

X線位相利用計測における最近の展開 II

2005年5月12日（木）～13日（金）

高エネルギー加速器研究機構

編集：百生 敦、平野 馨一

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
「SPring-8 Compact SASE Source (SCSS)」	
石川哲也	8
「X線回折顕微鏡における逐次的像再生」	
西野吉則、Jianwei Miao、香村芳樹、高橋幸生、山本雅貴、 小池邦昭、戎崎俊一、石川哲也	12
「Effect of Distorted Illumination Waves on Coherent Diffraction Microscopy」	
香村芳樹、西野吉則、石川哲也、Jianwei Miao	16
「単分子構造解析における生体分子表面の水分子の影響」	
山田悠介	20
「高分解能フーリエ X線分光における位相問題」	
玉作賢治	23
「XFEL と強度干渉法」	
矢橋牧名	27
「完全結晶を利用した X線コヒーレンスの解析と加工」	
山崎裕史	29
「X線スペckルの利用」	
並河一道	33
「ミロー型干渉計を用いた軟 X線干渉計測」	
芳賀恒之、木下博雄、竹中久貴	37
「軟 X線干渉法による EUVL 投影光学系の波面収差計測」	
新部正人	40
「卓上型放射光装置 “みらくる” の放射光特性とイメージング利用」	
山田廣成	44
「位相コントラスト技術のデジタル乳房 X線撮影への応用」	
本田凡、大原弘、石坂哲、島田文生	52
「X線タルボ干渉計による位相イメージング」	
百生敦	56
「屈折プリズムを用いた X線二光束ホログラフィの開発」	
竹内晃久、鈴木芳生	60
「プリズムとゾーンプレートを用いた X線結像ホログラフィー」	
鈴木芳生、竹内晃久	64

「拡大視野硬 X 線位相差顕微鏡による生体試料観察」	青木貞夫、並河忠宏、星野真人、渡辺紀生	68
「硬 X 線顕微干涉計による高空間分解能位相計測」	小山貴久、高野秀和、津坂佳幸、籠島靖、松井純爾	71
「ゾンプレートを用いた X 線干涉顕微鏡の開発」	渡辺紀生	75
「X 線集光ビームを利用した位相計測～トモグラフィへの拡張～」	高野秀和、上杉健太郎、竹内晃久、鈴木芳生	78
「定量化に向けた蛍光 X 線ホログラフィーの最近の進展」	林好一	81
「マイクロ位相 CT による生体組織及びポリマーブレンドの観察」	百生敦	85
「位相 X 線イメージングを用いた生体試料観察」	武田徹	90
「X 線屈折コントラスト法への金属学への応用」	水野薫、岡本博之、古谷吉男	93
「臨床応用のための X 線暗視野法の開発」	杉山弘、国定俊之、島雄大介、武田健、兵藤一行、橋詰博行、井上一、安藤正海	97
5. 参加者リスト		99

1. 研究会趣旨

X線の位相利用、あるいは、コヒーレンス利用は、今後予想される放射光源の発展に伴って、さらに広がってゆくと期待される主要な研究対象であり、様々な分野でのサイエンス・テクノロジーへの寄与は計り知れません。平成14年秋にはそのような研究分野に焦点を絞ったP F研究会を開催し、それまでには無かった角度からの有意義な議論がなされました（KEK-Proceedings 2002-22, X線位相利用計測における最近の展開）。それから2年半が経過した間にも多くの成果が報告され、研究の裾野は確実に広がりつつあるといえます。X線位相利用に関する研究会を再び企画することは、この状況を鑑みれば極めて有意義であると考えられます。そこでP F懇談会の「位相利用計測」グループが主体となり、深い議論と相互理解の場を提供するとともに、今後のP Fの将来計画にも寄与すべく、本研究会を「X線位相利用計測における最近の展開Ⅱ」として企画しました。

2. プログラム

5月12日(木)

- 09:00-09:10 開会の挨拶
座長：平野馨一 (KEK・PF)
- 09:10-09:40 **SPRING-8 Compact SASE Source (SCSS)**
石川哲也 (理研・播磨研)
- 09:40-10:05 **X線回折顕微鏡における逐次的像再生**
西野吉則 (理研・播磨研)
- 10:05-10:30 **回折顕微鏡の電子密度回復に照射波分布が与える影響**
香村芳樹 (理研・播磨研)
- 10:30-10:45 **単分子構造解析における生体分子表面の水分子の影響**
山田悠介 (KEK・PF)
- 10:45-11:00 休憩
座長：百生敦 (東京大学)
- 11:00-11:25 **高分解能フーリエX線分光における位相問題**
玉作賢治 (理研・播磨研)
- 11:25-11:50 **XFELと強度干渉法**
矢橋牧名 (JASRI)
- 11:50-12:15 **完全結晶を利用したX線コヒーレンスの解析と加工**
山崎裕史 (JASRI)
- 12:15-13:35 昼食
座長：百生敦 (東京大学)
- 13:35-14:05 **X線スペックルの利用**
並河一道 (東京学芸大学)
- 14:05-14:35 **ミロー型干渉計を用いた軟X線干渉計測**
芳賀恒之 (NTTマイクロシステムインテグレーション研究所)
- 14:35-15:05 **軟X線干渉法による EUVL 投影光学系の波面収差計測**
新部正人 (兵庫県立大学)
- 15:05-15:20 休憩
座長：青木貞雄 (筑波大学)
- 15:20-15:50 **卓上型放射光装置“みらくる”の放射光特性とイメージング利用**
山田廣成 (立命館大学)
- 15:50-16:15 **位相コントラスト技術の乳房撮影への応用**
本田凡 (コニカミノルタエムジー(株)開発センター)

- 16:15-16:40 タルボ干渉計によるX線位相イメージング
百生敦 (東京大学)
- 16:40-16:55 休憩
座長：籠島靖(兵庫大)
- 16:55-17:20 屈折プリズムを用いたX線二光束干渉計の開発
竹内晃久 (JASRI)
- 17:20-17:45 プリズムとゾーンプレートを用いた結像ホログラフィー
鈴木芳生 (JASRI)
- 18:00-20:00 懇親会 @国際交流センター 交流ラウンジ2

5月13日(金)

