Frontier, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology,

³Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization,

⁴School of Allied Health Sciences, Kitasato University

Abstract

結晶 X 線干渉計を用いて検出した振幅の変化と位相シフトから、サンプルの平均的な原子番号（実効原子番号：Effective atomic number (Z_{eff})) を求める Z_{eff} イメージング法を開発した。位相シフトは複素屈折率の実部に、振幅の変化は虚部に依存した量で、その比はサンプルの厚さに無関係で元素固有の値となる。このため、サンプルが単元素で構成されている場合は元素の種類を、複数の元素で構成されている場合は実効原子番号 Z_{eff} を求めることができる。分離型結晶 X 線干渉計を採用したイメージングシステムによりアルミニウム、鉄、ニッケル及び銅を対象とした試用イメージングを行った結果、原子番号に対応した濃淡の Z_{eff} コントラスト像を取得することができた。さらに、ニッケル及び銅の Z_{eff} 値は誤差 5% 以内で各原子番号と一致した。

1. はじめに

結晶 X 線干渉計 [1] はシリコン等単結晶の X 線光学素子で構成された干渉計で、サンプルによって生じた X 線の位相変化（位相シフト）を高感度に検出することができる。位相シフトを与える散乱断面積は、振幅の変化を与える散乱断面積に比べて 1000 倍以上大きいという特徴があり [2], 位相シフトを画像化する位相イメージング法により吸収の小さい軽元素で構成された有機材料や生体軟部組織でも高精細に観察することが可能になる。現在, Photon Factory の BL-14C において観察視野 50×30 mm, 三次元密度分解能 0.5 mg/cm^3 の位相イメージングシステム [3] が稼働しており, これまでに腎臓や心臓など小動物の各器官の高精細な二及び三次元観察 [4], アルツハイマー病モデルマウスの脳内に含まれる β アミロイドの無造影可視化 [5], 表在癌に対する薬剤投与効果の経時的な観察 [6], 及び南極古氷に含まれるエアハイドレートの可視化 [7] 等が行われている。しかし, 本法によって得られる像はサンプルの高精細な密度分布を表す像であり, 「密度」という点では従来の吸収コントラスト像と変わりはなく, 元素組成に関する情報を得ることができなかった。

サンプルによって生じた振幅の変化は屈折率の虚部に、位相シフトは実部に関連した量であり、その比はサンプルの厚さに無関係で各元素に固有の値となる。このため、吸収及び位相コントラスト像を同時に計測し、各画素間で比

を計算することによって、サンプルが単一の元素で構成されていれば元素の種類を、複数の元素で構成されていれば平均的な原子番号（実効原子番号：Effective atomic number (Z_{eff})) を表す分布像 (Z_{eff} コントラスト像) を得ることができる。これまでに本原理に基づいて、タルボ干渉法やマイクロビームを用いた屈折コントラスト法と組み合わせた各種観察が行われ、歯内部の組成の違い [8] や各種有機ポリマーの識別 [9] が可能なことが示されている。

本研究では、より高い感度で位相シフトを検出できる結晶 X 線干渉計を用いた Z_{eff} イメージング法を開発した [10]。以下、本法の原理、イメージングシステムの概要、金属箔及び酸化した鉄を対象とした試用観察の結果について紹介する。

2. 原理

単一元素で構成されたサンプルの X 線に対する複素屈折率 n を

$$n = 1 - \delta + i\beta \quad (1)$$

と表せば、実部 δ と虚部 β はそれぞれ

$$\delta = \frac{r_e}{2\pi} \lambda^2 n_e (Z + f') \quad (2)$$

$$\beta = \frac{r_e}{2\pi} \lambda^2 n_e f'' \quad (3)$$

となる。ここで、 λ はX線の波長、 r_e は古典電子半径、 n_e は単位体積に含まれる原子数、 Z は原子番号、 f' と f'' は原子散乱因子の異常分散項の実部と虚部である。上式から、 δ と β の比 r (δ/β)を計算すると

