

KEK Proceedings 2002-22

January 2003

A/M



PF 将来計画に関する研究会 2

# 「X線位相利用計測における最近の展開」

2002年10月31日、11月1日

高エネルギー加速器研究機構

編集：百生 敦、平野 馨一



High Energy Accelerator Research Organization

**High Energy Accelerator Research Organization (KEK)**

KEK Reports are available from:

Information Resources Division  
High Energy Accelerator Research Organization (KEK)  
1-1 Oho, Tsukuba-shi  
Ibaraki-ken, 305-0801  
JAPAN

Phone: +81-29-864-5137  
Fax: +81-29-864-4604  
E-mail: [irdpub@mail.kek.jp](mailto:irdpub@mail.kek.jp)  
Internet: <http://www.kek.jp>

# 目次

1. 研究会の趣旨	1
2. プログラム	2
3. 研究会の概要	4
4. 講演内容	7
「軟X線の1次および2次コヒーレンス測定で何が見えるか」 宮原 恒晃 (都立大・理)	8
「X線強度干渉法」 矢橋 牧名 (JASRI/SPring-8)	12
「強度相関を用いた干渉計測」 玉作 賢治 (理研・播磨)	15
「X線干渉計のメトロロジーへの応用」 中山 貫 (産総研・計測標準)	18
「多層膜冷中性子干渉計の新展開」 北口 雅暁 (京大・理)	22
「冷中性子スピン干渉計とその物理」 日野 正裕 (京大・原子炉)	26
「高空間分解能型X線干渉計の開発およびそれによる生体試料のマイクロ位相トモグラフィ」 小山 一郎 (東大・工)	30
「分離型X線干渉計を用いた大視野位相コントラストX線撮像装置の開発」 米山 明男 (日立・基礎研)	34
「X線干渉計を用いた生体イメージングの試み」 武田 徹 (筑波大・臨床医学)	37
「X線干渉を利用した原子像の再構成」 高橋 敏男 (東大・物性研)	41
「蛍光X線ホログラフィーの電子材料への応用」 林 好一 (東北大・金研)	44
「光学的硬X線ホログラフィー顕微鏡の開発」 渡辺 紀生 (筑波大・物理工学)	48
「オーバーサンプリング法を用いた単粒子X線回折」 西野 吉則 (理研・播磨)	51
「ゼルニケ型硬X線位相差顕微鏡による透明試料の観察」 竈島 靖 (姫工大・理)	55
「走査顕微鏡光学系を利用した位相計測」 高野 秀和 (JASRI/SPring-8)	59
「Deterministic retrieval of surface waviness using X-ray phase-contrast imaging technique」 Alexei Souvorov (JASRI/SPring-8)	63

「整形外科・救急外科領域における屈折コントラスト画像法の適用」	
森 浩一（茨城県立医療大）	67
「X線プリズムを用いた二光束干渉計」	
鈴木 芳生（JASRI/SPring-8）	71
「X線プリズムを用いたシェアリング干渉計による位相決定」	
香村 芳樹（理研・播磨）	73
「X線暗視野法の開発の現状」	
杉山 弘（KEK/PF）	77
「X線偏光イメージングの現状と偏光干渉イメージングへの展望」	
沖津 康平（東大・工）	80
「次世代放射光光源と利用研究」	
平野 馨一（KEK/PF）	86
5. 総合討論「今後の展望とPF将来計画」サマリ	91
6. 参加者リスト	92



## 1. 研究会趣旨

X線の波動性は結晶によるブラッグ回折で古くから利用されていますが、マクロなスケールで波動性が見られることはあまりありませんでした。最近になって、シンクロトロン放射光源の高輝度・低エミッタンス化、X線光学素子および検出器の発展により、マクロなスケールにおいてX線の波動性が見えるようになってきております。これにより、1990年代半ばからX線位相利用計測の研究が活発化している状況があります。X線の位相には重要な情報が含まれているはずであり、多くの場面でこれまで捨てられてきた位相情報をうまく抽出しようとするこのような研究は、21世紀のX線利用分野に大きな影響を与えるであろうと期待されます。実際、X線位相光学や位相コントラストイメージングの分野において、多くの研究成果が報告されるようになっております。

本研究会はこの分野の研究を推進している方々に集っていただき、最新の研究成果を前に議論・交流を深め、PFのみならず国内外における当該研究の更なる活性化に貢献することを目的とします。これまでにこのような切り口での研究会が行われたことがなく、皆様のご協力により実り多い研究会にしたいと考えておりますので、是非とも多くの方々のご参加をお願いいたします。

尚、本研究会は「PF 将来計画に関する研究会 2」と位置づけられ、将来の光源計画に関する議論もおおいに交わされることが期待されます。

提案責任者 百生 敦 (東京大学大学院工学系研究科)  
世話人 平野馨一 (KEK・PF)

## 2. プログラム

### 10月31日(木)

- 08:30 受付開始
- 09:00 - 09:10 開会の挨拶 (百生敦、東大・工)  
座長 百生敦
- 09:10 - 09:40 「軟X線の1次および2次コヒーレンス測定で何が見えるか」  
宮原恒あき (都立大・理)
- 09:40 - 10:10 「X線強度干渉法」 矢橋牧名 (JASRI/SPRing-8)
- 10:10 - 10:40 「強度相関を用いた干渉計測」 玉作賢治 (理研・播磨)
- 10:40 - 10:55 (休憩)  
座長 高橋敏男
- 10:55 - 11:25 「X線干渉計のメトロロジーへの応用」 中山貫 (産総研・計測標準)
- 11:25 - 11:55 「多層膜冷中性子干渉計の新展開」 北口雅暁 (京大・理)
- 11:55 - 12:25 「冷中性子スピン干渉計とその物理」 日野正裕 (京大・原子炉)
- 12:25 - 13:45 (昼食)  
座長 平野馨一
- 13:45 - 14:15 「高空間分解能型X線干渉計の開発およびそれによる生体試料のマイクロ位相トモグラフィ」 小山一郎 (東大・工)
- 14:15 - 14:45 「分離型X線干渉計を用いた大視野位相コントラストX線撮像装置の開発」  
米山明男 (日立・基礎研)
- 14:45 - 15:15 「X線干渉計を用いた生体イメージングの試み」  
武田徹 (筑波大・臨床医学)
- 15:15 - 15:30 (休憩)  
座長 籠島靖
- 15:30 - 16:00 「X線干渉を利用した原子像の再構成」 高橋敏男 (東大・物性研)
- 16:00 - 16:30 「蛍光X線ホログラフィーの電子材料への応用」 林好一 (東北大・金研)
- 16:30 - 17:00 「光学的硬X線ホログラフィー顕微鏡の開発」  
渡辺紀生 (筑波大・物理工学)
- 17:00 - 17:30 「オーバーサンプリング法を用いた単粒子X線回折」  
西野吉則 (理研・播磨)
- 17:45 - 20:00 (懇親会)

## 11月1日(金)

座長 鈴木芳生

- 09:00 - 09:30 「ゼルニケ型硬X線位相差顕微鏡による透明試料の観察」  
筈島靖 (姫工大・理)
- 09:30 - 10:00 「走査顕微鏡光学系を利用した位相計測」 高野秀和 (JASRI/SPring-8)
- 10:00 - 10:30 「Deterministic retrieval of surface waviness using X-ray phase-contrast imaging technique」 Alexei Souvorov (JASRI/SPring-8)
- 10:30 - 10:45 (休憩)

座長 平野馨一

- 10:45 - 11:15 「整形外科・救急外科領域における屈折コントラスト画像法の適用」  
森浩一 (茨城県立医療大)
- 11:15 - 11:45 「X線プリズムを用いたニ光束干渉計」 鈴木芳生 (JASRI/SPring-8)
- 11:45 - 12:15 「X線プリズムを用いたシェアリング干渉計による位相決定」  
香村芳樹 (理研・播磨)
- 12:15 - 13:30 (昼食)

座長 百生敦

- 13:30 - 14:00 「X線暗視野法の開発の現状」 杉山弘 (KEK/PF)
- 14:00 - 14:30 「X線偏光イメージングの現状と偏光干渉イメージングへの展望」  
沖津康平 (東大・工)
- 14:30 - 15:00 「次世代放射光光源と利用研究」 平野馨一 (KEK/PF)
- 15:00 - 総合討論「今後の展望とPF将来計画」  
閉会

### 3. 研究会の概要

本研究会は、去る2002年10月31日（木）および11月1日（金）の両日、KEK 4号館セミナーホールにて行われました。22名の講演者を含めた55名の参加者があり、熱心な議論と和やかな雰囲気のもと無事終了いたしました。「位相利用計測」をテーマとした研究会は、PF研究会に限らずこれまであまり企画されたことがなく、広い分野からのご講演をまとめて聴けたことは、参加された方々にとって、当該分野の最新動向に触れる場、また情報交換の場として、有意義であったことと思います。

本研究会は、PF懇談会のユーザーグループのひとつである「位相コントラスト」ユーザーグループ（代表、百生敦@東大）が中心になって企画しましたが、ちょうどPFにおける将来新光源計画の議論が活発になっていた関係で、「PFの将来計画に関する研究会2」と副題が付くことになりました。位相あるいはコヒーレンスは将来の光源を考える上で重要なキーワードであり、本研究会の成果が今後の計画推進に少しでも役立てば幸いです。

さて、研究会1日目は、X線干渉計を使った超精密計測や、位相イメージングおよび位相トモグラフィといった、1次のコヒーレンスを利用した研究が紹介されました。また、類似点が多い中性子干渉計についても、今回2件の講演をお願いすることができ、興味深く拝聴できました。また、X線の二次コヒーレンスに関わる強度干渉計の研究でも大変すばらしいデータが出てきており、光源の発展に伴う今後の展開が期待されます。

X線ホログラフィは1970年代の青木、菊田両先生による軟X線を使った先駆的実験以来研究が続けられておりますが、光源とゾンプレートの発展により、硬X線を使った実験が可能となっていることは注目に値します。一方、1990年代に興った蛍光X線ホログラフィでも、明瞭な三次元原子像（配列）が見えるようになっていきます。次世代光源開発に負う部分も多いでしょうが、その適用が今後様々な系に広がることが期待されます。

1日目の最後は、ナノスケールの可視化技術として最近関心が寄せられている、オーバーサンプリング法を用いた単粒子X線回折の話題に、注目が集まりました。二次元では10nm弱、三次元化も出来ておりその場合は数十nmの空間分解能での観察がデモンストレーションされています。次世代光源を使った目玉的な研究課題として関心が高まってきているところです。一方、宮原氏より、ある問題点が提起され、その場に一瞬緊張感が立ち込めるといった場面がありました。すなわち、一般的に強力なX線を照射するときには試料へのダメージが問題になりますが、超強力なX線であれば壊れる前にデータがとれてしまうので良いという考え方があります。上記の手法もそれが頼りです。しかし、宮原氏によれば分子構造の骨格はまだ壊れていなくても電子は吹き飛んでしまっているのではないかというのです。X線は電子を見ているのですから、これが本当なら問題です。新光源の利用計画にも影響大と言わざるを得ません。この点は本研究会最後の討論の時間でもかなり議論になりました。本当のところはまだ誰もわからず、今後の重要な検討課題となります。

2日目もX線の位相を利用した主にイメージング手法に関する講演が続きました。X線顕微鏡研究の分野においては、10年程前に軟X線領域のZernike型位相差顕微鏡がSchmahl

等により開発されましたが、その流れが硬 X 線領域へと波及していることが窺えました。ちょうど、今年の 8 月にフランス、グルノーブルで国際 X 線顕微鏡学会が開催されましたが、ここでもアクティビティが軟 X 線領域から硬 X 線領域へシフトしている傾向が話題になっていました。ゾーンプレートなどの光学素子の高度化が主因でしょうが、硬 X 線領域で有利となる位相利用技術の研究もその一因と思われます。走査型顕微鏡光学系を使った波面変形の可視化や、プリズムを使った干渉計の実験などの新しい試みも示され、今後の進展が期待されます。

コヒーレントな X 線源が開発されると、コヒーレンシーを害せずに X 線を試料まで導く技術もまた重要になります。すなわち、ミラーやモノクロメータ結晶、あるいは真空隔壁窓などにより高い品質が求められます。本研究会ではミラーのスロープエラーと表面ラフネスの評価を X 線の波面計測を通じて行う方法が紹介されました。

X 線の画像といえば、レントゲン写真などの医用画像が一般的に思い浮かべられるところでしょう。各放射光施設でも医学利用が研究されていますが、位相を利用してコントラストを生成する技術はこの分野でも期待されていると言えます。1 日目にあった X 線干渉計を用いた位相イメージングもこれがターゲットのひとつとなっておりますし、2 日目の屈折コントラスト法や暗視野法も同様です。ただし、これに必要な光源は他の用途で求められるものと両立させにくい面もあり、別の機会にあらためて議論されるべきであると個人的には感じています。

これまでの発表では、X 線の偏光を利用したものはありませんでしたが、最後の偏光イメージングは偏光状態の違いによる位相シフトの違いを検出する、X 線位相利用技術の別の側面に注目したものです。他の手法との融合も考えられますし、発展を期待したい分野です。

疲れも忘れるほど興味深いご講演が続き、有意義な 2 日間であったと思われまます。平野氏による ERL の解説と物構研の計画内容の紹介に続いた最後の討論の時間でも、タイトなスケジュールにもかかわらず、多くの方が残ってくださいました。主催側として、あらためて感謝申し上げる次第です。冒頭でも述べたように、普段の学会の場でも、本研究会のような切り口で研究者が一同に会するチャンスは多くはないと思われまますので、このような機会をいずれまた企画できればと考えております。関係諸氏には今後ともご協力のほど、よろしくお願い申し上げます。

最後になりますが、本研究会のサポートや会場の準備などにご協力くださった、PF 秘書室の皆様、東大・百生研究室の学生諸君に、この場を借りて深く感謝申し上げます。

東京大学大学院工学系研究科  
百生 敦



写真1 研究会の様子



写真2 懇親会の風景



## 4. 講演内容

1) 1次「コヒーレンス」の多義性を理解しておくこと

1次のコヒーレンスは空間部分(4次元)と時間部分(2次元)にわけて考えることが多いが、両方ひとまとめ(6次元)にして「モード」という考え方を導入すると、単一モードの時に1次コヒーレンスは最良となる。輝度の単位( $\text{photons/sec/mm}^2/\text{mrad}^2/0.1\%b.w.$ )やボーズ縮重度はこのような6次元空間を前提に考えているのである。

ここで時間部分に注目すると、 $(\omega - t)$ 空間では少なくとも1つの自由度があるから非常に短いパルスでは単色性が悪くなる。ところが単色性が悪ければヤングの干渉縞のコントラストが低下する。しかしフーリエ限界で単色性が悪い場合は広義の意味では1次コヒーレンスは低下していないのである。したがって、ヤングの干渉縞のコントラストの善し悪しを1次コヒーレンスの善し悪しと結びつけるのは厳密には正しくない。このことを理解しておかないとERLのような単パルスの利用法について誤解が生ずる恐れがある。

2) 2次コヒーレンスについて

2次以上のコヒーレンスは強度揺らぎに関係する。その最低次は2光子の相関または2つのビームの強度相関として観測される。空間コヒーレンスを保ったままビームを分割すると、それらのビームはもともと同一のモードの電磁場に所属していたことになる。この同一モードの電磁場の強度が揺らいでいると、2つに分割した後も一方の強度が増大すればもう一方の強度も増大するという相関が現れる。このような相関が最大になっているのがカオス光で、「 $\pm 100\%$ 揺らいでいる」と表現することがある。カオス光では、2つの分割の仕方が空間的にインコヒーレントになると相関は減少し半分になる。このことから、カオス光の場合2光子相関(または強度相関)から1次コヒーレンスについての情報も得られることになる。

ところがレーザーのような光は2つに分割してそれぞれの強度揺らぎを測定すると、それぞれが光子のポアソン統計に由来する揺らぎを示すのみである。ここで、ポアソン統計の間の偶然の相関を考えると、2光子の相関確率はカオス光のその半分となる。このような光を理想化して「全コヒーレント」という概念が生まれた。この概念は当初古典的に定義されたが、量子論的定義はGlauberによってなされた。

放射光を利用する立場からみると、時間揺らぎの大きさや周波数成分を知っておくことは極めて重要である。したがって1次コヒーレンスだけでなく、強度相関または2光子相関法により2次コヒーレンスを測定することも重要である。

3) 「全コヒーレント」の意味について

Glauberが「コヒーレント状態」を量子光学的に定義して以来、全コヒーレントという用語は当たり前のように使われている。だが、世の中に無限に単色性の良い(無限に長い)光は存在しない。そこで有限な波束長を考え、このような波束のアンサンブルの強度揺ら

ぎを、コヒーレント長を時間に換算した値  $T$  (コヒーレント時間) の逆数程度の周波数バンド幅で観測すると、このような光の集団はゆっくりと揺らいでおりカオス的に見えるはずである。すなわち「コヒーレント光」がカオス的に見える実験条件が実現される。

その逆の場合もある。カオス光の強度は±100%揺らぐとされる。ここで揺らぎの周波数成分のピーク値が波束のコヒーレント時間  $T$  の逆数程度であることに注意する必要がある。したがって、 $T$  よりも十分に遅い時間分解能の検出器でこの光を観測すると、揺らぎは低減してコヒーレント光のように見える。

もちろん、だからといってこの光源がカオス光でなくなったとは言わない。なぜなら、通常、光子統計に関連した定義は観測とは独立になされるからである。Hanbury-Brown & Twiss (HBT) の2光子相関実験では、速い揺らぎを圧倒的に遅い検出器の時間分解能で検出する巧妙な方法を考え出した。

しかしながら、検出時間を変えたりバンド幅を変えたりすると、見かけ上光子統計が異なって見えることに注意することはERLの場合特に重要である。たとえば、100 fsecのパルスを0.1 mVの分解能で単色化するとコヒーレント長は100 fsecよりずっと長くなる。このような光は100 fsecより速い時間スケールの揺らぎは極めて小さくなるから見かけ上コヒーレント光に見えてしまう。

このように、測定とは独立な概念としての「カオス光」や「コヒーレント光」という概念(これは光の発生過程を反映する)と、観測に依存した統計性の区別と関連を十分に理解しておくことは重要である。

#### 4) 軟X線領域での1次コヒーレンスの測定

まずアンジュレータ光を単色化して、ヤングの干渉縞のコントラストが空間コヒーレンスで決まる条件で実験をおこなった。間隔の異なるダブルスリットを数種類用意し、それによる回折パターンをスリットを装着した光電子増倍管を1次元的にスキャンすることにより測定した。ダブルスリットの間隔が小さいほど、また波長が長いほどコントラストは良くなった。

ダブルスリットの直上流に、ビームサイズモニタを設置してビームサイズを測定した。これとコントラストの変化から蓄積ビームの水平方向のエミッタンスを評価することができた。この結果は、設計値と極めて良い一致(約40 nm·rad)を示した。同様の測定を測定装置を90度回転させて行って垂直方向のエミッタンスを評価したところ約3 nm·radであり別の測定法による値より数倍大きかった。これはビーム断面が傾いていることを示唆する。この測定方法から明らかなように、ここで得られたエミッタンスの値は長時間平均したエミッタンスである。

一方、BL28では入射光を単色化することなくヤングの干渉縞を測定した。その結果アンジュレータの周期数できまる準単色性とエミッタンスを反映した、コントラストの低下した干渉パターンが得られた。

#### 5) 強度相関による2次コヒーレンスの評価

光子を波束と考えれば強度相関は光子のコヒーレント時間程度以内で起きるはずである。それより十分時間的に離れていれば相関は生じなくなる。しかしながら、軟X線領域では硬X線のシリコンに相当するような完全性の高い分光素子（回折格子はスロープ誤差がありこれが分解能の上限を決める）が存在しないので、一般にコヒーレント時間は短く数10 fsecのオーダーである。このような高速の検出器、掛け算器は存在しないから、測定はコヒーレント時間よりはるかに長い時間で行われ、したがって、真の相関でない偽の相関が大量に含まれてしまう。なお悪いことに、光源はバンチ構造をなしているために、バンチ長に相当する時間で観測すると、一方のビームの強度が増大すれば他方の強度も増大するという偽の相関がさらに増大する。

この困難を解決するために、我々は測定装置の中に回折格子分光器を組み込み「コヒーレント長変調法」という方法を考案した。この方法の要点は、ピエゾ素子を用いて入射スリット幅を周波数  $f$  で変調し、強度相関の  $3f$  成分をロックイン・アンプで検出することである。真の2光子相関の確率はコヒーレント長に比例するから周波数  $f$  で変調される。このとき2つのビームの強度もそれぞれ  $f$  で変調される。したがって最終的に  $3f$  成分を検出すれば真の強度相関を検出できるわけである。我々はロックイン・アンプで振幅だけでなく位相も検出した。これは測定精度を上げるには必須である。

このとき注意すべきはスリット幅変調による強度変調に高調波を多く含んではならない事である。実際には強度をモニターしながらロックイン・アンプで高調波を検出し、関数発生器の波形を調整して高調波発生を1%以下に抑えた（実際には容易に0.1%以下にできる）。この程度の高調波であれば測定に与える影響が小さいことをあらかじめシミュレーションで確認した。

以上の方法で強度相関を測定しそれから1次コヒーレント成分をも見積もることができた。この結果から水平方向のエミッタンスを見積もると、リングの運転条件によってはヤングの干渉縞で見積もった値の半分程度の場合も観測された。しかしこの値は、光子のコヒーレント時間程度で見たエミッタンスであって、長時間平均エミッタンスとは異なる。このことから推測されるのは、蓄積ビーム（光子のコヒーレント時間程度の）瞬間的なエミッタンスが何らかの理由により大きく観測されるということである。可能性としては、バンチ毎に水平方向の重心がずれる不安定性があつたり、また同一バンチ内部でも先頭部分と後ろの部分で水平方向の重心がずれるような不安定性がある場合などが考えられる。

また、別の運転条件では、設計値とほぼ等しいエミッタンスも観測されている。このことから、2光子相関で見積もられるエミッタンスはリング内の蓄積ビームの不安定性の解析にも用いることが可能であると期待される。

#### 6) 光子計数法による2光子相関

前項の方法の弱点は、コヒーレント光に対する強度相関の寄与が差し引かれてしまう点である。したがって、規格化を正確に行わないと、カオス光とコヒーレント光の比率を正しく求めるのが難しい。

これに対して2光子相関法では、偽の相関も含む相関データから明らかに偽の相関のみを含むデータを差し引く方法を採用する。したがって、そのなかにはコヒーレント光が示す真の相関も含まれることになり、カオス光とコヒーレント光の比率が（十分なS/N非があれば）比較的容易に求まることになる。ここで明らかに偽の相関のみを含む（真の相関を含まない）データとは、同一のバンチについてある時刻と1周遅れた時刻との間で相関をとることである。同一のバンチを観測しているにも関わらず、時刻が1周分も離れていれば真の相関はないからこの方法は有力である。

我々はBL16において、OE変換、EO変換、および光ケーブルを利用してリング1周に相当する624nsecの遅延回路を用意した。そして2つの入力のうち一方の信号を、固体スイッチを用いて遅延状態と遅延のない状態とのあいだで0.7Hz程度でスイッチした。これは、一方の信号のみの遅延時間を変調したのと同様である。光子相関は、標準的なCFDとTACを用いて分解能300psec程度（となりのバンチと区別できれば十分である）で同期をとりシングル・チャンネル・アナライザを経てレートメータに入力しその出力をデジタル・ロックイン・アンプで検出した。

ロックイン・アンプの出力は入力と同位相のサイン成分と位相のずれたコサイン成分があるが、サイン成分をフラウンホーファー・スリットの幅にたいしてプロットしたところ、（軟X線領域では）従来よりはるかにSNのよいデータが得られた。得られたデータは光源のカオス的性質を反映しているが、これから蓄積ビームの水平エミッタンスを見積もったところ、39nmradという、設計値とほぼ等しい値が得られ、あまりの一致の良さに驚いた次第である。逆に言えば、測定したときの運転条件では瞬間エミッタンスもこの程度であり、この運転条件では、長時間平均エミッタンスを増大させるような不安定性はなかったことになる。

以上の経験から、遅延時間変調法は極めて有力な方法であることが結論できた。また、光ケーブルの損失は極めて小さいことから、数 $\mu$ secの遅延も問題がない。したがってこの方法は、大きなリングからの硬X線の測定にも利用できるはずである。

## X 線強度干渉法

(財)高輝度光科学研究センター ビームライン・技術部門

矢橋 牧名

現在、最先端の X 線光源として、低エミッタンスの蓄積リングとアンジュレータを組み合わせた第 3 世代放射光源が用いられている。さらに、超高輝度、完全な空間コヒーレンス、極短パルスといった特徴をもつ第 4 世代放射光源が、精力的に開発されている。これらの光源から放出される X 線の特性を正しく評価することは、利用研究、加速器科学の両面から非常に重要である。本研究では、Hanbury-Brown と Twiss によって開発され [1]、近年 X 線領域に拡張された強度干渉法 [2] が、高輝度 X 線光源の特性診断に極めて有効であることを実験的に検証した。

強度干渉を高い精度で測定するためには、光源の輝度が高いことと、高分解能の分光器を用いることが重要である。強度干渉法の R&D のために、X 線領域では現在最も輝度が高い SPring-8 の 27 m アンジュレータを光源に選んだ。また、非常に分解能の高い X 線分光器を新たに設計し、製作した。E=14.4 keV において、Si 11 5 3 の非対称反射を 4 回用いることで、 $\Delta E=120 \mu\text{eV}$  という X 線結晶分光器として世界最小のバンド幅を達成した [3]。それぞれの結晶を平板結晶として設計することで、高品位の表面処理を可能としている。また、結晶配置は、垂直方向の空間コヒーレンスを保存するため、水平方向の散乱面を採用している。

これらの装置を用いて強度干渉実験を行った。分光器の下流に精密スリットを置き、さらにその下流に半透過型の Avalanche Photo Diode (APD) を 2 つ直列に配置した。まず、精密スリットの垂直方向サイズの関数として APD 間のコインシデンスレートを測定した。スリットサイズを小さくしたとき、空間モード数の減少によりコインシデンスの確率が増加することを確認した。このプロファイルに対して、ガウス型の空間コヒーレンス分布を仮定したフィッティングが行われ、垂直方向のコヒーレンス長は  $66.3 \pm 2.0 \mu\text{m}$  (光源からの距離  $L = 66.7 \text{ m}$ , Fig. 1) 及び  $77.5 \pm 2.0 \mu\text{m}$  ( $L = 78.2 \text{ m}$ ) と求められた。これらは van-Cittert と Zernike の定理によく合致し、垂直方向のアンジュレータ光源サイズは  $13.8 \pm 0.4 \mu\text{m}$  と求められた。この結果は、偏向部の放射に対して可視の振幅干渉計で測定した結果と比較され、わずかにそれより小さいことが確認された。この理由として、強度干渉法は瞬時のサイズ、振幅干渉法は平均のサイズをみていることが考えられる。また、位相物体を挿入したとき、コヒーレンスプロファイルが大きく変化することを確認した [4]。

次に、バンド幅の関数としてコインシデンスレートを測定することで、パルス幅の決定を行った。バンド幅を変えるために、入射エネルギーをわずかにシフトさせることで非対称度を変化させた。それぞれの条件で空間モード数の効果を取り除き、時間モード数をバンド幅の関数として表した。フィッティングの結果、パルス幅を  $32.7 \pm 1.6 \text{ ps}$  と求め、この値が X 線ストリークカ



メラによる測定値と一致することを確認した。

また、次世代の超短パルス放射光源への応用を検討した。現状よりもはるかに簡単な光学系を用いることで強度干渉法が次世代光源に適用でき、ミクロンオーダーの光源サイズや、fs領域の X 線パルス幅が決定可能なことを明らかにした [5]。

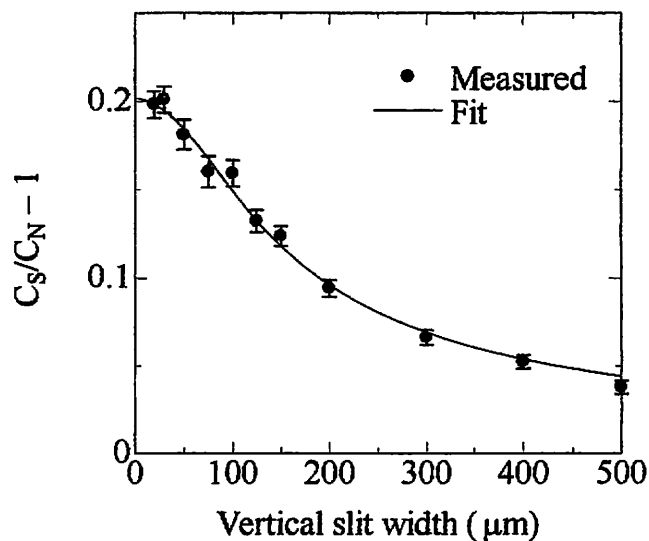


Fig. 1. Enhanced ratio of coincidence probability vs. vertical slit width. The solid line shows a fit result with a coherence length  $\sigma_y = 66.3 \mu\text{m}$ .

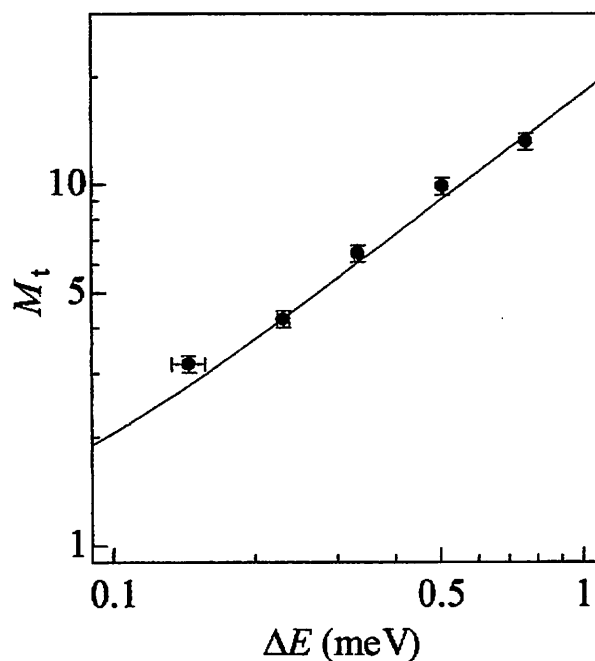


Fig. 2. Temporal mode number determined by intensity interferometry vs. energy bandwidth. The solid line shows a fit result with a pulse width  $s_t = 32.7 \text{ ps}$ .

- [1] R. Hanbury-Brown and R.Q. Twiss, *Nature (London)* **177**, 27 (1956).
- [2] E. Ikonen, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 2759 (1992); Y. Kunimune, Y. Yoda, K. Izumi, M. Yabashi, X.W. Zhang, T. Harami, M. Ando, and S. Kikuta, *J. Synchrotron Radiat.* **4**, 199 (1997); E. Gluskin, E.E. Alp, I. McNulty, W. Sturhahn, and J. Sutter, *J. Synchrotron Radiat.* **6**, 1065 (1999).
- [3] M. Yabashi, K. Tamasaku, S. Kikuta, and T. Ishikawa, *Rev. Sci. Instrum.* **72**, 4080 (2001).
- [4] M. Yabashi, K. Tamasaku, and T. Ishikawa, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 140801 (2001).
- [5] M. Yabashi, K. Tamasaku, and T. Ishikawa, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 244801 (2002).

# 強度相関による干渉計測

理化学研究所 玉作賢治

## 1. 序

一般に干渉現象を計測するとき強度検出器を用いる。例えば干渉計からの出射強度がある物理量,  $x$ , の関数として変化する場合には、その強度変化,  $I(x)$ , を見ることにより干渉現象の知見が得られる。あるいは干渉縞を2次元の強度検出器で測定する方法もある。これらの測定方法では干渉現象の2つの重要な物理量、可視度と位相、を同時に測定する事ができる。以下では位相情報のある程度犠牲にするかわりに、強度相関を用いて可視度を精度良く測定する方法とその応用について述べる。強度相関を用いる方法は、位相板を回転させながら強度振動を計測したり、干渉縞の写真を解析する方法に比べて簡単にリアルタイムで可視度を測定できるという利点がある。また強度相関法は位相が測定時間内で十分に揺らいでいることが前提となるため、X線領域での複数の結晶から作られる分離型干渉計との組み合わせの相性が良いと言える。

## 2. 原理<sup>1,2</sup>

強度,  $I$ , がある位相変数,  $\phi$ , に関して、

$$I(\phi) = \langle I \rangle (1 + V \cos \phi)$$

と表されるとする。ここで物理量  $X$  の平均を  $\langle X \rangle$  とし、 $V$  を強度振動の可視度とする。可視度は強度振動の極大値,  $I_{\max}$ , と極小値,  $I_{\min}$ , を用いて  $V = (I_{\max} - I_{\min}) / (I_{\max} + I_{\min})$  と定義する。ここで  $I(\phi)$  の自己相関の時間平均をとると、

$$\langle I(\phi)^2 \rangle = \langle I \rangle^2 (1 + 2V \cos \phi + V^2 \cos^2 \phi)$$

となる。この時位相が揺らいでいると仮定すると、 $\phi$  について平均して、

$$\langle I^2 \rangle = \langle I \rangle^2 \left( 1 + \frac{V^2}{2} \right)$$

となり、規格化された強度相関  $P_{11} = \langle I^2 \rangle / \langle I \rangle^2$  から可視度,  $V$ , が決定される。このとき、可視度,  $V$ , が位相,  $\phi$ , に関して緩やかに変化するものとする。この仮定は X 線領域での干渉計では満たされる。

以上では強度変動の自己相関に関して考えたが、同じ振動の周期をもつ別々の強度間の相互相関をとることにより2つの振動の位相差を決定する事も可能となる。2つの強度,  $I_1$  と  $I_2$ , が同じ位相変数,  $\phi$ , に関して振動しているとする、その位相差を  $\alpha$  として、

$$\begin{aligned} I_1(\phi) &= \langle I_1 \rangle (1 + V \cos \phi) \\ I_2(\phi) &= \langle I_2 \rangle (1 + V \cos(\phi + \alpha)) \end{aligned}$$

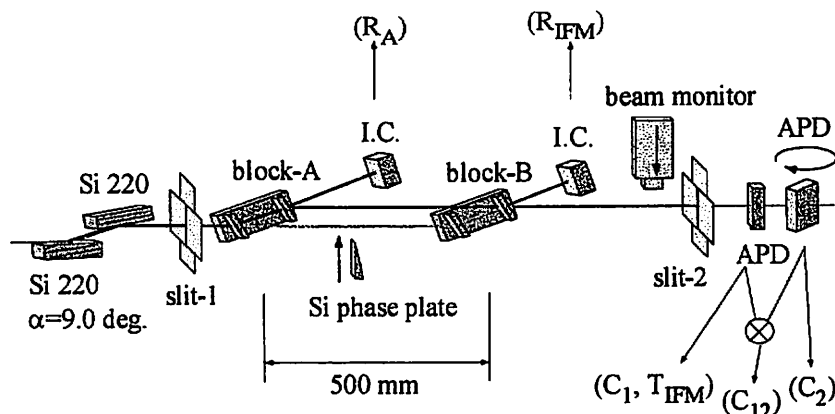
と書けるとすると、この2つの相互相関の  $\phi$  に関する平均をとると、

$$\langle I_1 I_2 \rangle = \langle I_1 \rangle \langle I_2 \rangle \left( 1 + \frac{V^2}{2} \cos \alpha \right)$$

となり、強度相関に位相差の情報が含まれる。ここで両方の強度振動の可視度は等しいと仮定した。これは干渉縞の現れるビーム断面の2か所を測定するような場合に相当する。

## 3. skew-symmetric LLL 分離型干渉計でのテスト<sup>2</sup>

強度相関法による可視度測定のためのテストを、干渉条件が比較的良く研究されている skew-symmetric LLL 分離型干渉計で行った<sup>3,4</sup>。実験は SPring-8 の BL29XUL にて行われた<sup>5</sup>。下図はその実験配置である。



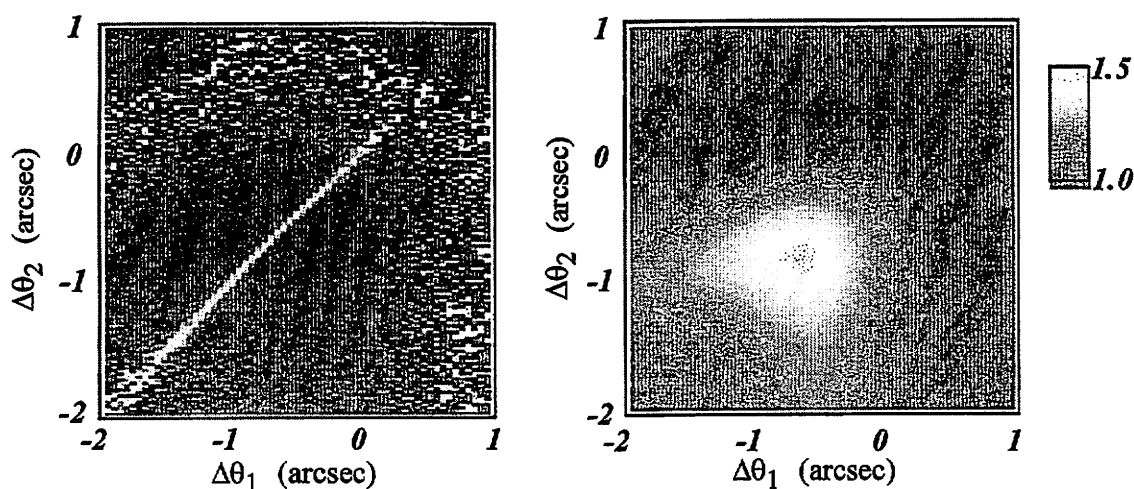
分離型干渉計は2つのシリコン結晶(block-A と block-B)からなり、回折面が220面となっている。2つの結晶は500mm離れた別々のゴニオメーターに載せられている。このため2つの結晶間の散乱面内での相対的な角度の安定度は10 nradのオーダーとなっていると思われる。この値は skew-symmetric LLL 分離型干渉計が出射ビームの位相の安定のため要求する値(0.1nradのオーダー)に比べて遥かに大きい。この不安定性の要因は主に振動によるもので、測定の結果数kHz程度で位相変化による強度振動が起きていることが分かった。

強度相関の測定は同時計測法を用いて行った。出射強度が十分な場合には相関器を用いる事も可能であるが、振動が速い場合には相関器の帯域を十分に確保しなければならない。干渉計の透過側に透過型APDを2台並べておき、その出力を同時係数回路で計測した。

まず強度相関と干渉の可視度との対応を確認するために干渉計内の片方の光路に位相板を挿入して干渉縞の像を撮影した。これを block-B の散乱面内回転、 $\Delta\theta_2$ の幾つかの点で行い、その後測定した規格化された強度相関、 $P_{12}$ と比べた。その結果、上で述べた原理で予想されたとおり、 $P_{12}$ の大きくなる $\Delta\theta_2$ で確かに干渉縞が確認された。

#### 4. 干渉条件の探索

強度相関法は効率よく可視度を測定出来るので、分離型干渉計のような自由度の大きい干渉計の干渉条件を調べるのに有用である。下に示した図は、先の skew-symmetric LLL 分離型干渉計のそれぞれの結晶の散乱面内での回転、 $\Delta\theta_1$ と $\Delta\theta_2$ による規格化された強度相関(左)、 $P_{12}$ とビーム強度(右)を示した図である。左図の周辺部に強度相関が大きくなっている部分があるが、これは強度が弱いために十分な統計精度が得られないためである。 $P_{12}$ は $\Delta\theta_1 = \Delta\theta_2$ の直線まわりの極狭い領域—0.15°程度—で大きくなっている事が分かる。すなわち干渉計として利用できるのは、2つ結晶ブロックがあたかも一体の結晶であるかのように $\Delta\theta_1 = \Delta\theta_2$ 線上に限られる事が分かった。



## 5. まとめと展望

強度相関法により干渉の可視度の計測が可能となる原理を示し、それを skew-symmetric LLL 分離型干渉計を用いて確認した。また強度相関法の応用として、skew-symmetric LLL 分離型干渉計の干渉条件を明らかにした。このように干渉計が不安定な状態で干渉計測を行えることは、新しい干渉計の評価を行う場合や、上で示したように干渉計の動作点を探索する場合に威力を発揮するものと思われる。さらに2つの強度の相互相関を測定することにより位相差の情報を得る事も可能であり、この点での応用も期待される。

強度相関法の応用の目玉として、現在我々は硬 X 線領域での Michelson 干渉計の実現に取り組んでいる。それによって硬 X 線領域で高分解能の Fourier 分光を行えるものと期待される。なぜならば Fourier 分光法の分解能は、良く知られているように干渉計内での光路差に反比例するが、実は波長に比例する。したがって波長  $1\text{\AA}$  ならばわずか  $200\text{mm}$  の光路差で  $10^9$  の分解能を得る事ができる。このような高分解能は分散を用いた分光法では、シリコン結晶の格子定数の揺らぎのため達成困難と考えられている。また Michelson 干渉計を用いることにより次世代の放射光光源、例えば ERL や SASE-FEL、のコヒーレンスの評価が行えるものと期待される。

## 参考文献

1. M.Yabashi, K.Tamasaku, and T.Ishikawa, Jpn. J. Appl. Phys. **40**, L646 (2001).
2. K.Tamasaku, M.Yabashi, and T.Ishikawa, Phys. Rev. Lett. **88**, 044801 (2002).
3. D.Windisch, and P.Becker, J. Appl. Crystallogr. **25**, 377 (1992).
4. A.Momose, T.Takeda, Y.Itai, A.Yoneyama, and K.Hirano, J. Synchrotron Radiat. **5**, 309 (1998).
5. K.Tamasaku *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A **467-468**, 686 (2001).