- 座長：鈴木芳生 (JASRI)
- 09:00-09:30 拡大視野硬X線位相差顕微鏡による生体試料観察
青木貞雄 (筑波大学)
- 09:30-09:55 硬X線顕微干渉計による高空間分解能位相計測
小山貴久 (兵庫県立大学)
- 09:55-10:20 ゾーンプレートを用いたX線干渉顕微鏡の開発
渡辺紀生 (筑波大学)
- 10:20-10:35 休憩
座長：鈴木芳生 (JASRI)
- 10:35-11:00 X線集光ビームを利用した位相計測～トモグラフィへの拡張～
高野秀和 (兵庫県立大学)
- 11:00-11:25 定量化に向けた蛍光X線ホログラフィーの最近の進展
林好一 (東北大学金属材料研究所)
- 11:25-12:45 昼食
座長：平野馨一 (KEK・PF)
- 12:45-13:10 マイクロ位相CTによる生体組織及びポリマーブレンドの観察
百生敦 (東京大学)
- 13:10-13:35 位相X線イメージングを用いた生体試料観察
武田徹 (筑波大学)
- 13:35-14:00 X線屈折コントラスト法の金属学への応用
水野薫 (島根大学)
- 14:00-14:25 臨床応用のためのX線暗視野法の開発
杉山弘 (KEK・PF)
- 14:25 総合討論・閉会

3. 研究会の概要

本研究会は、平成 17 年 5 月 12 日（木）、13 日（金）の二日間にわたり、KEK、4 号館 セミナーホールにて行われました。講演者 23 名を含め、60 名の方々の参加を賜り、活発な議論が交わされました。

「位相計測」を切り口とした研究会は、遡ること 2 年半前に、「X 線位相計測における最近の展開」（KEK Proceedings 2002-22）を、PF 懇談会の位相コントラストユーザーグループ（現在：位相計測グループ）を中心に行っており、今回はその 2 回目に対応するものです。

コヒーレント X 線の発生、制御、利用は、X 線科学の発展において重要項目のひとつであることは異論のないことだと思います。当該分野の最近の傾向としては、①回折顕微鏡法の活性化、②XFEL の実現見通し、③位相（屈折）コントラストの応用の進展、などが挙げられ、本研究会においても、国内におけるこれらの動向を担う多くの研究者に講演をお願いし、大変有意義な議論が展開されました。今後、この分野はますます重要性を増すと考えられ、本研究会がそれを後押しすることになれば幸いです。

さて、研究会 1 日目は、国内の XFEL 計画に関して石川哲也氏より講演があり、いよいよということで、期待を膨らませた方々も多かったのではないかと思います。最先端 X 線コヒーレント光学を展開する上での一拠点になることは間違いなく、今後の進展が楽しみです。XFEL の応用研究のひとつとして、以前より X 線回折顕微鏡法が提案されています。これは、非周期物体からの散乱 X 線の複素振幅計測に基づくイメージング法ですが、究極的には分子分解能の可能性が謳われています。本研究会では、この手法に関して 3 件（西野吉則氏、香村芳樹氏、山田悠介氏）の講演があり、精密な議論および研究が進んできていることが窺えました。

それに続いて、X 線フーリエ分光に関する講演が玉作賢治氏よりありました。X 線干渉の分光技術への利用は重要な方向性の一つであり、今後の展開が期待されます。氏の発表は硬 X 線領域のものでしたが、軟 X 線領域のフーリエ分光も今後実現すべき領域であろうと考えられます。矢橋牧名氏による X 線強度干渉も数年前に良質なデータが取得できるようになっており、XFEL の評価技術としても期待されています。また、結晶光学素子によるコヒーレンス伝播について、山崎裕史氏がまとめた理論を構築し、それに関する講演も行われました。X 線の干渉性が高くなると、スペckルが観察されるようになります。それを利用しようという分野も着実な進歩をみせており、軟 X 線領域の研究に関して、並河一道氏による講演がありました。軟 X 線領域といえば、波長が硬 X 線より長いゆえに、干渉実験が多く行われているように思えるかもしれませんが、実際のところはそれほど多くはありません。今回は、芳賀恒之氏と新部正人氏に、この分野の研究成果を紹介いただきました。

X 線の位相利用は、放射光施設内だけのアクティビティではない状況になってきておりま

す。1日目午後のセッションにおいて、山田廣成氏、本田凡氏、および小生（百生敦）が話題を提供いたしました。

山田氏は、いわゆる「卓上型放射光装置“みらくる”」を開発しており、そのイメージング利用が期待されております。技術的な内容についてはいつも議論が尽きないところがありますが、うまく利用すれば高いポテンシャルを発揮するものと期待されます。

コニカミノルタエムジー(株)の本田氏は、X線の位相を利用した撮像技術を、初めて製品化したことで注目を集めております。氏は、X線の屈折効果をうまく乳癌診断装置に取り入れることに成功しました。シンクロトロン放射光は知らなくても、「X線位相コントラスト」は聞いたことがあるという人が増えています。

本田氏の講演は、放射光で培われる位相イメージング技術を、放射光施設外へ解き放つことができる技術にステップアップすることが応用上重要であると考えさせます。百生は、X線タルボ干渉計による微分干渉イメージングを提案しており、この技術が小型X線源との組み合わせが可能であるということで、現在進めているプロジェクト研究の内容をこのセッションで紹介しました。

X線顕微法におけるX線位相の利用は、ますます活性化しており、X線顕微法研究のフロンティアにおいては、むしろX線位相は必須であるとさえ言えるのではないかと思います。X線顕微鏡は、いわゆる「水の窓」のエネルギー領域（軟X線）で発展してきた歴史がありますが、X線の位相利用効果が大きく、且つ、大気中で利用できるという特徴から、硬X線領域にその研究の場がシフトしている傾向があります。これは、前回の研究会でも指摘したことですが、本研究会でも、X線顕微鏡分野からの講演6件が1日目から2日目にかけて行われましたが、それらすべてが硬X線領域のものでした。

鈴木芳生氏、竹内晃久氏のX線プリズムを用いた光学系は、新しいアプローチを提案する興味深いものです。フレネルゾーンプレートを使った光学系にも様々な工夫が可能となってきたおり、青木貞雄氏の位相差顕微鏡研究をはじめ、複数のゾーンプレートを用いた干渉顕微鏡が構築されているのは注目に値します（小山貴久氏、渡辺紀生氏）。走査型X線顕微鏡においても、屈折効果によるコントラスト生成が可能ですが、さらにトモグラフィへの展開が高野秀和氏より報告されました。これらに対して、林好一氏より報告された蛍光X線ホログラフィは少々毛色が違う手法ですが、原子分解能を持つ独自の手法として、発展が続いています。