$$r = -\frac{Z+f'}{f''} \quad (4)$$

となる。ここで、 Z 、 f' 、 f'' はいずれも元素固有の値を持つので、 r も元素固有の値を持つことになる。Fig. 1にX線のエネルギー18, 35, 50 keVにおける各元素の r を計算した結果を示す。この図から吸収端近傍の元素より原子番号の小さい元素では、 r は各元素と1:1に対応していることがわかる。すなわち、測定によって得られた r から近似計算によりサンプルの原子番号 Z を算出することができる。Fig. 1のグラフの形状から推測されるように近似式として指数関数

$$Z=ar^b \quad (5)$$

を採用すると、軽元素から金属まで広い範囲に渡って r から計算した Z 値は理論的な原子番号とよく一致する。ここで、 a と b はX線のエネルギーによって決まる定数で、エネルギー17.8 keVにおいて $a = 88.41$ 、 $b = -0.347$ を用いた場合、 Z -30近傍で理論値との相対的な差を1%以内に納めることができる。

サンプルが複数の元素で構成されている場合、(5)式によって r から算出される原子番号 Z は、

$$Z_{eff} = \sqrt[2.94]{\sum_i f_i Z_i^{2.94}} \quad (6)$$

で定義される実効原子番号 Z_{eff} となる[11]。ここで、 f_i は物質を構成する元素の電子の総和で、 Z_i は原子番号であり、サンプルはX線に対して原子番号が Z_{eff} の単一元素のように振る舞う。なお、当然のことながら単一の元素で構成された物質の Z_{eff} はその元素の原子番号と一致する。

X線がサンプルを透過する際、吸収により強度が I_0 から I に減少したとき、その比はサンプルの線吸収係数 μ とサンプルの厚さ t を用いて

$$\frac{I}{I_0} = \exp(-\mu t) \quad (7)$$

で与えられる。さらに両辺について対数を取り、 $\mu=4\pi\beta/\lambda$ の関係を用いると

$$\ln\left(\frac{I}{I_0}\right) = -\frac{4\pi\beta}{\lambda}t \quad (8)$$

となる。一方、位相シフト p は、複素屈折率の実部 δ を用いて

$$p = \frac{2\pi\delta t}{\lambda} \quad (9)$$

で与えられる。したがって、(8)式と(9)式から δ と β の比 r を求めると、厚さ t がキャンセルされて

$$r = \frac{2p}{\ln(I/I_0)} \quad (10)$$

となり、測定で得られた p と $\ln(I/I_0)$ から(5)式により Z_{eff} をそのまま算出することができる。以上が Z_{eff} イメージング法の原理である。

2. 結晶X線干渉計とイメージングシステム

本研究で使用した分離型結晶X線干渉計の模式図をFig. 2(a)に示す。本干渉計は2枚の薄い結晶歯を搭載した2個の結晶ブロックから構成されており、可視光のマッハツェンダー型干渉計と同様に動作する。即ち、第1結晶ブロックの第1歯(S)に入射したX線は、ラウエケースのX線回折により物体波と参照波に分割され、第1結晶ブロックの第2歯(M1)及び第2結晶ブロックの第1歯(M2)でそれ

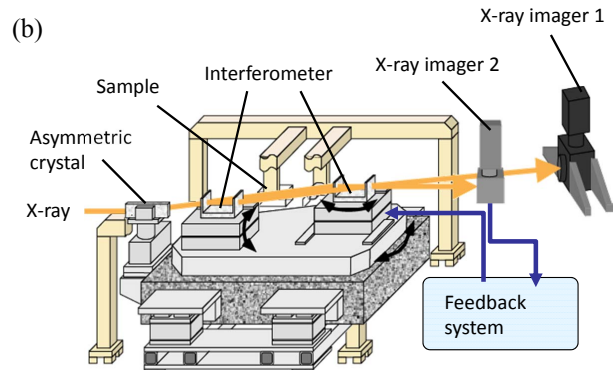
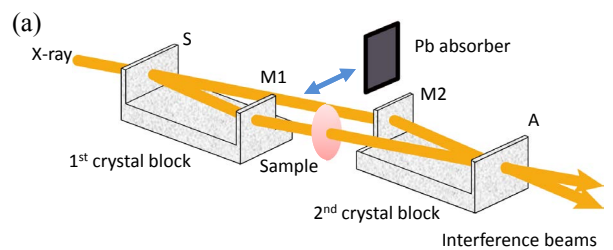


Figure 2 (a) Schematic view of two-crystal X-ray interferometer and (b) Phase-contrast X-ray imaging system using X-ray interferometer.