## はじめに

良質のシリコン単結晶を用い、X線をマクロな光路で干渉させるX線干渉計が、ボンゼ (U. Bonse) とハート (M. Hart) により発明され<sup>1)</sup> X線領域の干渉実験が容易におこなえるようになった。ここではX線干渉計の発明により可能になったシリコン格子定数の絶対測定、その重要な応用である質量の原子標準の実現の試み、またナノ時代の長さ計測への応用について述べる。

ところで完全結晶によるラウエケースのX線回折では入射波を  $E_0$  として入射方向の回折波

$$E_0 = \frac{1}{2} \left( 1 \pm \frac{W}{\sqrt{W^2 + 1}} \right) E_0 \quad (1)$$

回折方向では

$$E_g = \pm \frac{1}{2} \frac{|P|}{P} e^{i\alpha_g} \frac{E_0}{\sqrt{W^2 + 1}} \quad (2)$$

ここで  $e^{i\alpha_g}$  は結晶構造因子の位相項である。

## 格子定数の絶対測定

座標原点から単位格子の原点までの距離を  $r_0$  とすれば(2)式で  $\alpha_g = -\mathbf{g} \cdot \mathbf{r}_0$  で座標原点に対し結晶を移動すると回折波の位相が変化する。そこでX線干渉計で例えばアナライザー結晶を  $\mathbf{g}$  に平行に移動すると回折波の位相がそれに伴って変化する。従って干渉信号強度が  $d$  の周期で変化するので結晶の移動距離をレーザーを光源とした干渉計で測定し  $d$  を絶対測定することができる。

X線干渉計による格子定数の絶対測定は、X線の波長の精度に左右されずに格子定数を直接光の波長を使って測定できる画期的なものであり、半世紀以上に及ぶX線分野の基本問題を解決できることから、ただちにドイツ、アメリカ、イギリスの国立標準研究所で実験が開始され、アメリカ国立標準局 (NBS, 現在 NIST), ドイツ物理工学研究所 (PTB), イタリアコロネッティ研究所 (IMGC) と我国から絶対測定値が発表されている。

X線干渉計が良好な干渉をするための寸法条件と角度条件を右図に示す。格子定数測定では、調整した格子面を平行に保ったまま、pm (ピコメートル,  $10^{-12}$  m) レベルの滑らかさで結晶を  $100 \mu\text{m}$  ほど平行移動し、約  $192 \text{ pm}$  の間隔のX線干渉縞を観察する。それと同時に結晶の移動距離を光波干渉計で絶対測定する。

## 平行移動

格子定数絶対測定装置のキーデバイスの一つである平行移動台は、pmレベルのなめらかさと高い直進性が求められる。デラットは金属ブロックから、平行移動のリンク機構を一体構造で実現し格子定数の絶対測定を行った。リンクを駆動する変位縮小用でこも一体で組み込まれており、熱的機械的に安定であ

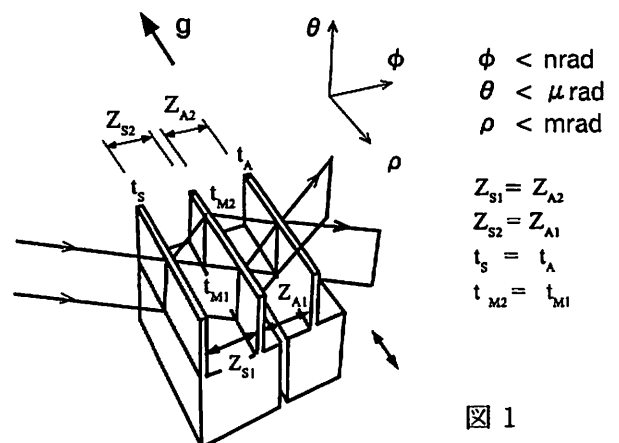


図 1



る。 $g$ 方向の自由度の固有振動数も高くなるように作られている。他のグループでも同様の弾性変形を利用した平行移動台が使われている。しかし理想的平行移動台はできないので、微動傾斜台を備えて平行移動からの角度変化を測定し補正する方策がとられている。

一体構造の移動台は移動方向に運動の自由度を持たせるため、どうしてもこの方向の振動が大きくなる傾向にある。固有振動数は100-1kHzのあいだに来ることが多く、人の声などにより共振しやすい。

### 格子定数絶対測定装置

図2は我々の装置の線図である。平行移動台側を示している。台の駆動は piezo 素子で行っている。X線干渉計の表面を格子面に平行に無歪研磨してあり、移動距離を測る光波干渉計の反射面としている。図2に示すようにX線干渉計の並進距離だけでなく移動に伴う角度変化を測定する角度干渉計、並進の軌跡を測定する干渉計も備えている。並進距離を測る干渉計は測定の重要な要素で、平行移動台がせいぜい 0.1 mm

しか動かないため移動距離を8桁まで測るためには pm レベルの測長が必要である。それぞれの研究グループで低雑音、高感度の光波干渉計が格子定数の絶対測定用に開発されている。我々はX線干渉計の並進以外に感度がないことをめざして干渉計を作った。しかしそのために光学表面の数が多くなり、レーザー光が散乱されるという障害も発生している。

X線干渉計は多数の自由度の調整を必要とするが、安定度を重視することから粗動機構は使わずに調整するのが共通している。その結果調整は気軽に行えないことが多い。

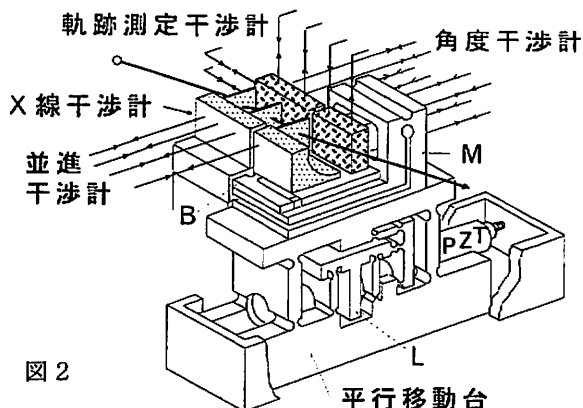


図2

### 測定環境

X線干渉信号を観察するうえで、振動を減らすことと温度を安定に保つことと防音が重要である。測定室は地下にあり独立基礎の上に防振台を置いている。2トンの铸铁製定盤を多段式積層ゴムの防振台で支えたもので、水平方向の共振周波数は0.7Hzであり上に乗っている装置の固有振動数に比べ十分低い。それでもX線干渉計の2部分の相対振動を小さくするのは簡単ではない。真空中で実験していても人の声や隣の部屋で使っている工具の音などに反応するなど振動が取りきれないので、最終的には光波干渉計の信号を用いX線干渉計の並進方向の振動をフィードバックをかけることによりおさえている。

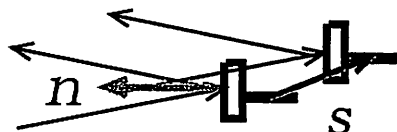
### 測定

我々はX線干渉計を約  $70 \mu\text{m}$  平行移動し、移動距離を光波干渉計で測定する。X線干渉計をゆっくり移動させ、X線干渉縞を  $70 \mu\text{m}$  にわたって全部数えるのは長時間を要し現実的でないから、X線干渉信号と光波干渉信号の同時測定はデラットの合致法によっている。すなわち、レーザーの半波長  $\lambda/2$  のとシリコンの  $d_{220}$  の比 ( $\lambda/2d_{220}$ ) を整数部分と小数部分に分けて考えると整数部分はだいたい分かっているので小数部分を決めればよいことになる。例えば光波干渉計のいくつかの次数で小数部分を測定し精度を上げてゆき最終的には0次、100次、200次、200次、100次、0次などと往復の光波干渉縞の位置でX線干渉信号の位相を読むことにより  $\lambda/2$  の  $m$  倍と  $d_{220}$  の  $n$  倍の比を高精度で決定できる。また往復ではかることによりドリフトや外乱の影響を取り除くことができる。測定は計算機制御により、完全に無人で行われている。

温度の3 mKの誤差が格子定数の0.01 ppmの誤差になるので、当所の温度標準で校正した白金抵抗温度計で結晶の温度を測っている。

## 補正

絶対測定では補正すべき量をきちんとおさえることが重要である。アップの誤差、回折補正、温度などの効果を補正する。回折補正はレーザー光の波面が平面でなく曲率をもっていることの補正である。アップの誤差はX線とレーザーで同一直線上の変位を測っていないことによる誤差であるが、実験的に誤差が最小になる位置を決める。またX線干渉計の位相変化は  $g \cdot s$ 、 ( $s$  は干渉計の出発点から終点を結んだ変位ベクトル) であり、一方レーザー光についてはコサイン誤差があるので両者を補正しなければならない。



この他に、X線干渉計の表面に凹凸があったりした場合のX線干渉信号の位相の変化などイタリアのグループが研究している。それらの補正は9桁目で効いてくる程度である。

以上の補正を行い、真空中、22.5℃、炭素、酸素が無い状態格子面間隔として

$$192015.593 \text{ fm} \pm 0.010 \text{ fm}$$

をえた。

Becker たち、Basile たちの絶対測定値を以下に示すが我々の測定値は、彼らの測定値に比べ0.17ppm 大きく差の原因はまだ解明されていない。

Becker たち <sup>6)</sup>	192015.560 ± 0.012 fm
Basile たち <sup>7)</sup>	192015.569 ± 0.006 fm
中山、藤本	192015.593 ± 0.010 fm
CODATA (1998)	192015.5845 ± 0.056 fm

いずれも22.5℃、真空中、炭素、酸素による格子の変形を補正した値である。

## 絶対測定値に関連した物理定数

格子定数の絶対値はX線波長や吸収端の波長測定などに使われるが、基礎定数決定にも重要であり、クリューガー (Kluger) たちは、絶対測定された格子定数を用い、中性子線の波長と速度を測定し  $h/m_0$  を決定し、さらに微細構造定数の逆数  $\alpha^{-1}$  を実験的に 137.03601082 (524) と決定した。

## 質量の原子標準の研究

質量の標準はいまだにキログラム原器という物体によっている。キログラムは白金イリジウム合金の物体で定義されており、数十年に1回しか使えない、経時変化があっても分からないなど不都合があり、なんとか質量の原子標準を実現しようというのが標準関係者の重要なテーマである。その試みの一つがX線結晶密度法である。単位格子の密度はマクロな結晶密度と等しいことを利用する。単位格子の質量は、モル質量、アボガドロ定数、単位格子中の原子の数から計算できる。単位格子の体積は立方格子の場合、格子定数の3乗である。これらから単位格子の密度が求まり、これをマクロな密度と等しいとおいてアボガドロ定数を決定し原子の質量を高精度で決めようというものである。

$$N_A = f \cdot M / (q \cdot \rho \cdot a_0^3) \quad (1)$$

$a_0$ : 単位格子の辺の長さ,  $n$ : 単位格子中の原子数,  $M$ : 結晶を構成している原子のモル質量,  $q$ : 単位格子の形状因子で立方晶系の場合は  $q=1$ ,  $\rho$ : 結晶の密度,  $N_A$ : アボガドロ定数

アボガドロ定数を8桁で決定できるようになれば, 質量の単位 kg を原子の質量を使った定義に変えることが可能になる。X線干渉計でシリコン格子定数の高精度絶対測定が可能になったことから, 浮遊帯域法 (FZ) で作られた高純度のシリコン単結晶の密度, モル質量を測定してアボガドロ定数を決定することが試みられた。モル質量は密度と格子定数測定に使ったサンプルについてシリコンの3種の同位体の存在比を質量分析計で絶対測定して求める。ところがモル体積 (モル質量と密度の比) は,

$$M/\rho = N_A f a_0^3$$

で格子定数に大きな差がないことから一定値をとるはずであるが, 我々の結晶の一つが他の結晶に比べ3ppmの差があり, シリコン原子数にすると約  $1.5 \times 10^{17}/\text{cm}^3$  という大きな違いになる。この差を説明できるような結晶欠陥や実験の不備は見つかっておらず, この3ppmの違いの原因は現在不明である。

おわりに

シリコン格子定数の絶対測定は今後  $10^{-9}$  の不確かさをめざして進められる。未知の誤差要因の探索や絶対値の食い違いの原因究明などのためにも, さらに測定を進める必要がある。

シリコン結晶はX線回折, 分光のための標準やナノメートル計測の標準となりうるが, 格子定数は不純物, 欠陥の濃度や分布などで変化するから, 厳密にはサンプルごとに測定が必要である。

また分離型のX線干渉計は技術的に確立したものになりつつあり, 約200 pm間隔の極めて正確な信号が得られるから, 光波干渉計と直列にしてメートルからピコメートルまで測るといった計測への応用も始まったおり, 原子オーダーの長さ測定の道具として期待される。

参考文献

1. U. Bonse, and M. Hart: Principles and Design of Laue-case X-Ray Interferometers, Z. Phys., 188, 154 (1965).
2. R. D. Deslattes and A. Henins: Phys. Rev. Lett. 31, 972 (1973).
3. P. Becker, K. Dorenwendt, G. Ebeling, R. Lauer, W. Lucas, R. Probst, H. -J. Rademacher, G. Reim, P. Seyfried and H. Siegert: Absolute determination of the (220) lattice spacing in a silicon crystal, Phys. Rev. Lett., vol. 46, 1540, (1981).
4. G. Basile, A. Bergamin, G. Cavagnero, G. Mana, E. Vittone and G. Zosi, Measurement of the Silicon (220) Lattice Spacing, Phys. Rev. Lett. 72, 3133, (1994).
5. K. Nakayama and H. Fujimoto: Progress in the Measurement of Lattice Spacing d(220) of Silicon, IEEE. Trans. Instrum. Meas., 46-2, 580 (1997).
6. P. De Bievre, S. Valkiers, R. Gonfiantini, P. D. P. Taylor, H. Bettin, F. Spieweck, A. Peuto, S. Pettoruso, M. Mosca, K. Fujii, M. Tanaka, Y. Z. Nezu, A. J. Leistner and B. W. J. Gardini: The Molar Volume of Silicon, IEEE. Trans. Instrum. Meas., 46-2, 592 (1997)

# 多層膜冷中性子干涉計の新展開

京大理 北口雅暁

## 概要

中性子干涉実験は基礎物理学の強力な研究手法である。冷中性子を用いた大型の干涉計は微小な相互作用を非常に高い感度で検出できる。これまでの多層膜冷中性子干涉計は技術的な理由から干涉計の二経路を空間的に大きく分離できなかった。今回多層膜ミラーをエタロン基板上に形成することにより二経路を大きく分離することに成功し、冷中性子干涉計の大型化への道を大きく開いた。その成果と今後の可能性について述べる。

中性子干涉実験は基礎物理学の強力な研究手法である。中性子は質量やスピン、磁気モーメントを持つ核子であり、中性子干涉計では重力、スピン相互作用、磁気相互作用、核力によって位相差がつく。中性子干涉計が検出する位相差  $\Delta\phi$  は

$$\Delta\phi = 2\pi \frac{m\lambda L}{h^2} \Delta E$$

と書ける。ここで  $\lambda$  は中性子の波長、 $L$  は相互作用する経路の長さ、 $\Delta E$  は検出する相互作用である。長波長の中性子を用いる程、また大型の干涉計を用いる程、微小な相互作用を検出できる。我々の目的は大型の冷中性子干涉計を開発し、基礎物理や物性物理に応用することである。

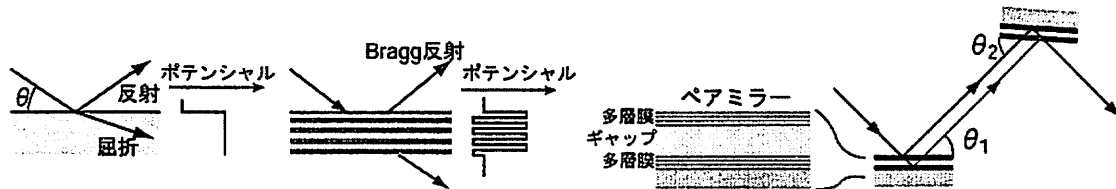


図 1: 中性子多層膜ミラーと多層膜冷中性子干涉計

低エネルギーの中性子が物質に入射する際反射や屈折といった現象を示し、物質に対して有効ポテンシャルを考えることができる。ポテンシャルの異なる二種類の物質を交互に形成した多層膜は一次元結晶として振舞い、冷中性子を Bragg 反射するミラーとして用いることができる (図 1 左)。また多層膜の二つの物質の一方を磁性体にした磁気ミラーは中性子をスピンによって選択的に反射し、偏極装置や偏極分析装置として用いられている。

多層膜冷中性子干涉計 [1] は多層膜を用いた冷中性子干涉計の可能性を初めて示したものであり、中性子干涉実験の冷中性子への適用と装置の大型化を可能にした。この干涉計は二つのペアミラーと呼ばれる素子からなっている (図 1 右)。ペアミラーは真空蒸着によって多層膜ミラー、中間層、多層膜ミラーと積み上げたものである。一つ目のペアミラーによって入射中性子は二経路に分割され、二つ目のペアミラーの反射によって二経路は再び重ねあわされる。またペアミラーの表側のミラーを磁気ミラーにした、スピンスプリッタと呼ばれる素子を用いて中性子スピン干涉計 [2] が開発された。図 3 左は中性子スピン干涉計の配置である。中性子ビームは偏極ミラーと  $\pi/2$  フリッパーによってスピン平行成分とスピン反平行成分との重ね合わせ状態になり、スピンスプリッ

タに入射する。磁気ミラーはスピン平行成分のみを反射し、透過したスピン反平行成分は非磁気ミラーによって反射される。スピン状態によって分割されていた中性子はスピンスプリッタによる反射によって空間的に分離される。 $\pi$ フリッパーによってスピンを反転し再びスピンスプリッタに入射することで2つの経路は空間的に重ね合わされる。最後に  $\pi/2$  フリッパーにより基底を取り直すことで二つの成分の重ねあわせが得られる。

しかし蒸着によるミラー形成という技術的な理由から、ペアミラーやスピンスプリッタの中間層の厚さは  $1\mu\text{m}$  のオーダー程度にしかならない。このため二経路の空間的分離は小さく実際にはほとんど重なっており、これらの干渉計は応用において制限されている。二経路の空間的分離を大きくできれば、経路の一方にのみフェイズシフタを挿入するなど新しい実験が可能になる。また検出される相互作用の大きさが経路の囲む面積に依存するような量では、経路の空間的分離が大きな干渉計でより高感度な実験を行なうことができる。例えば重力による量子力学的干渉では、シリコン完全単結晶干渉計での実験と理論との間に位相変化の 0.8% のずれがある、との報告があり [3]、ニュートン近似とは異なる理論の提唱もある。多層膜ミラーのブラッグ反射を用いる多層膜冷中性子干渉計はシリコン干渉計に比べ動的回折の補正が小さく済み、議論が明瞭になる。経路の空間的分離が大きい多層膜干渉計を用いることでより詳細な検証が可能となる。また Aharonov-Casher 効果でもシリコン干渉計を用いた中性子による実験では理論とのずれが報告されている [4]。原子干渉計による精密な測定も行われているが、干渉計の幾何的な違いや中性子と原子の構造の違いに関する議論がある。多層膜冷中性子干渉計の2経路が空間的に分離すれば経路の間に長い電極を挿入でき、シリコン干渉計に比べて 10 倍程度高感度な実験が行なえる。

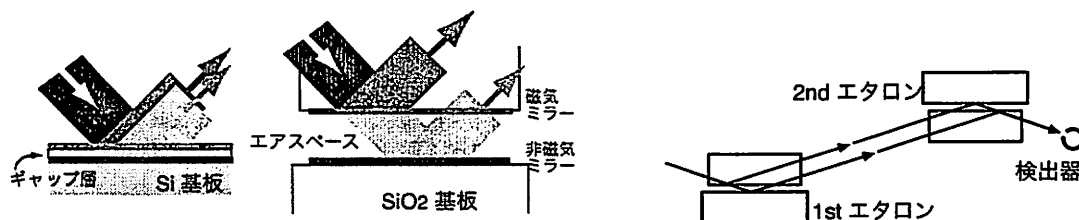


図 2: これまでのペアミラー (左) とエタロンによる経路間隔の拡大 (中)。エタロンを用いた干渉計の配置 (右) ペアミラーやスピンスプリッタではギャップ層の厚さが  $1\mu\text{m}$  程度にしかならない。用いる中性子ビームの中は  $1\text{mm}$  程度なので2経路は空間的に重なっている。エタロンを用いるとギャップを拡大することができ、2経路の間隔を拡げることができる。

我々は経路間隔の大きくするためにエタロンという素子を用いた (図 2)。エタロンは主にレーザー光学で用いられる光学素子で、平面度の良い基板を平行度良く組み合わせたものである。一般のレーザー用のものでは表面粗さが中性子ミラーの基板としては十分でないが、現在では特に表面粗さの良好なもの、RMS が  $3\text{\AA}$  以下程度のものを入手でき、中性子ミラーの基板として用いる事が出来る。エタロンの相対平面度は  $\lambda/150$  であり、干渉計を構成するのに十分である。

エタロンの平行な二つの面にそれぞれ磁気ミラーと非磁気ミラーを形成する。今回磁気ミラーとしてパーマロイ 45/Ge 多層膜 8 複層を、非磁気ミラーとして Ni/Ti 多層膜 8 複層を蒸着した。複層厚は約  $240\text{\AA}$  である。この基板を用いスペース長  $10\mu\text{m}$  でエタロンを組み立てた。エタロンはスペース長をギャップ厚さとみなせるスピンスプリッタとして機能する。

実験は日本原子力研究所改 3 号炉冷中性子ビームライン C3-1-2 'MINE2' にて行なった。中心波長  $8.8\text{\AA}$ 、波長分解能は半値全幅で中心波長の 2.4% である。中性子スピン干渉計のスピンスプリッタをエタロンで置き換える (図 3 左)。2つのエタロンは図 2 右に示す配置となっており、幾何光学の観点からは光学における最も古い干渉計である Jamin 干渉計と等価なものである。我々はこの干渉計で、コントラスト 60% の干渉縞を観測した (図 3 右)。中性子スピン干渉計では2経路はそれぞれスピン平行と反平行成分に対応しており、フェイズシフタコイルによる磁場によって2経路に位相差をつけることができる。図の横軸はフェイズシフタコイルに流す電流である。

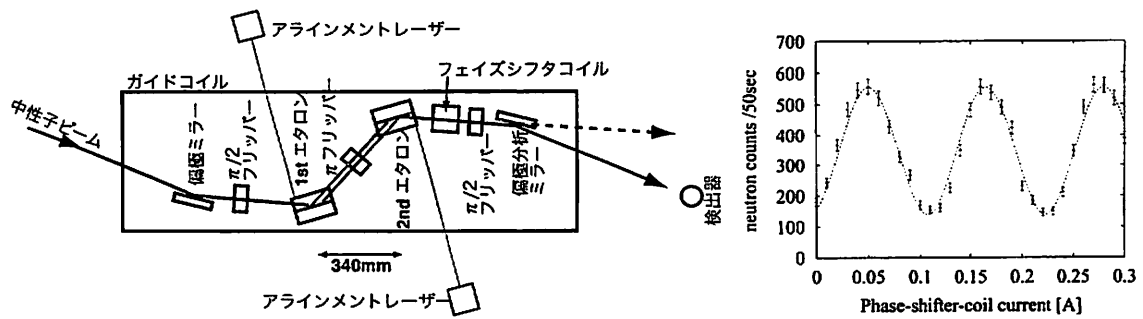


図 3: 実験の配置と観測された干渉縞

エタロンを用いた干渉計の実験の一つとして、冷中性子ビームの横方向の可干渉長を直接測定する実験を行った。後段のエタロンを鉛直から  $\alpha$  だけ傾けてやると、重ねあわされるべき 2 経路の間に  $2D \sin \alpha$  の上下方向の空間的な分離が生じる。 $\alpha$  を変化させて干渉縞のコントラストの変化を見た (図 4)。上下方向の運動量分布の標準偏差  $\sigma_T$  を用いると 2 経路の分離  $L_T$  に対して干渉縞のコントラストの減衰は  $\exp(-\sigma_T^2 L_T^2 / 2)$  に比例する [5]。コントラストが  $1/e$  になる分離を横方向可干渉長とする。入射ビームの上下のコリメーションを変え、上下方向の運動量分布を変えると可干渉長が変化するのがわかる。ビームラインのコリメーションから予測される可干渉長と実験結果は良く一致している。この実験からもエタロンを用いた干渉計が 2 経路を空間的に分離した干渉計として機能していることがわかる。

今回、4 枚の独立な基板の上の多層膜ミラーによって冷中性子干渉計を構成することに初めての成功した。今回のエタロンのスペース長は  $10\mu\text{m}$  と小さく 2 経路は未だ空間的に重なっている。しかしエタロンのスペース長を  $200\mu\text{m}$  にまで拡大することはすぐにも実現でき、この時 2 経路は空間的に完全に分離する。また実際にエタロンを用いて冷中性子干渉計を構成できることを確認した意味は大きい。エタロンの平面度と平行度が冷中性子干渉計を構成するのに必要な精度を満たしているということである。今回のエタロンと同様の精度を持つソリッドエタロンを図 5 のように配置すれば、大型の Mach-Zehnder 型の冷中性子干渉計を構成することができる。厚さのそろった 6 枚のソリッドエタロンと平面度  $\lambda/20$  程度の高精度定盤を用いることで 2 経路の光路長を可干渉長内でそろえることができる。大型の Mach-Zehnder 型冷中性子干渉計の開発によってさらに様々な基礎物理実験への応用が可能になる。

一方物性物理の面からも経路の分離を大きくすることは重要である。図 6 に示す (+ + - -) 配置と呼ばれる配置 [6] にエタロン 4 組を並べるとスピネコー装置と等価な高分解能弾性散乱分光器を非常にコンパクトに実現できる。スピネコー装置は生体高分子の緩和現象などを調べることのできる装置であり、より長い緩和時間の現象の研究に関心が持たれている。図 6 の配置では装置の分解能を表すフーリエ時間はエタロンのギャップの厚さに比例している。スペース長  $200\mu\text{m}$  のエタロンと波長  $20\text{\AA}$  の中性子を用いれば、フーリエ時間  $300\text{ns}$  のスピネコー装置が実現できる。

## 参考文献

- [1] H. Funahashi *et al.*, Phys. Rev. **A54**, 649 (1996).
- [2] T. Ebisawa *et al.*, Phys. Rev. **A57**, 4720 (1998).
- [3] K. C. Littrell *et al.*, Phys. Rev. **A56**, 1767 (1997).
- [4] A. Cimmino *et al.*, Nucl. Inst. and Meth. **A440**, 579 (2000)
- [5] Y. Morikawa and Y. Otake, Il Nuovo Cimento **vol.105 B**, N. 5, 507 (1990).
- [6] T. Ebisawa *et al.*, Phys. Lett. **A259**, 20 (1999).



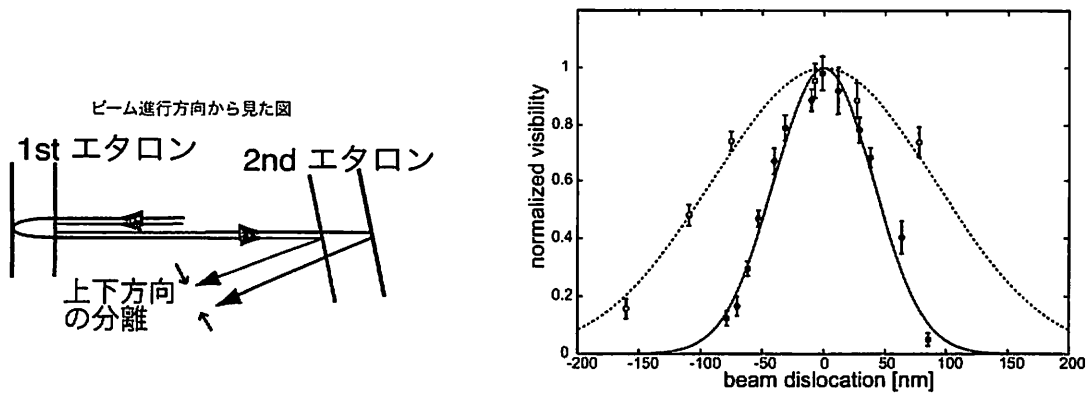


図 4: 横方向可干渉長の測定

黒丸と実線では 4855mm 離れた巾 40mm のスリットでコリメーションを決めている。この時予測される可干渉長は 58.9nm。実験結果は  $57 \pm 2$ nm。白丸と点線では 2675mm 離れた巾 10mm のスリットでコリメーションを決めている。この時予測される可干渉長は 129.8nm。実験結果は  $127 \pm 10$ nm。

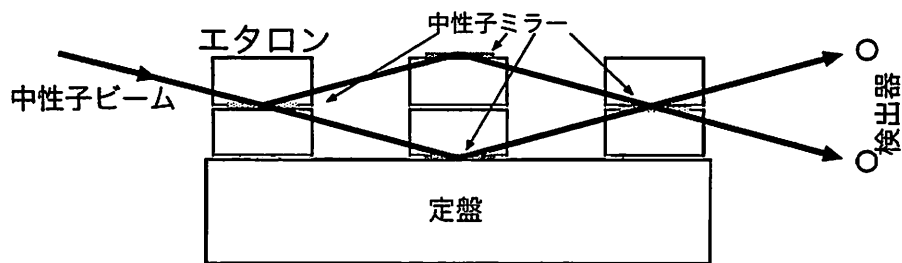


図 5: Mach-Zehnder 型冷中性子干渉計

基板の両面が平行なソリッドエタロン基板を高精度の定盤 (平面度  $\lambda/20$ ) の上に配置すれば、Mach-Zehnder 型の冷中性子干渉計を構成する精度が満たされる。

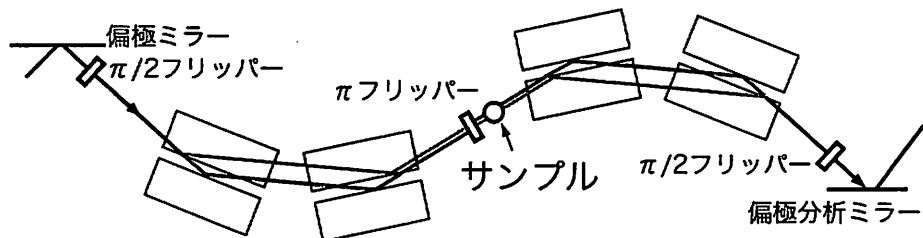


図 6: エタロン 4 組を用いたスピネコー装置

スペース長の大きいエタロンを用いることで大きな歳差回転数を得ることができ、高分解能のスピネコー装置をコンパクトに実現できる。

# 冷中性子スピン干渉計とその物理

京都大学原子炉実験所 日野正裕

## 1 はじめに

Bonse、Hart らによるシリコン完全結晶を用いた X 線干渉計の実現に引き続き Rauch らはシリコン中性子干渉計を製作した。これよりスピンのコヒーレントな重ね合わせ原理や中性子の重力ポテンシャルなど中性子と種々の場との微弱な相互作用などの観測がなされ、量子力学の基礎実験において重要な役割を果たしてきた [1, 2, 3]。一方筆者らは、中性子スピンエコー法 [4, 5] の原理を中性子光学の分野に適用発展させたスピン干渉計を開発した。これは中性子をスピン空間に分波し再結合することにより、かならずしも実空間の分波を必要としない干渉計であり、この中性子スピン干渉計を利用して新しい高分解能分光器の開発 [6, 7] や、トンネル、共鳴トンネル中性子のスピンプリセッション位相や横方向干渉長の測定に成功している。ここでは、トンネル、共鳴トンネル中性子スピンプリセッション位相の観測について、その成果の概略 [8, 9] と今後の展開を述べる。

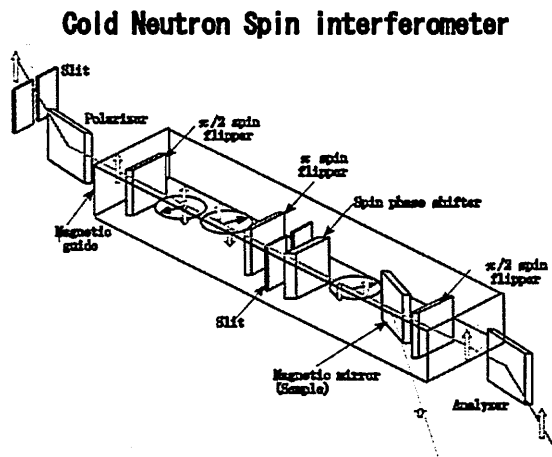


図 1: 中性子スピンエコー (NSE) 法を用いた中性子スピン干渉計

図 1 に中性子スピン干渉計の概念図を示す。ポーラライザーにより偏極された中性子スピンは  $\pi/2$  スピンプリッパーにより  $z$  方向から  $xy$  面内に倒され、ラーモア歳差運動を始める。入射中性子は速度分布を持つため、プリセッション用磁場を通過することでラーモア歳差角にも分布が生じるが、2つの  $\pi/2$  フリッパーの中間に  $\pi$

フリッパーを挿入することにより以下の様に収束させることができる。

$$\delta N = N_0 - N_1 = \frac{\gamma_L}{2\pi} \left[ \frac{H_0 l_0}{v_0} - \frac{H_1 l_1}{v_1} \right] \quad (1)$$

ここで  $\gamma_L = 2.916$  kHz/Oe、 $N$  はラーモア歳差回転数、

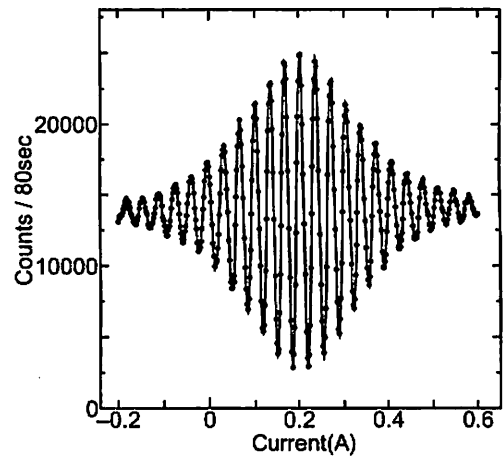


図 2: プリセッション磁場による典型的スピン干渉シグナル (1000 ラーモア歳差回転)

$Hl$  は磁場とその区間の長さの積、 $v$  は中性子の速度、添字 0 および 1 は  $\pi$  フリッパー前後を現す。サンプルの無い場合、 $l_0 = l_1$ 、 $v_0 = v_1$  であるので、 $H_1$  の磁場を  $H_0$  値周りで変化させることにより図 2 に示されるような干渉シグナルが得られる。図 1 のようにサンプルを片方のプリセッション用磁場中に挿入した場合も、透過波を測定するため  $l_0 = l_1$ 、 $v_0 = v_1$  が成り立つ。これより干渉シグナルのシフトからサンプルによるラーモア歳差角、つまりサンプルによる  $\uparrow\downarrow$  スピン波動関数の位相差を直接観測することができる。

$$\begin{aligned} \delta N = N_0 - N_1 - \Delta N = & \frac{\gamma_L}{2\pi} \left[ \frac{H_0 l_0}{v_0} - \frac{H_1 l_1}{v_1} \right] \\ & - (\Delta\phi_+ - \Delta\phi_-)/2\pi \end{aligned} \quad (2)$$

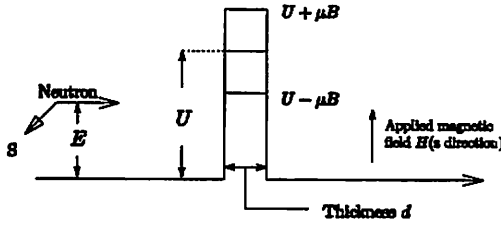


図 3: パーマロイ磁気膜の  $\uparrow\downarrow$  スピン中性子に対する 1 次元箱型磁気ポテンシャル

## 2 障壁をトンネル透過する中性子スピン

1928 年、原子核の  $\alpha$  崩壊の説明にトンネル効果が用いられて以来“粒子が障壁をトンネル通過するのにかかる時間はどれくらいか?”という素朴な問題について現在にいたるまで論争が続いている [10, 11]。論争の理由として、量子力学において時間は物理現象の変化の割合を示しているパラメーターであり、時間に対応する演算子を持たないため定義が確立しておらず、それぞれの研究者がトンネル時間の定義に関する提案やシミュレーション等を行い、それを検証する実験例がほとんど無いということがあげられる。ここでは Baz', Rybachenko, Büttiker [12, 13, 14] らに提案されるような中性子ラーモア歳差運動を用いたトンネル時間の測定を考えてみる。ラーモア歳差運動は時計として使用出来るので、障壁にだけ磁場をかけておけばトンネル中性子のスピンプリセッション  $\Omega$  から障壁通過時間  $(\Omega/\omega_L)$  が求められるという一見直感に訴える方法である。だが今までのようなトンネル障壁を実験的に創り出し精度良く  $\Omega$  を直接測定することは容易ではなかった。筆者らは、磁気膜によるトンネル中性子のスピンプリセッションをスピン干渉計により測定した。

磁気膜による中性子前方回折の問題は、図 3 に示されるように磁気膜面に対して垂直方向の 1 次元ポテンシャル問題として Schrödinger 方程式で取り扱うことができることに注目し、トンネル中性子のスピンプリセッションを、以下に述べる方法でシミュレートした。飽和した磁気膜に入射する  $\uparrow\downarrow$  スピン中性子は複屈折現象を示す。その理由は中性子波数ベクトルの磁気膜に対する垂直成分  $k_{\pm}$  が、次式に示すように、スピンの方向によって感じる磁気ポテンシャルの符号の違いにより異なる値を有するからである。

$$k_{\pm} = \frac{\sqrt{2m(E - (U \pm |\mu B|))}}{\hbar} \quad (3)$$

ここで、 $E = \frac{(\hbar k_{\pm})^2}{2m}$  は真空中での膜に垂直な成分の運動エネルギーであり、 $U, B, m$  は、それぞれ膜の平均核

ポテンシャル、磁場の強さ、中性子の質量を表す。ラーモア歳差運動をしている中性子を磁気膜に入射させると、反射および透過に際してその  $\uparrow\downarrow$  スピン成分の波動関数にそれぞれ異なる位相が生じるが、これらの相違は、 $\uparrow\downarrow$  スピン成分に対する異なったポテンシャル障壁に起因する。トンネル状態の中性子波では (3) 式で定義された波数ベクトルは虚数になり、1 次元箱型磁気ポテンシャルを透過後の中性子波の位相は次式で与えられる。

$$\tan(\Delta\phi_{\pm}) = \frac{k_{\pm}^2 - \kappa_{\pm}^2}{2k_{\pm}\kappa_{\pm}} \tanh(\kappa_{\pm}d) \quad (4)$$

波数ベクトルは  $\kappa_{\pm} = \frac{\sqrt{2m(U \pm |\mu B|) - E}}{\hbar}$  で与えられる。ここで波動関数の透過係数は  $t_{\pm} = \sqrt{T_{\pm}}e^{i\Delta\phi_{\pm}}$  と求められるので、透過波のスピンの期待値は次式で与えられる。  $T_{\pm}$  は透過確率である。

$$\langle S_x \rangle = \hbar \cos(\Delta\phi_+ - \Delta\phi_-) \frac{\sqrt{T_+ T_-}}{T_+ + T_-}, \quad (5)$$

$$\langle S_y \rangle = -\hbar \sin(\Delta\phi_+ - \Delta\phi_-) \frac{\sqrt{T_+ T_-}}{T_+ + T_-}, \quad (6)$$

$$\langle S_z \rangle = \frac{\hbar T_+ - T_-}{2 T_+ + T_-}. \quad (7)$$

図 4 にシリコン基板上に蒸着された厚さ 20 nm の

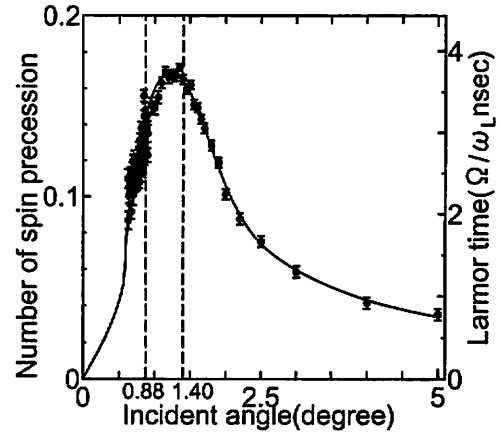


図 4: 磁気膜 (パーマロイ 20nm) トンネル中性子のスピンプリセッション。点線位置の  $1.40^\circ, 0.88^\circ$  は  $\uparrow$  と  $\downarrow$  スピン中性子の全反射臨界角、実線は 1 次元磁気ポテンシャルのシュレディンガー方程式の解によるスピンプリセッションを示す。

Permalloy45 (PA; Fe<sub>55</sub>Ni<sub>45</sub>) 磁気膜を透過させたことによるスピンプリセッションと、1 次元 Schrödinger 方程式を数値計算で解いた結果 (実線) を示す。点線は、 $\uparrow\downarrow$  スピン中性子の全反射臨界角を示す。全反射臨界角以上では、入射角の減少により、スピンプリセッションは複