研究会の最後のセッションでは、位相を利用した放射光イメージングの応用研究を紹介いただきました。まずは、百生から、結晶干渉計を用いたX線位相CTの、生体組織やポリマーブレンドへの応用研究を報告し、武田徹氏からは、PFで開発されている分離型X線干渉計を用いて、生きた生体のイメージング結果について報告がりました。水野薫氏からは、屈折コントラスト法の新しい応用として、水素吸蔵合金の観察結果が示されました。最後に、杉山弘氏より、屈折コントラスト法（暗視野法）による関節診断の研究が報告されました。応用研究は、本研究会でプログラムできなかったアクティビティも多くありま

す。今後、さらに裾野が広がってゆくものと期待できるでしょう。

疲れも忘れるほど興味深い講演と討論が続き、有意義な2日間であったと思われます。遠方からも多くの方々が参加くださり、主催側として、あらためて感謝申し上げます。本研究会のキーワードは位相利用・コヒーレンス利用ですが、これを軸にした研究会はあまりなく、普段の学会でも聴くことのない研究成果をまとめて概観できるよい機会にできたと思っております。今後もこのような機会を企画できればと考えております。関係諸氏にはご協力のほど、よろしくお願い申し上げます。

最後になりますが、本研究会の世話人の任にあたってくれた平野馨一氏、サポートや会場の準備などにご協力くださったP F秘書室の皆様、および、東大・百生研究室のスタッフ・学生に、この場を借りて深く感謝申し上げます。

(東京大学大学院新領域創成科学研究科 百生 敦)



研究会の様子



懇親会にて

4. 講演内容

SPring-8 Compact SASE Source (SCSS)

独立行政法人理化学研究所・播磨研究所

線型放射光研究開発グループ

石川哲也

1. はじめに

レーザーを短波長化して X 線領域に持ち込むことは、ここ数十年間にわたり光科学の大きな到達目標であった。筆者も今から四半世紀も前の大学院の頃 **Madey** の自由電子レーザー(FEL)の論文[1]を輪講で取り上げ X 線への拡張に関して論じたことがある。共振器を構成するミラーとして完全結晶のブラッグ反射を利用することを検討したが、反射率の低さから、余程のブレイクスルーが無ければレーザー発振は困難というのが当時の結論であった。1980 年代半ばに自己増幅自発放射 (Self Amplified Spontaneous Emission; SASE)型自由電子レーザーの原理[2]が発表された。これは、ミラーで共振器を構成する代わりに、長いアンジュレータによって、電子ビームのマイクロバンチを形成し、アンジュレータの中でコヒーレントに運動させることによって、コヒーレントな光を発生させるものである。進行方向に対して横波である電磁波が、進行方向に電子を動かしてマイクロバンチを作ることは一見矛盾があるように思えるが、その「からくり」については、新竹による非常に明解な解説[3]があるので参考にしていただきたい。

原子や分子のエネルギー準位を利用する従来のレーザーには、発振波長に様々な制限があるのに対して、FEL では原理的には任意の波長で発振させることが可能である。しかしながら、高エネルギー加速器が絡む FEL は放射線発生装置であり、普通のレーザーに対するものと比較したら桁違いに厳しい規制の下で運用する必要がある。このため、普通のレーザーでカバーできる領域での FEL は、有用ではあるものの不可欠な物ではなかった。それに対して、硬 X 線領域のコヒーレント光発生は、現時点で FEL が我々の知っている唯一の解である。このため、1990 年代の中頃から欧米で SASE 型の X 線 FEL(XFEL)施設建設計画が議論され、ヨーロッパでは DESY の European XFEL Facility[4]に、またアメリカでは SLAC の Linac Coherent Light Source (LCLS)[5]に収束していった。

ヨーロッパやアメリカで、SASE-XFEL 施設建設が盛んに議論されていた 1990 年代の終盤には、我々は SPring-8 の立ち上げに忙殺されており、とても新しい光源を議論する余裕はなかった。一方でこの状況のもとで 1999 年に出された学術審議会特定研究領域推進分科会加速器科学部会報告には、「近年、X 線自由電子レーザーが将来の第四世代光源として注目を集めている。この開発のため、高エネルギー加速器研究機構を中心にした関係研究機関、大学の連携・協力により基礎研究を推進する必要がある」と記載されている[6]。しかしながら、高エネルギー加速器研究機構はその後、日本原子力研究所とともに J-PARC 建設に乗り出し、放置しておけば XFEL 開発で日本が置き去りにされる状況が生じた。このため、理化学研究所播磨研究所では、1 km ビームライン[7]と 27 m アンジュレータビームライン[8]の建設の見通しのついた 2000 年から硬 X 線領域での

SASE-XFEL の検討を開始した。

2. コンパクト SASE 光源

27m 真空封止型アンジュレータを建設した理研播磨の北村グループは、一方でミニポール真空封止型アンジュレータを開発し、中型蓄積リングで硬 X 線をアンジュレータで出す道を拓いた。これは最初に NSLS との共同開発として実施され、その後 SLS との共同研究によって、X 線第三代放射光の小型化のコンセプトを確立し、その後の DIAMOND を始めとする多くの計画でこのコンセプトが採用された[9]。これと同様な考え方で SASE-XFEL の小型化が可能であろうというのがコンパクト SASE-XFEL の発想の原点である[10]。X 線レーザーは、現状の放射光と比較すると圧倒的な性能を持つはずであるが、一方で線型加速器ベースであるため、同時に多数のユーザーが利用することは困難である。しかしながら、圧倒的な性能を持つが故に、日本に一つあれば良いという性格の光源ではなかろうというのが我々の結論である。多数の X 線レーザーの建設を可能にするには、小型化、低コスト化を押し進め、一つの光源を少数の利用者で使っても十分経済的と言えるレベルまで持って行く必要がある。ミニポールアンジュレータの採用は、比較的低エネルギー線型加速器での硬 X 線 FEL を可能にすることから、小型化に向けての第一歩と成り得る。他方で、線型加速器として X-Band や C-band のような、高勾配加速器を用いると、さらにコンパクト(=低コスト)の SASE-XFEL が可能となる。SCSS はこのような SASE-XFEL の小型化に向けての第一歩であり、第二世代 XFEL の魁と言うべきものである。