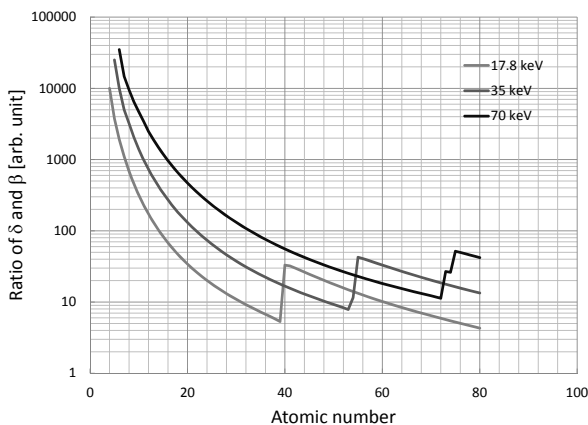


Figure 1 Calculated ratio of real and imaginary part of refractive index for 17.8, 35 and 70 keV X-rays.

ぞれ向きを変え、第2結晶ブロックの第2歯(A)で結合され、2本の干渉ビームを形成する。物体波の光路に設置したサンプルによって生じた位相シフトは、波の重ね合わせにより干渉ビームの強度変化となって現れる。このため、干渉像の強度変化からサンプルによる位相シフトの空間的な分布像(位相マップ)を定量的に測定することができる。また、参照波の光路を鉛板等で遮蔽すると干渉しなくなり、サンプルを透過した物体波(サンプルの透過吸収像)だけが干渉計から出射する。このため、サンプルの位置などを変えることなくカメラ画像上の同じ位置に吸収像を取得できるので、測定した両画像から(10)式により Z_{eff} の空間分布を表す Z_{eff} コントラスト像をそのまま算出することができる。

Fig. 2(b)に、上記X線干渉計を用いたイメージングシステムの構成を示す。本システムは非対称結晶、X線干渉計と同位置決めステージ、サンプルと位相板ステージ、画像フィードバック機構、及びX線画像検出器から主に構成されている。非対称結晶は入射X線を横方向に拡大するためのもので、本研究では非対称度6.5度の結晶を利用し、横方向に約5倍(幅20mm)拡大した。干渉計で形成された2本の干渉ビームのうち一方は測定用の大視野画像検出器(X-ray imager 1)で、他方はフィードバック用の画像検出器(X-ray imager 2)で検出した。大視野画像検出器の視野は横52mm×縦36mm、画素サイズ12.5 μm 、転送レートは1.6fpsである[12]。検出方式としてファイバカップリング方式を採用しており、蛍光体(厚さ30 μm のGOS($\text{Gd}_2\text{O}_3\text{S}$))により変換された可視光をオプティカルファイバーによりCCD画素上に転送して撮像している。画像フィードバック機構は干渉像に現れている縞の位置が変動しないように第1と第2結晶ブロック間の水平面内の角度を高精度で常時調整することで、物体波と参照波の光路差を常に一定に保っている。

現在、本システムはPhoton Factoryの垂直ウィグラーのビームラインBL-14Cに常設され、位相イメージングの高感度特性を生かした高精細かつ大視野のバイオ及びマテリアルイメージングに利用されている。通常のビームラインと異なり、本ビームラインではビームが縦方向に発散しており、大視野のイメージングには本システムのように水平面内に展開したX線光学系が適している。この光学系の大きな利点の一つは、主なステージの回転軸が鉛直方向になるために重力の影響が低減され、高い回転位置決め精度を達成できることである。本システムではこの利点を活用することで、第1と第2結晶ブロック間の水平面内の回転を60pradという極めて高い精度で安定化し[13]、密度分解能サブ mg/cm^3 の三次元測定を実現している。

3. 金属箔及び錆びた鉄箔の観察結果

Fig. 3にエネルギー17.8keVのX線を用いて金属箔を観察した結果を示す。(a)は吸収コントラスト像、(b)は位相コントラスト像、(c)は両像を用いて(10)式から算出した Z_{eff} コントラスト像である。金属の種類及び厚さは上か