屈折による行路差に比例して増加するが、全反射臨界角以下では、スピンプリセッションは逆に減少する。右縦軸にスピンプリセッションをラーモア歳差角速度  $\omega_L$  で割ったものであるラーモア時間を示す。このラーモア時間をトンネル時間とすると最短のトンネル時間は入射角  $\theta = 0.62^\circ$  の場合  $2.42 \pm 0.12$  nsec となった。この結果は、いわば、波動関数の位相差を古典的ラーモア時間に対応させたものであり、中性子の群速度を求めたものではない。事実、実験結果は平面波によるシミュレーションと非常に良い一致が得られた。これは中性子が既に粒子という概念からは離れてしまっていることに意味するので [15]、ラーモア時間は位相時間の一つではあるが、粒子の障壁通過時間とは直接対応できないと言える。

### 3 井戸型ポテンシャルを共鳴トンネルする中性子のスピンプリセッション

↑スピン中性子に対して、2つのポテンシャル障壁(量子井戸)を生じさせる Fabry-Perot 磁気膜を透過する中性子のスピンプリセッションを測定した。ここで↓スピン中性子に対しては全体として1つの小さなポテンシャル障壁を感じるのみである。

Fabry-Perot 磁気膜による中性子散乱も磁気膜面に対する垂直方向(ここでは  $y$  方向とする)の1次元ポテンシャル問題として Schrödinger 方程式を取り扱えるので、入射中性子の側から  $j$  番目 ( $1 \leq j \leq n$ ) の領域で波動関数は  $A_j e^{iq_j y} + B_j e^{-iq_j y}$  と表せる。ここで1番目の領域は真空(空気)、 $n$  番目の領域はシリコン基板、 $q_j = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E - V_j)}$ 、 $E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$ 、 $V_j$  はそれぞれの中性子スピンが感じる  $j$  番目の領域のポテンシャル障壁の大きさである。

さて最初と最後の境界面における波動関数の連続性から、透過係数  $t$  や反射係数  $r$  が遷移行列  $\hat{M}$  によって次のように与えられ、

$$\begin{pmatrix} 1 \\ r \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} t \\ 0 \end{pmatrix}, \quad (8)$$

波動関数の連続性と滑らかさの条件より、

$$\hat{M} = \hat{D}^{-1}(q_1) \left( \prod_{j=2}^{N-1} \hat{D}(q_j) \hat{P}(q_j, d_j) \hat{D}^{-1}(q_j) \right) \hat{D}(q_N) \quad (9)$$

$$\hat{D}(q_j) = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ q_j & -q_j \end{pmatrix}, \quad (10)$$

$$\hat{P}(q_j, d_j) = \begin{pmatrix} e^{-iq_j d_j} & 0 \\ 0 & e^{iq_j d_j} \end{pmatrix} \quad (11)$$

が導かれる [16, 17]。ここで  $d_j$  は  $j$  番目の領域の幅である。式 (8) を解くことにより透過係数  $t_{\pm} = \sqrt{T_{\pm}} e^{i\Delta\phi_{\pm}}$

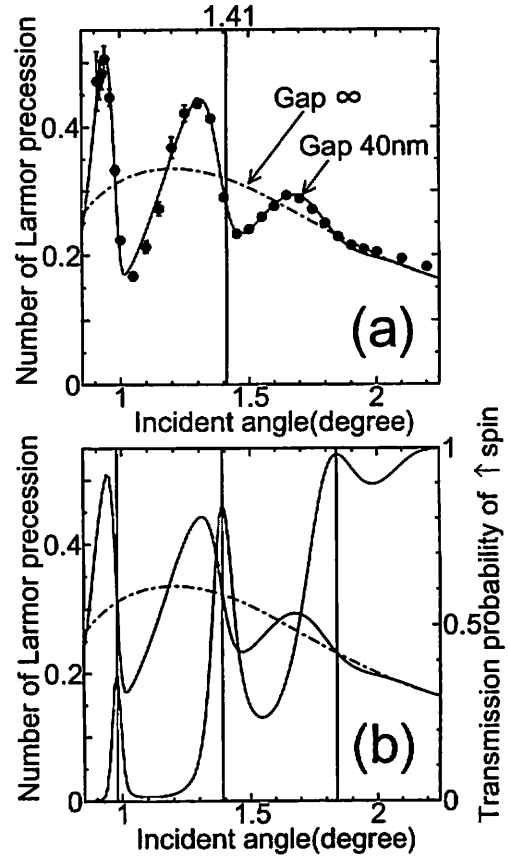


図 5: (a)PA(20nm)-Ge(40nm)-PA(20nm)Fabry-Perot 膜を透過する中性子のスピンプリセッションと (b)↑スピン中性子の透過確率(実線)、点線角度位置は、共鳴中心を示す。

が求められ、Fabry-Perot 磁気膜を透過することによるスピンプリセッション ( $\Delta\phi = \Delta\phi_+ - \Delta\phi_-$ ) が計算できる。ここで  $T_{\pm}$  は ↑↓スピン中性子の透過確率である。

図 5(a) に各入射角における Fabry-Perot 磁気膜 (PA(20 nm)-Ge(40 nm)-PA(20 nm)) によるスピンプリセッションの実測値を (b) に ↑スピン中性子の透過率及びスピンプリセッションの理論値を示す。(a) 図の点線は ↑スピン中性子の障壁ポテンシャルに対応する全反射臨界角を、(b) 図の点線は、↑スピン中性子のそれぞれ 1 次、2 次、3 次の共鳴束縛状態に対応する入射角度位置を示す。またスピンプリセッションは Gap 幅 (Ge

の膜厚)が40 nmの理論曲線と良い一致をみせ、入射角の変化に対してその束縛角度を中心に正弦波状に波打ち、低角度の束縛状態ほど位相変調の振幅は増加している。これより、中性子のスピンプリセッションは磁場中のラーモア歳差回転のように、磁気モーメントが磁場を感じてそのトルクで回転するといった古典的な取り扱いは全く成り立たず、 $\uparrow\downarrow$  スピン波動関数の位相差でのみ正しく記述することができる。また $\uparrow$ スピン中性子の透過率はGap幅が40 nmと $\infty$ (実際は2.0  $\mu\text{m}$ として計算)のスピンス歳差位相の交点に対応する入射角で極大となる(共鳴する)ことが分かる。これより、 $\uparrow$ スピン中性子が共鳴トンネルする条件は、そのポテンシャル障壁位置が波動の節(つまりあたかも障壁による反射が無い場合)にあたるのが位相の観点から示された[9]。さら

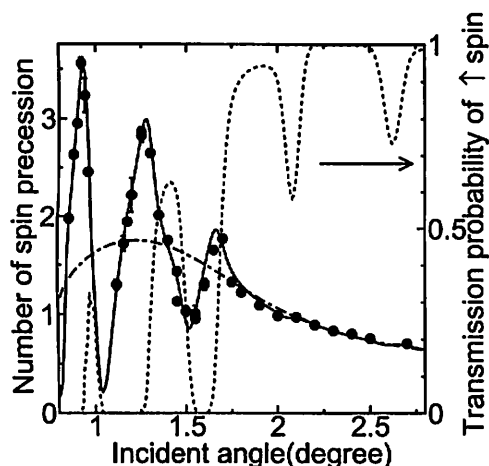


図 6: 磁気 Fabry-Perot 膜 [PA(20 nm)-Ge(40 nm)]<sup>10</sup>-PA(20 nm) を透過する中性子のスピンプリセッション

に図 6 に各入射角における多重連結 Fabry-Perot 磁気膜 [PA(20 nm)-Ge(40 nm)]<sup>10</sup>-PA(20 nm) によるスピンプリセッションと $\uparrow$ スピン中性子の透過率を示す。この結果も平面波によるシミュレーションと非常に良い一致をみせた。これより、 $\uparrow$ スピン中性子のトンネル確率は量子井戸の数によらないが、スピンス歳差位相はその井戸数に比例して増加することが分かった。この結果は中性子強度の減少なしにスピンス歳差位相のみを増加、つまり膜内での中性子の滞在時間をのばせることを示している。ここで 100 連結量子井戸での $\downarrow$ スピン中性子の滞在時間は、1 次の束縛波の入射角度で約 2 $\mu\text{sec}$  程度である。これより外部磁場を 1MHz 程度で振動させて膜内に中性子が滞在している間に、膜内のポテンシャルを変化させ、「(膜内の) 定在波がどのくらい滞在出来るか?」という問題に対して実験的な解答を目指している。

また量子井戸の数を増やすことで、中性子強度の減少無しにスピンス歳差位相を増加でき、その入射角の変化

に対する感度は劇的に増加可能となるため、これを用いた小角散乱への応用も検討している。

## 謝辞

本研究は九州大学理学部阿知波紀郎教授、京都大学原子炉実験所の田崎誠司助教授、河合武教授、原研の海老沢徹博士との共同研究である。実験の実施に当たって、京大炉、東大物性研付属中性子散乱研究施設、原研等、中性子散乱実験のための諸研究機関の支援が不可欠であった。

## 参考文献

- [1] H.Rauch, W.Treimer, U.Bonse: Phys. Lett. A 47, 369 (1974).
- [2] A.Zeilinger: *Neutron interferometry*, edit by U.Bonse and H.Rauch, Clarendon Press Oxford 241 (1979).
- [3] J.Summhammer, G.Badurek, H.Rauch, U.Kischko, A. Zeilinger: Phys. Rev. A27, 2523 (1983).
- [4] F. Mezei, Z.Phys. 255: 146(1972).
- [5] *Neutron Spin Echo, Lecture Notes in Physics*, edited by F. Mezei(Springer, Heidelberg, 1980), vol. 128.
- [6] T.Ebisawa, S.Tasaki, T.Kawai, M.Hino, N.Achiwa, T.Akiyoshi, Y.Otake, H.Funahashi: Phys. Rev. A57, 4720 (1998).
- [7] 阿知波紀郎, 海老沢徹: 固体物理 33, 87 (1998).
- [8] M. Hino, N. Achiwa, S. Tasaki, T. Ebisawa, T. Kawai, T. Akiyoshi and D. Yamazaki: Phys. Rev. A59, 2261(1999).
- [9] M. Hino, N. Achiwa, S. Tasaki, T. Ebisawa, T. Kawai and D. Yamazaki: Phys. Rev. A61, 013607(2000).
- [10] E. H. Hauge and J. A. Støvneng: Rev. Mod. Phys., 61, 917(1989).
- [11] R. Landauer and Th. Martin: Rev. Mod. Phys., 66, 217(1994).
- [12] A. I. Baz', Sov. J. Nucl. Phys. 4, 182(1967). ; 5: 161(1967).
- [13] V. F. Rybachenko: Sov. J. Nucl. Phys. 5,635(1967).
- [14] M. Büttiker: Phys. Rev. B27, 6178 (1983).
- [15] H. M. Krenzlín, J. Budczies and K. W. Kehr: Phys. Rev. A53, 3749(1996)
- [16] S.Yamada, T.Ebisawa, N.Achiwa, T.Akiyoshi and S.Okamoto: Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., 11, 8 (1978), 海老沢徹, 阿知波紀郎, 山田修作, 秋吉恒和, 岡本朴: 日本結晶学会誌 20, 167(1978).
- [17] S. J. Blundell and A. C. Bland: Phys. Rev. B46, 3391(1992):

# 高空間分解能型 X 線干渉計の開発およびそれによる 生体試料のマイクロ位相トモグラフィ

小山一郎<sup>1,3</sup>, 百生敦<sup>1,3</sup>, 濱石佳孝<sup>1</sup>, 吉川秀樹<sup>1</sup>, 武田徹<sup>2</sup>,  
呉勁<sup>2</sup>, 板井悠二<sup>2</sup>, 高井健吾<sup>3</sup>, 上杉健太郎<sup>3</sup>, 鈴木芳生<sup>3</sup>

<sup>1</sup>東京大学大学院工学系研究科, <sup>2</sup>筑波大学臨床医学系, <sup>3</sup>JASRI

X線干渉計を用いた位相コントラストイメージングの高空間分解能化を目指し、BBB 干渉計およびアナライザ厚40 $\mu\text{m}$ のLLL干渉計を開発した。さらに、これらの干渉計を用いて生体試料の位相コントラストイメージングおよびマイクロ位相トモグラフィを行った。

## 1. イントロダクション

シンクロトロン放射光施設の発展、普及に伴い、X線の位相情報を画像コントラストとする位相コントラストイメージングの研究が近年、活発に行われるようになってきた。X線が試料を通過する際、試料による吸収を受けると共に、試料の屈折率分布に応じてX線の位相がシフトする。硬X線の波長領域において試料が軽元素からなる場合、散乱断面積の位相シフト成分は吸収成分よりほぼ3桁程度大きく、位相コントラストイメージングは従来の吸収コントラストに比べて高い感度でのイメージングが可能となる。さらに、この位相コントラストイメージングをCTへ応用する(位相トモグラフィ)ことにより試料の屈折率分布を3次的に観察することが可能となる。これは、X線の位相シフト量の空間分布(位相マップ)が試料の屈折率分布の投影となっているためである。

位相トモグラフィを行うためにはX線の位相シフト量を定量的に測定することが必要である。しかし全ての手法でこれが可能な訳ではない。というのも位相シフト量と画像コントラストの関係が簡単な関数で書けず、画像コントラストは得られるものの、そこから逆に位相シフト量を求められない場合があるからである。現在までに開発された硬X線領域で位相シフト量の定量的測定が可能方法として、X線干渉計[1]を用いた干渉法[2]と試料によるフレネル回折を利用した伝播ベース法[3,4]がある。

干渉法は硬X線領域で最初に行われた位相マップ計測であり、他の手法に比べて高感度であるという特徴がある。そのため、動物や人間などの生体軟部組織(正常組織、ガン組織)を造影剤など使うことなく撮像することができる。干渉法による位相トモグラフィは、これらの試料を高感度で3次元撮像できる手法として、現在精力的に研究が行われている。一方、伝播ベース法は感度では干渉法に劣るものの、空間分解能は約1 $\mu\text{m}$ 程度と干渉法を上回る性能を持つ。これは試料と画像検出器との間に光学素子などが存在しないためである。反対に干渉法では次節で述べる理由により、X線干渉計自体による空間分解能悪化が避けられない。

## 2. X線干渉計による空間分解能悪化

干渉法による位相マップ計測では一般にLLL干渉計[1]が用いられる。これは他のタイプの干渉計に比べて広い波長範囲で機能し、また作成が容易であるという特徴がある。LLL干渉計はシリコン等の完全結晶から一体として切り出された3つ

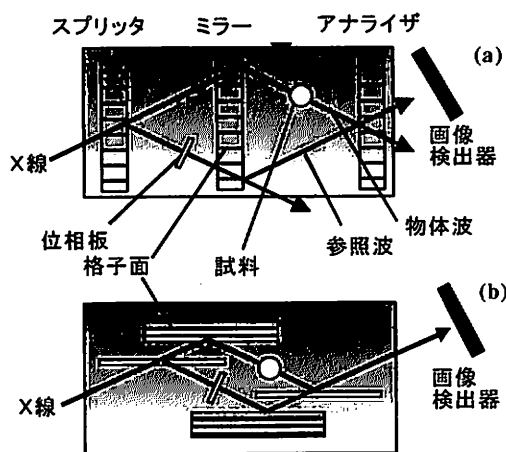


図1. (a) LLL干渉計と(b) BBB干渉計の模式図。

の結晶板から構成される(図1(a))。入射X線は1番目の結晶板(スプリッタ)においてLaueケースの反射により2つに分割され、2番目の結晶板(ミラー)においてさらに2つに分割される。3番目の結晶板(アナライザ)で分割されたX線のうち2つが重ねあわせられ干渉光学系を形成する。

干渉光学系の一方の光路(物体波)に試料が挿入され、もう一方の光路(参照波)に位相板が挿入される。試料による位相シフトは、位相板により参照波の位相をシフトさせながら複数の干渉図形を撮影することにより計測される。これを縞走査法と呼ぶ。理想的な位相マップ計測においては、試料によって引き起こされた位相シフトは画像検出器のところまで値を保つべきである。しかし干渉法による位相コントラストイメージングでは、物体波がアナライザにより動力学的回折を受ける。動力学回折理論によれば、正確にブラッグ回折条件を満たして結晶に入射するX線は格子面に平行に伝播するが、試料による屈折のために $\Delta\theta$ だけブラッグ回折条件からずれた場合には、格子面から $\Delta\theta$ の約1万倍も傾いて伝播する。この結果、試料によって通常は無視できる大きさで屈折されたX線でも、アナライザ裏面から出射する位置が大きくなることになる。これが空間分解能悪化の原因である。

### 3. 高空間分解能型X線干渉計の開発

X線干渉計による空間分解能悪化を防ぐために、新しいタイプのX線干渉計の開発がいくつか試みられてきた。これらの試みは二つに分類することができる。一つはLLL干渉計のアナライザを薄くするというもの[5]、もう一つはBraggケースの反射を利用するものである。

既に述べたように、LLL干渉計における空間分解能悪化の原因は、試料で僅かに屈折したX線でもアナライザ裏面からの出射位置が、正規の位置から大きくずれることであるから、アナライザを薄くすれば空間分解能悪化を抑制することが可能である。このタイプの干渉計として最初に開発されたものはアナライザの中心部分のみをエッチングにより薄くすることにより、干渉計としての機械的安定性と高空間分解能を両立させるというものであった[5]。しかし、エッチングのみでアナライザを薄くすると結晶表面の滑らかさが損なわれ、それが画質に影響を与えてしまった。このため、この干渉計を用いて位相マップ計測を行うことはできなかった。

これに対してBraggケースの反射を利用する方法とは、アナライザの反射をBraggケースにして物体波と参照波を重ね合わせるというものである。Laueケースと異なりBraggケースでは、アナライザに物体波が入射する面と出射する面が同じになる。このため、空間分解能悪化を原理的に防ぐことができる。このタイプの干渉計として3波回折型干渉計が開発された[6, 7]。しかし3波回折の角度幅は非常に狭いため、結晶表面のわずかな粗さが画質に大きく影響を与えた。このため、このタイプの干渉計もまた位相マップ計測に用いることができなかった。

今回、我々は新たに2種類のX線干渉計を開発した。一つはアナライザの中心部分のみではなく全体を薄くしたLLL干渉計であり、もう一つは2波回折のBraggケースを用いるBBB干渉計[8]である(図1(b))。これらの干渉計を用いて、位相マップ計測および生体試料のマイクロ位相トモグラフィを初めて行うことに成功したので、これについて報告を行う。

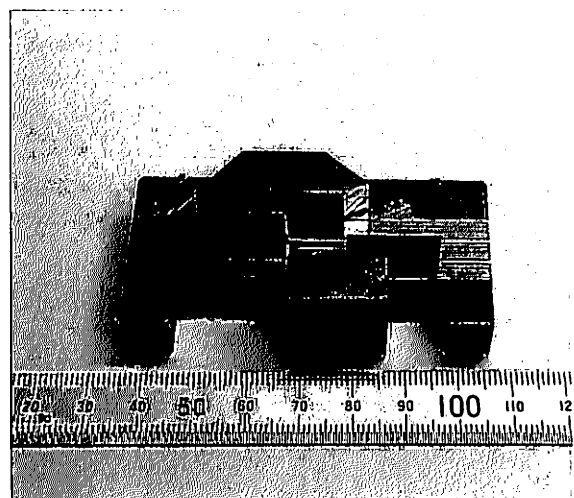


図2. 作製したBBB干渉計。

#### 4. BBB 干渉計による位相マップ計測

まず、BBB 干渉計による結果を紹介する。BBB 干渉計はスプリッタ、ミラー、アナライザにそれぞれ Bragg ケースの2波回折を用いる X 線干渉計である。3波回折に比べると2波回折の角度幅は広く、それに直交する方向では実質制限はない。したがって、結晶表面の粗さが画質に与える影響は小さい。これにより良好な画質を得られることが期待される。図2に我々が作成した BBB 干渉計の写真を示す。干渉計に用いた反射面は Si(440)、スプリッタおよびアナライザの厚さは250 $\mu\text{m}$  である。

我々は PF BL-14B において、この干渉計のテストを行った。入射 X 線の波長は0.71 $\text{\AA}$ 、干渉計の上流に X 線の発散を小さくするために、非対称角8.5度の Si(220)非対称結晶を配置した。画像検出器としてピクセルサイズ16.7 $\mu\text{m}$  × 14.7 $\mu\text{m}$  に調整された X 線用サチコン管を使用した。得られた干渉図形を図3に示す。露光時間は170秒、サイズは3.7mm × 8.0mm であった。干渉図形下部における干渉縞の visibility は47%、上部における visibility は20%であった。我々はさらに、この干渉計を用いて位相マップ計測を行った。試料としてクローバーの葉を用い、5枚の干渉図形から縞走査法により位相マップを作成した(図4)。干渉図形一枚あたりの露光時間は170秒、合計の露光時間は約14分である。



図3. BBB 干渉計により得られた干渉図形。



図4. BBB 干渉計により撮影されたクローバーの葉の位相マップ。

#### 5. 40 $\mu\text{m}$ 厚アナライザの LLL 干渉計によるマイクロ位相トモグラフィ

次に、アナライザの薄い LLL 干渉計で得られた結果に移ろう。作製した X 線干渉計の写真を図5に示す。これはアナライザの中心部分のみでなく、全体を均一に薄くしたものである。まず機械的切削によりアナライザを200 $\mu\text{m}$  に加工し、エッチングによって表面加工層を取り除いた。使用したエッチング液は HF, CH<sub>3</sub>COOH, HNO<sub>3</sub> が1:1.5で混合されたもの、エッチング時間は約9分であった。干渉計の反射面は Si(220)、エッチング後のアナライザの厚さは40 $\mu\text{m}$  である。エッチングのみでアナライザを薄く加工する前述したタイプのものとは異なり、あらかじめ機械的切削によりアナライザを薄く加工することにより、エッチング時間を比較的短くすることが可能となり、結果としてアナライザ表面を滑らかに仕上げることができた。

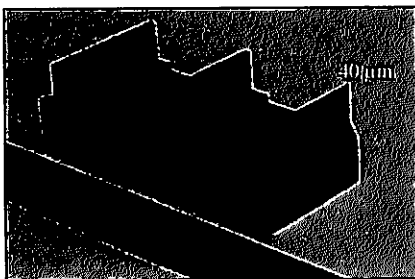


図5. 作製したアナライザ厚 40 $\mu\text{m}$  の LLL 干渉計。

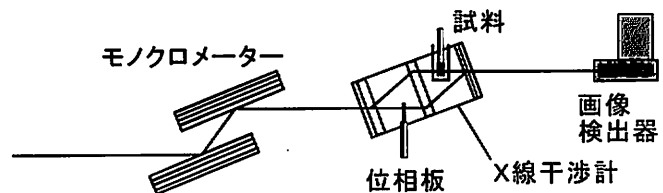


図6. SPring-8 BL20XU における位相トモグラフィの実験配置。



我々はSPring-8 BL20XUにおいてこの干渉計を用いてマイクロ位相トモグラフィを行った。実験配置は図6に示す通りである。ビームラインモノクロメーターに合わせて、鉛直面内で光路が形成される方向に干渉計を設置した。入射 X 線の波長は  $1 \text{ \AA}$ 、画像検出器には蛍光板とレンズが取り付けられた CCD を用いた。ピクセルサイズは  $6.5 \mu\text{m} \times 6.5 \mu\text{m}$  である。試料は回転軸に取り付けて、ホルマリンを満した試料セルに入れた。試料を  $0.72$  度ずつ回転させ、投影方向ごとに5枚の干渉図形を撮影して、縞走査法による位相マップ計測を行った。今回の実験では試料としてウサギの肝臓を用いた。再構成された3次元画像を図7に示す。

## 6. 考察および結論

X線干渉計を用いた高空間分解能の位相マップ計測および位相トモグラフィを目指し、BBB 干渉計およびアナライザ厚  $40 \mu\text{m}$  の LLL 干渉計を開発した。BBB 干渉計では Bragg ケースを用いた干渉計として初めて位相マップ計測に成功した。しかし BBB 干渉計のスループットが小さいため、露光時間が通常の実験条件に比べて約2桁長く、PFでの実験では170秒にもなってしまった。スループット改善のためには、スプリッタおよびアナライザの厚さを最適化すること、非対称ジオメトリを取り入れることなど、BBB 干渉計の改良が必要である。今回は空間分解能に関する定量的な評価は行えなかったが、今後詳しく行う予定である。

アナライザ厚  $40 \mu\text{m}$  の LLL 干渉計では、生体試料のマイクロ位相トモグラフィを実施することができた。アナライザ厚  $1 \text{ mm}$  の LLL 干渉計で同様の試料に対して行った結果[9]と比べ、今回得られた3次元画像では肝小葉が確認でき、肝細胞が層状に配列し周囲の類洞が暗いコントラストで示されているなど、格段に細かい構造まで解像できていることがわかる。本干渉計は既に様々な組織片の観察に使用しており、多くの観察例を蓄積している。ただし、この LLL 干渉計においてもまだ改善の余地があると考えており、より高い空間分解能の画像検出器の使用も含めて、パフォーマンス向上への努力は必要である。

## References

- [1] Bonse U. and Hart M., *Appl. Phys. Lett.* **6** (1965) 155.
- [2] Momose A., *Nucl. Instrum. & Methods A* **352** (1995) 622.
- [3] Gureyev T. E., Raven C., Snigirev A., Snigireva I., and Wilkins S. W., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **32** (1999) 563.
- [4] Cloetens P., Ludwig W., Baruchel J., Van Dyck D., Van Landuyt J., Guigay J. P., and Schlenker M., *Appl. Phys. Lett.* **75** (1999) 2912.
- [5] Hirano K., and Momose A., *Jpn. J. Appl. Phys.* **38** (1999) L1556.
- [6] Fezzaa K., and Lee W. L., *Appl. Crystallogr.* **34** (2001) 166.
- [7] Yoneyama A., Momose A., and Koyama I., *Jpn. J. Appl. Phys.* **41** (2002) L161.
- [8] Bonse U., and Hart M., *Z. Physik.* **194** (1966) 1.
- [9] Momose A., Takeda T., Itai Y., Tu J., and Hirano K., *SPIE Proc.* **2659** (1999) 365.

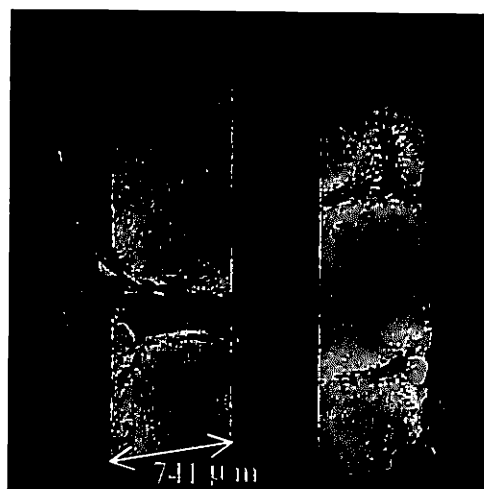


図7. ウサギの肝臓のマイクロ位相トモグラフィ。

# 分離型X線干渉計を用いた大視野位相コントラストX線撮像装置の開発

米山 明男

(株)日立製作所 基礎研究所

## 1. はじめに

X線干渉計を用いた位相計測により、被写体の2元及び3次元像を形成する「位相コントラストX線撮像法」は、従来の吸収コントラスト法に比べて高い感度で生体軟部組織を観察することができる。これまで、一体型X線干渉計<sup>1)</sup>(図1(a))を用いて、ラット小脳の観察<sup>2)</sup>や位相型CT<sup>3)</sup>による軟部組織標本の3次元観察<sup>4)6)</sup>が行われ、造影剤を用いずに内部構造の描出等が可能であることが示されている。しかし、一体型X線干渉計では観察視野が母材となるSiインゴットの直径で制限されるため最大でも30mm角程度であること、また、干渉計の歯と被写体が接近しているために被写体の熱による影響を受けやすい等の問題がある。本研究では、上記課題解決を目的として、2個の結晶ブロックから構成された分離型X線干渉計を用いた大視野の撮像装置の開発を行っている<sup>7-9)</sup>。

## 2. 分離型X線干渉計と専用ステージ

本研究で採用しているSkew-Symmetric結晶分離型X線干渉計<sup>10)</sup>を図1(b)に示す。この分離方式において、結晶ブロック間の相対的な平行移動及びx軸周りの $\kappa$ 回転は、干渉するビーム間の光路差に影響しない。このため、分離することにより新たに制御が必要となる軸はz軸周りの $\theta$ 回転及びy軸周りの $\rho$ 回転で、必要な位置決め精度は各々サブnrad及び10 $\mu$ radである。

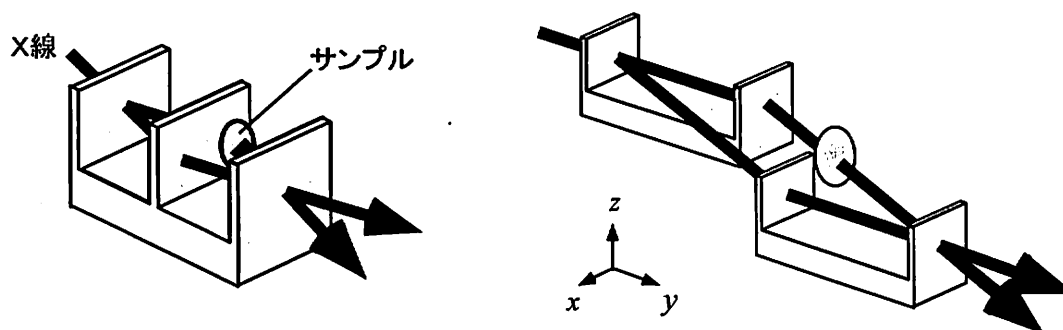


図1 (a)一体型X線干渉計と(b)Skew-Symmetric結晶分離型X線干渉計

図2に本研究で開発したステージの構成を示す。ここでは、 $\theta$ 及び $\rho$ 回転の機能を分離して別ステージ( $\theta$ 回転を調整するS2ステージ及び $\rho$ 回転を調整するチルトステージ)にそれぞれ受け持たせ、干渉計全体の回転を調整するS1ステージ上に搭載することでステージの多段積み重ねによる振動の増加を防いでいる。また、 $\theta$ 回転については、水平面内の回転とすることで床振動の影響の低減を図ると同時に、摺動部分に高剛性の固体すべり機構を用いることで機械共振周波数の向上と共振ゲイ

ンの低減を図り、サブ nrad オーダーの位置決め精度を実現している。

干渉するビーム間の位相差変動  $\Delta\phi$  を生じ撮像の妨げとなる S2 ステージの回転ドリフトは画像フィードバックシステム<sup>11)</sup>により抑制している。このシステムでは、 $\Delta\phi$  が干渉縞の位置変動となって現れることを利用して、(1) 画像検出器で X 線干渉像を検出し、(2) 検出した干渉像の縞の位置と予め取得したオリジナル干渉像の縞の位置とのずれ  $\Delta x$  を算出し、(3)  $\Delta x$  が 0 となるように S2 ステージの回転を制御するというフィードバック処理によりドリフトを抑制し、 $\Delta\phi$  の安定化を図っている。

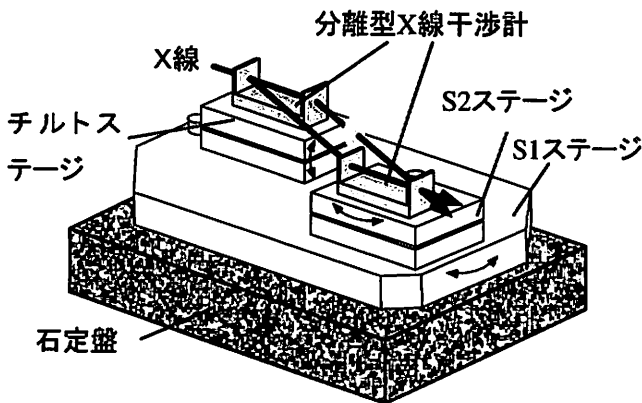


図2 結晶分離型 X 線干渉計用ステージ

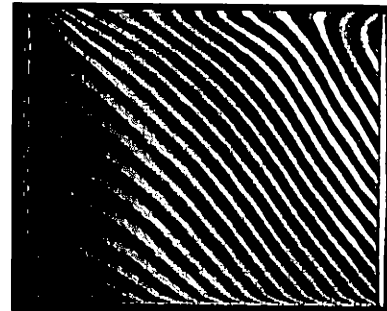


図3 サイズ 25 mm×20 mm の X 線干渉像

### 3. 撮像実験及び結果

放射光を用いたステージの性能評価及び生体試料の撮像実験を PF の BL-14C1 で行った。BL-14 のビームは垂直ウィグラーから放射されるため垂直方向に扇状に広がっており、大面積の単色 X 線ビームを水平面で構成された分光器及び 1 枚の拡大ミラー (非対称結晶) で容易に得ることができる。さらに、水平面で構成された干渉光学系と非常に相性が良いため、大きな強度損失なく上記ビームを利用することができる。

図 3 にエネルギー 17.7 keV の X 線を用いて形成したサイズ 25 mm×20 mm の干渉像を示す。像の検出には CCD 画像検出器<sup>12)</sup>を使用し、露光時間は 5 秒とした。結晶ブロックの歪みによる斜めの干渉縞が現れているが、Visibility は平均して 40 % 程度であり、撮像に十分な値が得られていた。

図 4 には、本装置を用いて取得したラット肝臓スライスの位相分布像 (被写体によって生じた位相シフトの空間分布像) を示す。像の取得には、位相の走査数 5、各干渉像の露光時間 5 秒の縞走査法<sup>13)</sup> (干渉するビーム間の位相差を順次走査しながら干渉像を測定し、測定後に各位相差で得られた干渉像から計算で位相シフトを求める) を用いた。血管内の水と軟部組織の極僅かな密度差により、直径 50 ミクロン程度の血管までみることができる。

図 5 には、ウサギの肝臓切片の位相 CT 像 (3 次元表示) を示す。像はサンプルを回転しながら図 4 と同様の方法で取得した各プロジェクション像から再構成で求めた。被写体の大きさは直径 10 mm、長さ 5 mm である。ガン組織と正常組織の識別や、正常組織内の血管の描出が可能なことがわかる。

今後は、現在開発を進めているより大型の撮像装置 (観察視野 60 mm×30 mm) を用いて、*in vivo* での生体観察や高エネルギー (35 keV) での各種撮像を行う予定である。



図4 ラット肝臓スライスの位相分布像 (サイズ 13 mm×11 mm)

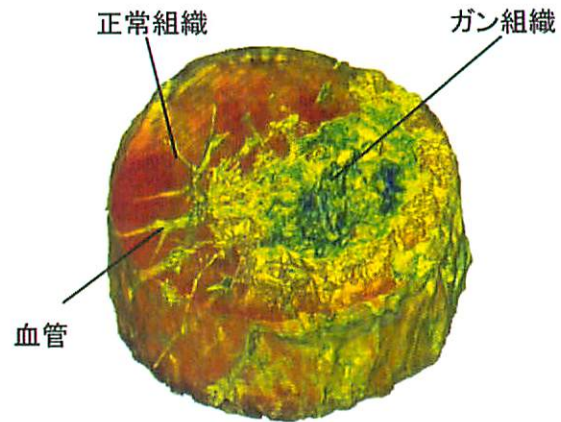


図5 ウサギ肝臓切片の位相CT像

### 謝辞

本研究は文部科学省科学技術振興調整費による「X線位相情報による画像形成とその医療応用に関する研究」の一環として、筑波大学臨床医学系の板井悠二先生、武田徹先生、土屋佳則氏、吳勁氏、Thet-Thet-Lwin 氏、東京大学大学院工学系研究科の百生敦氏、シャランインスツルメンツ (株) の小泉有生氏と共同で行ったものである。また、放射光を用いた実験 (PF 課題番号 99S2-002 及び 2002S2-001) は兵藤一行氏、平野馨一氏の協力のもとに行った。

### 参考文献

- 1) U. Bonse and M. Hart: Appl. Phys. Lett. 6, 155 (1965).
- 2) A. Momose and J. Fukuda: Med. Phys. 22, 375 (1995).
- 3) A. Momose: Nucl. Instrum. Methods, A352, 622 (1995).
- 4) A. Momose T. Takeda, Y. Itai and K. Hirano: Nature Medicine 2, 473 (1996).
- 5) F. Beckman, U. Bonse, F. Busch and O. Gunnewig: J. Comp. Assist. Tomography 21, 539 (1997).
- 6) T. Takeda, A. Momose, K. Hirano, S Haraoka, T. Watanabe and Y. Itai: Radiology, 214, 298 (2000).
- 7) A. Momose, A. Yoneyama and K. Hirano: J. Synchrotron Rad. 4, 311 (1997).
- 8) A. Yoneyama, A. Momose, E. Seya, K. Hirano, T. Takeda and Y. Itai: Rev. Sci. Inst. 70, 4582 (1999).
- 9) A. Yoneyama, A. Momose, I. Koyama, E. Seya, T. Takeda, Y. Itai, K. Hirano and K. Hyoudo: J. Synchrotron Rad. 9, 277 (2002).
- 10) P. Becker and U. Bonse: J. Appl. Cryst., 7, 593 (1974).
- 11) 米山明男、武田徹、土屋佳則、兵藤一行、百生敦、板井悠二:放射光 第15巻 153 (2002)
- 12) A. Momose, T. Takeda, A. Yoneyama, I Koyama and Y. Itai: Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Research. A 467-468, 917 (2001).
- 13) M. Takeda, H. Ina and S. Kobayashi: J. Opt. Soc. Am. 72, 156 (1982).