3. 要素技術開発研究

硬 X 線領域でのコンパクト SASE-FEL を実現するためには、加速器、アンジュレータに新たな技術開発が必要であるのに加えて、高密度・低エミッタンス電子ビームを供給するための電子入射器が重要である。またアラインメントに関しても SPring-8 と比較して遥かに厳しい精度が必要となる。これらの問題点を一つずつ解決し、必要な要素技術を確立し、これらを XFEL に組上げるエンジニアリング的な問題解決のために、理化学研究所播磨研究所では、2001～2005 年の 5 年計画で、最終的に 1GeV プロトタイプ(発振波長 3.6 nm)の建設を目指した研究開発プログラムを策定し、理化学研究所の内部資金による R&D を進めてきた。計画途上での特殊法人改革や理化学研究所の独立行政法人化など、決して順調に進んだ訳では無かったが、2003 年までにほぼ主要要素技術開発を終了し、2005 年に当初計画よりはスケールダウンするものの、250MeV プロトタイプ(発振波長 60 nm)を建設することとなった。

短波長での SASE 光源では、電子ビームのエミッタンスを進行方向も含めて 6 次元で小さくすることが必要であり、またこのように規定された 6 次元のボリューム中に高密度で電子を詰め込む必要がある。この成否はほぼ最初の電子銃によって決定されるため、高密度短パルス電子ビームを生成するためのレーザー RF 電子銃開発が世界中の XFEL 計画で進められてきた。しかし、低エネルギー電子を高密度に詰め込もうとするとクーロン反発によ

るブローアップが生じ、低エミッタンスを保てなくなる。我々は、世界中で常識とされていたレーザーRF電子銃を使わない解があるかどうかを検討し、極めて古典的な熱電子銃で、クーロン反発を避けるように薄く引き出した電子ビームを、加速しながら圧縮することにより SASE 発振に必要な電子ビーム性能が得られることを見出した。試作された電子銃はエミッタンスに関して目下世界最高性能を誇っており、電荷量も SASE 発振に十分である。

この他にも、数々の要素技術開発が積み重ねられ、2003 年度末には XFEL 建設に必要かつ新規開発を要する主要要素の開発が終了した。これに基づき、2004 年度にプロトタイプ設計研究を実施し、2005 年度にプロトタイプ建設に進んでいった。

4. 6-8 GeV XFEL 計画

SCSS は当然のことながら、ゴールは XFEL を目指す計画である。プロトタイプ建設の予算説明等での将来の話が、役所の注目するところとなり、第 3 期科学技術基本計画で構想されている「国家基幹技術」の候補と目されるようになった。このこともあって、数年先での予算要求を睨んで、CDR[11]を作成し、それに基づく国際レビューを実施した。

当初 XFEL としては、1 Å で発振させるという観点から、6 GeV の線型加速器を計画していたが、その後 SPring-8 の入射器として利用するというアイデアが出され、これがレビューで支持されたため、現時点では 8 GeV の線型加速器を建設する方向で計画が進められている。図 1 に施設の構想を示す。

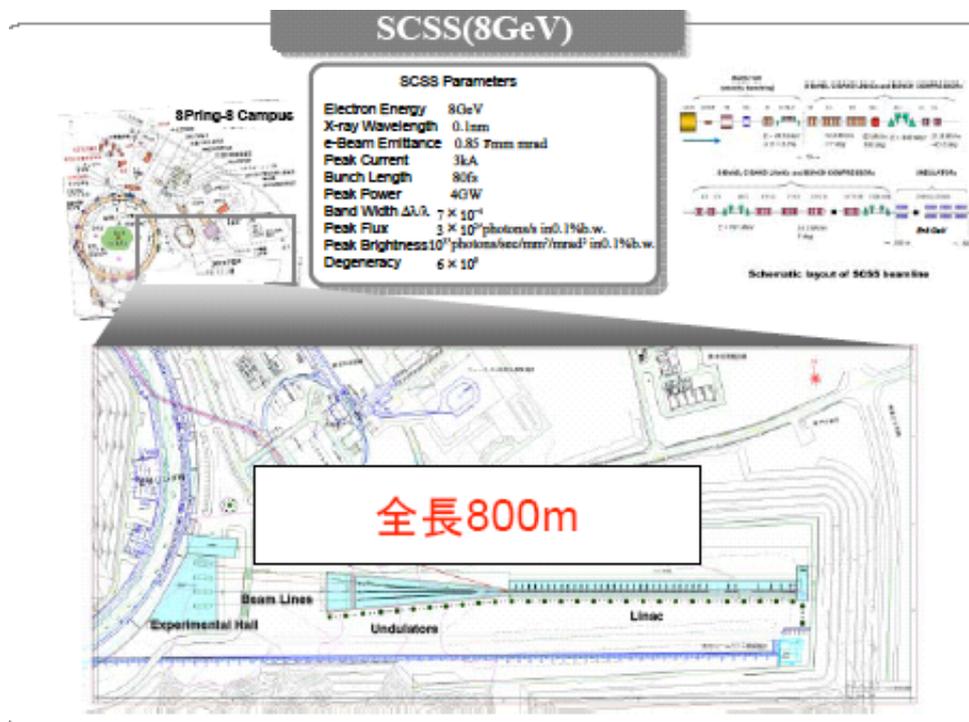


図 1. SCSS 構想図

5. XFEL でのサイエンス

XFEL での X 線は、ピーク輝度が高く、短パルスで、かつコヒーレント光である。現在次世代放射光源としてこの他にも ERL やスーパーストレージリングが喧伝されているが、これらの光源が現状の放射光源と同じカオス光源であるのに対して、XFEL はレーザーとなるはずである。既に European XFEL や LCLS で精力的なサイエンスの議論が行われているが、どちらかという放射光からの延長の議論が多く、レーザー側からの議論を喚起することの重要性が共通に指摘されている。いずれにせよ、いつも言っていることではあるが、欧米のレポートに何が書いてあるかではなく、何が書いてないかを読み取る姿勢が重要である。

XFEL の最大の特徴、すなわち他の「次世代放射光候補」には無い特徴が「レーザー」であることであるとするならば、最初に行われるべきは「レーザーであること」の実証であろう。このためには高次のコヒーレンス計測[12]を行えばよい。周波数の高い蓄積リング光源で開発された高次コヒーレンス計測方法をそのままの形で XFEL の高次コヒーレンス計測に適用することは出来ないで、XFEL 用の計測方法の検討が進められている。

レーザーであることが実証できれば、非常に安直なサイエンスの進め方としては、従来のレーザーが歩んできた道を、短波長で辿っていくことが考えられる。対象とするスケールがサブナノ領域に入るので、これはこれで 5-10 年程度は研究テーマに困らない。一方でサブナノメートル領域の構造変化をサブピコ秒の高速で追跡するための光と捉えれば、化学の核心に迫るツールとして利用可能であり、触媒反応や酵素反応の中間状態解析などに非常に有用であろうし、同様な意味で構造生物学にも有用であろう。