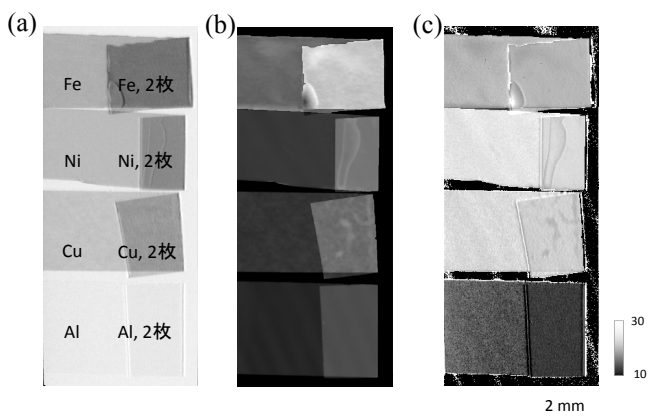


Figure 3 Obtained images of metal foils: (a) absorption image, (b) phase-contrast image, and (c) Z_{eff} image.

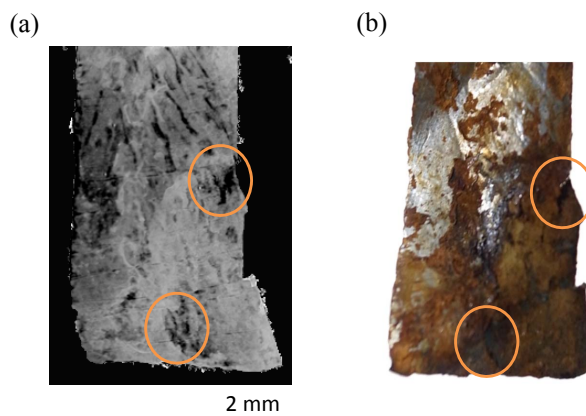


Figure 4 Obtained images of oxidized Fe foil: (a) Z_{eff} image and (b) photo. Orange circles indicate oxidized area.

ら鉄(10 μm)、ニッケル(5 μm)、銅(5 μm)、アルミニウム(15 μm)の順であり、右端は人為的に折り曲げることで厚さを2倍にしてある。厚さと種類が異なるために、当然のことながら従来の(a)や(b)の画像からは金属の種類や厚さを識別することはできない。一方、(c)の画像では各金属箔の濃淡が原子番号に正しく対応し、各箔の元素種が異なっていることがわかる。各箔の平均 Z_{eff} 値は鉄25.4、ニッケル27.9、銅28.8、アルミニウム16.4で、NiとCuに関しては理論値(28と29)との相対的な差は5%以内であり、サンプルが単一の元素で構成されている場合は元素の種類を十分に識別できる分解能を有していることがわかる。また、折り曲げて厚さを2倍にした領域における Z_{eff} 値も大きな違いがなく、原理通りにサンプルの厚さがキャンセルされている。原子番号が小さくなるに従って誤差が大きくなる原因として、原子番号が小さくなると吸収も小さくなり、 β (吸収)の検出精度が低下するためと考えられる。この推測を裏付けるように、アルミニウム(理論値13)の折り曲げた領域における Z_{eff} 値は14.4であり、一重の場合に比べて誤差がより小さくなっている。

Fig. 4には錆びた鉄箔を観察した結果を示す。(a)は Z_{eff} コントラスト像、(b)は同サンプルの光学写真である。錆により鉄箔の形状が複雑になり位相シフトの変化が大

きいため、大きな位相シフトでも観察可能なエネルギー35 keVのX線を用いて測定を行った。光学写真の丸で囲んだ領域において酸化(錆)が大きく進行しており、 Z_{eff} コントラスト像の対応する領域では値が小さく(黒く)なっていることがわかる。これは、酸化により鉄($Z=28$)よりも軽い元素である酸素($Z=8$)が増加したためである。したがって、測定で得られた Z_{eff} 値を指標として、定量的な酸化進行度の可視化が可能であると考えられる。