## X線干渉計を用いた生体イメージングの試み

武田 徹、\*米山明男、呉 勁、土屋佳則、Thet-Thet-Lwin、\*\*百生 敦、  
\*\*\*兵藤一行、\*\*\*平野馨一、板井悠二

筑波大学臨床医学系、\*日立製作所基礎研究所、\*\*東京大学大学院工学系研究科、  
\*\*\*高エネルギー加速器研究機構

### 1. はじめに

Roentgen が 1895 年に X 線を発見してから、X 線は生体内の状態を画像として描き出す重要な手法として医療の場で広く用いられている。これまでの X 線画像は、被射体を透過した X 線の吸収差を捉えて形成されてきた[1-2]。しかし、1994 年頃より X 線の屈折を捉えた画像化が、15keV 以上の高エネルギー領域で行われるようになってきた。これは、生体を構成している H, C, N, O 等の原子 1 個に対する感度が、屈折を捉える手法を用いると透過信号より 1000 倍ほど高くなり、生体軟部組織の微妙な構造変化を造影剤等を用いず画像化する事ができるからである[3-13]。

我々は、干渉計を用いた位相型 X 線イメージングを 1994 年から開始した。初期には、小さな干渉計しか利用できず撮影可能な視野サイズが 5mm 角しかなかった。しかし、干渉計を用いた位相型 X 線 CT 技術が開発され[14]、ホルマリン固定のウサギ肝臓癌の詳細なイメージングに成功してから世界中で本法が注目されるようになった[6]。1997 年より文部科学省（旧科学技術庁）振興調整費の補助を受け、干渉計を用いた 25mm 角の視野が得られるようになり大型試料撮影が可能になった。本論文では、位相型 X 線イメージング研究の現状を紹介する。

### 2. 位相 X 線イメージング

#### a) 位相 X 線 CT

大型一体型 X 線干渉計システム[15] (図 1) で、直径 10-15mm の癌組織の位相 X 線 CT 画像を得ている。撮影時の X 線エネルギーは 17.7 -35keV である。癌の部位が正常組織に比べ屈折率が低く被膜が高い屈折率として描出され、我々の初期の報告と同じ結果である[10, 11]。また、ホルマリン非固定標本の撮影にも成功しており、癌の性状はホルマリン固定のものと同様であった[16]。径の大きな試料を撮影するためには、試料による X 線の吸収が問題となるため、高い X 線エネルギー 35 keV 程度での撮影を行っている。

#### b) 位相 X 線血管イメージング

本法は軽元素で構成される物質に対し非常に高感度なので、従来のように原子番号の高いヨウ素化合物を用いる必要がない。そこで目的の血管のイメージングを行うため位相 X 線画像に適した新たな造影物質の検索を行った。造影物質として生体に全く害の無い生理食塩水を用いても、肝臓に対し高いコントラストが得られる事が判明したので、実際にラットの門脈から生理食塩水を注入し、17.7 keV の X 線エネルギーで摘出肝を撮影したところ 0.03mm の肝内血管を描出する事ができた[17] (図 2)。2001 年夏に分離型干渉計[18,19]を用い、生理食塩水で生きたラットの肝臓内血管の

画像化に成功した。生理食塩水が、門脈から肝静脈へと移行していく様子が観察できた[20]。

### c) 位相 X 線マモグラフィー

本法で最初に臨床応用可能な分野として位相 X 線マモグラフィーが考えられ、従来の乳腺撮影とほぼ同じ 17.7 keV のエネルギーで位相イメージングを行った。しかし、この低エネルギー撮影では、干渉縞の間隔が狭くなるため複雑な構造体では干渉縞が重なり合い画像再構成が出来ない事が非常に多かった。この問題を解決するため高エネルギーでの撮影を試みた。これまでの 17.7keV から 35keV に X 線エネルギーを上げ画像収集を行い、画像再構成がほぼ 100%可能となって来た。また、画質も良好で、臨床検査で使用するマモグラフィー装置で撮影した透過 X 線画像 よりも高コントラストな画像が得られている (図 3)。現在、干渉計を使用しない種々の位相イメージング法を用いて乳腺撮影の研究が行われている[21]。これらの手法は、周囲の構造に対して吸収の差が大きい石灰化病変や脂肪組織内の軟部組織構造を明瞭に描出できるが、軟部組織内の微妙な変化を捉える事には成功していない。しかし、干渉計法では、他の手法では難しい微妙な軟部組織構造を描出することが出来るようである。

## 4. 現在の問題点と将来展望

一体型干渉計システムを用いた実験で、35keV の X 線エネルギーで画像収集が可能となって来た。しかし、高 X 線エネルギー化に伴い干渉計で得られるヴィジビリティが 10-30%に低下した。実際には、まずまずの画質の画像が得られているが、画像のコントラストは理想的な状態からするとかなり低下している。また、視野も回折角が小さくなるため 35keV では 17.7keV の約半分になってしまった。これらの問題を克服し、複雑な構造体を常に鮮明な画像として得るため、より良いヴィジビリティと大視野が得られる大型一体型干渉計をいかに作製するか現在検討しているところである。

現在使用している CCD 撮像装置は、光学レンズを用いているため CCD への集光効率が低く、且つ画像データの計算機への転送が 1.8 秒と遅く短時間での画像収集が難しい。短時間でのデータ収集ができれば、動画画像や短時間での CT 撮像ができ、本手法の応用範囲がさらに広がるものと考えられる。

## 5. まとめ

干渉計を用いた位相型 X 線イメージング開発の現状と得られた結果を紹介した。この技術が、21 世紀の新しい X 線画像技術として利用される事を期待している。

### [文献]

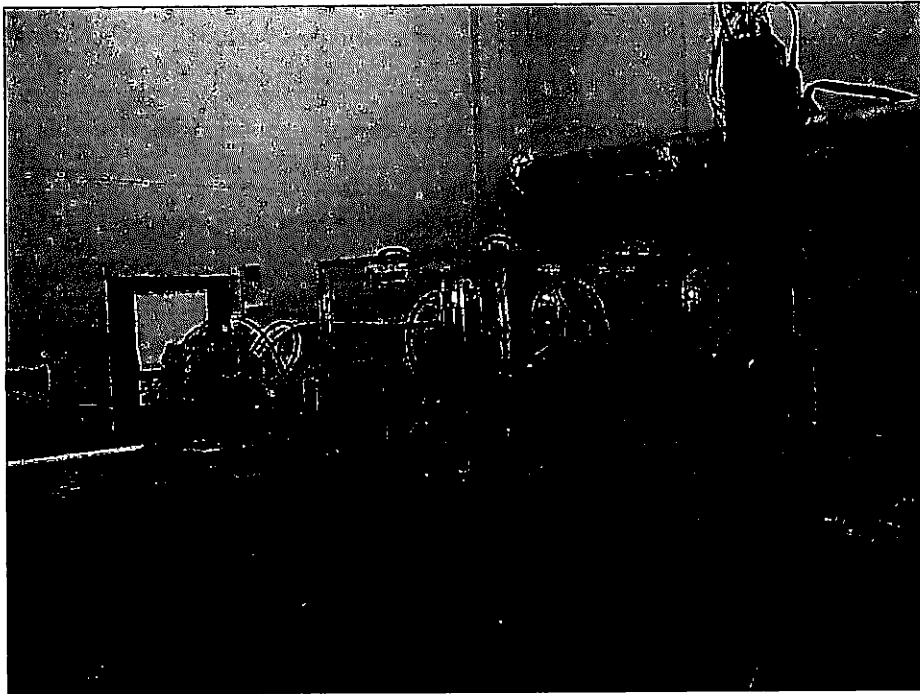
1. Takeda T, Itai Y.: X-ray micro-computed tomography using synchrotron radiation.  
Edited by Kirkham N, Lemoine NR, Progress in Pathology. p81-102,  
Greenwich Medical Media Ltd. UK, 2001
2. 武田 徹、板井悠二：種々の物理原理を用いた新しい放射光のイメージング  
断層映像研究会雑誌 28:69-78, 2001

3. Momose A, Fukuda J.: Phase-contrast radiographs of nonstained rat cerebellar specimen.  
Med. Phy. 22: 375-379, 1995
4. Takeda T, Momose A, Itai Y.: Phase-contrast imaging with synchrotron x-rays for cancer lesion. Acad.  
Radiol. 2: 799-803, 1995
5. Momose A, Takeda T, Itai Y.: Phase-contrast x-ray computed tomography for observing biological  
specimens and organic materials. Rev. Sci. Instrum. 66: 1434-1436, 1995
6. Momose A, Takeda T, Itai Y, et.al.: Phase-contrast x-ray computed tomography for observing biological  
soft tissues. Nature Medicine 2: 473-475, 1996
7. 百生敦 : X線位相コントラスト法による生体組織のイメージング。pp101-117 共立出版 2000
8. Takeda T, Momose A, Yu Q, et.al.: New types of x-ray computed tomography with synchrotron radiation :  
fluorescent x-ray CT and phase-contrast x-ray CT with interferometer.  
Cellular & Molecular Biology 46: 1077-1088, 2000
9. Beckmann F, Bonse U, Busch F, et al. X-ray microtomography (mCT) using phase contrast for the  
investigation of organic matter. J. Computer Assisted Tomography 21: 539-553, 1997
10. Takeda T, Momose A, Ueno E, et.al.: Phase-contrast x-ray CT image of breast tumor..  
J. Synchrotron Rad. 5: 1133-1135, 1998
11. Takeda T, Momose A, Hirano K, et.al.: Human carcinoma: Early experience with phase-contrast x-ray CT  
with synchrotron radiation-Comparative specimen study with optical microscopy. Radiology 214: 298-301,  
2000
12. Momose A, Takeda T, Itai Y, et.al.: Phase-contrast tomographic imaging using an x-ray interferometer.  
J. Synchrotron Rad. 5: 309-314, 1998
13. Momose A, Takeda T, Yoneyama A, et.al.: Phase-contrast x-ray imaging using an x-ray interferometer for  
biological imaging. Analytical Science S17:i527-530, 2001
14. Momose A: Demonstration of phase-contrast X-ray computed tomography using an X-ray interferometer.  
Nucl. Instrum. Meth. A352: 622-628, 1995
15. Takeda T, Momose A, Wu J, et.al.: Phase-contrast x-ray computed tomography of non-formalin fixed  
biological objects. Nucl. Instrum. Meth. A467-468:1322-1325, 2001
16. Takeda T, Momose A, Yu Q, et.al.: Phase-contrast x-ray imaging with a large monolithic x-ray  
interferometer. J. Synchrotron Rad. 7: 280-282, 2000
17. Takeda T, Momose A, Wu J, et. al.: Vessel imaging by interferometric phase-contrast x-ray technique.  
Circulation 105:1708-1712, 2002
18. Yoneyama A, Momose A, Seya E, et.al.: Operation of a separated-type x-ray interferometer for phase-  
contrast imaging. Rev. Sci. Instrum. 70: 4582-4586, 1999
19. Yoneyama A, Momose A, Koyama I, et.al.: Large-area phase-contrast imaging system using two-crystal x-  
ray interferometer. J. Synchrotron Rad. submit.
20. 武田 徹、米山明男、呉 勁、他。生理食塩水による生きたラットの位相型X線血管造影。  
第15回放射光学学会抄録 p142, 2002
21. Pisano ED, Johnston RE, Chapman D, et. al.: Human breast cancer specimens: Diffraction-enhanced

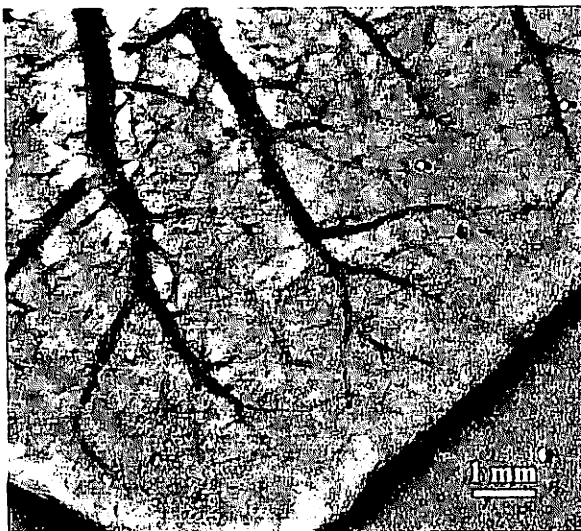


imaging with histologic correlation- improved conspicuity of lesion detail compared with digital radiography. Radiology 214: 895-901, 2000.

**Figures**



**Fig.1** Picture of phase-contrast x-ray imaging system with monolithic x-ray interferometer



**Fig.2** Vessel imaging of rat liver obtained by phase-contrast x-ray imaging



**Fig.3** Phase map of breast specimen obtained at 35 keV x-ray energy



## X線干渉を利用した原子像の再構成

東大物性研

高橋敏男、隅谷和嗣、草野修治

一般に、X線などの回折散乱実験では、強度を測定するために回折散乱波のもつ位相情報は失われてしまう。もし、それらの位相情報を求めることができれば、X線回折散乱の実験データをフーリエ変換することにより電子密度分布あるいは原子位置を求めることができる。したがって、構造モデルを仮定することなく実験データから直接的に構造が求められることになる。10年以上前から研究の進められている光電子などのホログラフィ[1-3]は、そのようなことのできる方法の1つのである。ここでは、表面X線回折法で得たデータから表面原子を3次元的に再構成する試み[4]を紹介するとともに、蛍光X線を利用した原子分解能をもつホログラフィ[5,6]を用いて得た結果についても触れる。

### 1) CTR散乱による表面界面原子の3次元電子密度分布

最近、我々は表面X線回折におけるCTR散乱をホログラフィの観点から解釈を試みた。図1に示すように、CTR散乱は、構造の既知である基板結晶からの散乱波と未知の表面構造からの散乱波の干渉としてその振幅は与えられる。ここで、既知である基板結晶からの散乱波は、計算によりその波の位相も振幅の絶対値も知ることができるので、これを参照波と見なすことができる。したがって、光電子ホログラフィで知られているのと同じようなフーリエ変換の手続きにより、表面原子像をモデルを仮定することなく3次元的に再構成できることになる。しかも、この方法では、参照波として計算値を用いることができるので、参照波の強度ではなく振幅でデータを規格化できる。このため、原理的には再構成された像には電子密度分布の情報が含まれる。

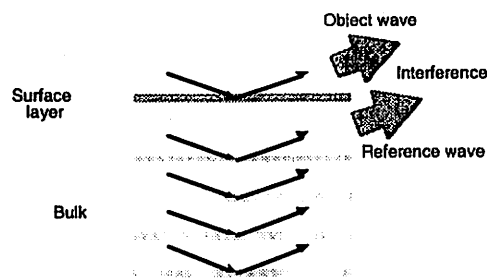


図1：CTR散乱

X線回折法では、通常、適当な構造モデルを仮定して回折強度を計算し、実験結果と比較して両者の一致がよくなるまで適当な構造モデルを試すことになる。このため、この方法で初期構造モデルを絞り込むことができれば、その先は従来通りの方法を利用して構造の精密化を行うことができる。

図2は、この方法でシュミレーションにより得られた結果である。単純立方構造の結晶表面に1×1構造ができていると仮定した計算した。この方法では、基板結晶と表面

原子が同じ場合でも利用できる。原理的には、軽原子が表面構造を形成している場合でも有効である。

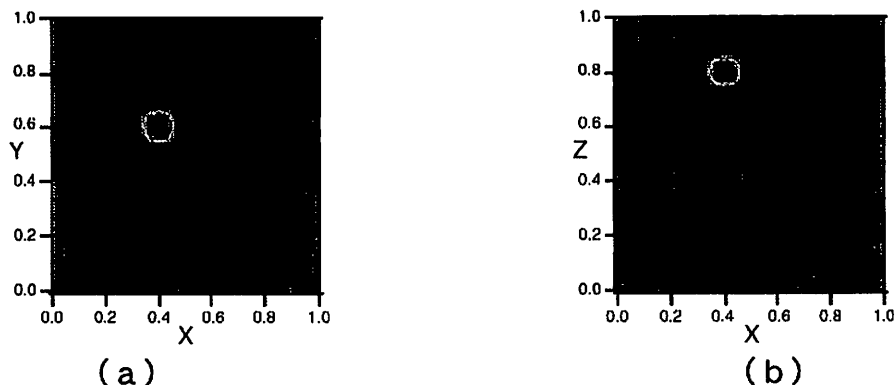


図 2 : 1x1構造をとる表面原子像のシミュレーション。(a)平面図、矩形の大きさは2次元単位格子。(b)側面図。

図 3 は、a-Si/Ge(1ML)/Si(001)を用いてCTR散乱の実験を行い、得られた結果をフーリエ変換して求めた像である[7]。Ge原子がSi原子と置換するように入っていること、さらにはSiのときよりも少し結合距離が長い位置を占めることも分かる。この測定では、逆格子点付近のみの測定を行ったので、ここで得られた結果を初期値として精密化を行うことは困難であるが、さらに逆格子点からも遠い点の測定も行えば精密化も可能である。

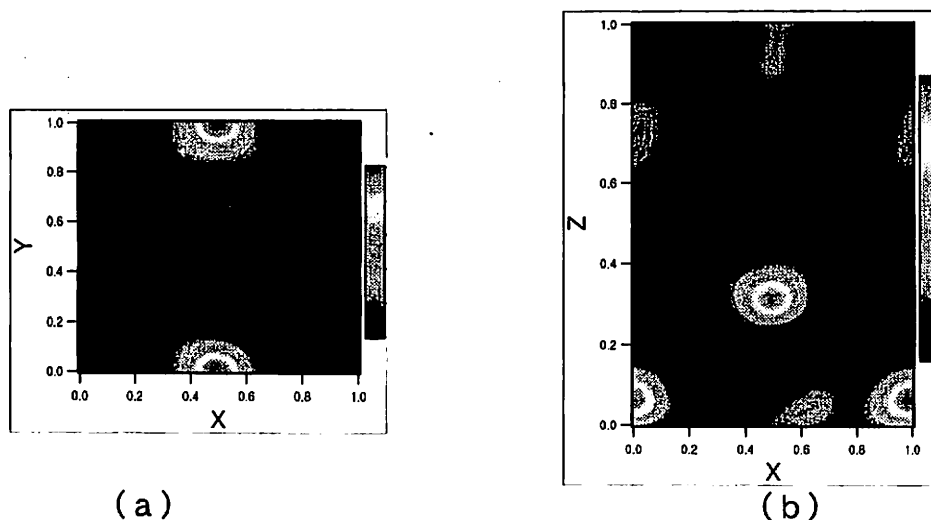


図 3 : a-Si/Ge(1ML)/Si(001)のCTR散乱強度から再構成されたGe原子像。(a)平面図、矩形の大きさは2次元単位格子。(b)側面図。

## 2) 純粋な蛍光X線ホログラフィ

蛍光X線ホログラフィには、よく知られているように互いに相反定理で関係づけられる2つの方法がある[5,6]。しかし実際には、2つの方法で考えている散乱過程は単純に分離することはできず、一般的には2つの散乱過程は混在している。我々は、片方の

過程だけを取り出して測定することを試みた。

蛍光X線ホログラフィでは、ホログラムに相当する干渉パターンのvisibilityが極めて低く、バックグラウンドの引き方で解析結果が左右される。これまで、このような2つの過程の混在はデータ処理過程で片方を除去することでも行われてはいるが、非常に微妙な処理を行うことになる。このため測定の段階であらかじめ片方の過程を除去できれば解析における曖昧さは少なくできる。蛍光X線ホログラフィの特徴の一つであるモデルフリーに構造を決定するという観点からもこのことは重要である。

我々は、まずGeの単結晶を用いてそのような実験を行い装置の性能を評価した。一つの波長による測定でも分解能は0.1Å以下であることと同時にGeの格子定数5.65Åに良く一致する結果が得られた。次に、Si単結晶にGe量子ドットを成長させた後にSiでキャップした試料について測定を行った。図は、4つの波長で測定した結果から再構成された結果である。量子ドット内のGeについては、単結晶の5.65Åとは明らかに異なる値5.51Åを得た。

## References

- [1] A. Szoke, A.I.P. Conference Proceedings 147 (1987) 361.
- [2] G. R. Harp, D. K. Saldin and B. P. Tonner, Phys. Rev. Lett. 65 (1990) 1012
- [3] C. S. Fadley, Surf. Sci. Rep. 19(1993) 231.
- [4] T. Takahashi, K. Sumitani and S. Kusano, Surf. Sci.
- [5] M. Tegze and G. Faigel, Nature 380 (1996) 49.
- [6] T. Gog et al., Phys. Rev. Lett. 76(1996) 3132.
- [7] K. Sumitani, T. Takahashi, S. Nakatani, A. Nojima, O. Sakata and Y. Yoda, S. Koh, T. Irisawa, and Y. Shiraki, to be submitted to Jpn. J. Appl. Phys.
- [8] S. Kusano, S. Nakatani, K. Sumitani, T. Takahashi, Y. Yoda, N. Usami, Y. Shiraki, to be submitted.

# 蛍光 X 線ホログラフィーの電子材料への応用

東北大学金属材料研究所 林 好一

## 1. はじめに

ホログラフィー法は、当初、Gabor が透過電子顕微鏡像の分解能を向上させるために発明した方法である。ほとんどの回折技術が、散乱波の強度に対して感度よく測定できるのに対して、位相に関する情報を求めることが出来ない。Gabor は、電子波や光波を物体に照射した際に生ずる散乱波(物体波)と、散乱されことなく物体を素通りした波(参照波)との間の干渉により強度と位相の情報を同時に記録し、そこから三次元的な物体の構造を導き出すことを提案した。このホログラフィー法により、原子像を再生するには、波長が  $\text{\AA}$  のオーダーの光を用いて、かつ、光源が十分に小さい点である必要がある。1986 年、Szöke により原子から放出される光電子や蛍光 X 線がこの条件を満足していることが指摘され、その後、光電子ホログラフィーや蛍光 X 線ホログラフィー(XFH)が実験的に証明された。XFH の最大の問題点は、ホログラムの振幅がバックグラウンドの 0.1%程度しかなく、その測定が困難なことである。1996 年にハンガリーの Tegze と Faigel が、封入管を用いて初めてその観測に成功したが、統計精度を稼ぐために約 2 ヶ月間データをため続けた。その後、高輝度放射光源の普及もあり、世界中で行われるようになった。特に、ここ数年における測定時間の短縮化や酸素原子の可視化に代表されるデータの高精度化は特筆すべきものがある。本稿では、XFH 法の SiGe 系単結晶・酸化物単結晶への応用を紹介する。

## 2. 原理及び実験装置

XFH は、図 1 に示すよう大きく 2 種類に大別できる。蛍光 X 線を発生する原子を波源として利用する“ノーマル XFH 法”と、結晶内で入射 X 線が X 線定在波との相互作用により強度変化を引き起こした蛍光 X 線を用いてモニターする“インバース XFH 法”である。放射光におけるホログラムの測定は、波長可変である線源の特徴が活かされるインバース法が多く用いられている。インバース法におけるホログラムの測定は、入射 X 線に対する試料方位を連続的に変えて蛍光 X 線強度を測定するものである。放出される蛍光 X 線の全収量を測定することが理想的であるが、現実的に困難であるため、なるべく広い立体角で測定することが望ましい。

ホログラムパターンのバックグラウンドに対する振幅は  $10^{-3}$  程度である。このため、統計精度を 0.1%以下に抑えるためには、一点に対して少なくとも 100 万カウントの蛍光 X 線を検出し、さらに完全なホログラムパターンを得るために数万点の測定が必要である。このため、数時間程度で測定を完了するには

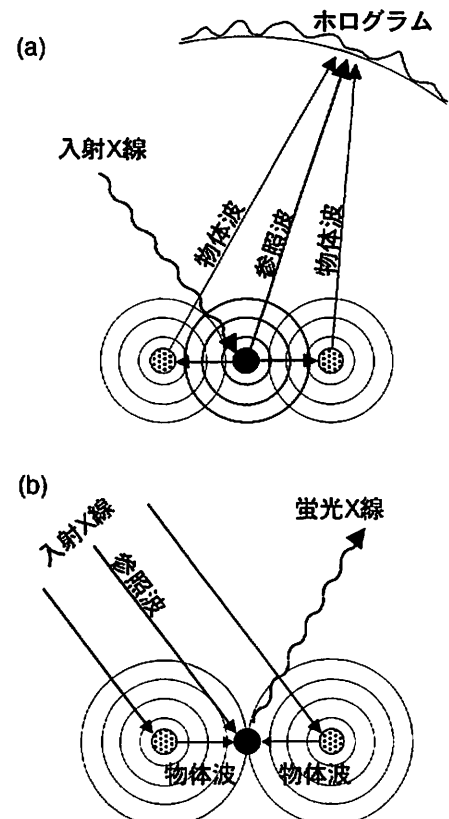


図 1 蛍光 X 線ホログラフィー法の原理。(a): normal 法。(b): inverse 法。

入射 X 線の輝度を上げるとともに検出器の検出効率も向上させることが重要である。高速 X 線検出器の代表的なものとして、アバランシェ・フォトダイオード(APD)があり、 $10^8$ cps での測定を可能とする。しかしながら、エネルギー分解能がないために、円筒状の分光結晶で蛍光 X 線のみを分光し集光する工夫が必要である(図 2)。このようなシステムを用いると、1つのホログラムの測定を数時間程で行うことができる。

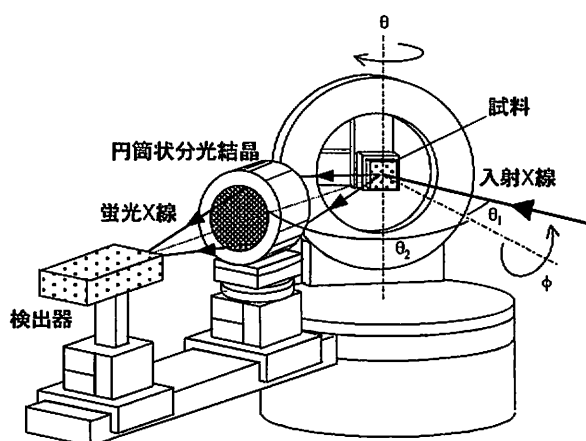


図 2 蛍光 X 線ホログラフィー装置

### 3. 微量不純物の局所構造解析

我々は、チョコラルスキー法で成長させた  $\text{Si}_{0.999}\text{Ge}_{0.001}$  を試料に用いて、Ge の XFH の実験を行った。測定には、図 2 に示す SPring-8 の多目的回折計を用いた。実験は、SPring8 の BL47XU で行った。用いたエネルギーは、14.5 - 17.0 keV (0.25 keV steps)であり、 $0^\circ \leq \phi \leq 360^\circ$  (0.3° steps)、 $20^\circ \leq \theta_1 \leq 76^\circ$  (1° step)、 $\theta_2 = 45^\circ$  の条件で Ge のホログラムの測定を行った。合計 11 のホログラムを記録している。15.75keV で記録されたホログラムパターンを図 3 に示す。

11 のホログラムから多重エネルギーホログラフィーのアルゴリズムを用いて、Ge の周りの原子像を再生した。図 4 に第 4 近接まで表示した 3 次元原子像を示す。(実際は、第 7 近接原子まで確認されているが、3D 原子像が複雑になるために表示していない。)原子像は、異なる 2 種類のサイトを中心としたダイヤモンド構造が重なったものであることが分かる。このため、Ge が Si に置換しているか、または Ge のクラスターを形成している可能性が示唆されるが、原子像より得られる格子定数が Si バルクのものと近いことと置換していると結論できる。SiGe 系材料は、X 線回折や XAFS などで多く測定されているが、一般的には、Si と Ge がお互いのサイトにランダムに置換することが知られており、上記の結果と矛盾しない。

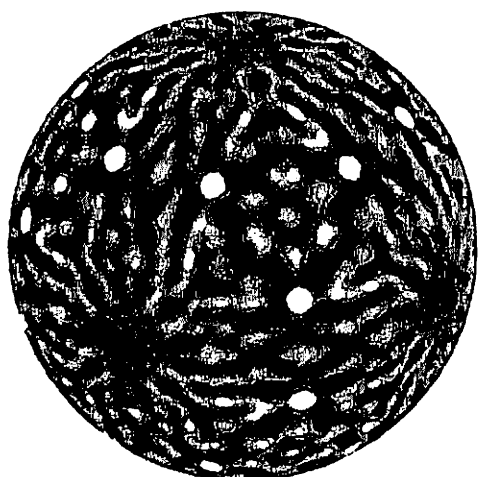


図 3  $\text{Si}_{0.999}\text{Ge}_{0.001}$  の蛍光 X 線ホログラム

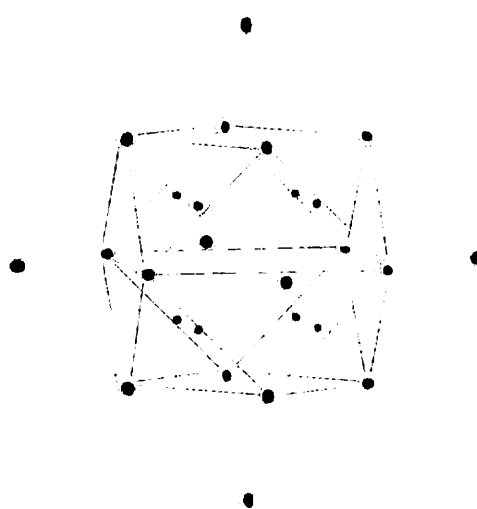


図 4  $\text{Si}_{0.999}\text{Ge}_{0.001}$  の原子像

次に、再生された  $\frac{1}{4}\frac{1}{4}\frac{1}{4}$  原子像(第二近接原子)の強度を半径方向にプロットしたものを、クラスターモデルを用いた計算によるホログラムから再生した原子像のものと図 5 に示す。この時のクラスターモデルは、中心の Ge から第一近接までの Si までの距離を 2.38Å とし、第二近接以遠の Si の位置をバルクの Si 結晶のものと同じにしてある。これは、XAFS 法により  $\text{Si}_{0.994}\text{Ge}_{0.006}$  を測り、Ge-Si の距離が 2.38Å となることが報告されているためである。図 5 の原子像の半値幅は、実験値と計算値でかなり異なるが、ピークの中心位置は 0.01Å 以内の精度で一致し、XAFS の結果とも合う。但し、原子像の半値幅が 0.5Å 以上もあるために、この精度でピークの中心位置が一致したのは偶然である可能性もある。原子像の比較だけではなく、原子位置を求める新たな解析アルゴリズムの開発が重要になると思われる。

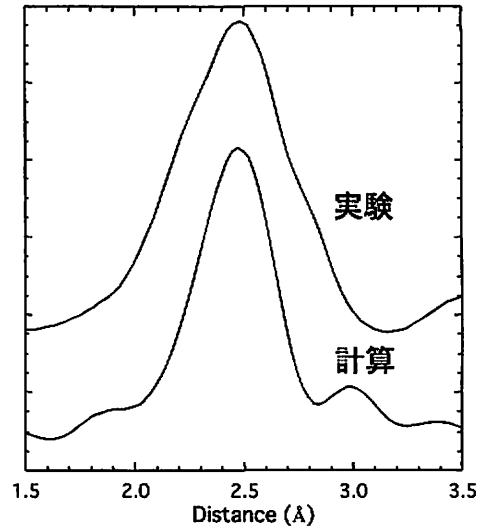


図 5 原子像の動径方向の強度分布。

#### 4. 酸化物超電導体の測定

酸化物超電導体や巨大磁気抵抗などに代表される強相関電子系材料は、その物性が変化する転移温度において、電荷秩序や格子歪みが生じることが分かっている。XFH 法では、特定元素周辺の三次元的な原子位置を評価できるために、特に歪みの評価に有効である。我々は、まず、銅酸化物系の超電導体の局所格子歪みの評価を行うために、銅の蛍光 X 線ホログラムを高率良く測定するための XFH 装置を開発した。開発した装置は、図 2 の円筒状結晶の部分を  $\text{CuK}\alpha$  集光用のトロイダル状グラフィットに置き換えたタイプのものである。本装置を用いて、PF の BL3A で、 $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$  を試料として用い、銅の蛍光を測ることによるホログラム測定を行った。用いたエネルギーは、17.5–20.0 keV (0.5 keV steps) であり、 $0^\circ \leq \phi \leq 360^\circ$  (0.3° steps)、 $20^\circ \leq \theta_1 \leq 70^\circ$  (1° step)、 $\theta_2 = 45^\circ$  の条件で Cu  $\text{K}\alpha$  のホログラムの測定を行った。合計 6 のホログラムを記録している。図 6 は 18.0keV で記録した  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$  の蛍光 X 線ホログラムパターンである。

図 7 は得られたホログラムより再生した原子像である。銅原子の周りの銅やネオジウム原子が明瞭に観測されていることが分かる。今までは、金やゲルマニウム単結晶のような非常に対称性の高い試料を測定したものが殆どであったが、本実験では、対称性の低い試料にも十分適用できることを示している。銅原子の存在する面には、酸素原子も存在するが、ここでは観測されていない。もちろん、原子番号が小さいために再生しにくいことが最も大きな原因であると思われるが、銅原子の最近接原子が酸素であることを考えると幽かにでも見えていて不思議ではない。本試料は、室温で測定したものであるが、酸素原子の揺らぎがもう一つの原因としてあるのではないかと考えられる。試料を冷却した場合のホログラム測定で、原子像どの

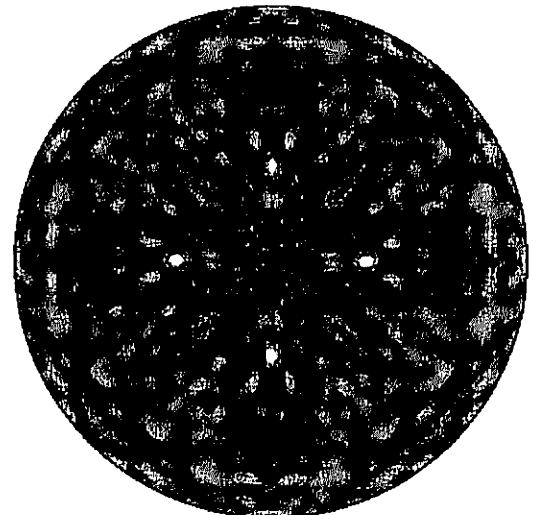


図 6  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$  の蛍光 X 線ホログラム

ように改善されるか興味深い。

## 5. まとめ

本稿では、蛍光 X 線ホログラフィーを用いた応用研究として、 $\text{Si}_{0.999}\text{Ge}_{0.001}$  及び  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$  単結晶の構造解析例について紹介した。 $\text{Si}_{0.999}\text{Ge}_{0.001}$  試料に関しては、ドーパント周辺の Si 原子を第 7 近接まで再生でき、軽元素可視化に向けた大きな進歩と考えている。一方、 $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$  試料においては、ペロブスカイト型の複雑な原子配列を再生させることが出来た。依然として、再生された原子像の位置精度の問題や酸素原子の可視化の問題など、解決すべき課題が多く存在するが、これらの結果は、蛍光 X 線ホログラフィーが実用材料の構造解析に十分なポテンシャルを有していることを示している。

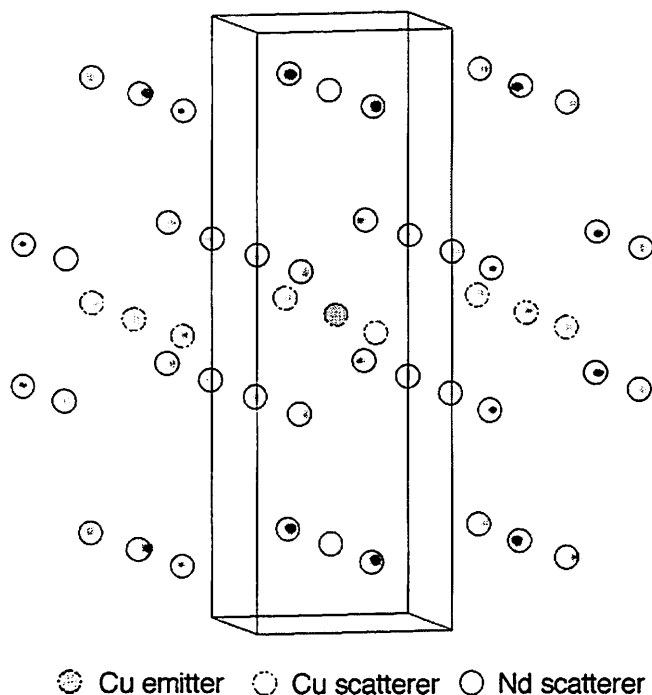


図 7  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$  の原子像

## 謝辞

本稿で紹介した研究の一部は、NEDO と科学研究補助金「特定領域研究 (B)」(課題番号: 12555170) 研究費の補助を受けて実施されたものである。本研究は SPring-8 共同利用実験課題(1999B0121-ND -np) (2000B0216-CD -np)及び高エネルギー加速器研究機構放射光実験施設共同利用実験課題(PF-PAC No.94G365)として行われた。本研究の遂行にあたり、松原英一郎教授(東北大)には多くの御助言を頂いた。高橋幸生氏(東北大)には、ソフトウェアの作成や実験補助などで御協力頂いた。米永一郎助教授(東北大)には  $\text{SiGe}$  単結晶及び薄膜の試料を提供して頂いた。早川慎二郎助教授(広島大)、鈴木基寛氏(JASRI)、鈴木芳生氏(JASRI)、香村芳樹氏(RIKEN)、淡路晃弘氏(JASRI)には、SPring8 での実験で技術的な協力を頂いた。田中雅彦氏(KEK)、森丈春氏(KEK)には、PF での実験で技術的な協力を頂いた。岸本俊二氏(KEK)には APD の件でお世話になった。 $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$  試料は山口博隆博士から提供して頂いた。この場を借りて、深くお礼申し上げます。

# 光学的硬 X 線ホログラフィー顕微鏡の開発

渡辺紀生、青木貞雄 (筑波大学 物理工学系)

## 1. はじめに

エネルギー10 keV 近辺の X 線を用いた顕微鏡光学系の開発は、SPring-8 などの第三代放射光光源の利用開始とともにここ数年で飛躍的に進歩し、様々な光学素子でサブミクロンの分解能を持つようになった。このような硬 X 線領域では、試料を吸収の変化で見ると位相の変化で見た方がはるかにコントラストが良く観察できる。X 線ホログラフィーは試料の吸収と位相変化の両方を同時に結像できること・試料から検出器まで光学素子を必要としないことといった特徴がある。ここでは、SPring-8 BL20XU で行ったゾーンプレートを用いた X 線ホログラフィー実験に関して述べる。

## 2. ガボールホログラフィー

SPring-8 (8GeV, 100mA)、BL20XU は周期長 26 mm, 周期数 173 のリニアアンジュレーターと液体窒素冷却型 2 結晶分光器を持った中尺ビームラインで、光源から下流ハッチの実験位置まで約 250 m 離れている。そのため、比較的広い空間コヒーレンスが得られるという特徴がある。本研究ではこのビームラインを用いてエネルギー10 keV の X 線で実験を行った。

図1にガボールホログラフィーの光学系を示す。この光学系では、ゾーンプレートの集光点からの発散光で試料を検出器面上に拡大投影する。検出器には、ビームモニター2 (浜松ホトニクス、P43 蛍光板、6.35  $\mu\text{m}/\text{pixel}$ 、C4880 CCD カメラ) を用いた。ゾーンプレートの最外輪帯幅は表1に示すように 0.1  $\mu\text{m}$  なのでゾーンプレート自体の理論的分解能は 0.12  $\mu\text{m}$  となる。フロントエンドスリット (0.2  $\times$  0.2 mm<sup>2</sup>) の幾何光学的像の大きさもこの光学系では 0.12  $\mu\text{m}$  となり、両者のコンボリューションをとると 0.17  $\mu\text{m}$  程度のスポット径が得られる計算となる。拡大投影の倍率が十分大きければこのガボールホログラフィーの分解能はこのスポット径と同程度となることが期待できる。

図2にタンタル製分解能テストパターンのホログラム及び再構成像を示す。ここではビームライン途中の Be 窓などから発生するスペックルノイズ等の影響を減らすために、試料を抜いたホログラムでまず割ってから再構成計算を行っている。図2から線幅 0.2  $\mu\text{m}$  までのパターンを観察す

表1 ゾーンプレートの仕様

Outermost zone width	0.1 $\mu\text{m}$
Diameter	155 $\mu\text{m}$
Number of zones	388
First order focal length (10 keV)	125 mm
Zone material and thickness	Ta 1 $\mu\text{m}$
Substrate thickness	SiN 2 $\mu\text{m}$

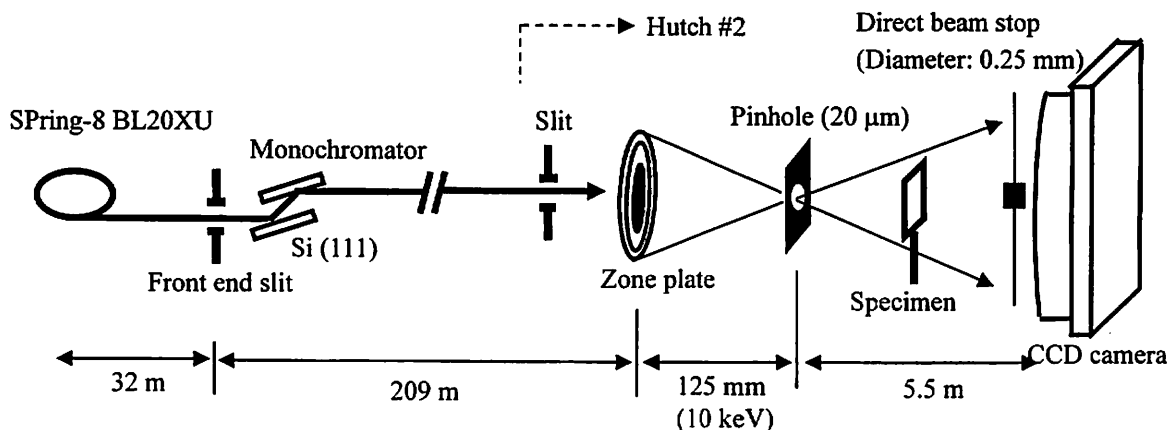


図1 SPring-8 BL20XU における X 線ガボールホログラフィー光学系



ることができており、ほぼ理論的に期待される分解能が得られているといえる。

### 3. レンズレスフーリエ変換ホログラフィー

ゾーンプレートを用いたゾーンプレートをビームスプリッターとした図3の光学系にて、レンズレスフーリエ変換ホログラフィーの実験をX線エネルギー10 keVで行った。ゾーンプレートや検出器などは図1のガボールホログラフィー光学系と同じである。図4にタンタル製分解能テストパターンのホログラム及び再構成像を示す。このテストパターンは各線幅に対して縦横それぞれ8本のパターンがあるが、強度分布の再構成パターン図4(c)では倍の本数が観察できる。このことから、それぞれのラインパターンのエッジが再構成されていると考えられる。これは試料を照明しているダイレクトビームを検出器手前のビームストップで止めていることが原因で、そのため暗視野像に近くなっていると考えられる。しかし図4(d)の位相分布の再構成像ではエッジのみでなくパターン全体を観察することができた。

図5にポリスチレンビーズ(直径2.8  $\mu\text{m}$ 及び0.8  $\mu\text{m}$ )の再構成像を示す。位相分布再構成像では直径0.8  $\mu\text{m}$ のポリスチレンビーズも再構成して結像させることができた。

### 4. ゾーンプレートを2枚用いた干渉実験

図3に示したレンズレスフーリエ変換ホログラフィー光学系では、ダイレクトビームを再構成に用いることが出来ないため完全には試料の振幅透過率を再構成することができない。

ダイレクトビームも含めたホログラムを記録するために、図6に示す2枚のゾーンプレートをを用いた干渉計を作成しテストした。この光学系では図1で示したガボールホログラフィー光学系に参照波をのせる形であるため、このガボールホログラフィーと同じ分解能で双子像の重ならない再構成像が得られると期待される。現段階では、試料を入れない状態で図7のようなゾーンプレートの2つの集光点からの干渉パターンの記録に成功している。

おわりに

なお、本研究の成果は横須賀泰輝(筑波大)、大東琢治(筑波大)、高野秀和(SPring-8)、竹内晃久

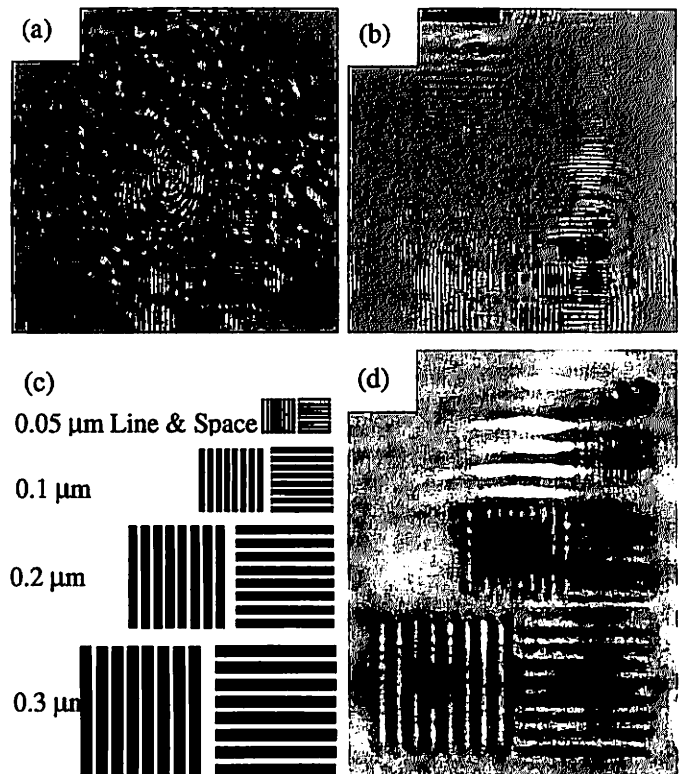


図2 (a) タンタルテストパターンのホログラム(10 keV)一試料を抜いたホログラムで割った結果を対数スケールで表示した。(b) その再構成像、(c)テストパターンの配置図、及び(d) その部分の再構成像の拡大図。0.2  $\mu\text{m}$ 線幅まで識別できている。露光時間：15 s。

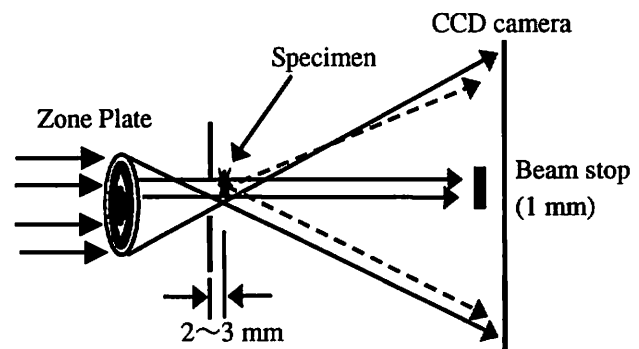


図3 レンズレスフーリエ変換ホログラフィー光学系。

(SPring-8)、鈴木芳生 (SPring-8) の方々との共同研究による。

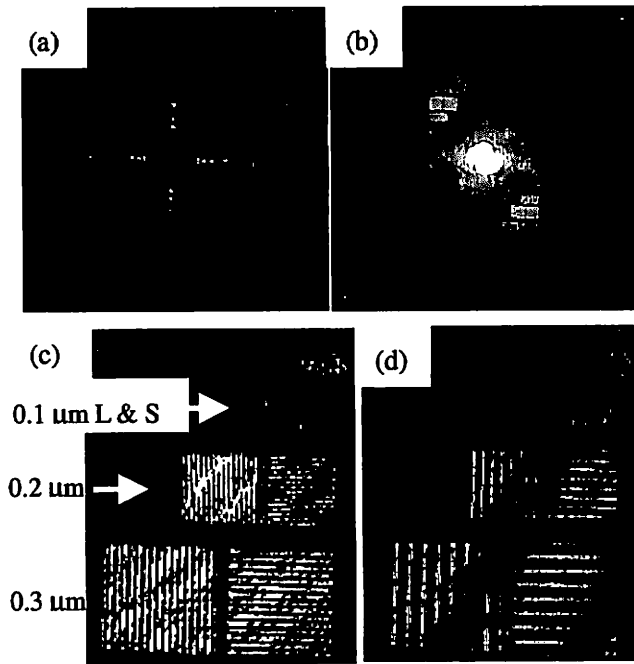


図4 (a) タantalテストパターンのレンズレスフーリエ変換ホログラム(10 keV)、及び (b) その再構成像 (対数スケール表示)。試料手前のピンホールの直径は 50  $\mu\text{m}$ 。 (c) 再構成像の図 2 (c) に対応する部分の強度分布イメージ、及び (d) 位相分布イメージ。位相分布は再構成像の (実数部/振幅) のアークサインを示す。露光時間: 3 min.