- [1] J. M. C. Madey, *J. Appl. Phys.* **42** (1971) 1906-1913.
- [2] R. Bonifacio, C. Pellegrini and L. M. Narducci, *Opt. Commun.* **50** (1984) 373-378.
K.-J. Kim, *Phys. Rev. Lett.* **57** (1986) 1871-1874.
- [3] 新竹積, *放射光*, **18** (2005) 35-39.
- [4] <http://xfel.desy.de/>
- [5] <http://www-ssrl.slac.stanford.edu/lcls/>
- [6] http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/12/gakujutu/toushin/990505.htm
- [7] T. Ishikawa, K. Tamasaku, M. Yabashi, S. Goto, Y. Tanaka, H. Yamazaki, K. Takeshita, H. Kimura, H. Ohashi, T. Matsushita and T. Ohata, *SPIE Proceedings*, Vol. **4145** (2000) 1-10.
- [8] T. Hara, M. Yabashi, T. Tanaka, T. Bizen, S. Goto, X. M. Marechal, T. Seike, K. Tamasaku, T. Ishikawa and H. Kitamura, *Rev. Sci. Instrum.*, **73** (2002) 1125-1128.
- [9] H. Kitamura, *J. Synchrotron Rad.* **7** (2000) 121-130.
- [10] 北村英男, 新竹積, 石川哲也, *放射光*, **16** (2003) 65-76.
- [11] <http://www-xfel.spring8.or.jp>
- [12] M. Yabashi, K. Tamasaku and T. Ishikawa, *Phys. Rev. Lett.*, **87** (2001) 140801-1-4.

X線回折顕微鏡における逐次的像再生

西野吉則¹, Jianwei Miao², 香村芳樹¹, 高橋幸生¹, 山本雅貴¹

小池邦昭³, 戎崎俊一³, 石川哲也¹

¹ Spring-8/理研播磨, ² UCLA, ³ 理研和光

X線回折顕微鏡は、結晶化されていない試料に対して、X線の波長程度の高空間分解能での三次元構造解析を可能にする斬新な手法である。実験では、コヒーレントX線を試料に照射し、フラウンホーファー近似が成立する十分遠方で、回折強度分布を二次元検出器で測定する。この際、連続的に分布する回折強度を離散的にサンプリングするが、オーバーサンプリング条件を満たす様サンプリング間隔を細かくとる。これにより位相回復に必要な情報が得られる。オーバーサンプリングした回折強度分布からの試料像再生には、HI0アルゴリズムがこれまで広く用いられている。

前方付近の回折強度は試料の概形に関する情報を含むため、試料像再生において重要である。しかしながら、完全に前方の回折強度は、透過X線の寄与のため本質的に測定不可能である。また、前方付近の回折強度は、試料前に置かれたピンホール等からの寄生散乱のため測定が困難である。前方付近の回折強度が測定出来ないため、試料像再生には、従来、軟X線顕微鏡像等の補足的実験データを必要とした。実用上の観点からは、明らかに、X線回折強度分布のみからの試料像再生が求められる。我々は、前方付近の回折強度データがない場合でも、付加的な実験を要さず、回折強度データのみから試料像の再生を可能にするアルゴリズムの開発を行った [1]。

試料像再生のHI0アルゴリズムでは、図1に示す様に、電子密度分布 $\rho(r)$ のフーリエ変換・逆フーリエ変換を繰り返す。この際、実空間では試料領域の外では電子密度を徐々に減らしていき（実空間拘束条件）、逆空間では電子密度分布のフーリエ変換の絶対値を回折実験から求めた値 $|f(K)|$ で置き換える（逆空間拘束条件）。

前方付近の回折強度データがない場合のHI0アルゴリズムの問題点を、シミュレーションを用いて示す。ここで、図2 (a) を試料とみなす。図2 (b) は計算により得られた回折強度分布である。全体で129×129ピクセルの回折強度データのうち、中心の37×37

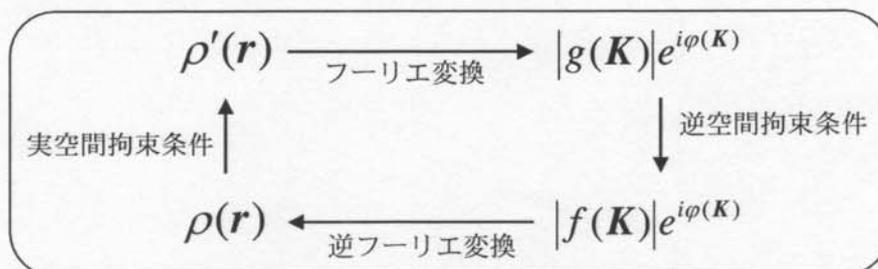


図1 試料像再生に用いられる反復法の概念図

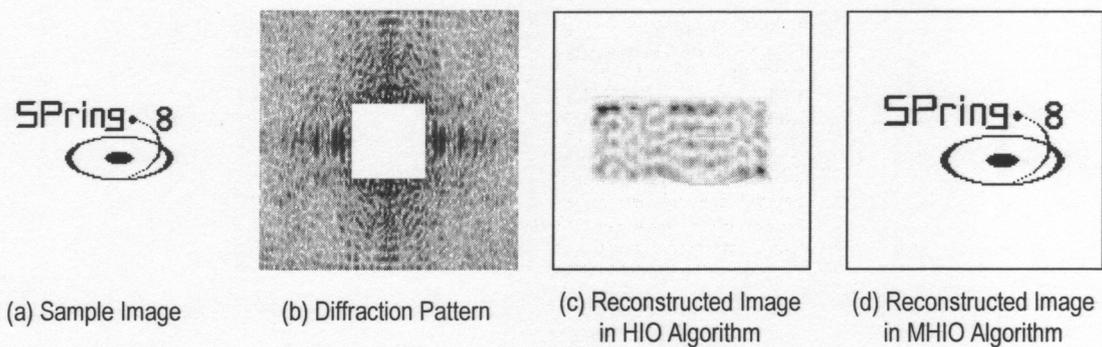


図2 前方付近の回折強度データがない場合の像再生シミュレーション

ピクセルのデータが欠如している場合を考える。前方付近の回折強度データが大きく失われている場合、HIOアルゴリズムによる試料像再生は図2(c)に示す様に成功しない。一方、像再生の誤差として従来から使われている試料領域内・外の電子密度の平均値の比は、図3(a)に示す様に反復につれ減少する。これは、図3(b)に示す様に、全電子数の予測値が反復につれ増加していくためである。完全に前方の回折強度は全電子数を与えるが、このデータが欠如しているため、HIOアルゴリズムでは全電子数が実際よりも多い間違った方向に反復が進行していく。