4. まとめと今後

結晶X線干渉計を用いて測定した吸収と位相コントラスト像から、サンプルの実効原子番号(Z_{eff})の空間分布像を求める Z_{eff} イメージング法を開発した。金属箔を対象とした試用実験の結果、 Z_{eff} コントラスト像の各金属箔は原子番号に正しく対応した濃淡を示し、ニッケル及び銅の平均値は誤差5%以内で理論値(原子番号)と一致した。また、錆びた鉄を観察した結果、錆の進行度を可視化することができた。今後は、サンプルの回転と組み合わせた三次元計測への対応を進めると同時に、各種有機材料や生体試料等への適用を進める予定である。

引用文献

- [1] U. Bonse and M. Hart, Appl. Phys. Lett. **7**, 99(1965).
- [2] A. Momose and J. Fukuda, Med. Phys. **22**, 375 (1995).
- [3] A. Yoneyama, T. Takeda, Y. Tsuchiya, J. Wu, T. T. Lwin, A. Koizumi, K. Hyodo, and Y. Itai, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **523**, 217 (2004).
- [4] A. Yoneyama, T. Takeda, Y. Tsuchiya, J. Wu, T. T. Lwin, and K. Hyodo, AIP Conference Proceedings **705**, 1299(2004).
- [5] K. Noda-Saita, A. Yoneyama, Y. Shitaka, Y. Hirai, K. Terai, J. Wu, T. Takeda, K. Hyodo, N. Osakabe, T. Yamaguchi, and M. Okada, Neuroscience **138**, 1205 (2006).
- [6] A. Yoneyama, N. Amino, M. Mori, M. Kudoh, T. Takeda, K. Hyodo, and Y. Hirai, Jpn. J. Appl. Phys., Part 1 **45**, 1864(2006).
- [7] S. Takeya, K. Honda, A. Yoneyama, Y. Hirai, J. Okuyama, T. Hondoh, K. Hyodo, and T. Takeda, Rev. Sci. Instrum. **77**, 053705 (2006).
- [8] Z. Qi, J. Zambelli, and GH. Chen GH. Phys Med Biol. **55**, 2669 (2010).
- [9] T. Mukaide, M. Watanabe, K. Takada, A. Iida, K. Fukuda, and T. Noma, Appl. Phys. Lett. **98**, 111902 (2011).
- [10] A. Yoneyama, K. Hyodo, and T. Takeda, Appl. Phys. Lett. **103**, 204108(2013).
- [11] F. W. Spiers, Br. J. Radiol **19**, 52(1946).
- [12] A. Yoneyama, T. Takeda, J. Wu, T.-T. Lwin, K. Hyodo, and Y. Hirai, Jpn. J. Appl. Phys. **46**, 1205(2007).
- [13] A. Yoneyama, A. Nambu, K. Ueda, S. Yamada, S. Takeya, K. Hyodo, and T. Takeda, J. Phys.:Conference Series **425**, 192007 (2013).

(原稿受付日: 2014年3月25日)

著者紹介

米山明男 Akio YONEYAMA

(株)日立製作所中央研究所 主任研究員

〒350-0395 埼玉県比企郡鳩山町赤沼2520

TEL: 049-296-6111

e-mail: akio.yoneyama.bu@hitachi.com

最近の研究: X線イメージングとその応用。

趣味: 日本100名山に挑戦中。

竹谷敏 Satoshi TAKEYA

産業技術総合研究所 主任研究員

〒305-8565 茨城県つくば市東1-1-1 中央第五

TEL: 029-861-4506

e-mail: s.takeya@aist.go.jp

最近の研究: 低温 ~ 高温条件での X線イメージング測定法の開発。

趣味: 和太鼓に挑戦中。

兵藤一行 Kazuyuki HYODO

高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所 准教授

〒305-8565 茨城県つくば市大穂1-1

TEL: 029-864-5200

e-mail: kazuyuki.hyodo@kek.jp

武田徹 Tohoru TAKEDA

北里大学医療衛生学部 教授

〒252-0373 神奈川県相模原市南区北里1-15-1

TEL: 042-778-8312

e-mail: t.takeda@kitasato-u.ac.jp