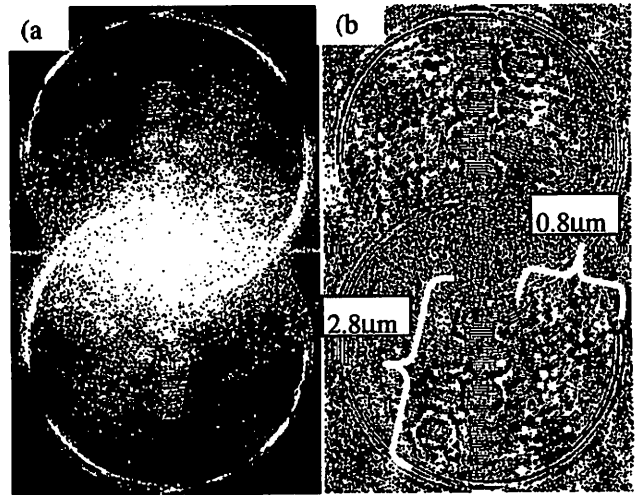


図5 直径 2.8  $\mu\text{m}$  及び 0.8  $\mu\text{m}$  のポリスチレンビーズのレンズレスフーリエ変換ホログラム再構成像(10 keV)。(a) は再構成像の強度分布、(b) は位相分布を示す。試料手前のピンホールは直径 20  $\mu\text{m}$  のものを用いた。露光時間: 80 s.

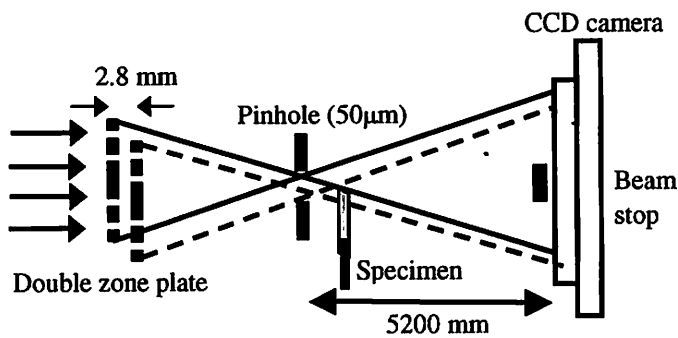


図6 2枚のゾーンプレートを用いた干渉光学系

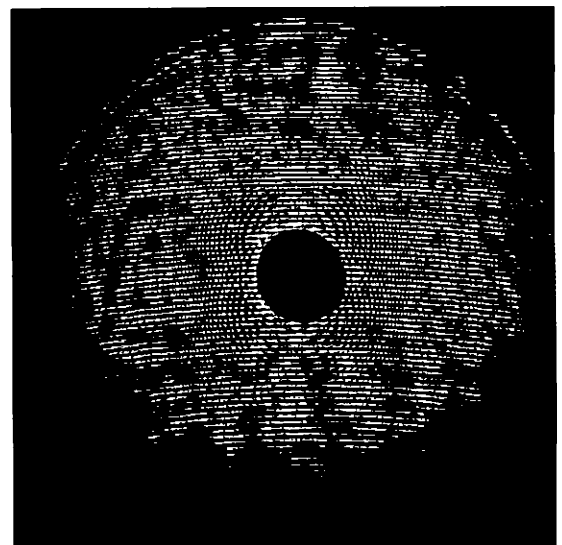


図7 ゾーンプレート焦点間の光軸方向の距離 2.8 mm、下流側焦点の光軸からの距離 10  $\mu\text{m}$  のときの干渉パターン (10 keV)。露光時間: 20 s.

# オーバーサンプリング法を用いた単粒子 X 線回折

西野吉則<sup>1</sup>、石川哲也<sup>1</sup>、Jianwei Miao<sup>2</sup>

<sup>1</sup>SPring-8/理化学研究所、<sup>2</sup>SSRL

## 1 はじめに

X 線は、電子線に比べ透過性が高く、物質内部の観察に有利である。一方において、レンズ等の光学素子の製作が難しいという難点もある。ほとんどの X 線マイクロコピーにおいては、従って、光学素子の性能が空間分解能を決定する。これに反し、回折マイクロコピーは、高精度の光学素子や検出器を要しないため、波長程度の分解能が達成可能である。実際、X 線回折による結晶解析は、原子分解能での構造決定において、これまで多くの成果を上げている。

この X 線結晶解析の手法を、長距離相関のない単粒子試料に拡張する試みが、近年 Miao 等により実現化した [1]。参考文献 [1] では、窒化ケイ素膜上に金粒子 (直径 100nm 程) で作られたパターンの X 線回折強度データ (波長 17Å) から、空間分解能 75nm での二次元像再生に成功した。結晶化が難しい生物試料や、ナノ材料の構造解析への応用が考えられ、非常に有望な手法である。回折マイクロコピーにおいては、位相回復がすなわち構造決定となるが、Miao 等は、オーバーサンプリングした回折強度データから、反復法により位相回復を行なった。

このオーバーサンプリング法の着想には、50 年の歴史がある。標本定理の考察から、回折強度データをオーバーサンプルすることの必要性が、1952 年に Sayre により指摘された [2]。オーバーサンプルされた回折強度データからの位相回復は、Gerchberg と Saxton による反復法の提案と [3]、その後の Fienup による改良によるものである [4]。オーバーサンプリング法を、周期性のない試料のマイクロコピーに応用するアイデアは、より近年になって、Sayre, Chapman, Miao によって提案された [5, 6, 7]。

## 2 硬 X 線領域での単粒子 X 線回折

分解能の向上を目指した、硬 X 線領域での単粒子 X 線回折実験が、現在、SPring-8/理化学研究所と SSRL との共同研究で進められている。ここでは、参考文献 [8] に発表された研究について紹介する。実験は、SPring-8 BL29XU の実験ハッチ 1 で行なわれた。試料には、窒化ケイ素膜の表面および深さ 1  $\mu\text{m}$  の埋め込み層に、電子線リソグラフィーで作られた Ni のパターン (大きさは共に  $2.5 \times 2 \times 0.1 \mu\text{m}^3$ ) が用いられた。各層のパターンは同一で、平面内に互いに  $65^\circ$  回転している。図 1 は SEM で観測された試料像を示す。電子の平均自由行程の短かさのため、表面の Ni パターンは鮮明に見えるものの、1  $\mu\text{m}$  深さの埋め込みパターンはぼんやりとしか見えない。これに対し、図 2 に示すオーバーサンプリング法によって得られた再生像は、表面パターンと埋め込みパターンがオーバーラップして見える。この結果は、オーバーサンプリング法が、より厚い試料のマイクロコピーにも有効である事を示している。なお、回折データは波長 2 Å の X 線によって測定され、図 2 の再生像において 8 nm の空間分解能が実現している。さらに、各層の Ni パターン像を分解するために、三次元フーリエ変換を用いた三次元像の再生を行なった。三次元逆空間での回折データ取得のため、試料を入射光に対して  $-75^\circ$  から  $75^\circ$  まで  $5^\circ$  刻みで回転させ、31 個の二次元回折データを測定した。図 3 には、最終的に得られた三次元の再生像を示す。空間分解能 50 nm が実現し、1  $\mu\text{m}$  離れた表面および埋め込み層のパターンがはっきりと観測できる。トモグラフィー法に比べ、少ない角度点数での二次元データから、三次元像を再現出来た事は注目に値する。

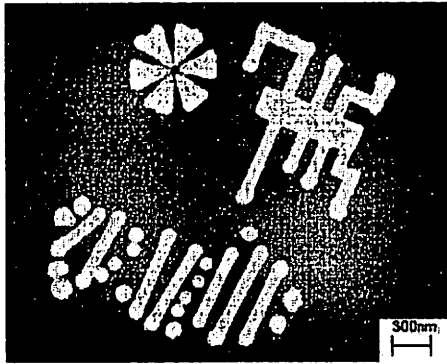


図 1: SEM による Ni パターン試料像 [8]。



図 2: オーバーサンプリング法によって得られた Ni パターン試料の二次元射影像 [8]。



図 3: オーバーサンプリング法によって得られた Ni パターン試料の三次元像 [8]。各軸の単位は 25 nm。



図 4: オーバーサンプリング法によって得られた大腸菌の内部構造 [9]。

さらに、SPring-8 BL29XUでは、応用を視野に入れた実験も始まっている。これまでに、大腸菌の内部構造 [9] や、多孔質シリカ内部の電子密度分布 [10] の観測に成功している。図 4 は、オーバーサンプリング法で得られた大腸菌内部の  $\text{KMoO}_4$  で染色された蛋白質の分布構造を示す。波長  $2 \text{ \AA}$  の X 線を用い、 $25 \text{ nm}$  の空間分解能を実現している。これは、生物試料に対するオーバーサンプリング法の最初の適用例である。今後、オーバーサンプリング法は、生物試料やナノ材料の構造解析に威力を発揮するものと期待している。

### 3 将来の展望 (光源に関して)

単結晶および結晶粉末からの X 線回折は、それぞれ Bragg 点および Debye-Scherrer 環に強く局在したピークを与えるが、単粒子 X 線回折は非常に弱く広い分布パターンを与える。従って、実験においては、この微弱な X 線回折パターンを、いかに精密に測定するかが重要点となる。このため、光源には、大強度コヒーレント光が望まれ、次世代の光源である X 線 FEL に期待が寄せられている。二次元回折データを、X 線 FEL の単パルスで測定する実験のシミュレーションも行なわれており、その可能性が示唆されている [11, 12]。

### 参考文献

- [1] J. Miao, P. Charalambous, J. Kirz, and D. Sayre, *Nature (London)* **400**, 342 (1999).
- [2] D. Sayre, *Acta Crystallogr.* **5**, 843 (1952).
- [3] W. Gerchberg and W. O. Saxton, *Optik (Stuttgart)* **35**, 237 (1972).
- [4] J. R. Fienup, *Appl. Opt.* **21**, 2758 (1982).
- [5] D. Sayre and H. N. Chapman, *Acta Crystallogr.* **A51**, 237 (1995).
- [6] D. Sayre, H. N. Chapman, and J. Miao, *Acta Crystallogr.* **A54**, 232 (1998).
- [7] J. Miao, D. Sayre, and H. N. Chapman, *J. Opt. Soc. Am.* **A15**, 1662 (1998).
- [8] J. Miao, T. Ishikawa, B. Johnson, E. H. Anderson, B. Lai, and K. O. Hodgson, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 088303 (2002).

- [9] J. Miao, K. O. Hodgson, T. Ishikawa, C. A. Larabell, M. A. LeGros, Y. Nishino, Proc. Nat. Acad. Sci. USA, accepted for publication.
- [10] J. Miao, J. E. Amonette, K. O. Hodgson, T. Ishikawa, Y. Nishino, in preparation.
- [11] R. Neutze, R. Wouts, D. van der Spoel, E. Weckert, J. Hajdu, Nature (London) **406**, 752 (2000).
- [12] J. Miao, K. O. Hodgson, and D. Sayre, Proc. Nat. Acad. Sci. USA **98** 6641 (2001).

# ゼルニケ型硬X線位相差顕微鏡による透明試料の観察

籠島 靖 (姫路工業大学大学院理学研究科)

## 1. はじめに

軟X線領域でのゼルニケ型位相差顕微鏡は Schmahl らによって実現されているが[1]、よりエネルギーの高い硬X線を用いた場合、その高い透過力から軟X線では不可能な厚い試料の観察が可能となる。また、軟X線では吸収像でも十分高いコントラストが得られるので、位相差像は吸収像に対する付加的な情報を与えるに過ぎないが(波長によっては被爆線量をかなり低減できるという利点はある)、硬X線ではそもそも吸収コントラストが限りなくゼロに近い場合、吸収像では見えない透明なものを可視化するという、本来の意味での位相差顕微鏡になる。さらに、吸収がほとんど無いことは被爆線量が小さいことを意味しているため、軟X線に比べて低い線量での観察が期待できる。

このような観点から、我々は生体試料のその場観察を目指して SPring-8 の兵庫県ビームライン (BL24XU) において、硬X線ゼルニケ型位相差顕微鏡の開発を進めてきた。これまでに空間分解能約 500 nm の顕微鏡を開発し[2]、生体試料について正負の両コントラストによる位相差像を取得している[3]。さらなる高空間分解能化にも取り組み、100 nm の Line & Space の解像[4]とこの空間分解能での位相差法による透明試料の観察にも成功している[5]。本講演では、硬X線位相差顕微鏡で期待される像のコントラスト、開発した位相差顕微鏡の光学系、性能評価及び実際の試料を観察した例について報告する。

## 2. ゼルニケ型位相差顕微鏡で期待される像のコントラスト

ゼルニケの位相差法の原理は、物体によって生じた位相差を強度差に変換し、透明な物体でも位相差さえ存在すれば可視化することができることである。対物レンズの後側焦平面上には、物体のフーリエスペクトルが現れるが、そこに位相板を置くことにより 0 次のスペクトルのみ位相差を与える。この位相板により 0 次光に与えられる位相差(光路差)は通常  $\pi/2$  ( $\lambda/4$ ) または  $3\pi/2$  ( $3\lambda/4$ ) であり、前者の場合をポジティブコントラスト、後者をネガティブコントラストと呼ぶ。ポジティブコントラストの場合、位相差が大きいほど像が明るく(強度が高く)なり、ネガティブコントラストの場合には逆の関係になる。軟X線領域におけるゼルニケ型位相差顕微鏡に関しては、Rudolph らにより詳しく述べられており[6]、実際に彼らにより初めて軟X線領域での位相差顕微鏡が実現された[1]。我々も独自に硬X線領域において期待される像のコントラストの検討を試みた。詳しい解説は他の文献を参照していただくとして[7]、ここでは理想的な場合、すなわち 0 次光のみに位相差が与えられると仮定した場合の像のコントラスト  $C_p$  を与える式を(1)に示す。

$$C_p = \frac{|I' - I'_b|}{I' + I'_b} = \frac{\left| e^{-\mu t} \left[ 2\{1 - \cos(\phi - \phi_b)\} + e^{\frac{m\beta_p \pi}{\delta_p}} \pm 2 \sin(\phi - \phi_b) \cdot e^{\frac{m\beta_p \pi}{2\delta_p}} \right] - e^{-\mu_b t} \cdot e^{\frac{m\beta_p \pi}{\delta_p}} \right|}{e^{-\mu t} \left[ 2\{1 - \cos(\phi - \phi_b)\} + e^{\frac{m\beta_p \pi}{\delta_p}} \pm 2 \sin(\phi - \phi_b) \cdot e^{\frac{m\beta_p \pi}{2\delta_p}} \right] + e^{-\mu_b t} \cdot e^{\frac{m\beta_p \pi}{\delta_p}}} \quad (1),$$

ここで、複素屈折率を  $n = 1 - \delta - i\beta$  とし、 $\mu$  は線吸収係数、 $\phi - \phi_b = \frac{2\pi}{\lambda}(\delta - \delta_b)t$  はバックグランドを基準とした試料による位相差、 $t$  は試料の厚さである。添え字“b”と“p”はそれぞれ対応する変数がバックグランド及び位相板に対応することを示している。また添え字の無い変数は、試料についてのものである。 $m=1$  で符号が“+”の場合がポジティブコントラスト、 $m=3$  で“-”の場合がネガティブコントラストである。

図1に(1)式を用いて計算した、厚さ 1  $\mu\text{m}$  のタンパク質と厚さ 7  $\mu\text{m}$  のポリスチレン膜が空

気中及び水中に存在する場合の像のコントラストを示す。ここでは、位相板の厚さは全てのエネルギーにおいて $\pi/2$  ( $\lambda/4$ ) または  $3\pi/2$  ( $3\lambda/4$ ) の位相差 (光路差) を与えるものと仮定して計算している。吸収コントラストでは限りなくゼロに近いコントラストしか得られないのに対し、位相コントラストでは十分大きなコントラストが期待できることがわかる。11.9 keV、13.7 keV、14.4 keVにある不連続構造は位相板である金のL吸収端である。金のL<sub>3</sub>吸収端(11.9 keV)直上の12 keVにエネルギーを合わせることで、最も高いコントラストが得られるので、使用エネルギーを12 keVに選定した。

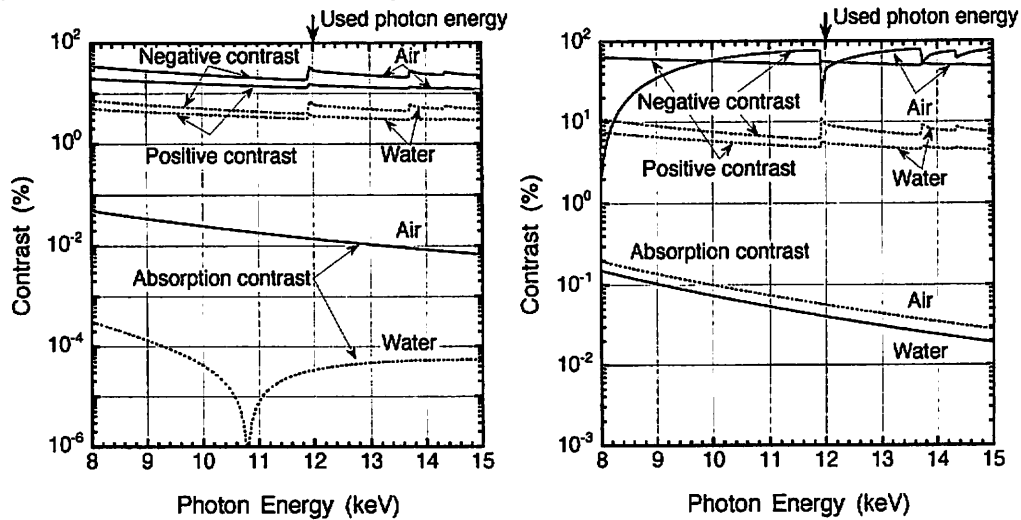


図1. 厚さ1  $\mu\text{m}$  のタンパク質と厚さ7  $\mu\text{m}$  のポリスチレン膜が空气中及び水中に存在する場合の像のコントラスト。

### 3. ゼルニケ型位相差顕微鏡の光学系

開発当初は、光学顕微鏡に倣って集光レンズを用いた臨界照明系による位相差顕微鏡を構築したが [2,3]、高空間分解能化と広視野化を狙った光学系では平行光照明系を用いている [4,5]。いずれの場合も対物レンズにはNTTアドバンステクノロジー社製のタンタル製位相ゾーンプレートを用いている [8]。図2に平行光照明系の光学系を示す。この場合、対物レンズの後側焦平面内の0次回折光 (ダイレクト光) の形状はほぼ光源の縮小像となるので、放射光の光源の形状を反映して横長の楕円となる。しかしながら、光学系の軸対称性を保証するために位相板の形状は円形とすべきであり、実際に円形の位相板を採用している。0次光の大きさは、光線追跡で事前に見積った値と、実際にナイフエッジスキャン法で測定した値がほぼ一致している。図には示していないが、アンジュレータ光の高いコヒーレンシーは、結像顕微鏡では像の擾乱を引き起こし像質を低下させてしまうので、照明系の前にダイヤモンドペースト製の拡散板を挿入可能にしている [5]。

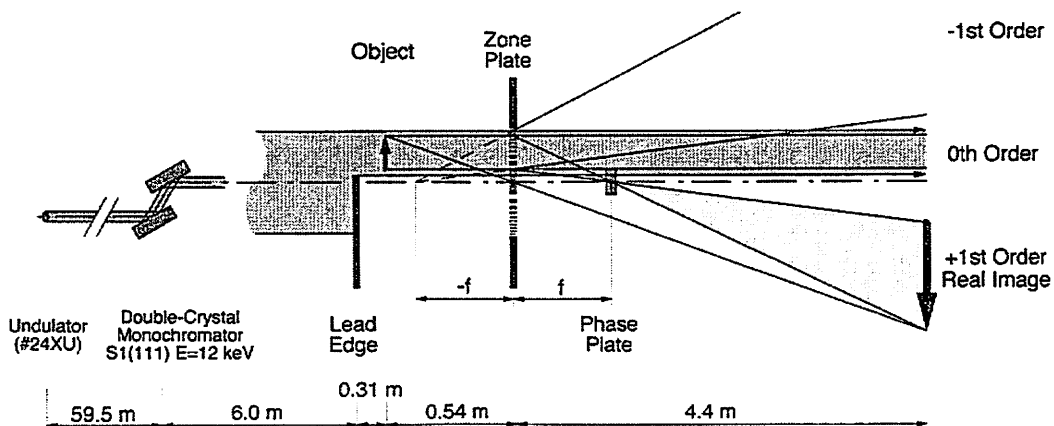


図2. BL24XUにおけるゼルニケ型位相差X線顕微鏡の光学系 (E=12 keV)



#### 4. 性能評価

空間分解能は、エッジ構造の拡大像の強度分布をエラー関数にフィッティングする方法で評価している。図2の光学系では、10 keVにて220 nmという値を得ている[5]。我々の経験では、この方法で定義した空間分解能の約半分弱の Line & Space パターンまで解像できることがわかっており、実際100 nmの Line & Space まで解像できている[4,5]。図3にその結果を示す。12 keVの場合

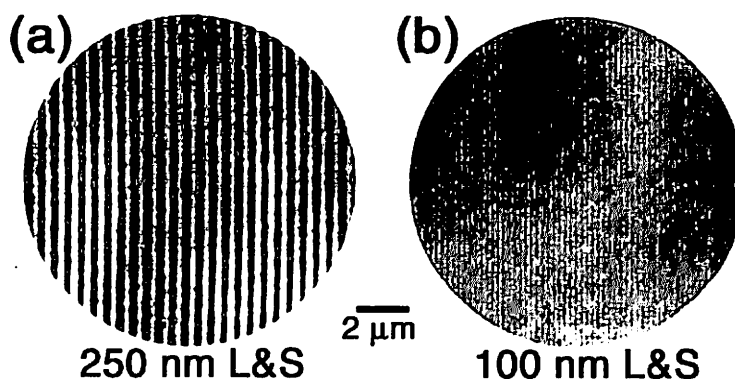


図3. L&S パターンの拡大像 (E=10 keV)

には、倍率の関係で120 nmの Line & Space までの解像に留まっている[9]。尚、最近新たに導入した最外幅50 nmのゾンプレートを用いて60 nmの Line & Space まで解像することに成功した。これは10 keV以上のX線では世界最高の空間分解能である[10]。

#### 5. 位相コントラスト X 線顕微鏡像の例

二種類の位相板(位相差が $\pi/2$ と $3\pi/2$ )を作り、ポジティブコントラスト(PC)像とネガティブコントラスト(NC)像の取得を試みた。 $\pi/2$ 位相板がPC像を $3\pi/2$ 位相板がNC像を与える。X線のエネルギーは、より高いコントラストを得るために、金(位相板)の $L_3$ 吸収端直上の12 keVに合わせた。ゼルニケ法の本質は透明な物体を可視化することである。図4は直径7  $\mu\text{m}$ のポリスチレン微粒子のX線顕微鏡像である。計算上の吸収コントラストの値は12 keVで0.04%である。粒子構造が(b)のPC像と(c)のNC像では明瞭に観察できるのに対し、(a)の吸収像ではほとんど構造が認められない。さらに、PC像とNC像ではコントラストが反転していることがわかる。すなわち、バックグラウンドに対してPC像では粒子が明るく(強度が高く)NC像では粒子が暗く(強度が低く)現れている。また、NC像では粒子の中心部分が明るくなっているのがわかる。

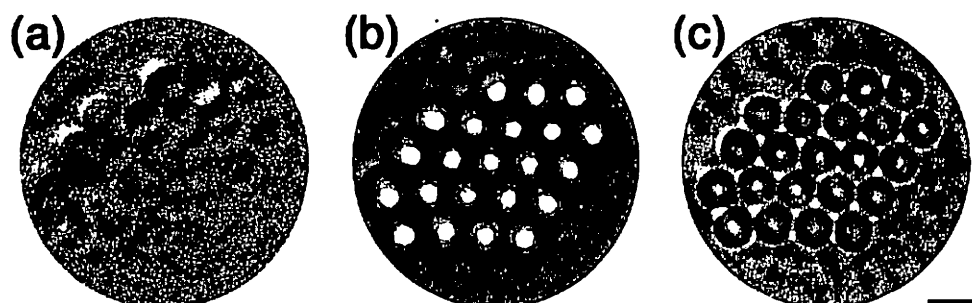


図4. ポリスチレン微粒子のX線顕微鏡像 (@E=12 keV). スケールバーは10  $\mu\text{m}$ .  
(a)吸収コントラスト像、(b)Positive Contrast 像、(c) Negative Contrast 像

#### 6. まとめ

ゼルニケ型のX線位相差顕微鏡を実現し、透明な微小試料の可視化に成功した。10 keVのX線の場合空間分解能は約200 nmであり、100 nmの Line & Space まで解像可能である。12 keVにおいて位相板を選択することにより、正負の両コントラストを得ることに成功した。

ゼルニケ法の欠点は、試料によって生ずる位相差を定量的に評価することが困難なことである。この問題を解決するために、干渉計やトモグラフィーの概念を導入した、新しいX線顕微鏡を考案する必要がある。

## 謝辞

ここで述べた研究は、姫路工業大学大学院理学研究科物質科学専攻 X 線光学講座が中心になって行ったものである。本大学院修了生である伊吹高志君、横山佳行君、在校生の新美敏弘君、小山貴久君、和田いづみさん、講座スタッフの津坂佳幸助手、松井純爾教授に感謝します。また、共同研究者であり本大学院 OB でもある財団法人高輝度光科学研究センターの高井健吾氏に感謝します。

## 参考文献

- [1] G. Schmahl, D. Rudolph, P. Guttman, G. Schneider, J. Thieme and B. Niemann: *Rev. Sci. Instrum.* **66** (1995) 1282.
- [2] Y. Kagoshima, T. Ibuki, K. Takai, Y. Yokoyama, N. Miyamoto, Y. Tsusaka and J. Matsui: *Jpn. J. Appl. Phys.* **39** (2000) L433.
- [3] Y. Kagoshima, T. Ibuki, Y. Yokoyama, Y. Tsusaka, J. Matsui, K. Takai and M. Aino: *Jpn. J. Appl. Phys.* **40** (2001) L1190.
- [4] Y. Kagoshima, T. Ibuki, Y. Yokoyama, K. Takai, Y. Tsusaka and J. Matsui.: *Jpn. J. Appl. Phys.* **41** (2002) 412.
- [5] Y. Kagoshima, Y. Yokoyama, T. Ibuki, T. Niimi, Y. Tsusaka, K. Takai and J. Matsui: *J. Synchrotron Rad.* **9** (2002) 132.
- [6] D. Rudolph, G. Schmahl, B. Niemann, in *Modern Microscopies, Techniques & Applications*, edited by A. Michette & P. Duke, (London, Plenum Press, 1990), p. 59.
- [7] 籠島 靖、横山佳行、新美敏弘、伊吹高志、津坂佳幸、松井純爾、高井健吾、相野公孝、*放射光* 第 15 卷 (2002) 146.
- [8] A. Ozawa, T. Tamamura, T. Ishii, H. Yoshihara, Y. Kagoshima, *Microelectron. Eng.* **35** (1997) 525.
- [9] 横山佳行、姫路工業大学大学院理学研究科 平成 13 年度修士論文.
- [10] Y. Kagoshima, Y. Yokoyama, T. Niimi, T. Koyama, Y. Tsusaka, J. Matsui, K. Takai, submitted to the Proceedings of International conference on X-Ray Microscopy 2002.

# 走査顕微鏡光学系を利用した位相計測

(財) 高輝度光科学研究センター 高野 秀和

## 概要

走査型硬X線顕微鏡光学系を利用した高空間分解位相イメージングについて述べる。試料を透過した集光ビームの回折パターンをすべての走査点において画像検出器で記録し、強度重心の移動量を求めることにより基準点からの位相差を求めることができる。これを利用して位相再構成を行う。SPring-8のアンジュレータービームラインBL20XUにおいて、8 keVのX線を光源としたマイクロビーム光学系を用いた実験及び得られた結果について述べる。

## はじめに

物質におけるX線の位相変化は複素屈折率  $n=1-\delta-i\beta$  を用いて記述される。X線のエネルギーが高いほど、また物質の原子番号が小さいほど一般的に $\delta/\beta$ が大きくなるために、位相変化を利用したイメージングは従来の吸収イメージングに比べて非常に高い感度が期待できる。試料での位相変化の定量は、干渉計<sup>(1)</sup>、ホログラフィ<sup>(2)</sup>を利用した手法などがあり、CT再構成を利用した3次元イメージングにも成功している。しかしながら、これらは基本的に投影光学系であるため、回折による空間分解能の低下が問題となる。軟X線領域では、Zernike位相差顕微鏡<sup>(3)</sup>、暗視野顕微鏡<sup>(4,5)</sup>、微分位相顕微鏡<sup>(6)</sup>など、顕微鏡光学系の位相イメージングへの応用が行われてきており、高い空間分解能での観察が可能となっている。また、Wigner-distribution deconvolution法を用いた位相回復法<sup>(7)</sup>、回折像からの位相回復法<sup>(8)</sup>などの、位相定量の試みもなされている。硬X線領域においては、例えば生物の切片試料などは透過率が高すぎるために、吸収コントラストを用いた観察は基本的に困難である。しかしながら、位相イメージングを利用することによるコントラストの向上がなされれば、大気中、溶液中など様々な雰囲気での観察が非常に容易となるほか、X線による試料の照射損傷を抑える効果等も期待できる。近年の硬X線領域における結像光学系、マイクロビーム光学系等の顕微鏡光学系は急速に開発が進んでおり、サブミクロン～サブ100 nmの高い空間分解能を達成している<sup>(9-11)</sup>。位相イメージングにおいても、Zernike位相差顕微鏡<sup>(12,13)</sup>等で硬X線領域における高分解能観察がなされており、その高感度性が示されている。本研究では、硬X線マイクロビーム走査顕微鏡光学系を用いた高空間分解能位相定量について試みた。SPring-8における全長248 mのビームラインBL20XUを用いて構築されたコヒーレントマイクロ

ビーム光学系、及びそれを用いた実験結果等について述べる。

### 実験光学系

図1に実験光学系の概要を示す。BL20XUはHybrid型X線アンジュレータを光源として有し、液体窒素循環冷却型Si 111二結晶分光器により8~27 keVの硬X線を供給する。分光器直後には仮想光源として用いるための矩形開口(100  $\mu\text{m}$ 、50  $\mu\text{m}$ 、20  $\mu\text{m}$ )及びスリット開口(10  $\mu\text{m}$ )が挿入可能であり、この光源から最下流の実験ハッチ入口まで距離が195 mあるため、高い空間コヒーレンスを有するX線を用いた実験が可能である。

X線集光素子として、フレネルゾーンプレート(FZP)を用いた。ゾーンは厚さ1  $\mu\text{m}$ のタンタルでできており、その最外線幅は100 nmである。FZPの直径は150  $\mu\text{m}$ であり、十分なコヒーレンスで照明するため、50  $\mu\text{m}$ の仮想光源を用いた。直径20  $\mu\text{m}$ のピンホールによってFZPの一次回折による集光ビームのみを選択する。実験では8 keVのX線を用いた。生成したマイクロビームはナイフエッジスキャン法で評価を行い、縦横方向ともに強度半値幅150 nmのサイズが得られている。光学系の最下流には可視光変換型画像検出器を配置した。検出器はP43シンチレーター、光学リレーレンズ、高速読み出し型冷却CCDカメラ(浜松ホトニクス:C4742-98)から構成されており、試料を透過したマイクロビームの回折像を記録する。

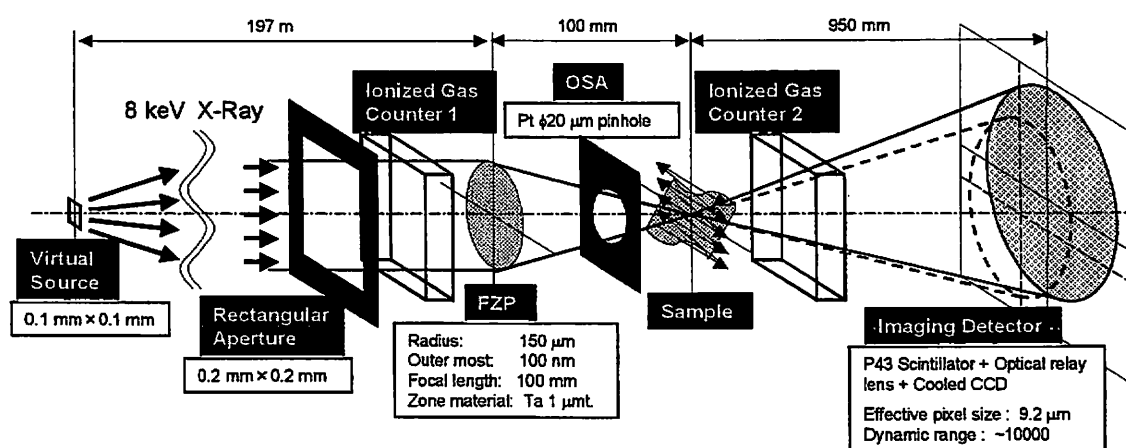


図1 SPring-8、BL20XUを用いたX線マイクロビーム光学系

### 位相定量法

マイクロビームが試料を透過する際、試料の位相勾配に応じてX線の屈折が起こる。一次元系において、ビームサイズ $\Delta x$ に対して試料の位相勾配が $\Delta\phi$ であるとき、その屈折角 $\theta$ はX線の波数 $k$ を用いて、

$$\theta = \frac{1}{k} \left( \frac{d\phi}{dx} \right) \quad (1)$$

として表される。屈折角は画像検出器で検出された回折像の強度重心の移動として観測されるため、試料を走査することにより試料の微分位相マップが得られる。テストチャート（タンタル厚さ 0.5  $\mu\text{m}$ ）を用いて得られた、横、縦方向の微分位相像を図 2(a)、2(b)にそれぞれ示す。これらの像から、ある基準点からの経路積分を行うことにより相対的な位相マップが得られる。再構成した位相像を図 2(c)に示す。位相  $Phase(x,y)$  は、計算の簡略化のため、横、縦方向の微分位相像を  $DX(x,y)$ 、 $DY(x,y)$ （いずれも  $x=0 \sim xn$ 、 $y=0 \sim yn$ ）とし、基準点を  $(0,0)$  としたとき、

$$Phase(x,y) = \left[ \sum_{y=0}^y DY(0,y) + \sum_{x=yn}^x \{-DY(0,y)\} \right] / 2 + \left[ \sum_{x=0}^x \{-DX(x,y)\} + \sum_{x=xn}^x DX(x,y) \right] / 2 \quad (2)$$

として求めた。図 2(c)中に白線で示された場所における位相分布を図 2(d)に示す。厚さ 0.5  $\mu\text{m}$  のタンタルに対する 8 keV の X 線の位相変化は  $0.26\pi$  rad であり、ほぼ理論値に近い位相定量ができていることがわかる。

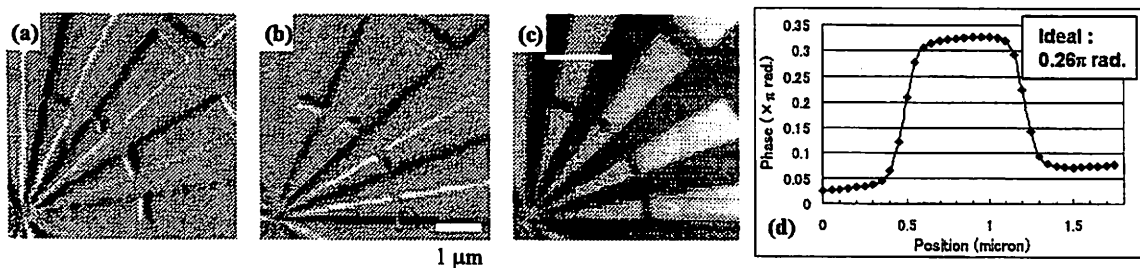


図 2 テストチャート（厚さ 0.5  $\mu\text{m}$  タンタル）の微分位相像及び位相再構成像  
 (a): 微分位相像（横方向）、(b):微分位相像（縦方向）、(c):微分位相像より再構成した位相像。  
 (d):(c)において白線で表示された場所の位相分布。走査速度 6.5 Hz、ステップ 50 nm のラスタースキャンにより得られた。画像の濃度はそれぞれ(a): $0.102\pi$ （白） $\sim -0.105\pi$ （黒）、  
 (b): $0.107\pi$ （白） $\sim -0.110\pi$ （黒）、(c): $0.291\pi$ （白） $\sim -0.175\pi$ （黒）のリニアグレースケール。

### 吸収像との比較

弱吸収物体として、直径 0.5 mm のガラス球を用いた測定を行った。透過率は 8 keV の X 線に対して 99.6%である。図 3 (a)に位相像、図 3(b)にイオンチャン

バー (Air:14 cm) を用いて同時に計測した吸収像を示す。吸収では見ることで見えない球体の重なり具合が明瞭に観察できており、位相像の感度の高さを示している。

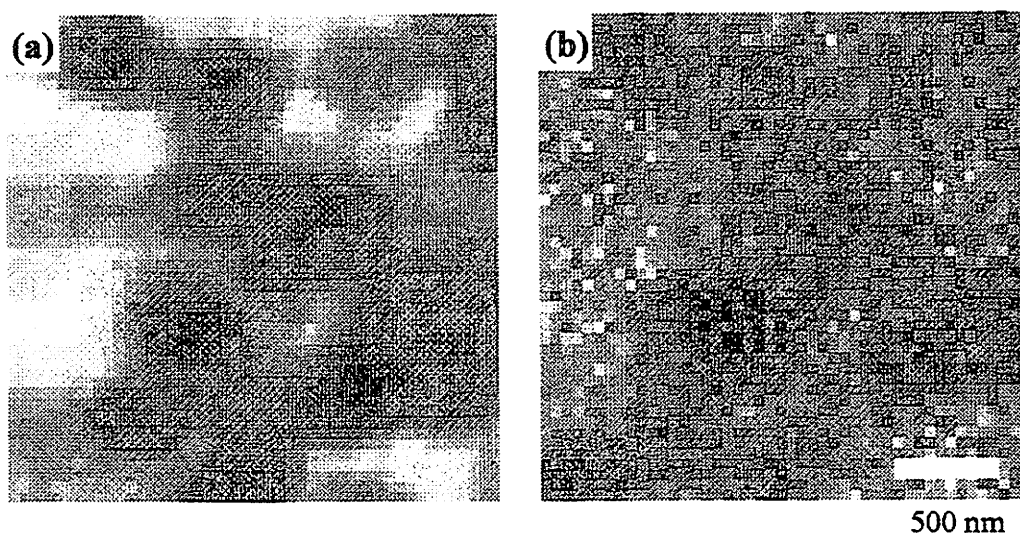


図2 直径 0.5 mm ガラス球の位相像及び吸収像

(a):位相像、(b):吸収像。走査速度 6.5 Hz、ステップ 50 nm のラスタースキャンにより得られた。画像の濃度はそれぞれ(a):1.005 (白)～0.987 (黒)、(b):  $-0.064\pi$  (白)～ $0.037\pi$  (黒) (吸収像との比較のため正方向が黒) のリニアグレースケール。

## References

- (1) A. Momose, T. Takeda, Y. Itai and K. Hirano, *Nature Medicine* **2**, (1996) 473.
- (2) P. Cloetens, W. Ludwig, J. Baruchel, D. Van Dyck, J. Van Landuyt, J. P. Guigay and M. Schlenker, *Appl. Phys. Lett.* **75**, (1999) 2912.
- (3) G. Schmahl, D. Rudolph, P. Guttmann, G. Shneider, J. Thieme and B. Niemann, *Rev. Sci. Instrum.* **66**, (1995) 1282.
- (4) H. N. Chapman, C. Jacobsen and S. Williams, *Ultramicroscopy* **62**, (1996) 191.
- (5) H. Takano, K. Yokota and S. Aoki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **38**, (1999) L1485.
- (6) H. N. Chapman, C. Jacobsen and S. Williams, *Rev. Sci. Instrum.* **66**, (1995) 1332.
- (7) H. N. Chapman, *Ultramicroscopy* **62**, (1996) 153.
- (8) J. Miao, P. Charalambous, J. Kirz and D. Sayre, *Nature* **400**, (1999) 342.
- (9) W. Yun, B. Lai, Z. Cai, J. Maser, D. Legnini, E. Gluskin, Z. Chen, A. A. Krasnoperova, Y. Vladimirovsky, F. Cherrina, E. Di. Fabrizio and M. Gentili, *Rev. Sci. Instrum.* **70** (1999) 2238.
- (10) A. Takeuchi, H. Takano, K. Uesugi and H. Takano, *Proc. SPIE* **4499** (2002) 29.
- (11) N. Kamijo, Y. Suzuki, M. Awaji, A. Takeuchi, H. Takano, T. Ninomiya, S. Tamura and M. Yasumoto, *J. Synchrotron Rad.* **9** (2002) 182.
- (12) N. Watanabe, S. Aoki, H. Takano, K. Yamamoto, A. Takeuchi, H. Tsubaki and T. Aota, "X-RAY MICROSCOPY", XRM99, Aug 2-6, 1999, Berkeley CA, USA, W. Meyer-Ilse, T. Warwick and D. Attwood eds., (American Institute of Physics, Melville, NY, 2000) pp. 84.
- (13) Y. Kagoshima, T. Ibuki, Y. Yokoyama, Y. Tsusaka, J. Matsui, K. Takai and M. Aino, *Jpn. J. Appl. Phys.* **40**, (2001) L1190

## **Deterministic retrieval of surface waviness using X-ray phase-contrast imaging technique**

A. Souvorov<sup>a</sup>, M. Yabashi<sup>a</sup>, K. Tamasaku<sup>b</sup>, T. Ishikawa<sup>b</sup>, Y. Mori<sup>c</sup>, K. Yamauchi<sup>c</sup>, K. Yamamura<sup>c</sup> and A. Saito<sup>c</sup>

<sup>a</sup>*SPring-8/JASRI, Kouto 1-1-1, Mikazuki, Hyogo 679-5148, Japan*

<sup>b</sup>*SPring-8/RIKEN, Kouto 1-1-1, Mikazuki, Hyogo 679-5148, Japan*

<sup>c</sup>*Osaka University, Yamada-oka 2-1, Suita, Osaka 565-0871, Japan*

One of the factors limiting the performance of any optics is the surface roughness [1,2]. Unfortunately the technology to manufacture and measure large and smooth optical surfaces did not progress as rapidly as the demands [3]. The aim of this article is to demonstrate a novel technique for measuring surface waviness with extremely high sensitivity and decent precision, which is based on the numerical retrieval of the surface topology from multiple total reflection images taken at various distances with coherent X-ray illumination.