この問題を解決するため、我々はMHIOアルゴリズムという各反復で電子密度の規格化を行う手法を考案した。MHIOアルゴリズムにおける規格化は、回折強度データの計算値と実験値を比較して行うため、全電子数をあらかじめ知っている必要はない。MHIOアルゴリズムによる像再生は、図2(d)に示す様に、前方付近の回折強度データが大きく失われている場合でも有効である。

MHIOアルゴリズムの実験データへの適用例を次に示す。図4(a)は試料に用いた金で作られたパターンのSEM像である。試料の大きさは $2.5\ \mu\text{m} \times 2.0\ \mu\text{m}$ である。図4(b)はSPring-8 BL29XULで測定された試料の回折強度分布である。波長 $2.13\ \text{\AA}$ の硬X線が測定に用いられた。図4に示したHIOアルゴリズムによる像再生の結果(c)とMHIOアルゴリズムによる結果(d)との比較は、MHIOアルゴリズムが像再生を劇的に改善することを明白に示している。なお、再生像における1ピクセルの大きさは $7\ \text{nm} \times 7\ \text{nm}$ である。

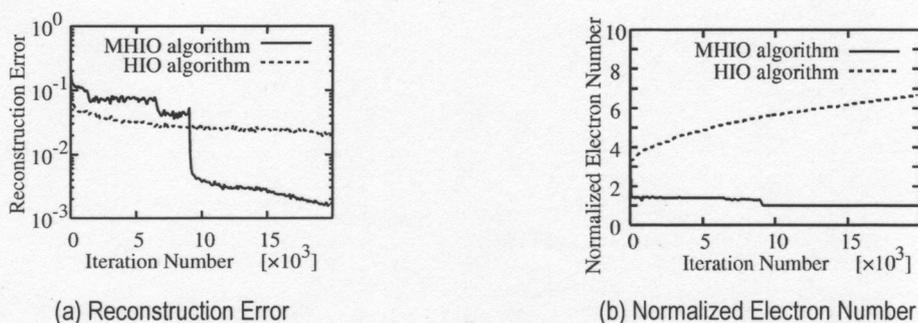


図3 再生誤差と規格化電子数の反復ごとの変化

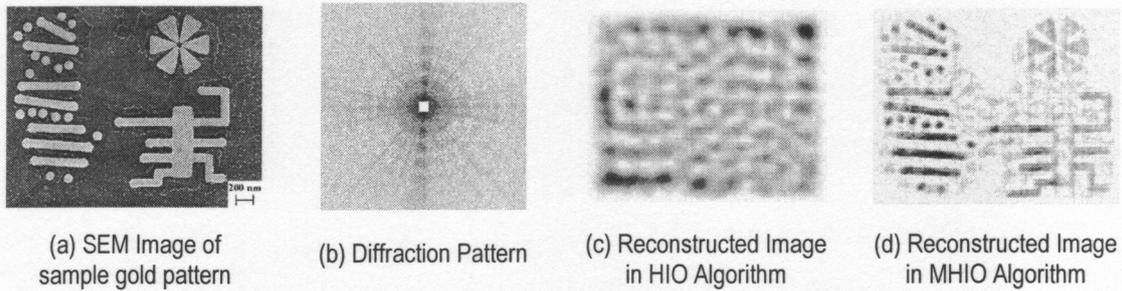


図4 硬X線回折強分布度実験データのみからの像再生

MHIOアルゴリズムにより、回折データのみからの試料像再生が可能となり、X線回折顕微鏡の応用面での可能性が飛躍的に広がった。さらに、実験時に逐次的にデータ解析を行い、解析結果を測定に反響させる事が可能となった。我々はまた、実験時に試料像再生を高速に行うため、ダイナミック・リコンフィギュラブル・プロセッサを用いた試料像再生システムの開発を行っている。このプロセッサでは、アプリケーションに特化したLSI内部回路を瞬時に構成出来る。実際のシステムでは、試料像再生を、フーリエ変換、逆空間拘束条件適用、逆フーリエ変換、実空間拘束条件適用の4つの過程に分け、各過程ごとに回路構成を動的に切り替える。このシステムを用いると3.60 GHzのPentium4のプロセッサと比べ10倍以上の速度でフーリエ変換を行う事が出来る。現状で、1分半程で1024×1024ピクセルの像再生を1000反復行うことが出来る。

X線回折顕微鏡において、高い空間分解能を実現する方法には二つある。一つは短い波長のX線を用いることであり、もう一つは高い散乱角の回折データを用いることである。我々はこれまで、短い波長の硬X線を用い高い分解能を実現してきた。さらなる高空間分解能化を目指し、高い散乱角の回折データ取得に対応した、大面積二次元X線検出器と真空チャンバの開発を進めた。

大面積二次元X線検出器として、我々は、真空仕様イメージングプレート検出器の開発を進めた。検出器の外観を図6に示す。イメージングプレートは真空中に配置される

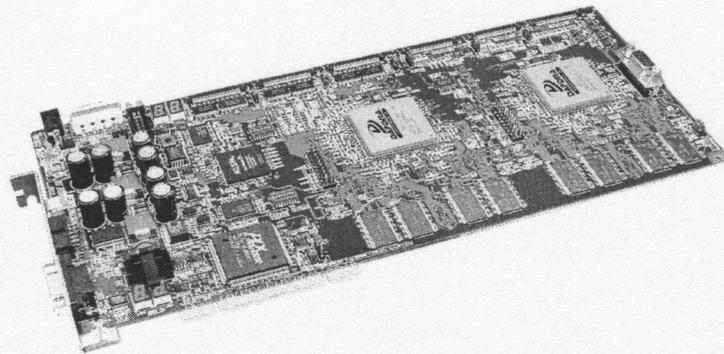


図7 ダイナミック・リコンフィギュラブル・プロセッサ DAPDNA-2を2個搭載したPCIボード (IPFlex Inc. [2])

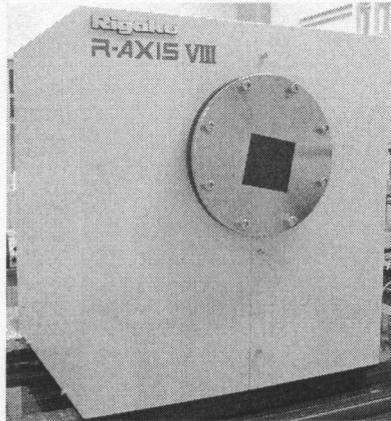


図6 真空仕様イメージングプレート検出器 (Rigaku [3])