The more or less general rough surface scattering problem cannot be exactly solved. Therefore only approximate analytic approaches to this problem exist. Two techniques have been most widely used: perturbation theory and the quasi-classical approximation, also known as the Kirchhoff approximation [4]. In this work, the Kirchhoff-tangent plane approximation will be used in describing the problem [5]. It is built on the assumption that wave reflection at each point of the surface acts as if the surface coincides with the tangent plane at each point. The value of the field and its normal derivative at the surface are then easily expressed through the incident field. The scattered field is determined using the Helmholtz formula.

One can distinguish several conditions that simplify this consideration. Firstly, imaging of a rough surface with hard X-rays (10-30 keV) is possible only at a glancing incidence angle, i.e. few milliradians. Owing to this geometrical factor, the image contrast is only sensitive to the longitudinal roughness, and is composed of well pronounced one-dimensional fringes perpendicular to the incidence plane. Thus, the problem can be reduced from a two-dimensional to a one-dimensional one.

Secondly, X-ray images are primarily formed from the contributions of roughness spatial frequencies localized in the low- and medium-frequency range (coherent specular reflection). In general, this indicates that the surface image is sensitive to roughness spatial wavelengths in the region spanning from a few centimeters down to a fraction of a millimeter.

Thirdly, a smooth wavy surface can be considered as a purely phase object which changes phases of the reflected waves but keeps their amplitudes unchanged.

The use of iterative methods is one of the most common approaches to the solution of the inverse phase problem. In the case of normal incidence, a technique of iterative phase retrieval from a set of images taken at various distances was successfully implemented using visible light optics [6], electron microscopy [7], and x-ray holography [8]. Suppose there are several intensity distributions  $I_n^0$  recorded at distances  $L_n$ ,  $n=1, \dots, N$ . A functional  $J$  can be introduced

$$J = \sum_{n=1}^N \left[ \int (I_n - I_n^0)^2 d\rho \right] \quad (1)$$

where  $I_n$  is a simulated intensity. The inverse problem can then be formulated as the retrieval of surface parameters, which minimize the functional  $J$ . The intensity profiles of 256 points were

extracted from the experimental images. Here, the discrete wavelet transform coefficients of the surface function were used as the optimization parameters. Compactly supported biorthogonal spline wavelets were used for decomposition and synthesis of surface profile. The optimal wavelet type was selected by trial and error in searching for better convergence of the iterative algorithm. The total number of fitting coefficients, however, was reduced to 144 in accordance with an effective spatial frequency bandwidth.

Experiments were performed at the 1km-long beamline, BL29XUL, at the SPring-8 facility [9]. A sketch of the experimental setup is shown in Fig.1. Two substrates were examined. The substrates were fabricated at the Ultra Precision Machining Center of Osaka University, Japan [10]. To acquire images of the sample substrates, an X-ray zooming tube (C5333, Hamamatsu Co.) was used.

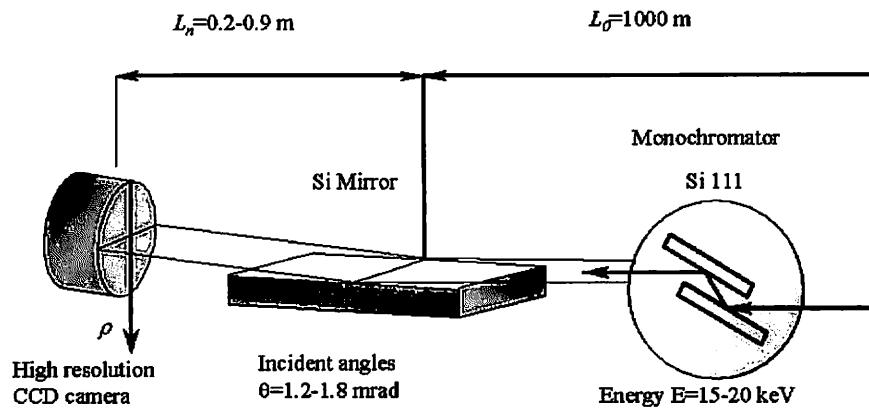


Fig.1. Sketch of the experimental setup.

For each substrate, a set of images ( $N=17$ ) was obtained separated by  $\Delta L=50\text{mm}$ , starting from a minimal gap  $L_1=170\text{mm}$  between the surface center and the photocathode of the zooming tube.

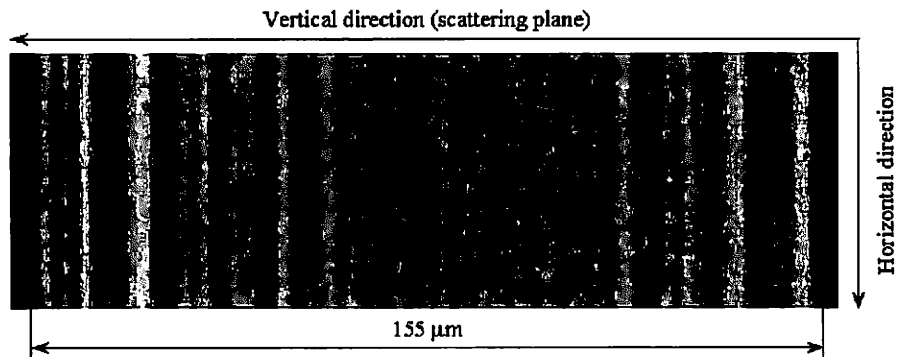


Figure 2. Example of an X-ray image taken at a distance  $L=0.43\text{m}$  from the substrate center. An incident X-ray beam is reflected up in the vertical direction. Surface waviness generates one-dimensional fringes perpendicular to the incidence plane.

As an example, one of the original images is shown in Fig.2. After extracting intensity profiles from the images, the inverse scattering algorithm was applied. A perfectly flat long was taken as the starting point. An iterative procedure was continued until no further improvement was



observed. The ultimate difference between simulated and measured intensities, averaged over all images, varied within  $\sigma_{\Delta I} \approx 3\text{-}5\%$  depending on the measurement set.

For the first substrate, its central section was investigated by means of the Fizeau's interferometer prior to the experiment. The interferometer was calibrated within  $\pm 1\text{nm}$  accuracy over a 150mm longitudinal range. Some environmental instabilities, however, generated  $\pm 0.5\text{nm}$  fluctuations in the measurements. Therefore, the accuracy of the expected slope measurement was limited to  $1 \mu\text{rad}$ . A comparison of surface profiles (actually, residuals after removing second-order fitting curve) obtained with the optical interferometer and by X-ray topography is shown in Fig.3. Good agreement between the two profiles is observed. The surface-height standard deviation measured with the interferometer is  $\sigma_h^{(i)} \approx 5.3\text{\AA}$ , while when measured with X-rays is  $\sigma_h^{(x)} \approx 5.5 \text{\AA}$ . The difference in surface heights between the two measurements has a standard deviation of  $\sigma_{\Delta h} \approx 3\text{\AA}$ . Figure error of the optically measured profile is  $\sigma_{sl} \approx 1.1 \mu\text{rad}$ . This agrees well with the expected slope-measurement accuracy. The X-ray measurements, however, give  $\sigma_{sl} \approx 0.8 \mu\text{rad}$ , already an improvement to the resolution of the optical method.

For the second substrate, images were taken at two sample positions: normal and inverted, *i.e.* when the sample was inverted by  $180^\circ$  around the axis perpendicular to the surface. The substrate was oriented so that both measurements covered an almost identical sample area ( $\pm 0.1\text{mm}$  lateral error in positioning). The retrieved surface profiles are shown in Fig.4. Within the central  $\pm 20\text{mm}$  area, height standard deviation at the normal and inverted position are  $\sigma_h^{(1)} \approx 1.7\text{\AA}$  and  $\sigma_h^{(2)} \approx 2.4\text{\AA}$ , respectively. The difference in surface heights between two measurements has a standard deviation of  $\sigma_{\Delta h} \approx 1.3\text{\AA}$ . Apart from the discrepancy at one of the edges, the obtained profiles correlate well with each other.

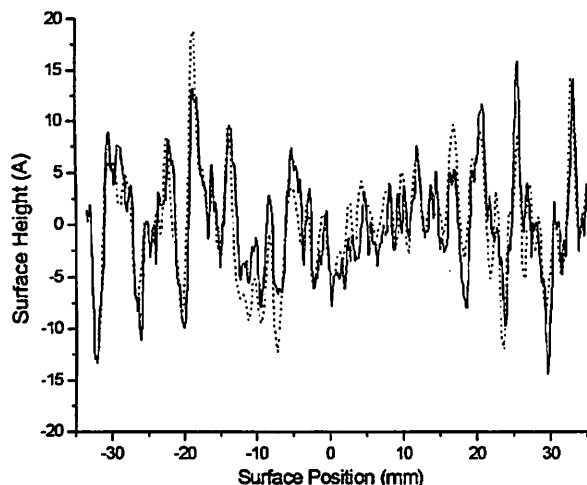


Figure 3. Comparison of surface profiles obtained by an optical interferometer (solid line) and X-ray topography (dashed line). The difference in surface heights between the two measurements has a standard deviation of  $\sigma_{\Delta h} \approx 3\text{\AA}$ .

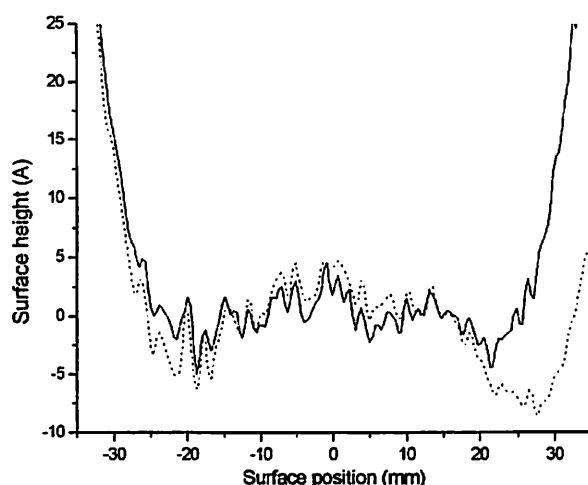


Figure 4. Comparison of surface profiles obtained from two sets of images taken at normal and inverted sample positions. The difference in surface heights between the two measurements has a standard deviation of  $\sigma_{\Delta h} \approx 1.3\text{\AA}$ .

The presented results provide straightforward evidence of the very high sensitivity of X-rays to waviness in the surface of grazing incidence optics. With respect to the conventional metrology technique, X-rays sensitivity can be evaluated as, at least, one order higher. Taking into account

the high demand for new technologies for fabricating and characterizing high performance grazing incidence X-ray optics, the advanced technique is well suited to modern requirements.

#### References.

1. A. Rommeveaux and A. Souvorov (1999) *Proc. SPIE* 3773, 70-77.
2. A. Souvorov, M. Yabashi, K. Tamasaku, T. Ishikawa, Y. Mori, K. Yamauchi, K. Yamamura and A. Saito (2002) *J. Synchrotron Rad.* 9, 223-228.
3. L. Assoufid (2001) *Proc. SPIE* 4143, 98-102.
4. J. A. Sánchez-Gil, A. A. Maradudin and E. R. Méndez (1995) *J. Opt. Soc. Am.* A12, 1547-1558.
5. A. G. Voronovich (1999) *Wave Scattering from Rough Surface*, 2nd ed. New York: Springer-Verlag.
6. V. Yu. Ivanov, V. P. Sivokon, and M. A. Vorontsov (1992) *J. Opt. Soc. Am.* A9, 1515-1524.
7. W. Coene, G. Janssen, M. Op de Beeck and D. Van Dyck (1992) *Phys. Rev. Lett.* 69, 3743-3746.
8. P. Cloetens, W. Ludwig, J. Baruchel, D. Van Dyck, J. Van Landuyt, J. P. Guigay and M. Schlenker (1999) *Appl. Phys. Lett.* 75, 2912-2914.
9. T. Ishikawa, K. Tamasaku, M. Yabashi, S. Goto, Y. Tanaka, H. Yamazaki, K. Takeshita, H. Kimura, H. Ohashi, T. Matsushita and T. Ohata (2001) *Proc. SPIE* 4145, 1-10.
10. Y. Mori, K. Yamauchi, K. Yamamura, H. Mimura, A. Saito, H. Kishimoto, Y. Sekito, M. Kanaoka, A. Souvorov, M. Yabashi, K. Tamasaku and T. Ishikawa (2001) *Proc. SPIE* 4501, 30-42.

## 整形外科・救急外科領域における屈折コントラスト画像法の適用

茨城県立医療大学 森 浩一、関根紀夫、佐藤 斉、佐藤 勝、島雄大介  
物質構造科学研究所 兵藤一行、安藤正海  
日本原子力研究所関西研 塩飽秀啓  
聖マリアンナ医科大学 岡 寛、大橋健二郎、中島康雄

### はじめに

X線を用いた屈折コントラスト法は、従来法に比べて被写体の輪郭や線構造などにおける描写能が高い。この手法が人体撮影に適用できれば、従来法に比べ、疾患診断に重要なより多くの画像情報が得られるであろう。この研究では、放射光X線を用いた屈折コントラスト画像法を骨撮影や木製異物撮影などに適用し、X線吸収コントラスト画像と比較した画像の特徴と画像診断上の有用性について考察した。

### 実験（整形外科領域における適用例）と結果

ヒトの肋骨と形状が類似している食用豚（LWD）の肋骨を試料とした。これを放射光X線（30keV）で撮影した。実験は、SP-8（BL20B2）で行なった。撮影系を図1に示した。画像はX線フィルム（増感紙ナシ）に記録した。肋骨試料に外部から衝撃を与えて、微小骨折を作った。図2（a）～（c）は、試料・フィルム間距離： $Z=5\text{ m}$ における画像（屈折コントラスト画像、または位相コントラスト画像）である。図2（d）は、 $Z\sim 0\text{ m}$ における画像（吸収コントラスト画像）である。図2（a）～（c）は、図2（d）と比べると、骨折線と骨梁の形状がより鮮明に表れている。同じ試料の軟組織中の肋軟骨移行部を撮影した。図3（a）は、 $Z=5\text{ m}$ における画像である。図3（b）は、 $Z\sim 0\text{ m}$ における画像である。両者を比較すると、図3（a）のほうが、軟骨の形状やその変化をより鮮明にとらえることができた。肋軟骨の成長過程で生じる軟骨の石灰化領域を撮影した。図4（a）は、 $Z=5\text{ m}$ における画像である。図4（b）は、 $Z\sim 0\text{ m}$ における画像である。両者を比較すると、図4（a）のほうが、石灰化の形状やその分布をより鮮明にとらえることができた。ヒトの大腿骨遠位端に生じた骨肉腫標本（厚さ5mm）を撮影した。図5（a）は、 $Z=5\text{ m}$ における画像である。図5（b）は、 $Z\sim 0\text{ m}$ における画像である。両者を比較すると、図5（a）のほうが、肉腫による骨梁と骨髄の侵食領域、つまり肉腫の浸潤領域をより鮮明に描写することができた。撮影に用いたX線の計算による空間コヒーレンス長は、縦方向175 $\mu\text{ m}$ 、横方向28 $\mu\text{ m}$ であった。

従来法に比べ、エネルギー30keVの単色放射光X線による屈折コントラスト法では、骨、石灰化、骨髄、軟骨の描写において、より多くの画像診断情報を提供する。骨折の精密画像診断、骨の質的変化の早期画像診断、癌など石灰化を伴う病変の早期画像診断に有用で

あろう。ただし、脂肪・筋肉などの軟組織そのものの描写については十分な画像情報は得られない。これらの描写については、X線干渉計などを用いる別の画像法のほうが適切である。

### 実験（救急外科領域における適用例）と結果

放射光X線による屈折コントラスト画像法を木製異物撮影に適用した。まず、X線 CT 画像でも確定診断が困難な、木箸などによる眼窩、軟口蓋穿孔（penetrating trauma）の画像診断に応用した。実験は、物質構造科学研究所（AR-NE5）と SP-8（BL20B2）で行なった。軟口蓋穿孔撮影の試料には、比較的小型の食用豚（LWD）の頭部を用いた。頭部の幅は、約 20 cm である。この試料の口腔から木箸（白樺、杉、竹）を導入し、軟口蓋を穿孔させ頭蓋底にまで到達させ、約 3 時間後に放射光X線（35keV）と診療用X線管（管電圧 70kV、グリッド 8:1）を用いて撮影した。前者は、屈折コントラスト画像、後者は吸収コントラスト画像を与える。画像の記録には、医療用X線フィルムと増感紙を用いた。豚頭部の側面全体像（吸収コントラスト）を図 6（a）に示した。矢印（→）は、木箸の穿孔ルートである。黒い四角で囲んだ領域について、屈折コントラストと吸収コントラストによる画像をそれぞれ、図 6（b）と（c）に示した。図 6（b）は、SP-8 における画像で、Z = 5m、撮影時間 50 sec であった。屈折コントラスト画像では、多数の白黒線（↑↑）が発生することで、木箸の全体が鮮明に表れた。吸収コントラスト画像では、木箸像を描写することはできなかった。

木箸（竹）の断面をルーペ（15 倍）で観察したところ、多数の維管束が確認できた。管腔組織の直径は、100  $\mu$ m 程度である。杉や白樺ではさらに小さく、50  $\mu$ m 程度と予想される。木箸中の管腔組織である師管や道管とその周辺の非管腔組織の境界で屈折したX線により、フィルム上に多数の白黒線が発生し、木箸全体が鮮明に描写されたと考えられる。厚さ 20cm の肉中では、木箸のX線吸収差は周辺軟組織と比べて、0.1%以下となり位相物質として振る舞う。このような小さい吸収コントラストを、X線フィルムで描写することは困難である。放射光X線を利用した屈折コントラストによれば、吸収コントラストで描写が難しい、厚さ 20cm の肉塊中にある大きさ 50  $\mu$ m・100  $\mu$ m 程の位相物質を鮮明画像として得ることが可能である。医療用のフィルム・増感紙を用いても検出可能なことから、人体撮影における実用性が高いと考えてよいであろう。人体撮影に適用した場合のもう 1 つの利点は、グレーデル効果（エア・ギャップ）による被曝線量軽減効果が期待できることである。体幹部の撮影においては、従来法より少ないX線量で、精密診断画像が得られるであろう。この効果は、より高いエネルギーのX線ほど効果が大きいであろう。

### まとめ

放射光X線を用いた屈折コントラスト（位相コントラスト）画像法を骨、軟骨、石灰化、骨折など、整形外科・外科領域の画像診断で関心の高い被写体に適用した。新しい方法に

よれば、従来法では描写が難しいこれらの被写体において、高い診断能を持つ画像が得られる。木製異物撮影への応用では、人体サイズの試料において、現在診療で用いられている画像記録素子により木製異物（軟口蓋内の木箸）を検出できた。この手法によれば、軟口蓋内における異物の位置（特に先端部の位置）や異物抜去後の小さな異物残留の有無において確定診断が可能であろう。さらに、救急医療で関心の高い、腹腔内のガス分布、フリーエアなどの検出においても、従来法より高い診断能を持った画像を提供するであろう。

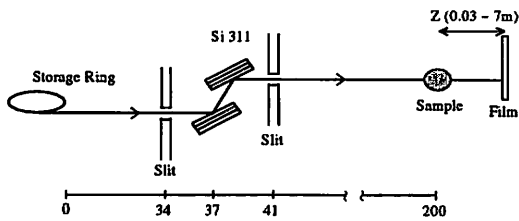


図1 SP-8におけるX線撮影系

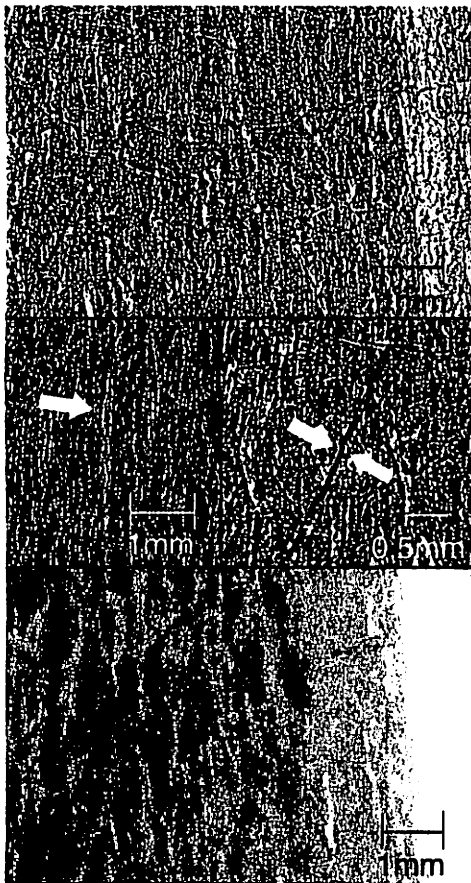


図2 豚肋骨のX線画像  
(a) - (c) 屈折コントラスト・位相コントラスト画像、(d) 吸収コントラスト画像

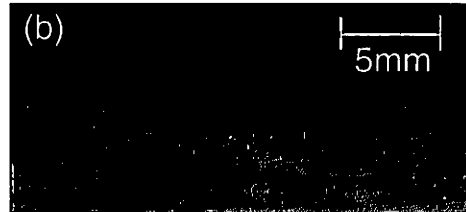
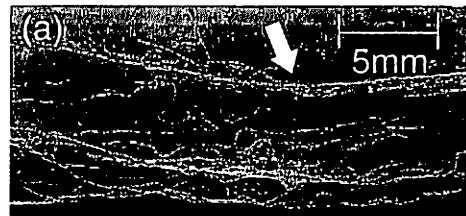


図3 豚肋軟骨のX線画像  
(a) 屈折コントラスト画像  
(b) 吸収コントラスト画像

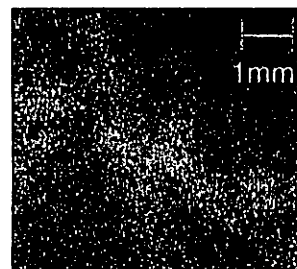
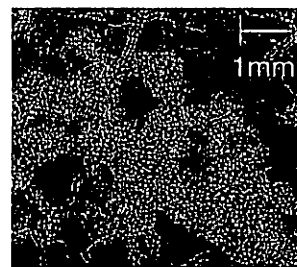


図4 豚肋軟骨の石灰化画像  
(a) 屈折コントラスト画像  
(b) 吸収コントラスト画像

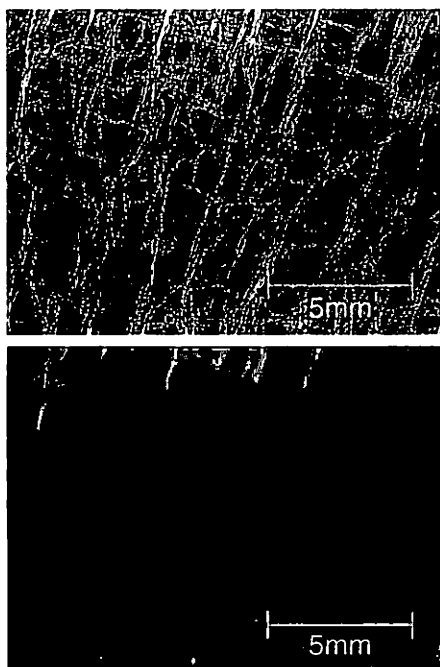


図5 骨肉腫標本のX線画像  
 (a) 屈折コントラスト画像  
 (b) 吸収コントラスト画像

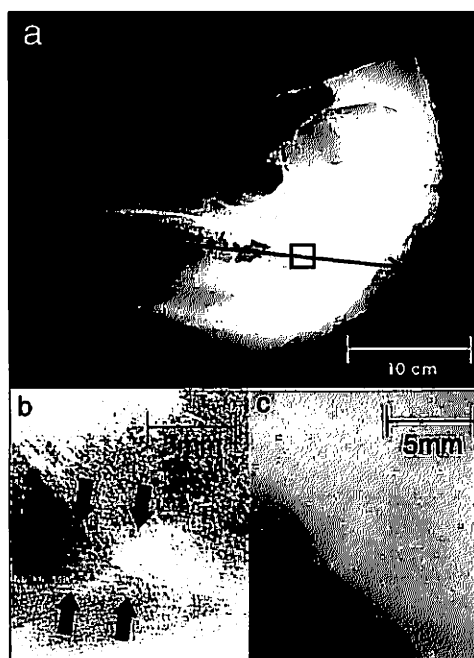


図6 豚頭蓋内の木製異物画像  
 (a) 全体像：吸収コントラスト、(b) 部分画像：屈折コントラスト、(c) 吸収コントラスト

参考文献

森 浩一、関根紀夫、佐藤 斉、鹿野直人、島雄大介、塩飽秀啓、兵藤一行、岡寛  
 放射光X線を用いた屈折コントラストによる骨画像  
 医学物理；22 (1), 13-20, (2002)

Hitoshi Sato, Koichi Mori, Norio Sekine, Naoto Shikano, Masaru Sato and Nobuyoshi Ishikawa,  
 Phase Contrast Imaging for Mammography Using Synchrotron X-rays  
 The Medical Journal of Ibaraki Prefectural Hospital； 20, (2) , 73-82. (2002)

K. Mori, N. Sekine, H.Sato, N. Shikano, D. Shimao, H. Shiwaku, K. Hyodo and K. Ohashi  
 First Observation of a Wooden Foreign Body in Soft Palate by Means of Synchrotron X-Ray Refraction  
 Contrast, Jpn. J. Appl. Phys. ; 41(8) , 5490-5491, (2002)

K. Mori, N. Sekine, H. Sato, D. Shimao, H. Shiwaku, K. Hyodo, H Sugiyama, M. Ando, K. Ohashi,  
 M. Koyama and Y. Nakajima, Application of synchrotron X-ray imaging to phase objects in orthopedics,  
 J. Synchrotron Rad.; 9, 143-147, (2002)

K. Mori, H. Sato, N. Sekine, M. Sato, D. Shimao, T. Igarashi, H. Shiwaku and K. Hyodo  
 Development of Phase Contrast Radiography for Bone Imaging Using Synchrotron Radiation  
 Analytical Sciences ; 17, i1427-i1430, (2001)

K. Mori, K. Hyodo, N. Shikano and M. Ando  
 First Observation of Small Fracture on a Human Dried Proximal Phalanx by Synchrotron X-Ray  
 Interference Radiography.  
 Jpn. J. Appl. Phys. 38 ( 11B) L1339-L1341 (1999)

# X線プリズムを用いた二光束干渉計

鈴木芳生

JASRI/Spring-8

## 1. はじめに

ホログラフィーと呼ばれる干渉計画像からの波面再構成は Gabor [1] により始められた。干渉性の悪い光源ではいわゆるin-line照明系で行うしかないために共役像の重なりや試料のほとんど大部分が完全に透明でなければならないといった制約が大きい。これを解決するために off-axis で参照波を照明する Leith-Upatnieks の二光束ホログラフィーが発明された[2]。しかしながら、この方法は干渉性（空間干渉性だけでなく時間干渉性も）が良い光源で照明しなければならないため、可視光でもレーザーのように干渉性の良い光源を使う必要がある。

X線領域での干渉計の実験は非常に古くから行われている。たとえば、Lloydの鏡を用いた干渉縞の観測はX線が光と同じ電磁波であることを証明した多くの実験の一つであるとされている[3]。また、軟X線領域では青木、菊田によるヤングのスリットの光学系を用いた干渉計とホログラフィーの実験[4,5]に始まり、ホログラフィーに関しても多くの研究が行われている。しかしながら、今までの硬X線領域での干渉計実験では高々数本の干渉縞が観測されていたにすぎない。また、干渉縞の観測される領域も非常に狭いものであった。

これに対して、硬X線領域に於ける干渉計では、完全結晶の回折をビームスプリッターやミラーとして用いるBonse-Hart型の干渉計[6]が良く知られている。この干渉計は光源のコヒーレンスに対する要求が高くないので、広い視野が得られ各種の位相計測に利用されている。しかしながら、この干渉計は参照光と物体波の合成において完全結晶での回折を使うために、物体で大きな角度で偏向された部分波が消滅することや、有限の大きさの結晶中での伝搬による波束の広がりのために空間分解能が劣化する等の問題がある。

第三世代の放射光X線源が利用できるようになったことによりこの状況が大きく変わってきた。レーザーのような高次のコヒーレンスはないが、一次のコヒーレンスに関しては干渉実験に十分な強度を持つビームが得られるようになって来ており、数年前から硬X線領域でもホログラフィー等の干渉計測が試みられている。X線ホログラフィーとしては、Gabor型の in-line ホログラフィー（本来の Gabor型は点光源からの球面波を用いるが、平行光照明の場合も Gabor holography と呼ぶことが多い）と Fresnel zone plate を集光/ビームスプリッターとして用いるフーリエ変換ホログラフィーが現在の主な光学系である。フーリエ変換ホログラフィーでは共役像の問題が解決されるとされている場合もあるが、実際には zone plate の+1次回折に重なる-1次の回折光のために必ずしも単純なものではない。

本報告では、硬X線領域でプリズムを用いてコヒーレントビームの一部を偏向して物体波に重ねる方法、すなわち本来のLeith-Upatnieks型二光束ホログラフィーと同一の光学系を組み立てて干渉実験を行った結果[7]について述べる。

## 2. 実験及び実験結果

干渉計の光学系は図1に示すように単純なものである。X線ビームの一部がプリズムで偏向され、偏向されずに直進する波と画像検出器上で重ねられ干渉縞を生成する。プリズムはアクリル樹脂のブロック（一辺2cmの立方体）である。画像検出器として可視光変換型の間接X線カメラ（浜松ホトノクス、ビームモニタAA50と冷却CCD）またはサブミクロンの解像度を持つズーム管（浜松ホトノクス、C5333と冷却CCD）を用いた。プリズムを透過したビームの偏向角 $\Delta\theta$ は屈折 $n$ の1からのずれ $\delta (= 1 - n)$ と視射角 $\theta$ を用いて、

$$\Delta\theta = \delta/\tan(\theta),$$

で表される。 $\delta$ は普通 $10^{-6}$ 程度の量であるため、直入射条件では $\Delta\theta$ は $1\mu\text{rad}$ 程度の小さい量である。しかしながら斜入射条件ではこの偏向角をずっと大きく出来る。また、視射角を変えることで偏向角を制御できる。

実験は SPring-8 BL20XUで行った。このビームラインは周期長26m m, 173周期の真空封止アンジュレータを光源とするビームラインであり、実験ステーションは光源から約245mの位置にある。貢献から42mの位置にある二結晶分光器の直下流に精密四象限スリットが設置されており、このスリットによって実験ステーション位置での空間コヒーレンスを定義している。四象限スリットから実験ステーションまでの距離 (L) は約195mである。空間コヒーレント領域 (S) はスリットサイズ (d) と波長 ( $\lambda$ ) をLを用いて、 $S = \lambda L / d$ で定義される。例えば、 $d = 20 \mu\text{m}$ ,  $\lambda = 1 \text{ \AA}$ の条件では、 $S = 1 \text{ m m}$ に達する。

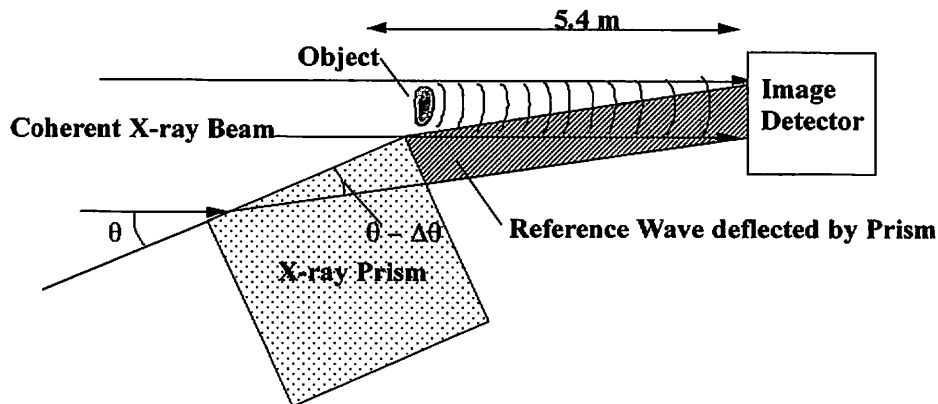


図1. X線プリズムを用いた二光束干渉計の構成

この光学系により干渉縞を計測した一例を図2に示す。X線波長は1Å, 視射角6度, ビーム偏向角 $15 \mu\text{rad}$ の条件でビームモニタAA50を用いて測定したものである。試料は人間の毛髪先端である。干渉縞(周期長約 $6 \mu\text{m}$ )が明瞭に観測されている。また試料を透過した部分での干渉縞の曲がりも観測されており、この光学系が予想通り機能していることが確かめられた。発表ではこの干渉計の詳細と、コヒーレンス評価等への応用についても述べる予定である。

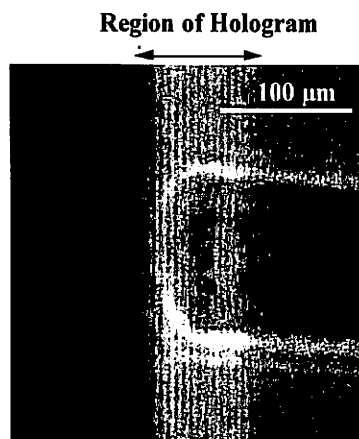


図2. 二光束干渉計を用いて測定した干渉縞

#### 参考文献

1. D. Gabor, Nature 161 (1948) 777.
2. E. N. Leith and J. Upatnieks, J Opt. Soc. Amer. 52 (1962) 1123.
3. W. Linnik, Naturwiss. 18 (1930) 354.
4. S. Aoki, Y. Ichihara and S. Kikuta, Jpn. J. Appl. Phys. 11 (1972) 1857.
5. S. Aoki and S. Kikuta, Jpn. J. Appl. Phys. 13 (1974) 1385.
6. U. Bonse and M. Hart, Appl. Phys. Lett. 6 (1965) 155.
7. Y. Suzuki, Jpn. J. Appl. Phys. 41 (2002) L1019.



# Shearing x-ray interferometer with an x-ray prism and its improvement

Yoshiki Kohmura, Hidekazu Takano, Kentaro Uesugi, Yoshio Suzuki, Tetsuya Ishikawa  
SPring-8, 1-1-1, Kouto, Mikazuki, Sayo-gun, Hyogo, 679-5198, Japan

## Abstract

A wave-front dividing interferometer was devised in which half of a highly spatially coherent beam deflected by an x-ray prism is overlapped with another half. By placing the samples in the two beams and the x-ray imaging detector closely downstream of the sample, the differential phase of the sample is recorded on the imaging detector. The separation of the two paths at the sample plane, the amount of shear, was approximately  $2\ \mu\text{m}$  in the present experiment. This is easily controllable by changing the distance between the sample and the imaging detector. Phase retrieval using the fringe scanning method was successfully demonstrated for various kinds of weakly absorbing samples.

## 1. INTRODUCTION

The various methods for phase retrieval are reported for the scattered / diffracted x-rays [1,2] and the transmitted x-rays [3,4]. The interferometers, using the coherent superposition of transmitted and reference beams, offer the most direct method for unique retrieval of the phase. The crystal Bonse-Hart interferometers (usually as amplitude dividing interferometers) are widely used for the phase retrieval in the hard x-rays [5,6]. Although a shearing geometry has also been attempted [7], the narrow angular acceptance of the crystal optics limits the spatial resolution. In this paper, we will show that the wave-front division using an x-ray prism [8,9] can be used for an x-ray shearing interferometer without significant angular windows and with a better spatial resolution.

## 2. EXPERIMENTAL SETUP

To obtain a high spatial coherence demanded for the wave-front dividing interferometer, a 250 m long beamline with an undulator source, BL20XU, of SPring-8 was utilized [9]. Monochromatic x-rays at 12.4 keV ( $\lambda = 1\ \text{\AA}$ ) through a silicon monochromator and cross-slits,  $18 \times 19\ \mu\text{m}^2$  at 195 m upstream of the end station, make the spatial coherence length of x-rays to be approximately 1 mm at the end station. An x-ray prism [9] was set so as to make its edge line vertical.

A cubic prism made of acrylic resin with 20 mm sides was inserted in the beam to deflect half of it [9, 10]. The x-ray glancing angle onto the prism and the deflection angle were 4 deg and  $23\ \mu\text{rad}$  ( $\Delta\theta$ ). The direct and the refracted beams overlap with the width of  $150\ \mu\text{m}$  ( $L_1 \Delta\theta$ ) at 6.5 m ( $L_1$ ) downstream of the prism where the photo cathode of x-ray zooming tube detector (modified C5333, Hamamatsu Photonics Co.) [11] was placed (Fig.1). The interference fringe spacing is  $4\ \mu\text{m}$  ( $d = \lambda / (\Delta\theta)$ ). The deflection angle is chosen so as to compromise of the large interference region and the detectable fringe spacing. The detector has the magnification factor, the pixel size at the sample plane and the field of view of 55,  $0.22\ \mu\text{m}$  and  $220\ \mu\text{m}$ . The measured spatial resolution of the detector was  $0.7\ \mu\text{m}$  at 8 keV [12]. The observed visibility of the fringes was 0.6.

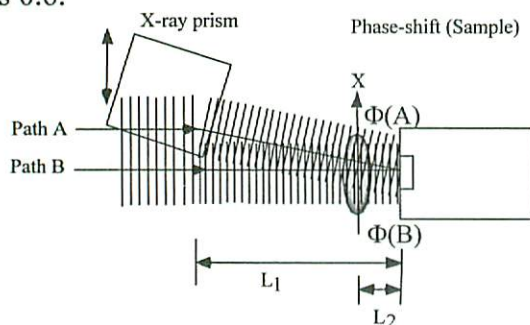


Figure 1: The schematic diagram of the two-beam shearing x-ray interferometer.

A sample was placed in front of the image detector by 96 mm ( $L_2$ ). Interference signal between two slightly tilted beams are recorded with the detector. The phases of the two beams suffered local shifts in transmitting through the sample, causing a modulated interference pattern. The distance  $L_2$  was close to the minimum possible due to the structure of the detector. The amount of shear was  $2.2 \mu\text{m}$  ( $L_2 \Delta\theta$ ) at the sample position. When Fresnel number,  $N_F (= a^2/(\lambda L_2))$ , is much greater than unity, the phase is easily retrieved without significant effect of Fresnel diffraction, where  $a$  is the sample structure size.

Samples observed are, (a) a Kapton foil ( $125 \mu\text{m}$ t with rough tapered edges), (b) a Nylon mesh (pitch  $93 \mu\text{m}$ ) and ascidian larvae (a biological specimen). The optical microscope images and the observed x-ray interference images (1 minute exposure) of the samples are shown in Fig.2. The upward / downward bents of the individual fringes were observed where the sample thickness has a positive / negative gradient in the downward direction (Fig.2(d)-(f)). Where the phase gradient of the samples are large ( $\geq 2\pi$  over the shear length), interference fringes appear discontinuous (e.g. along the lower Kapton foil edge in Fig.2(d)).

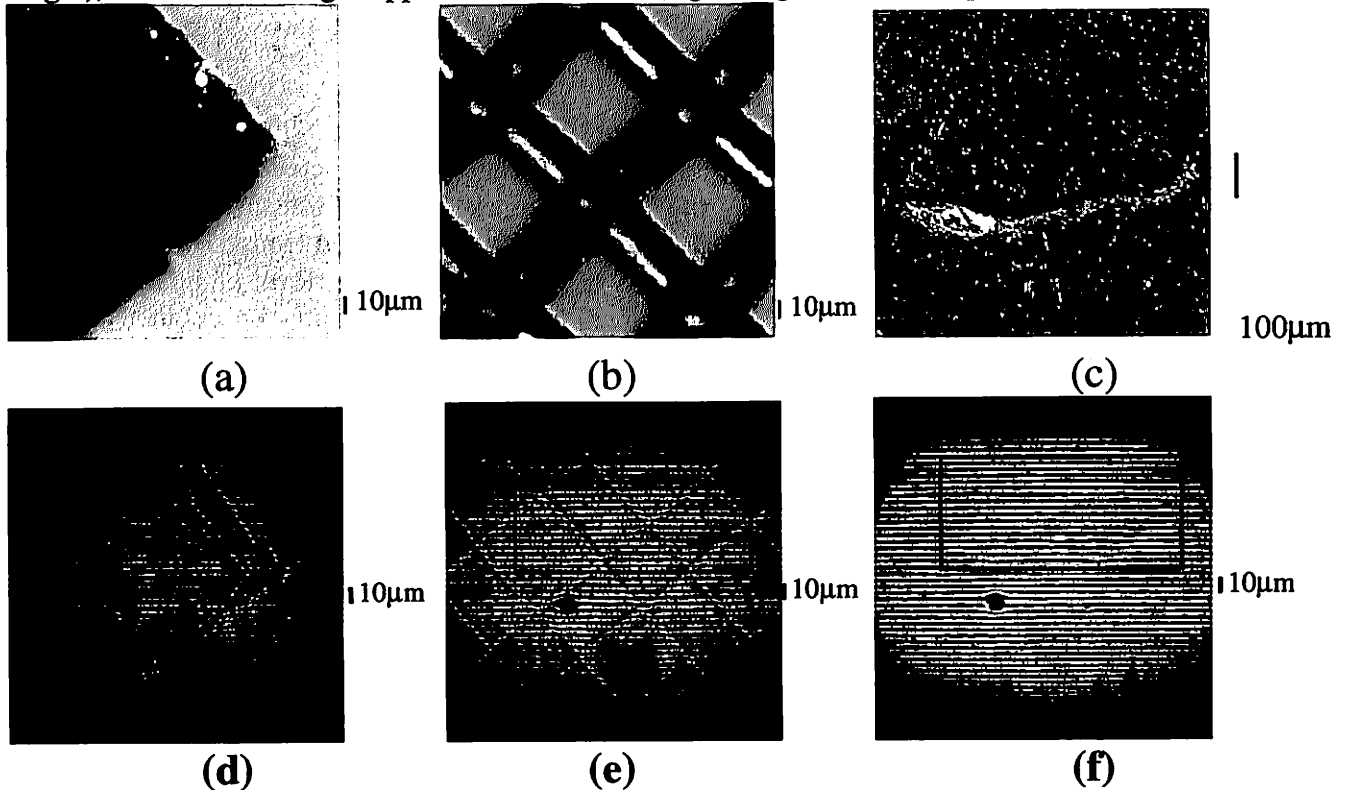


Figure 2: The visible microscope image for the samples (a) an edge of a Kapton foil ( $125 \mu\text{m}$ t), (b) a Nylon mesh (pitch  $93 \mu\text{m}$ ) and (c) an ascidian larvae (biological specimen). The observed x-ray interference images (d, e, f) for the samples (a, b, c).

## 2. EXPERIMENTAL RESULT

For the precise phase retrieval using the interferometers, the fringe scanning method [13] and the Fourier transform method [14] are widely used. We applied the fringe scanning method, since the higher spatial resolution close to that of the detector is easily achieved. For the phase shift in one of the optical paths the translational motion of the prism was introduced.

For the 4-step fringe scanning method,  $0, 1/4\pi, 2/4\pi$  and  $3/4\pi$  phase-shifts were given to path A by moving the prism by  $0, 1/4d, 2/4d$  and  $3/4d$  (where  $d$  is the fringe spacing). The intensity distributions at the detector plane,  $I_0, I_1, I_2$  and  $I_3$  were measured with and without the sample. The phase at the detector plane is calculated with the following equation, where  $\Delta\phi$  is the differential phase due to the sample (similar equation is derived with  $\Delta\phi=0$  for the dataset taken without the sample).

$$2\pi(k_A - k_B)(x) - \Delta\phi = \tan^{-1}((I_3 - I_1)/(I_0 - I_2)) \quad (1)$$

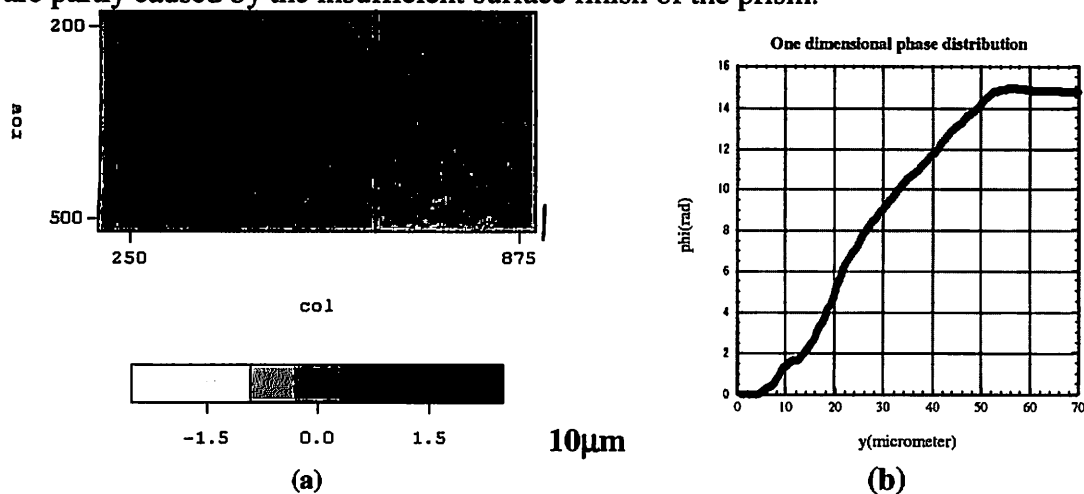
and

$$\Delta\phi = \phi(A) - \phi(B) \sim \delta\phi/\delta x (\Delta x) \quad (2),$$

where  $k_A$ - $k_B$  are the X-ray wave-vectors along the path A and path B.

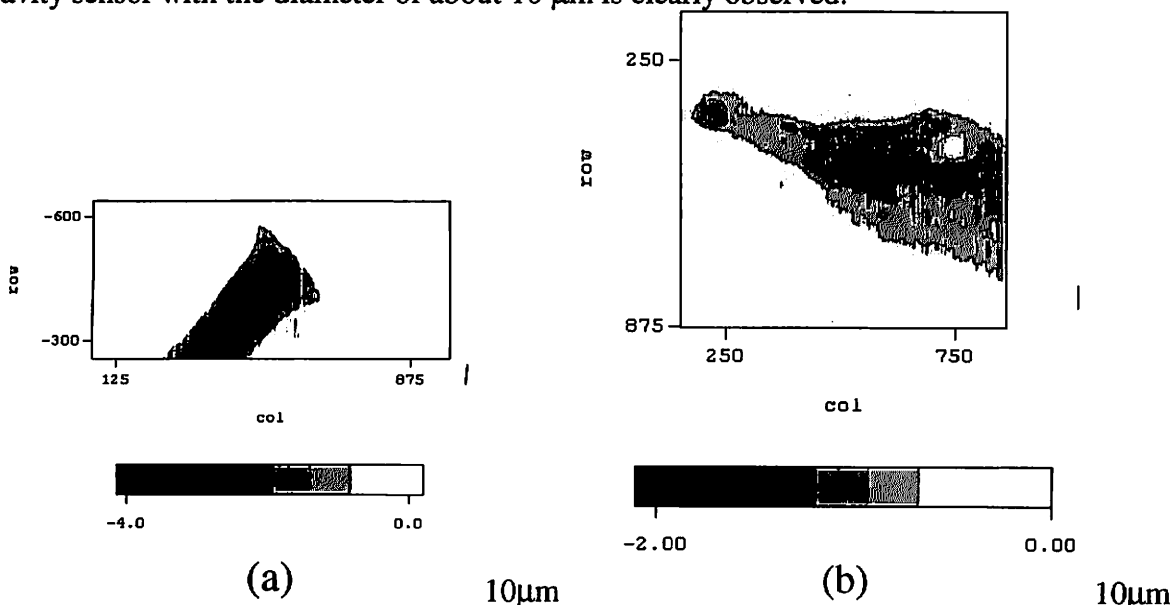
The phase distributions at the detector plane are calculated using eq.(1). Since the phase values calculated are the principal values from  $-\pi/2$  to  $\pi/2$ , the phase unwrapping is carried out for the calculated phase distributions with and without the sample, independently. Subtraction between these two unwrapped phase gives the differential phase distribution of the sample without the complete knowledge of the carrier fringe. The differential phase of samples with various thickness gradient can be retrieved by adjusting the amount of shear.

The box areas in Fig.2(d)-(f) are analyzed. The calculated differential phase image for Fig.2(d) is shown in Fig.3(a). The areas where the thickness gradient is positive (negative) is shown in dark (bright) color. For the upper Kapton foil edge, the differential phase image shows almost monotonious thickness increase downward (Fig.3(a)). The measured differential phase for the upper Kapton edge is integrated along the line in Fig.3(a) and is shown in Fig.3(b). The derived phase due to the foil thickness was 15 rad ( $2.4 \lambda$ ) close to the calculated value of 16 rad ( $2.5 \lambda$ ), assuming the thickness of 125  $\mu\text{m}$  and the index of refraction  $n=1-2.0 \times 10^{-6}$  at  $\lambda=1 \text{ \AA}$ . The several horizontal lines in the differential phase images, in and out of the samples, are partly caused by the insufficient surface finish of the prism.



**Figure 3: The calculated differential phase (a) for the upper Kapton foil edge inside the region of interest in Fig.2(d) using the 4-step method and (b) The phase distribution of the upper Kapton foil edge by integrating the measured differential phase distribution.**

Similar phase determination was done for one of the end of the nylon and an ascidian larva (almost transparent for the 1  $\text{\AA}$  X-ray) as shown in Fig.4(a) and (b), using 12-step method. In Fig.4(b), othoris, the gravity sensor with the diameter of about 10  $\mu\text{m}$  is clearly observed.



**Figure 4: The calculated phase (a) for the Nylon mesh and (b) for the ascidian larvae using the 12-step method.**



### 3. IMPROVEMENT

To improve the precision of the phase retrieval, the surface of the X-ray prism needs to be improved. For this purpose, ultra precision cutting has been done on the surface of the acrylic resin using a single crystalline diamond tool which was developed at RIKEN. The surface roughness was evaluated to approximately 30 nm (RMS) with a Zygo NewView 200.

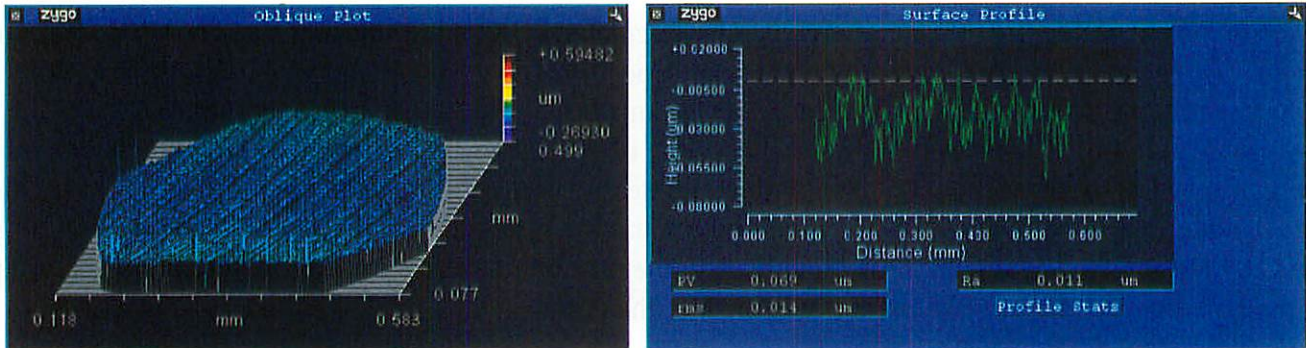


Figure 5: The surface roughness of improved acrylic X-ray prism evaluated with Zygo Newview200.

### 5. FUTURE PROSPECT

The present method is easily combined with the tomographic technique. The three dimensional refractive index distribution will be measured for visible-opaque and x-ray-weakly-absorbing samples with buried structures. Application of this new technique to material science, biological and medical sciences will be promising and fruitful.

### References

1. J. Miao, P. Charalambous, J. Kirz, and D. Sayre, *Nature (London)*, **400**, 342-344 (1999)
2. K. Siu, A.Y. Nikulin, K. Tamasaku, and T. Ishikawa, *Applied Physics Letter*, **79**, **13**, 2112-2114 (2001)
3. K.A. Nugent, T.E. Gureyev, D.F. Cookson, D. Paganin, and Z. Barnea, *Physical Review Letters*, **77**, **14**, 2961-2964 (1996)
4. P. Cloethens, W. Ludwig, J. Baruchel, D. Van Dyck, J. Van Landuyt, J.P. Guigay, and M. Schlenker, *Applied Physics Letters*, **75**, **19**, 2912-2914 (1999)
5. A. Momose, T. Takeda, Y. Itai, K. Hirano, *Nature Medicine*, **2**, **4**, 473-475 (1996)
6. A. Momose, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A* **352**, 622-628 (1995)
7. K. Iwata, H. Kikuta, H. Tadano, H. Hagino, and T. Nakano, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38**, 6535-6539 (1999)
8. A.R. Lang, and A.P.W. Makepeace, *Journal of Synchrotron Radiation*, **6**, 59-61 (1999)
9. Y. Suzuki, *Jpn. J. Appl. Phys. letter*, **41**, **9AB**, 1019-1021 (2002)
10. Y. Kohmura, H. Takano, Y. Suzuki, T. Ishikawa, submitted to *Applied Physics Letters* (2002)
11. K. Kinoshita, T. Matsumura, Y. Inagaki, N. Hirai, M. Sugiyama, H. Kihara, N. Watanabe, and Y. Shimanuki, *proc. of SPIE conference*, **1741**, 287-293 (1992)
12. H. Takano, Y. Suzuki, K. Uesugi, A. Takeuchi, and N. Yagi, *Proc. of the SPIE conference*, **4499**, 126 (2001)
13. J.H. Bruning, D.R. Herriott, J.E. Gallagher, D.P. Rosenfeld, A.D. White, and D.J. Brangaccio, *Appl. Optics*, **13**, 2693 (1974)
14. M. Takeda, H. Ina, and S. Kobayashi, *J. Opt. Soc. Am.*, **72**, 156-160 (1982)

# X線暗視野法の開発の現状

杉山 弘<sup>1,2</sup>、MAKSIMENKO Anton<sup>2</sup>、平野 馨一<sup>1</sup>、兵藤 一行<sup>1,2</sup>、PATTANASIRIWISAWA Wanwisa<sup>2</sup>、  
安藤正 海<sup>1,2</sup>

高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所<sup>1</sup>、総合研究大学院大学<sup>2</sup>

## 1. はじめに

位相に関連する情報を簡単に得る方法として可干渉性の高い放射光を利用したX線屈折コントラスト法がある。X線屈折コントラスト法ではX線が物体内部を通過する際に起こる微小な屈折を画像化するため生体試料など軽元素だけで構成されている物体の内部を観察するために盛んに利用されている。これらの方法は通常、明視野像であるがバックグラウンド強度の低い暗視野像を得ることは、1) 明視野像の相補的な情報を得ることや、2) 比較的低強度成分で構成されることからダナミックレンジの低い2次元検出器での測定にも向いていると考えられる。

X線暗視野像はこれまでもDEI[1]などで測定可能であったが、光学系のスキャンが必要であるため測定系が複雑であった。そこでわれわれはラウエケース型Si単結晶アナライザーを用いて、光学系をスキャンせずに暗視野像と明視野像を同時に測定するX線暗視野屈折コントラスト法を開発した[2, 3]。

## 2. X線暗視野法の原理と光学系

暗視野像測定の実理は物体によって屈折したX線（暗視野像に対応）と物体を直進するX線（明視野像に対応）をアナライザー結晶によって角度的に分解することである。アナライザー結晶にはラウエケースのSi単結晶動力的回折を利用した。十分に平行化した入射光を用いた場合、ラウエケースでの動力的回折では $10^{-7}$  rad程度の強度振動が見られる（図1）。この強度振動を利用し、アナライザー結晶の厚さ

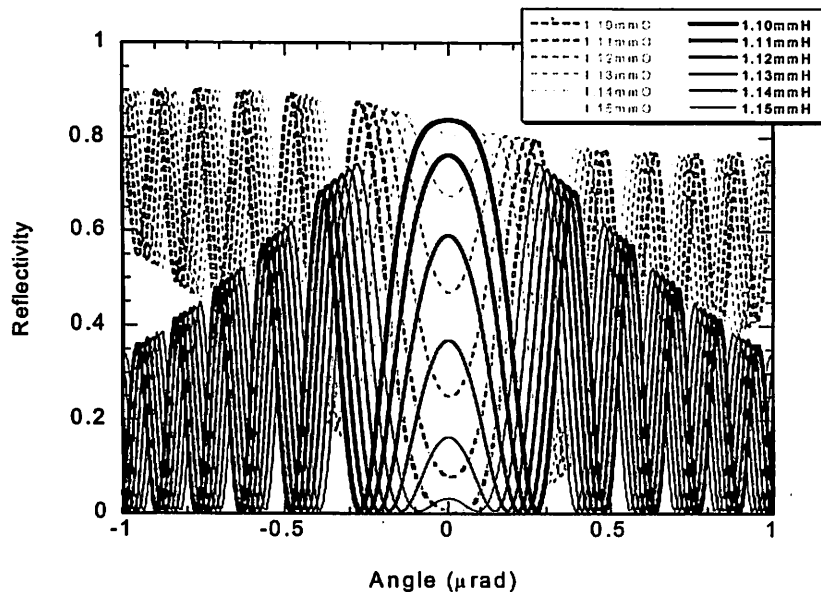


図1 アナライザー結晶の厚さの違いによる振動強度の変化。Oは透過（前方散乱）強度、Hは回折強度をそれぞれ表す。

やX線エネルギーを調節することによって、入射光を全て回折し、入射光方向からわずかにずれた成分はアナライザーを透過するように調節することができる。そのため、試料によって屈折したX線だけはアナライザーを透過し、それ以外は回折することになる。このとき透過方向には暗視野像が、回折方向には明視野像が得られる（図2）。PFのBL-14Bで行った際の実験配置を図2に示す。Si 4,4,0非対称コリメーターによって35 keVのX線を $10^{-7}$  rad程度

にしぼり、試料に入射させた。ラウエケースSi 4,4,0アナライザーを平行配置に設置して、試料による

屈折光を分離し暗視野像および明視野像を同時に得た。

### 3. 実験結果および分解能

図3に樹脂に埋め込んだ昆虫の暗視野像と明視野像を示す。視野は約5mm×5mm、白い部分がX線強度の強い部分である。明視野像・暗視野像を同時に鮮明に測定できることがわかる。

ラウエケースのアナライザーを使用する場合、回折に寄与したX線が結晶内でボルマンファン全体に広がり、分解能が極端に落ちることが予測される。アナライザー結晶の厚さを $t$ 、ブラッグ角を $\theta$ とすると、暗視野像（または明視野像）方向に投影されるボルマンファンの広がり、 $2t \sin\theta$ となる。ここでは厚さ1.1 mmのアナライザーを利用しているため、ボルマンファンの投影幅は0.4 mmになる。実際に分解能を確認するために、Al板中にB繊維を埋め込んだ複合材料について暗視野像を撮影した（図4）。B繊維の直径は80  $\mu\text{m}$ 、その中に30  $\mu\text{m}$ のC芯が含まれている。図4中では30  $\mu\text{m}$ のC芯が確認できることから、この光学系の分解能は最低でも30  $\mu\text{m}$ 程度はあることがわかる。



図3 樹脂に埋め込んだ昆虫のa) 暗視野像とb) 明視野像。

を透過する際には、ブラッグ条件から大きく外れているため動力的回折効果をほとんど受けずに透過してくると考えられる。したがって、試料によって屈折したX線はボルマンファン内全体に広がることなく、ほぼそのまま透過するので大きく分解能を落とすことなく結像させることができる。

アナライザーをブラッグケースで使用しても同様に暗視野像を測定することができる[4]。この場合は回折に寄与するX線はアナライザー中に数～数十 $\mu\text{m}$ しか進入しないためボルマンファンの影響をほとんど考える必要がない。分解能の点ではブラッグケースのアナライザーが優位であると考え、以下に述べる視野の面積化に対してはラウエケースに比べて結晶を非常に大型化する必要があるため、ラウエケース、ブラッグケースのアナライザーは条件によって使い分ける必要がある。

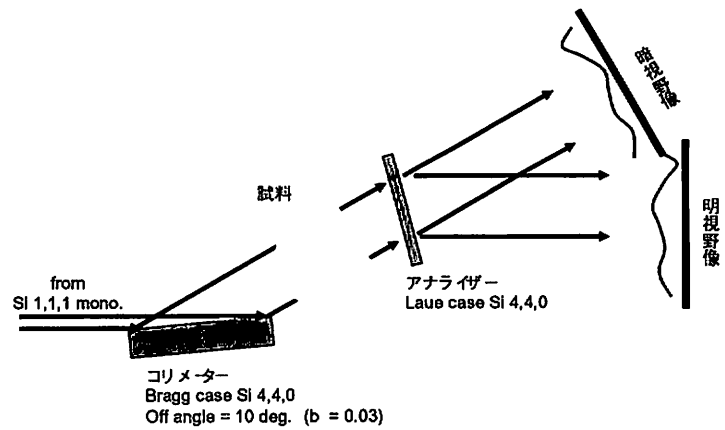


図2 X線暗視野法のPF BL-14Bでの実験配置。X線のエネルギーは35 keV。

試料によって屈折したX線がアナライザー

を透過する際には、ブラッグ条件から大きく外れているため動力的回折効果をほとんど受けずに透過してくると考えられる。したがって、試料によって屈折したX線はボルマンファン内全体に広がることなく、ほぼそのまま透過するので大きく分解能を落とすことなく結像させることができる。



図4 Al板B繊維複合材料の暗視野像。B繊維は80  $\mu\text{m}$ 、その中に30  $\mu\text{m}$ のC芯が見える。

いずれの場合においても正確な分解能の評価および分解能の向上はこれからの課題である。

#### 4. 視野の大面积化

X線暗視野法の応用の一つとして臨床応用を掲げている。実現するためには大きい視野が必要である。そのためにSPring-8のBL-20B2でも同種の実験を行っている（図5）。実験配置は図2とほぼ同じであるが、ビームライン-モノクロメーターがSi 3,1,1回折を使用しているため、光学系にもSi 3,1,1回折のコリメーターおよびアナライザーを使用した。



大面积化にあたってはアナライザーの湾曲をいかに抑えるかが重要になってくる。アナライザーが $10^{-6}$  rad程度湾曲すると、図1にも示した振動強度によって視野内に細かい縞模様が現れ、均質な画像が得られなくなる。現時点では80 mm（垂直方向）×40 mm（水平方向）まで視野を拡大することに成功している。今後さらに視野を100mm角以上に広げていく予定である。

図5 SPring-8 BL-20B2 での実験の様子。写真は大型化のための大型のコリメーター。

#### 参考文献

- [1] T. J. Davis, D. Gao, T. E. Gureyev, A. W. Stevenson and S. W. Wilkins: Nature **373** (1995) 595.
- [2] M. Ando, H. Sugiyama, A. Maksimenko, W. Pattanasiriwisawa, K. Hyodo and Z. Xiaowei: Jpn. J. Appl. Phys. **40** (2001) L844.
- [3] M. Ando, A. Maksimenko, H. Sugiyama, W. Pattanasiriwisawa, K. Hyodo and C. Uyama: Jpn. J. Appl. Phys. **41** (2002) L1016.
- [4] K. Hirano, A. Maksimenko, H. Sugiyama and M. Ando: Jpn. J. Appl. Phys. **41** (2002) L595.

# 収差補償型 X 線移相子を用いた X 線偏光イメージングの現状と X 線偏光干渉イメージングに向けての展望

The present status of X-ray polarization imaging using aberration compensating X-ray phase retarder system and perspective for X-ray 'polarization interference' imaging

沖津 康平

Kouhei OKITSU

東京大学工学部附属総合試験所

Engineering Research Institute, Univ. of Tokyo

E-Mail: okitsu@soyak.t.u-tokyo.ac.jp

X-ray natural linear dichroism (XNLD), magnetic circular dichroism (XMCD) and magnetic linear dichroism (XMLD) imagings are recently performed by using linear and circular polarization switching techniques with two-quadrant X-ray phase retarder system which compensate for off-axis aberration (phase-shift inhomogeneity depending on angular divergence of incident X-rays). XMCD imaging results are introduced in the present article. Also four-quadrant phase retarder system which can compensate for both off-axis and chromatic aberrations (phase-shift inhomogeneity depending on photon-energy dispersion of incident X-rays) recently developed is introduced. While there are three ways for dividing waves in interferometric measurement using magneto-optical waves, that is, (1) division of amplitude, (2) division of wavefront and (3) division into polarized beams, only (1) division of amplitude used in the Bense-Hart interferometer is recognized to be a unique way for dividing waves in X-ray range. It is described, however, in the present article that (3) division into polarized beams is another effective candidate for X-ray interferometric measurement including imaging techniques.

## 1. はじめに

1970 年代に放射光が登場して以来、従来のラボソースの X 線にはない、いくつかの特色により、X 線計測には大きな進歩が放射光によってもたらされた。その特色とは、(1) 高輝度および大強度、(2) 連続スペクトルを持つこと、(3) 多くの放射光 X 線源が水平偏光のビームを放射すること、(4) パルス X 線が得られること、のほぼ 4 つであると言っている。(1) の高輝度および大強度の特色と (2) の連続スペクトルの特色は比較的わかりやすく、放射光ユーザーは殆ど例外なく、これらの恩恵を受けることができる。(4) のパルス特性は、非常に高速に応答する X 線検出器の開発と相俟って、核共鳴散乱実験などに成果を上げつつある。ユーザーにとってわかりにくいのが (3) の偏光特性であ

る。X 線磁気円二色性 (X-ray Magnetic Circular Dichroism; XMCD) スペクトルは、1987 年の Schütz らの報告[1]以来、磁性研究の手段として、世界的な大潮流となっている。この仕事[1]では、シンクロトロンを周回する電子の軌道面の上下で、放射光 (off-axis 光) が円偏光成分を持ち、そのヘリシティが上下で逆転することを利用して XMCD スペクトル測定が行われた。Schütz らの方法は画期的ではあったが、軌道面上に放射される放射光と比較して、off-axis 光がきわめて弱く、また円偏光度も低いという欠点があった。XMCD の測定技術は、その後次第に進化してゆく。off-axis 光の次に XMCD 測定に利用されたのは、円偏光の偏光状態を生成するアンジュレーターからのビームであった[2]。これは off-axis 光と比較して非常に強いと



いうメリットがあった。しかし分光器結晶で反射される際に偏光状態が著しく乱れてしまうという欠点があった。今日広く行われ、かつ普及しつつあるのが、平野、石川、菊田らによって開発された透過型X線移相子[3-5]を用いる方法[6,7]である。この方法は、水平偏光の放射光を移相子によって円偏光に変換するもので、後置光学系による偏光状態の解消がないため、最も高い円偏光度が得られる。

X線移相子には、平野ら以前も研究例があった。結晶にブラッグ反射されたX線の偏光特性を利用する反射型X線移相子である[8-12]。

X線移相子はいずれも $\sigma$ 偏光X線と $\pi$ 偏光X線の位相差を利用するものであるが、平野らは、この位相差のX線入射角に対する依存性が、透過波の場合、反射波に比較して桁違いに小さいことに着目したのである。このことにより、透過型移相子は反射型移相子に比較して格段に実用的なものとなった。

## 2. 収差補償型X線移相子

それでもなお、透過型X線移相子には、入射X線の角度発散により位相シフト量の不均一が生じるという問題（光軸収差）があり、このため、入射X線の角度発散を絞って使うべきだとされていた[4]。この問題に解決を与えたのが、筆者らが考案した二象限X線移相子である[13]。

Fig. 1は、光軸収差を補償する二象限X線移相子の原理を示している。Fig. 1 上部の単位ベクトル  $e_x$ ,  $e_y$ ,  $e_z$  は、直交座標系を構成する。入射X線は直線偏光であり振動方向は、 $e_x + e_y$  である。よって図が描かれている平面は、入射X線の偏光方向に対して45度傾いている。左の図 Fig. 1 (a)は、2枚のダイヤモンド結晶が、非対称ラウエケースで逆方向への Bragg 反射を与えるようにセットされている配置を示している。Fig. 1 (a)に描かれた A, B, C のX線光路を考えたとき、Aの光路のX線は、Bの光路のX線より、第1移相子に対して、より高角で入射するが、第2移相子に対しては低角で入射す

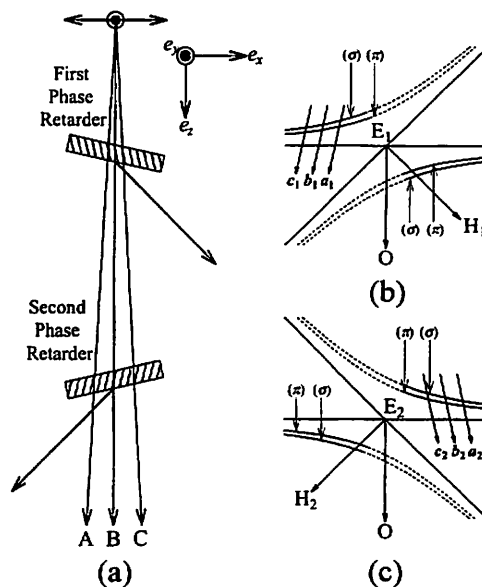


Fig. 1 Principle of the two-quadrant phase retarder system.

る。Cの光路については、その逆となる。Fig. 1 (b)と Fig. 1 (c)は、第1および第2移相子に対応する分散面を示している。 $\pi$ 偏光に対する分散面は、 $\sigma$ 偏光に対する分散面より内側にあり、それらの分散面の漸近線からの距離の比は  $\cos(2\theta_B)$  である。 $\theta_B$  は、移相子結晶の Bragg 角である。動力学理論によれば、ラウエケースの場合、Bragg 条件より低角で入射するX線が、分散面上の4つのタイポイント（ $\sigma$ 偏光と $\pi$ 偏光に対して2つずつ）を励起するとき、透過波の振幅の多くは、Lorentz 点、 $E_1$  および  $E_2$  の外側の分散面上の励起点による振幅で占められることになる。X線が Bragg 条件より高角で入射するとき、状況は逆となる。Fig. 1 (b)と Fig. 1 (c)においては、透過波を考える際、分散面の重要な部分とさほど重要でない部分を、実線と破線で描くことにより、この事情を示している。このことにより、透過型X線移相子が Bragg 条件より高角で働くとき、透過波の $\sigma$ 偏光の位相が遅れることとなる。第1および第2移相子が、ともに $\sigma$ 偏光の位相を遅らせるように機能するとき、第1移相子に対しては Fig. 1 (b)の左上の、第2移相子に対しては Fig. 1 (c)の右上の分散面が主に励起されていなければならない。このとき、A, B, Cの光路で入射するX線は、Fig. 1 (b)においてはベクトル  $a_1$ ,  $b_1$ ,

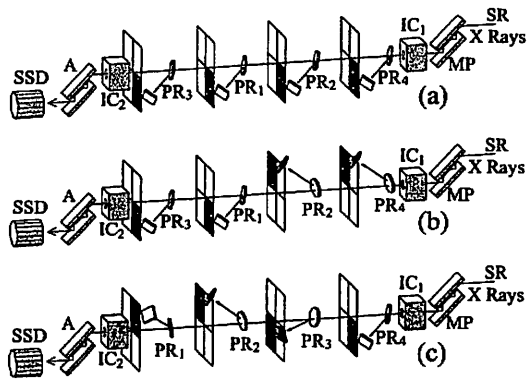


Fig. 2 Experimental setup of (a) one-quadrant, (b) two-quadrant and (c) four-quadrant X-ray phase retarders.

$c_1$  によって, Fig. 1 (c)においてはベクトル  $a_2, b_2, c_2$  によって, 分散面を励起することになる。 $a_1, b_1, c_1$  と  $a_2, b_2, c_2$  は, 第1および第2移相子の結晶面法線ベクトルである。これらのベクトルの位置は, X線入射角の Bragg 条件からのズレにより決定される。ここで $\sigma$ 偏光と $\pi$ 偏光の透過波に対する波数ベクトルの差 $\Delta k_o$ を導入し, ベクトル  $a_1$  によって与えられる位相差 $\Delta k_o$ を $\Delta k_o(a_1)$ のように表すとする。Fig. 1 (b)から,  $|\Delta k_o(a_1)| > |\Delta k_o(b_1)| > |\Delta k_o(c_1)|$  であることがわかるが, Fig. 1 (c)では,  $|\Delta k_o(a_2)| < |\Delta k_o(b_2)| < |\Delta k_o(c_2)|$  となっている。このことにより, 第1移相子と第2移相子における位相シフト不均一が相殺され, 光軸収差が補償されるのである。

透過型X線移相子には, 光軸収差だけではなく, 色収差(入射X線の波長広がりによる位相シフト不均一)も存在する。Fig. 2(c)は, 四象限X線移相子の配置図を示している。紙数の関係上, 原理を詳述できないが, 奇数象限と偶数象限への反射

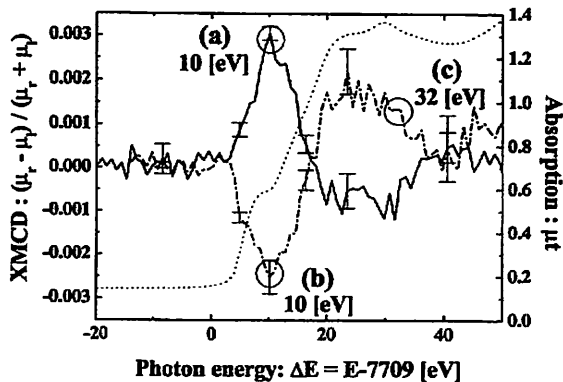


Fig. 3 XMCD spectra of polycrystalline cobalt foil obtained using circular polarization switching technique with two-quadrant phase retarders.

を与える移相子の色収差の逆転のため, 光軸収差と色収差の両方が補償できる[14,15]。Fig. 2 (a), (b), (c) は, 4枚の移相子を, 一象限, 二象限, 四象限配置にした実験配置図であるが, 水平偏光から変換された垂直偏光度を評価したところ, それぞれ, 89%, 96%, 98% となり, 四象限X線移相子の有用性が確認されている。この評価は, Photon Factoryで光源からの距離が近く, X線の角度発散, エネルギー広がり, 最も大きいPF BL4Aにおいて行われており, 最も悲観的な数値である。現在までに得られている最大垂直偏光度は, PF BL15Cでは, 99.9%に達している[15]。

### 3. 収差補償型X線移相子によるイメージング

収差補償型移相子はすでにそのアプリケーションが開始されており, X線自然直線二色性(XNLD)[16,17], X線自然円二色性(XNCD)[18], X線磁気円二色性(XMCD)[17,19,20], X線磁気直線二色性(XMLD)[21]のスペクトル測定やイメージングが行われている。これらのアプリケーションの中から, XMCDのスペクトルとイメージング[17,19,20]について紹介する。Fig. 3は, 二象限X線移相子を使った円偏光スイッチングの手法により測定された, 多結晶コバルト薄片試料のXMCDスペクトルである。薄片試料をビーム軸に対して斜め45度傾けて垂直にセットし, 磁場を薄片試料面に平行な水平方向に印加して, 円偏光のヘリシティをスイッチングしながら吸収係数の差分を測定した。実線と破線のスペクトルは, 磁場の印加方向を逆転させて得られたものである。つぎに, Fig. 4のように薄片を折り曲げて磁場を印加し, Fig. 3の(a), (b), (c)の部分で, 円偏光のヘリシテ

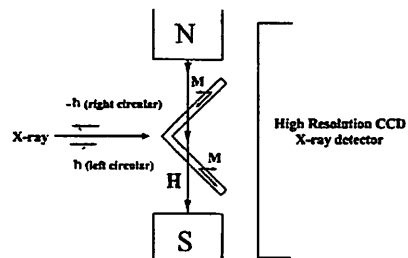


Fig. 4 Experimental arrangement of polycrystalline cobalt sample for obtaining XMCD contrast.

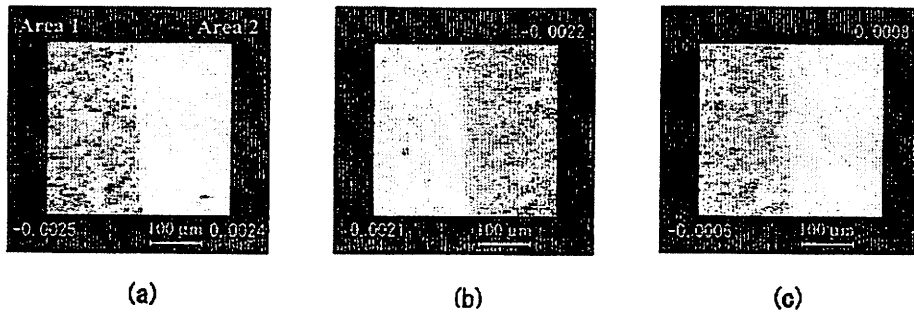


Fig. 5 XMCD images obtained after correction for thickness inhomogeneity of the sample. (a), (b) and (c) correspond to positions (a), (b) and (c) indicated in Fig. 3. XMCD contrasts are reversed due to change in sign of magnetic field applied to the sample between (a) and (b). Contrast reversal can also be observed owing to photon-energy position between (b) and (c) [17,19].

ィーを反転することによる吸収率の差分をイメージングした結果が、Fig. 5 の (a), (b), (c) である。(a) と (b) では磁場の向きの逆転により、(b) と (c) ではエネルギーの変化による XMCD 自体の符号の逆転により、コントラストが反転しているのがわかる。Fig. 5 は、サンプル厚の不均一による X 線強度のムラの効果差を差し引いて、XMCD のみによるコントラストを計算機処理によって得ている。

#### 4. X線偏光位相コントラストイメージングへの展望

前節では、円偏光および直線偏光の二色性をイメージングする技術を紹介したが、複屈折に依存したコントラストを得ることも、試料後方に偏光アナライザーをセットすることで実現しそうであ

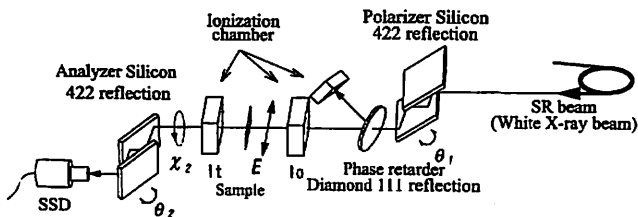


Fig. 6 Schematic drawing of energy-tunable X-ray polarimeter with a phase retarder

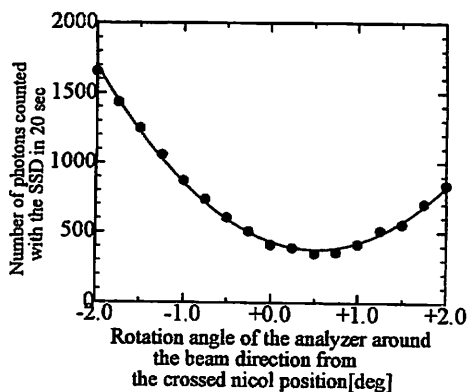


Fig. 7 X-ray intensity profile obtained by rotating the analyzer crystal.