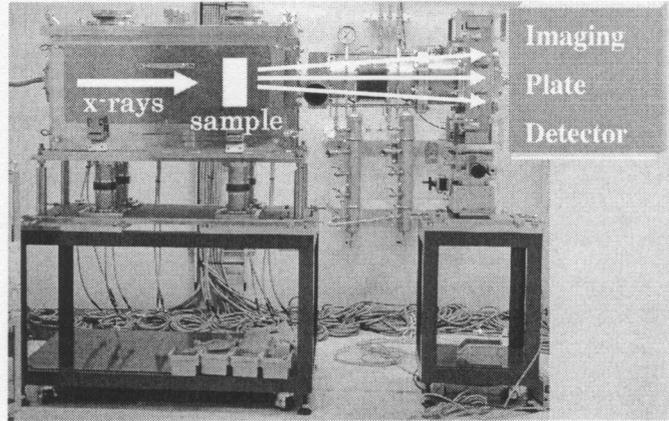


図7 X線回折顕微鏡用真空チャンバ

が、読み取り・消去系は大気中にあり、耐圧ガラス越しに読み取りを行う。2セットのイメージングプレート、読み取り器・消去器を有し、一方のイメージングプレートを読み出し・消去中に、他方の露光が可能である。イメージングプレートでは、容易に大検出面積を達成する事が可能で、本検出器では125 mmの四方の大きさを持つ。これは、従来のCCD検出器と比べ20倍以上である。回折顕微鏡では原理上細かいピクセルサイズが要求されるが、イメージングプレートの読み取りピクセルサイズは25 μm と、従来のCCD検出器と同程度である。回折強度は散乱角が高くなるにつれて急激に弱まるため、大面積検出器には高いダイナミックレンジが要求される。ダイナミックレンジに関してイメージングプレートは5桁と、従来用いていた直接照射型CDDの3桁と比べ、卓越した性能を有している。

真空チャンバの外観を図7に示す。真空チャンバは、試料、ピンホール、ビームストップ等とこれらの位置・角度あわせのための自動ステージ類を含む。このチャンバを用いる事により、非中心対称な回折強度分布を持つ試料に対しても、異なるビームストップ位置で回折像を測定し、試料像再生を行う事が可能となる。

以上の様に、我々は高分解能硬X線回折顕微鏡実験での逐次データ解析の確立を目指し、像再生アルゴリズム、像再生計算機システム、検出器および真空チャンバの開発を進めている。

[1] Y. Nishino, J. Miao, and T. Ishikawa, Phys. Rev. B **68**, 220101 (R) (2003).

[2] アイピーフレックス株式会社 (<http://www.ipflex.com/>)

[3] 株式会社リガク (<http://www.rigaku.co.jp/>)

Effect of Distorted Illumination Waves on Coherent Diffraction Microscopy

Yoshiki Kohmura, Yoshinori Nishino and Tetsuya Ishikawa

SPring-8/RIKEN, 1-1-1, Kouto, Mikazuki, Sayo-gun, Hyogo 679-5198, Japan

Jianwei Miao

Department of Physics and Astronomy and California Nanosystems Institute, University of California, Los Angeles, CA 90095-1547

Coherent diffraction microscopy requires plane wave illumination on a specimen. In practice, a small pinhole or a focused beam is often used to reduce the illumination area, which unavoidably distorts the illumination wave. This effect causes artifact in the phase retrieval of the specimen. One way to minimize the effect is to place the specimen in the extreme proximity of the pinhole. However, the 3D observation of the specimen is generally extremely difficult in this case. The property of Fresnel illumination from pinhole is dependent on the Fresnel number $[r^2/(\lambda L)]$ where λ is the wavelength and L is the distance between the pinhole and the specimen. By using computer simulations, we quantitatively studied the quality of the phase retrieval as a function of the Fresnel number and alignment error of the specimen.

A plane wave of 8 keV X-ray ($\lambda = 1 \text{ \AA}$) was assumed to illuminate a circular pinhole with a radius of 25 μm . The wave field with complex amplitude downstream of the pinhole was calculated using the Fresnel-Kirchhoff integral. As a specimen, silicon clusters in a random network structure was assumed, consisting of 2.821×10^{10} atoms. Since the scattering factor of each silicon atom is a constant, we did not consider the nonuniqueness problem due to complex electron density.

Electron density of the specimen was retrieved from the simulated diffraction pattern using the iterative hybrid input/output error-reduction algorithm, developed by Gerchberg, Saxton and Fienup (GSF algorithm).^{2,3} The quality of the reconstruction was examined by an R-factor.

$$R = \sqrt{\frac{\sum_{x \in S} (\rho_o(x) - \rho_r(x))^2}{\sum_{x \in S} (\rho_o(x) + \rho_r(x))^2}} \quad (1)$$

where ρ_o is the original image and ρ_r the reconstructed one. The convergence of the reconstruction was examined by the reconstruction error defined as⁴

$$Er = \sqrt{\frac{\sum_{x \notin S} (|\rho(x)|^2)}{\sum_{x \in S} (|\rho(x)|^2)}} \quad (2)$$

where S represents the region inside the support. The reconstruction error is the ratio between the summation of electron density outside the support and inside. In the error reduction algorithm, the oversampling ratio (σ) is an important parameter defined as⁴

$$\sigma = [\text{area}(\text{electron density region}) + \text{area}(\text{no density region})] / \text{area}(\text{electron density region}) \quad (3).$$

A total illumination area of 2048×2048 pixels in both real and reciprocal space was simulated. The support was chosen to be a tight one with size of 88×88 pixels, which coincides with the size of the specimen (Fig.1). Thereby the oversampling ratio was fixed to be $\sigma = 23 \times 23$. This ratio is large enough for fast convergence using the oversampling method.⁴ All the diffraction images were centrosymmetrized before iterations. The convergence curves were averaged five reconstructions with different initial seeds after the same number of 4500 iterations. The effects due to the Fresnel illumination conditions were examined without consideration of the missing center problem.^{5,6}

Figures.1 & 2 shows the assumed specimen and the results of the reconstruction for different Fresnel number (F_N). The best convergences was observed for the case of $F_N = 1000$ (extreme proximity case). Good convergence was observed with $F_N \leq 1$, especially with $F_N = 1$. As the uniformity of the illumination wave becomes poor with $F_N = 2-100$, the reconstructions were not satisfactory. Fresnel number is equal to the square of the ratio between the pinhole radius and the first Fresnel zone radius. For $F_N = 2-100$, the opening of the pinhole contains a number of zones interfering destructively⁷ and results in the inhomogeneity of the phase and amplitude of the wave field at the near-axis specimen. Aside from the extreme proximity case ($F_N = 1000$), the most reliable phase retrieval was achieved for the case of $F_N = 1$.