る。Fig. 6 は移相子付き波長可変型 X 線ポラリメーター[22,23]の模式図を示している。シリコンチャンネルカットのオフセット機構[24]付き偏光子と検光子が、クロスニコルの状態から±2度ビーム軸回りに回転させられるように設置されている。偏光子のすぐ下流には、直線偏光を楕円率±0.02~0.04程の楕円偏光に変換するダイヤモンド結晶の透過型 X 線移相子がセットされている。移相子と検光子の間には、光学軸である c 軸が 45 度傾いた状態で、厚さおよそ 12 ミクロンのコバルト単結晶薄片試料が、セットされている。検光子を±2度の範囲で回転させて検光子後方の SSD で検出された X 線強度をプロットしたのが、Fig. 7 である。ボトムを持ち上がりから、移相子とサンプル結晶がそれぞれ与える直線複屈折による楕円率の変化がわかり、ボトムの横方向のシフトから、試料結晶の直線二色性による偏光面回転角がわかる。Fig. 7 のようなスキャンを各エネルギーで行って、求められた回転角と楕円率変化のスペクトルが、それぞれ、Fig. 8 と Fig. 9 である。Fig. 9 の (a), (b), (c), (d) は、移相子によって生成される楕円偏光の楕円率が、それぞれ、-0.04, -0.02, +0.02, +0.04 になるように移相子をコントロールして得られた偏光の楕円率のスペクトルである。ここで、楕円

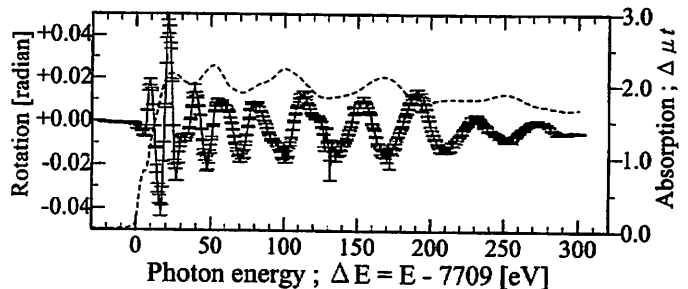


Fig. 8 Spectrum of rotation angle of polarization obtained with an hcp cobalt single crystal foil.

率の符号は、左ネジ楕円偏光の方をプラスになるように定義した。(a) の図の中に、移相子および試料結晶の複屈折により与えられる位相差に換算して、 $2\pi/100$  になる楕円率の値を垂直なバーで示してある。この値は、Bonse-Hart X線干渉計[25,26]の位相検出限界であることから、本研究で測定された直線複屈折の現象は、Bonse-Hart 線干渉計では、検出が難しかったであろうことがわかる。 $2\pi/100$  の位相検出限界という量は、スプリッター、ミラー、アナライザー結晶の相対位置と角度をどれだけの精度で静止させられるかという、技術的問題による限界である。Fig. 9 (b) と (c) の左の隅の横長の小さな長方形で囲った領域を拡大表示したのが、Fig. 10 の (a) と (b) である。コバルト吸収端から  $+2\text{ eV}$  のあたりに、互いに反転した小さなシグナルが見られるが、この反転により、これは明らかに有意なシグナルであることが判る。Fig. 10

(a) の中に示した縦のバーが  $2\pi/1,000$  の位相差であり、低エネルギー側でのエラーバーの半値は、 $2\pi/10,000$  より小さい。このスペクトルを「X線の偏光の干渉」[27] を観測していると捉えた場合、その干渉計としての位相検出能力は、 $2\pi/10,000$  程度であるといえる。原子サイズの  $1/10,000$  のX線波面のズレが見えているのである。吸収端より高エネルギー側では、X線光子数の減少から、エラーバーは大きくなっている。このことから  $2\pi/10,000$  の位相検出限界は、今のところ量子統計にのみ支配された値であることがわかる。アナライザーを使って偏光の干渉を実現したとき、スペクトロスコーピーだけでなく、イメージング (1996年、平野によって行われている[28]) に於いても、このことは言えるであろう。この驚異的な位相検出能力は、干渉し合う波が、まったく同じ光路を伝搬することから、二光束干渉における光路差の安定性の問題がないことにより達成されている。しかし同時に、このことにより、複屈折を起こさない物体で位相コントラストを得られないかのように思える。しかし方法はある。可視光に於いて既に行われている、ノマルスキー型微分干渉顕微鏡やスミス干渉計のように、シェアリングプリズムを使えば、波は自分自身と干渉するこ

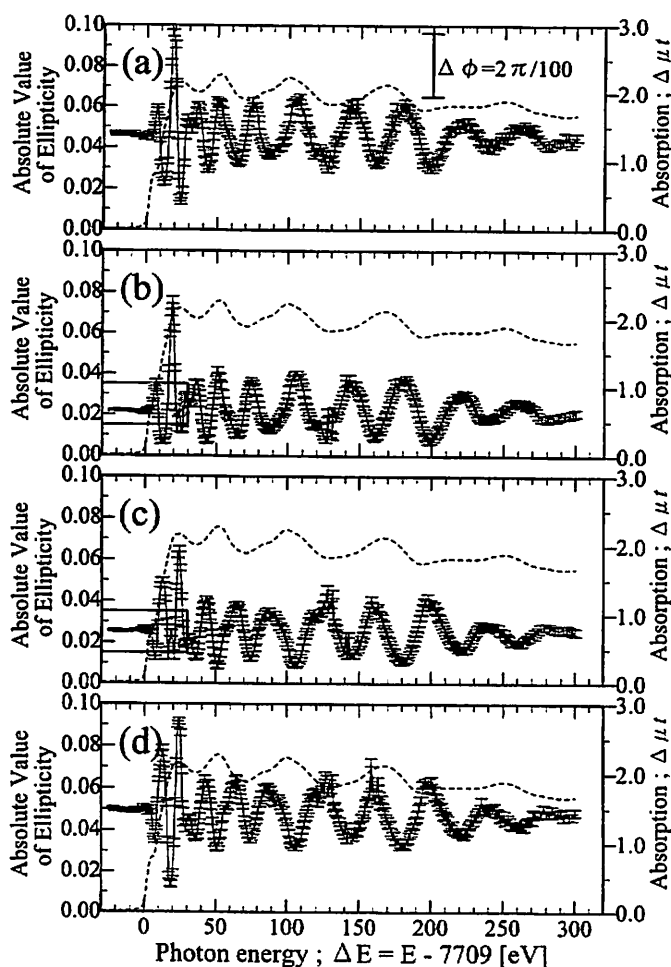


Fig. 9 Spectra of ellipticity of polarization obtained with an *hcp* cobalt single crystal foil. (a), (b), (c) and (d) correspond to initial ellipticity values,  $-0.04$ ,  $-0.02$ ,  $+0.02$  and  $+0.04$ , respectively, which were applied by controlling the phase retarder crystal.

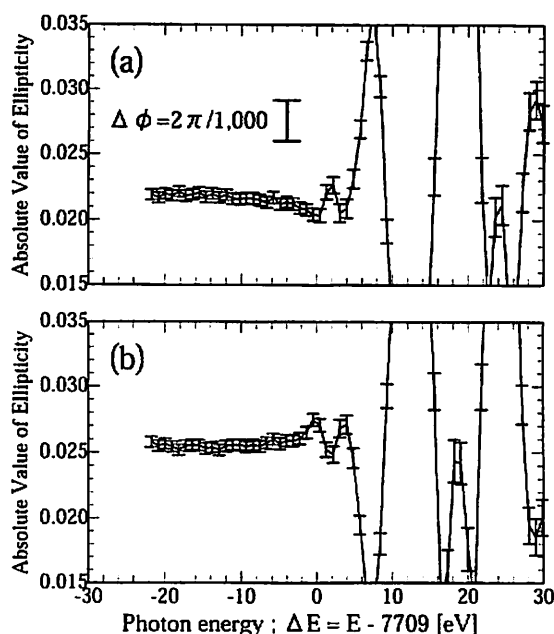


Fig. 10 Expanded spectra of ellipticity of polarization obtained with an *hcp* cobalt single crystal foil. (a) and (b) correspond to small square region drawn in left lower of parts of Fig. 10 (b) and (c).

とになる。X線波長でのシェアリングプリズムには、完全結晶における動力学的回折理論から導かれる、 $\sigma$ -偏光と  $\pi$ -偏光のポインティングベクトル、あるいは群速度のズレを用いなければならない。

#### 謝辞

本研究は、次の方々との共同研究として行われました。東京大学の雨宮慶幸教授、上エ地義徳博士、長谷川祐司博士、スプリングエイトサービスの小口拓世博士、ワシントン州立大学の佐藤公法博士、物質構造科学研究所の松下正教授、広島大学の圓山裕教授に心より感謝申し上げます。

収差補償型X線移相子のダイヤモンド結晶の調整は、東京大学工学部強力X線実験室に於いて行われたこと、放射光実験は、おもに Photon Factory の S 型課題 99S2-003 により行われたことを明記します。

#### 参考文献

- [1] G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm and G. Materik : *Phys. Rev. Lett.* **58**, 737 (1987).
- [2] H. Maruyama, T. Iwazumi, H. Kawata, A. Koizumi, M. Fujita, H. Sakurai, F. Itoh, K. Namikawa, H. Yamazaki and M. Ando: *J. Phys. Soc. Jpn.* **60**, 1456 (1991).
- [3] K. Hirano, K. Izumi, T. Ishikawa, S. Annaka and S. Kikuta: *Jpn. J. Appl. Phys.* **30**, L407 (1991).
- [4] K. Hirano, T. Ishikawa and S. Kikuta: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* **A336**, 343 (1993).
- [5] K. Hirano, T. Ishikawa and S. Kikuta: *Rev. Sci. Instrum.* **66**, 1604 (1995).
- [6] K. Hirano and H. Maruyama : *Jpn. J. Appl. Phys.* **36**, L1272 (1997).
- [7] M. Suzuki, N. Kawamura, M. Mizumaki, A. Urata, H. Maruyama, S. Goto and T. Ishikawa: *Jpn. J. Appl. Phys.* **37**, L1488 (1998).
- [8] M. Hart: *Philos. Mag.* **B38**, 41 (1978).
- [9] S. Annaka, T. Suzuki and K. Onoue: *Acta Crystallogr.* **A36**, 151 (1980).
- [10] S. Annaka: *J. Phys. Soc. Jpn.* **51**, 1927 (1982).
- [11] J. A. Golovchenko, B. M. Kincaid, R. A. Lvesque, A. E. Meixner and D. R. Kaplan: *Phys. Rev. Lett.* **57**, 202 (1986).
- [12] D. M. Mills: *Phys. Rev. B* **36**, 6178 (1987).
- [13] K. Okitsu, Y. Ueji, K. Sato and Y. Amemiya: *J. Synchrotron Rad.* **8**, 33 (2001).
- [14] K. Okitsu, Y. Ueji, K. Sato and Y. Amemiya: *Acta Crystallogr.* **A58**, 146 (2002).
- [15] 沖津康平, 上エ地義徳, 佐藤公法, 雨宮慶幸: 東大工学部 総合試験所年報 Vol. **58**, 231 (1999).
- [16] K. Sato, K. Okitsu, Y. Ueji, T. Matsushita and Y. Amemiya: *J. Synchrotron Rad.* **7**, 368 (2000).
- [17] 佐藤公法, 上エ地義徳, 沖津康平, 長谷川祐司, 松下正, 雨宮慶幸: *日本放射光学会誌* **13**, 304 (2000).
- [18] 上エ地義徳, 沖津康平, 佐藤公法, 雨宮慶幸: *日本放射光学会誌* **13**, 48 (2000).
- [19] K. Sato, Y. Ueji, K. Okitsu, T. Matsushita and Y. Amemiya: *J. Synchrotron Rad.* **8**, 1021 (2001).
- [20] K. Sato, Y. Ueji, K. Okitsu, T. Matsushita, J. Saito, T. Takayama and Y. Amemiya: *J. Magn. Soc. Jpn* **25**, 206 (2001).
- [21] K. Sato, Y. Ueji, K. Okitsu, T. Matsushita, J. Saito, T. Takayama and Y. Amemiya: *Phys. Rev.* **B65**, 134408 (2002).
- [22] K. Okitsu, T. Oguchi, H. Maruyama and Y. Amemiya: *J. Synchrotron Rad.* **5**, 995 (1998).
- [23] 沖津康平, 上地義徳, 小口拓世, 圓山裕, 長谷川祐司, 雨宮慶幸: *日本結晶学会誌* **40**, 341 (1998).
- [24] M. Hart and A. R. D. Rodrigues: *Phylos. Mag.* **B40**, 149 (1979).
- [25] U. Bonse and M. Hart: *Appl. Phys. Lett.* **6**, 155 (1965).
- [26] U. Bonse and M. Hart : *Appl. Phys. Lett.* **7**, 99 (1965).
- [27] K. Okitsu: *J. Phys. Soc. Jpn.* **62**, 911 (1993).
- [28] K. Hirano: *J. Appl. Phys.* **79**, 3365 (1996).

# 次世代放射光光源と利用研究 ～ ERL とコヒーレンスを中心として ～

物質構造科学研究所 平野馨一

## 1. はじめに

現在、世界各地で次世代の放射光光源の計画が精力的に進められているが、それらの計画は大きく分けると X 線自由電子レーザー (X-ray Free Electron Laser: X-FEL) とエネルギー回収型ライナック (Energy Recovery Linac: ERL) の二つに分類される。XFEL は電子ビームを長尺のアンジュレーターの中に通すことによってレーザー発振させるものであり、たとえば SLAC の LCLS 計画 (米国)、DESY の TESLA 計画 (ドイツ)、SPRING-8 の SCSS 計画 (日本) などが有名である。他方 ERL では、インジェクターからの電子ビームを超伝導ライナックで加速し、周回リングを一周させた後、超伝導ライナックで減速して廃棄する。電子ビームを減速する際に回収したエネルギーは次の電子ビームを加速するのに利用されるため、「エネルギー回収型」(Energy Recovery) という名称がつけられている。ERL の計画としては CHESS の ERL 計画 (米国)、NSLS の PERL 計画 (米国)、LBNL の Recirculating Linac 計画 (米国)、Erlangen Synchrotron Light Source の ERL 計画 (ドイツ) などがあるが、特に進んでいるのが CHESS の計画である。

ここ数年、Photon Factory (PF) でも将来計画の検討がなされてきたが、このような世界的状況を考えると、「XFEL と ERL のどちらを新光源として選ぶべきか？」ということがまず問題になってくる。この問題で特に考慮すべきことは、共同利用研究機関としての PF の使命である。現在 PF には 50 本以上の実験ステーションがあって多彩な研究が行われているが、新光源は少なくとも現在の研究活動の水準を保てるだけの capacity を持っていなければならない。この観点から XFEL と ERL を比較すると、ビームラインを 10 本程度しか建設できない XFEL よりも、リング部に多数のビームラインを設置できる ERL の方が、PF の新光源としてふさわしいことになる。そこで以下では、ERL の特徴と利用研究について概観することにする。

## 2. ERL で得られる光の特徴

これまでの放射光光源では電子ビームが蓄積リングの中を何回も周回するため、ビームの軌道がぼけてエミッタンスが大きくなるという問題があった。これに対して ERL では、電子ビームはリング内を一回あるいは数回しか回らないため、ビーム軌道のぼけが小さくなってエミッタンスが小さくなるという特徴がある。

まず、longitudinal なエミッタンスが小さくなることから、短パルス光が得られるようになる。現在、PF では約 100ps、SPRING-8 では約 30ps というパルス光が得られているが、ERL では 100fs～数 ps の短パルス光が得られるようになる。

次に、transverse なエミッタンスが小さくなる。たとえば CHESS の ERL 計画では、

High Coherence Mode の場合、 $\epsilon_x \sim \epsilon_y \sim 15 \text{ pmrad}$  程度である。この値を SPring-8 の  $\epsilon_x \sim 6 \text{ nmrad}$ 、 $\epsilon_y \sim 5 \text{ pmrad}$  という値と比較すると、 $\epsilon_y$  は約 3 倍の大きさであるが  $\epsilon_x$  は約 1/400 の大きさである。エミッタンスが小さくなることから、輝度が数十倍向上し、コヒーレンスも向上することになる。

## 2.1 空間的コヒーレンス

空間的にコヒーレントな角度幅は  $\delta\theta \approx \lambda/2d$  という式で与えられる。ここで  $\lambda$  は波長、 $d$  は光源のサイズである。ERL では光源のサイズが小さくなるため、空間的コヒーレンスが向上する。例として CHESS-ERL の High Coherence Mode の場合（光源サイズは水平・垂直両方向とも  $25 \mu\text{m}$ ）について  $\delta\theta$  を計算すると、波長  $0.15 \text{ nm}$  の時、水平・垂直両方向とも約  $3 \mu\text{rad}$  になる。光の発散角は水平・垂直両方向とも約  $7 \mu\text{rad}$  なので、コヒーレント成分の割合（Coherent Fraction）は約 20%となる。同様にして SPring-8 の Coherent Fraction を見積もると、波長  $0.15 \text{ nm}$  で約 0.15%である。このことから、ERL では第三世代の放射光よりも Coherent Fraction が約二桁高くなることがわかる。

## 2.2 時間的コヒーレンス

時間的なコヒーレント長は  $l_c \approx \lambda^2/\Delta\lambda$  という式で与えられる。ここで  $\Delta\lambda$  は波長広がりである。またコヒーレント時間  $t_c$  は、光が  $l_c$  の距離を進むのに要する時間として定義される。時間的にコヒーレントな光の割合は、パルスの時間幅を  $\tau$  とすると  $t_c/\tau$  で与えられる。放射光の場合、コヒーレント長  $l_c$  はもっぱら分光器の性能によって決まるので、XFEL や ERL のような次世代の放射光光源ができて大して改善されないと考えられる。

## 2.3 光子縮重度

光子縮重度は「一つのパルスの中に含まれる、空間的にも時間的にもコヒーレントな光子の数」と定義され、次式で与えられる。

$$\delta_D \approx \frac{F}{f} P_c \frac{t_c}{\tau}$$

ここで  $F$  はフラックス、 $f$  は周波数、 $P_c$  は空間的にコヒーレントな成分の割合、 $t_c$  はコヒーレント時間、 $\tau$  はパルスの時間幅である（ $t_c/\tau$  が時間的にコヒーレントな成分の割合である）。この式から CHESS-ERL の High Coherence Mode の場合について光子縮重度を見積もると、波長  $0.15 \text{ nm}$  で約 380 となる。ちなみに SPring-8 の  $25 \text{ m}$  Undulator では、同じ波長で約 0.5 である。

## 2.4 光学系などに関する検討課題

以上のように ERL には様々な優れた特徴があるが、光源でせっかく良い光が得られても、ビームライン光学系などでそれを劣化させてしまっては台無しである。そこで、ビームラ

イン光学系などに関してもあらかじめよく検討しておく必要がある。たとえば、熱負荷対策、パルス制御、集光素子・光学系、コヒーレンス保存などの問題に取り組む必要がある[1]。

### 3. PFのERL計画

現在PFでは、物構研運営協議会の下での放射光将来計画ワーキンググループでERL計画の検討を進めている。仕様についてはまだ確定していないが、表1のような案が出されている。図1は表1の仕様にしたがって設計したラティスの例である。

PF-ERL Main Parameters

Beam Energy	2.5 - 5.0 (GeV)
Injection Energy	10 (MeV)
Circumference	1253 (m)
Beam Current	~100 (mA)
Normalized Emittance	~0.1 ( $\mu\text{mrad}$ )
Horizontal Emittance	~10.0 (pmrad) at 5.0 GeV
Vertical Emittance	~10.0 (pmrad) at 5.0 GeV
Energy Spread	~ $5 \times 10^{-5}$
Bunch Length	1 (ps) ~ 100 (fs)
RF Frequency	1.3 (GHz)
ACC. Gradient	~20 (MV/m)
Long Undulator	200 (m) x 1
Middle Undulator	30 (m) x 4
Short Undulator	5 (m) x 12

表1 PF-ERLの仕様案 (2002年10月現在)

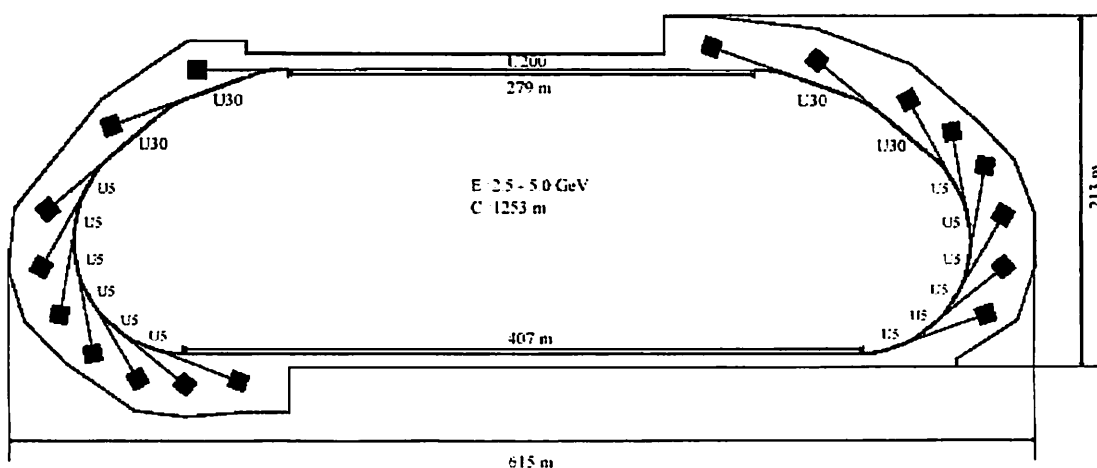


図1 PF-ERLのラティスの案 (2002年10月現在、PF小林幸則氏による)



表 1 の数値をベースにして計算した輝度、フラックスなどを図 2 に示す。

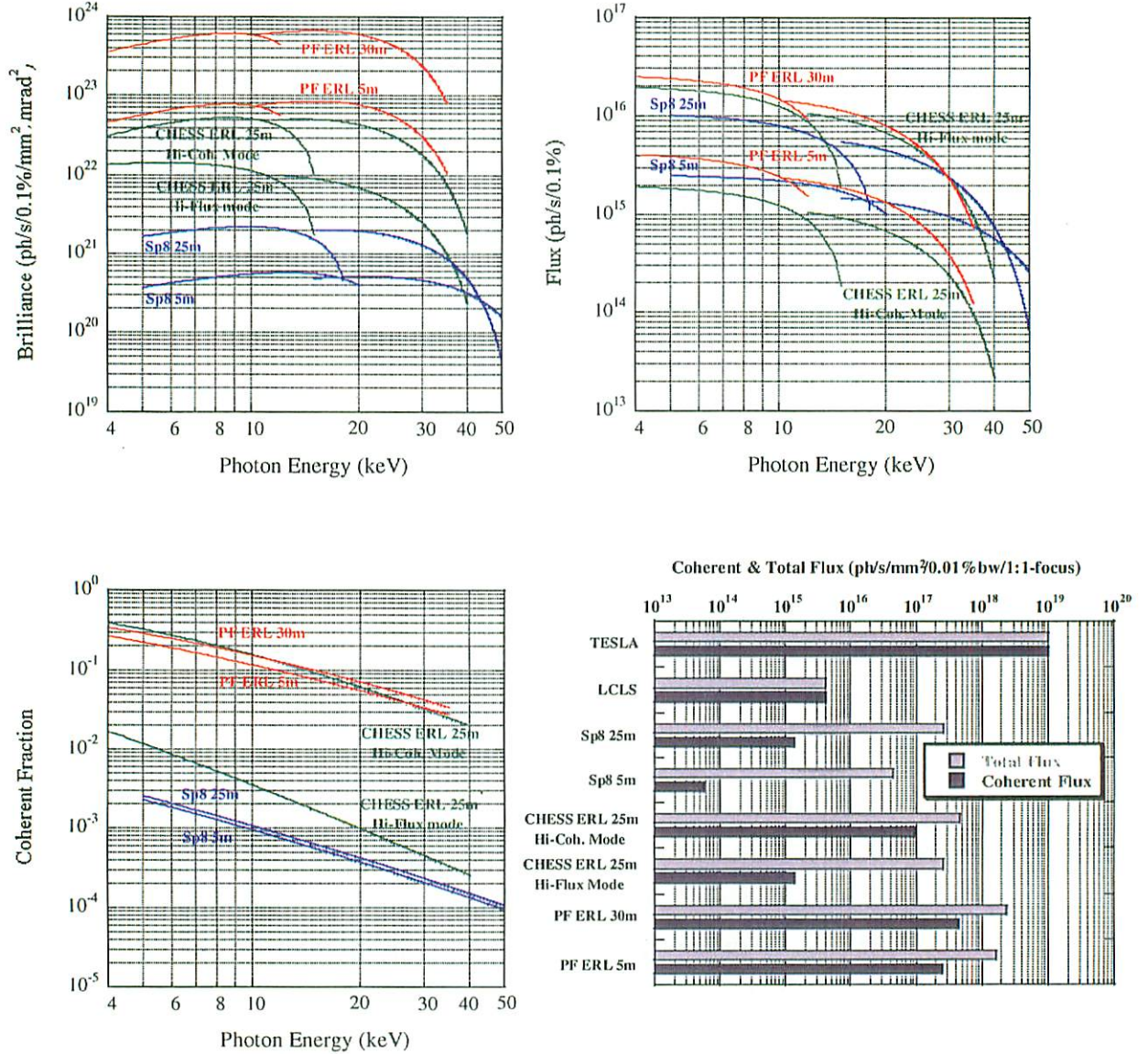


図 2 PF-ERL で得られる光の輝度、フラックスなどの計算例

ここでは PF-ERL のパラメーターを、 $E = 5 \text{ GeV}$ 、 $I = 100 \text{ mA}$ 、 $\epsilon_x = \epsilon_y = 10 \text{ pmrad}$  とした。30m-Undulator のパラメーターは、 $\lambda_u = 1.6 \text{ cm}$ 、 $N = 1875$ 、 $\beta_x = \beta_y = 20\text{m}$ 、5m-Undulator のパラメーターは、 $\lambda_u = 1.6 \text{ cm}$ 、 $N = 312$ 、 $\beta_x = \beta_y = 5\text{m}$  である。なお、PF-ERL のパラメーターはまだ確定しておらず、ここに挙げた値は目標値である。

#### 4. ERL の利用研究

ERL の利用研究については、すでにレポートが数件出版されており[2,3]、国際的なワークショップも数回開催されている[4,5]。また、XFEL の利用研究に関する資料[6,7]もたいへん参考になる。これらの資料から、ERL の利用研究として図3のような方向性が見えてくる。PF でも ERL の利用研究を検討しているところであり、その詳細については近々デザインレポート（仮称）で紹介される予定である。

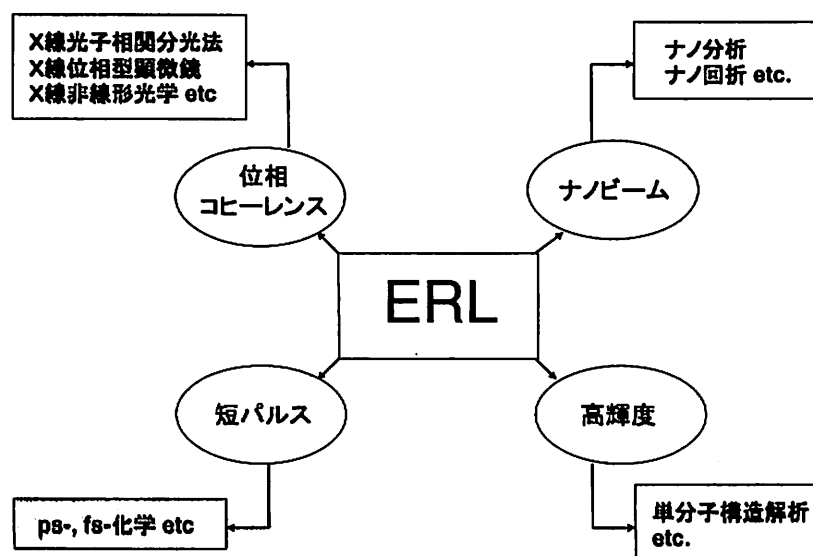


図3 ERL 利用研究の方向性

#### 参考文献

- [1] 平野馨一：2002年9月PFセミナー 「次世代光源とX線光学素子 初級編」
- [2] “Study for a proposed Phase I Energy Recovery Linac (ERL) Synchrotron Light Source at Cornell University” (Sol M. Gruner & Maury Tigner, eds., Cornell University).
- [3] S. Gruner, D. Bilderback and M. Tigner : “Synchrotron Radiation Sources for the Future” (Cornell University, November 2000).
- [4] “X-ray Science Workshop” (Cornell University, December 2000).
- [5] SRI2001 Workshop “Energy Recovery Linac Sources of Synchrotron Radiation” (August 2001)
- [6] “LCLS The First Experiments” (SLAC, September 2000)
- [7] “TESLA Technical Design Report Part V” (G. Materlik Th. Tschentscher, eds., March 2001).

## 5. 総合討論「今後の展望とPF将来計画」サマリ

### 1. ERL利用研究提案の部

最初に東大・百生氏より、本研究会で述べられたX線の位相やコヒーレンスが関係する研究項目がリストアップされ、それに対する意見・コメント、また、新しい研究提案を求める呼びかけがなされた。

その呼びかけに応じて「X線の位相の高速制御による fs-X線シャッターの可能性について」という提案がPF・平野氏からなされた。X線の位相を高速に制御する方法と、フェムト秒～ナノ秒の開閉速度を持つX線シャッターについて説明があった。

研究提案はこの一件のみで、続いて自由討論に移った。

### 2. 自由討論の部

以下に、話題になった点の一部を箇条書きで記す。

#### (1) オーバーサンプリング法による単分子の構造解析について

- XFELの超強力なパルス光が試料にあたると、原子核は止まっても電子は吹き飛ばしてしまうので、電子分布を観察することはできない。
- TESLAの様子を見ると、生物の研究者たちは悲観的なようだ。
- 試料や検出器などのあらゆる部分に難問が山積している。
- 試料の取り扱い（方位合わせ）などの技術は他の分野でかなり進んでいるので、そうした技術を利用できるだろう。

#### (2) 短パルス利用研究について

- 短パルスの利用研究としては、放射光とレーザーの同期実験（ポンプ・プローブ実験）による、ps-、fs-化学などが挙げられる。その一つの例は光誘起相転位である。
- レーザーパルスの周波数は10kHz程度なので、1.3GHz、Flux:10の13乗ph/sでも10kHz利用だと10の8乗ph/sになってしまう。この強度減少の問題を解決するために、10kHz、1nCの運転モードを検討する。この場合、10の11乗ph/s 0.1%bwとなり、従来の測定手法を適用できる。
- 短パルスを試料に照射した時、実際に構造が現れるのは通常数百psの時間オーダーなので、現在の第三代放射光でも実験は可能である。ERLでは100fs～1psという短パルス光が得られるが、たとえばsurface meltingなどの観察に利用できるのではないか。

#### (3) その他

- 茨城県立医療大の森氏から、「生物試料が扱えるように実験環境を整備して欲しい」という要望があった。

## 6. 参加者リスト 五十音順

上エ地義徳（東京大学大学院新領域創成科学研究科助手）

〒277-8581 千葉県柏市柏の葉 5-1-5

TEL: 04-7136-3751 FAX: 03-4512-4204 e-mail: ueji@k.u-tokyo.ac.jp

上原祥嗣（神津精機株式会社）

〒215-8521 神奈川県川崎市麻生区栗木 2-6-15

TEL: 044-981-2131 FAX: 044-981-2181 e-mail: uehara@kohzu.co.jp

大内一生（松下寿電子工業株式会社）

〒791-0395 愛媛県温泉郡川内町南方 2131-1

TEL: 089-966-1167 FAX: 089-966-3602 e-mail: ouchi@mat.mke.mei.co.jp

沖津康平（東京大学工学部総合研究機構助手）

〒113-8656 東京都文京区弥生 2-11-16

TEL: 03-5841-7470 FAX: 03-5841-7470 e-mail: okitsu@soyak.t.u-tokyo.ac.jp

籠島靖（姫路工業大学大学院理学研究科物質科学専攻助教授）

〒678-1297 兵庫県赤穂郡上郡町光都 3-2-1

TEL: 0791-58-0230 FAX: 0791-58-0236 e-mail: kagosima@sci.himeji-tech.ac.jp

川本真也（東京大学大学院工学系研究科修士 1 年）

〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1

TEL: 03-5841-6842 FAX: 03-5841-6803 e-mail: kawamoto@mml.t.u-tokyo.ac.jp

北口雅暁（京都大学大学院理学研究科博士課程 2 年）

〒606-8502 京都市左京区北白川追分町

TEL: 075-753-3842 FAX: 075-753-3887 e-mail: kitaguch@nh.scphys.kyoto-u.ac.jp

郷原一寿（北海道大学大学院工学研究科量子物理工学専攻助教授）

〒060-8628 札幌市北区北 13 条西 8 丁目

TEL: 011-706-6636 FAX: 011-716-6175 e-mail: gohara@eng.hokudai.ac.jp

香村芳樹（SPring-8/理研）

〒679-5148 兵庫県佐用郡三日月町光都 1-1-1

TEL: 0791-58-2806 FAX: 0791-58-2807 e-mail: kohmura@sp8sun.spring8.or.jp

小島正道（神津精機株式会社）

〒215-8521 神奈川県川崎市麻生区栗木 2-6-15

TEL: 044-981-2131 FAX: 044-981-2181 e-mail: kojima@kohzu.co.jp

小山一郎（東京大学大学院工学系研究科助手）

〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1

TEL: 03-5841-6842 FAX: 03-5841-6803 e-mail: ichiro@mml.t.u-tokyo.ac.jp

桜井健次（物質・材料研究機構材料研究所高輝度光解析グループディレクター）

〒305-0047 つくば市千現 1-2-1

TEL: 0298-59-2821 FAX: 0298-59-2801 e-mail: sakurai@yuhgiri.nims.go.jp

佐々木聡（東京工業大学応用セラミックス研究所教授）

〒226-8503 横浜市緑区長津田町 4259

TEL: 045-924-5308 FAX: 045-924-5339 e-mail: sasaki@n.cc.titech.ac.jp

篠原佑也（東京大学工学部物理工学科学部 4 年）

〒277-8561 千葉県柏市柏の葉 5-1-5 基盤研究棟 601

TEL: 04-7136-3751 FAX: 04-7136-3751 e-mail: shinohara@x-ray.k.u-tokyo.ac.jp

下村晋（慶應義塾大学理工学部物理学科講師）

〒223-8522 横浜市港北区日吉 3-14-1

TEL: 045-566-1683 FAX: 045-566-1672 e-mail: simomura@phys.keio.ac.jp

杉山弘（KEK-PF 助手）

〒305-0035 茨城県つくば市大穂 1-1

TEL: 0298-64-5200 FAX: 0298-64-3202 e-mail: hiroshi.sugiyama@kek.jp

鈴木芳生（JASRI 副主席研究員）

〒679-5148 兵庫県三日月町光町 1-1-1

TEL: 0791-58-0831 FAX: 0791-58-0830 e-mail: yoshio@spring8.or.jp

Alexei Souvorov（SPring-8/JASRI）

〒679-5148 兵庫県三日月町光町 1-1-1

TEL: 0791-58-0802 ext.3765 FAX: 0791-58-0830 e-mail: souvorov@spring8.or.jp

高橋敏男（東京大学物性研究所助教授）

〒277-8581 柏市柏の葉 5-1-5

TEL: 04-7136-3370 FAX: 04-7136-3370 e-mail: ttaka@issp.u-tokyo.ac.jp

高野秀和（JASRI/SPring-8）

〒679-5148 兵庫県佐用郡三日月町光都 1-1-1

TEL: 0791-58-0803 FAX: 0791-58-2512 e-mail: htakano@spring8.or.jp

武田徹（筑波大学臨床医学系講師）

〒305-8575 つくば市天王台 1-1-1

TEL: 0298-53-3774 FAX: 0298-53-3658 e-mail: ttakeda@md.tsukuba.ac.jp

玉作賢治（SPring-8/理研）

〒679-5148 兵庫県佐用郡三日月町光都 1-1-1

TEL: 0791-58-0802 ext.3821 FAX: 0791-58-2807 e-mail: tamasaku@spring8.or.jp

中山貫（産総研計測標準）

〒305-8563 つくば市梅園 1-1-1 中央 3-9

TEL: 0298-61-4247 FAX: 0298-61-4349 e-mail: kan.nakayama@aist.go.jp

西野吉則 (SPring-8/理研研究員)

〒679-5148 兵庫県佐用郡三日月町光都 1-1-1

0791-58-0802 ext.3406 FAX: 0791-58-2807 e-mail: nishino@spring8.or.jp

野村 昌治 (KEK-PF 教授)

〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1

TEL: 0298-64-5633 FAX: 0298-64-2801 e-mail: masaharu.nomura@kek.jp

濱石佳孝 (東京大学大学院工学系研究科修士 1 年)

〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1

TEL: 03-5841-6842 FAX: 03-5841-6803 e-mail: hama@mml.t.u-tokyo.ac.jp

林好一 (東北大学金属材料研究所助手)

〒980-8577 仙台市青葉区片平 2-1-1

TEL: 022-215-2078 FAX: 022-215-2076 e-mail: khayashi@imr.tohoku.ac.jp

日野正裕 (京都大学原子炉実験所助手)

〒590-0494 大阪府泉南郡熊取町野田

TEL: 0724-51-2450 FAX: 0724-51-2635 e-mail: hino@rri.kyoto-u.ac.jp

平野馨一 (KEK-PF 助手)

〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1

TEL: 0298-64-5649 FAX: 0298-64-2801 e-mail: keiichi.hirano@kek.jp

藤森啓起 (東京大学大学院工学系研究科修士 2 年)

〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1

TEL: 03-5841-6842 FAX: 03-5841-6803 e-mail: fujimori@mml.t.u-tokyo.ac.jp

舟橋春彦 (京都大学大学院理学研究科助手)

〒606-8502 京都市左京区

TEL: 075-753-3842 FAX: 075-753-3887 e-mail: hal@nh.scphys.kyoto-u.ac.jp

森山倫宏 (神津精機株式会社)

〒215-8521 神奈川県川崎市麻生区栗木 2-6-15

TEL: 044-981-2131 FAX: 044-981-2181 e-mail: moriyama@kohzu.co.jp

宮原恒昱 (東京都立大学大学院理学研究科物理学専攻教授)

〒192-0397 八王子市南大沢 1-1

TEL: 0426-77-2494 FAX: 0426-77-2483 e-mail: miyahara@comp.metro-u.ac.jp

百生敦 (東京大学大学院工学系研究科助教授)

〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1

TEL: 03-5841-6855 FAX: 03-5841-8739 e-mail: momose@exp.t.u-tokyo.ac.jp

森浩一 (茨城県立医療大学保健医療学部教授)

〒300-0394 茨城県稲敷郡阿見町阿見 4669-2

TEL: 0298-40-2191 FAX: 0298-40-2291 e-mail: mori@ipc.ac.jp

矢橋牧名 (SPring-8/JASRI)

〒679-5148 兵庫県佐用郡三日月町光都 1-1-1

TEL: 0791-58-0802 ext.3811 FAX: 0791-58-0830 e-mail: yabashi@spring8.or.jp

湯城磨 (株式会社東芝)

〒324-8550 栃木県大田原市下石上 1385

TEL: 0287-26-6345 FAX: 0287-26-6060 e-mail: osamu.yushiro@toshiba.co.jp

吉川秀樹 (東京大学大学院工学系研究科修士2年)

〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1

TEL: 03-5841-6842 FAX: 03-5841-6803 e-mail: yoshikawa@mml.t.u-tokyo.ac.jp

米山明男 (株式会社日立製作所基礎研究所)

〒350-0395 埼玉県比企郡鳩山町赤沼 2520

TEL: 049-296-6111 FAX: 049-296-5999 e-mail: a-yoneya@harl.hitachi.co.jp

渡辺紀生 (筑波大学物理工学科)

〒305-8573 茨城県つくば市天王台 1-1-1

TEL: 0298-53-5318 FAX: 0298-53-5205 e-mail: watanabe@bk.tsukuba.ac.jp

(当日参加)

浅利桂一 (神津精機)、雨宮慶幸 (東大、amemiya@k.u-tokyo.ac.jp)、飯田厚夫 (KEK-PF、atsuo.iida@kek.jp)、大隅一政 (KEK-PF、kazumasa.ohsumi@kek.jp)、河田洋 (KEK-PF、hiroshi.kawata@kek.jp)、北島義典 (KEK-PF、yoshinori.kitajima@kek.jp)、島雄大介 (県立医療大)、張小威 (KEK-PF、zhang.xiaowei@kek.jp)、東保男 (KEK)、平野雅嗣 (JASRI)、間瀬一彦 (KEK-PF、kazuhiko.mase@kek.jp)、柳下明 (KEK-PF、akira.yagishita@kek.jp)