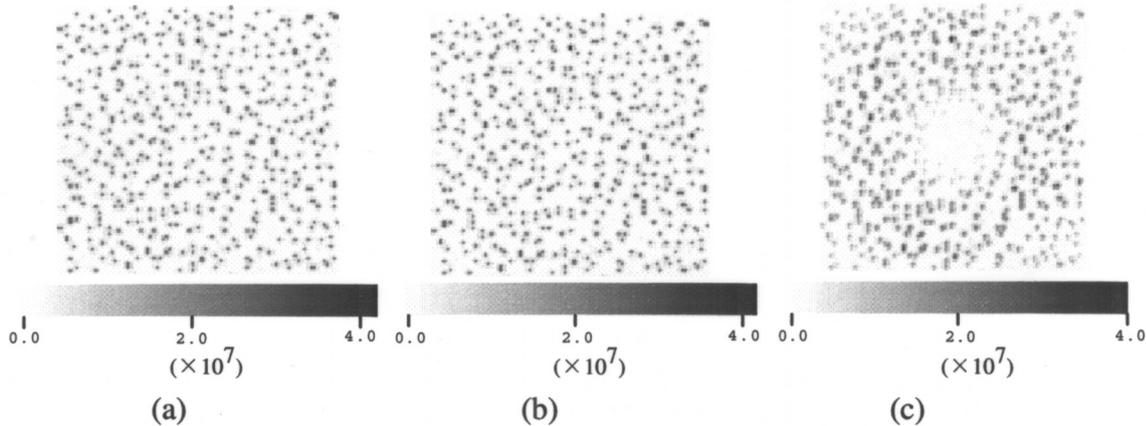


Fig.1 Silicon number distribution of (a) the model specimen, of the reconstructed image for (b) $F_N = 1$ and (c) $F_N = 10$. The sample size and the pixel size are $4.4 \times 4.4 \mu\text{m}^2$ and 50 nm.

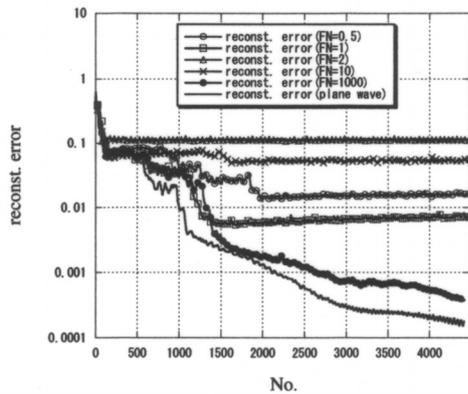


Fig.2 Reconstruction error as a function of the number of iterations. The convergence of 4500 iterations is shown for $F_N=0.5, 1, 2, 10$ and 1000 with pinhole and for a plane wave illumination, respectively.

The reconstruction accuracy is also dependent on the alignment of the specimen, i.e. offset of the specimen from the optical axis. Simulations were done with the position of the specimen (shown in Fig.1) offset from the optical axis horizontally in the positive direction. The Fresnel number to be 1. When the alignment error is larger than $5 \mu\text{m}$ (corresponding to 0.2 times the pinhole radius, or 1.25 times the specimen size), the quality of reconstruction degraded severely (see Figs.3 & 4). Figures 3 & 4 shows that the reconstruction with $10 \mu\text{m}$ offset is even much worse than that with $5 \mu\text{m}$ offset.

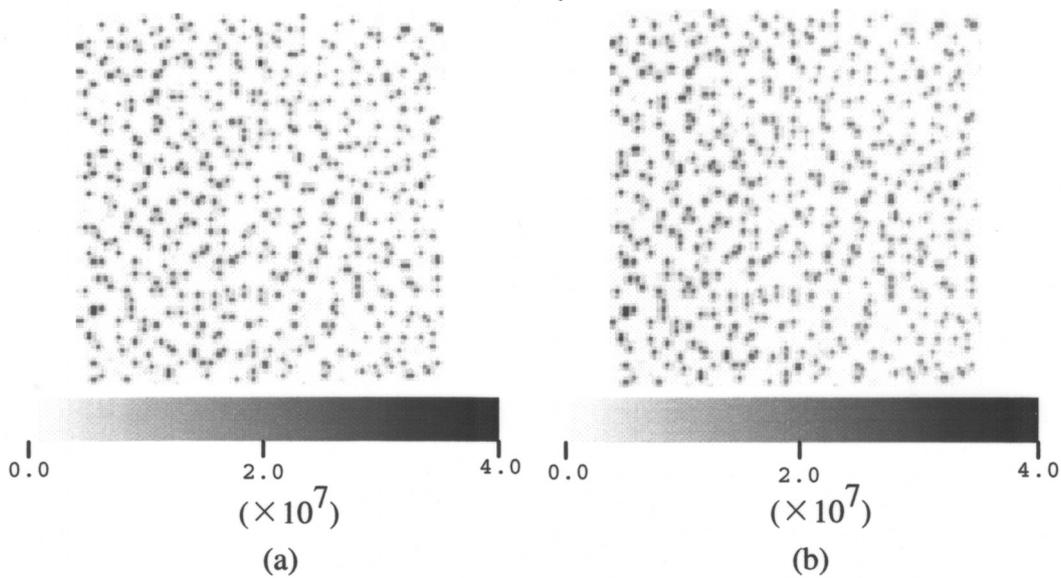


Fig.3 Reconstructed density distribution after 4500 iterations with the specimen position (a) $5 \mu\text{m}$ and (b) $10 \mu\text{m}$ offset from the optical axis.

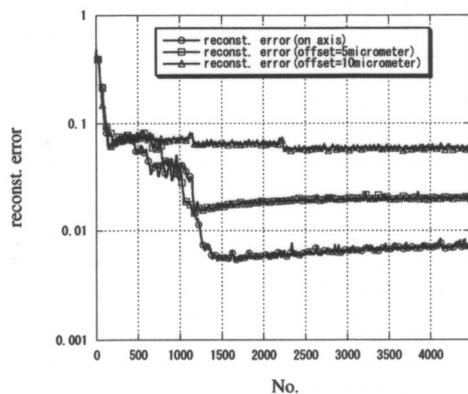


Fig.4 The reconstruction error as a function of the number of iterations.

As a conclusion, the experimental setup with Fresnel number of around 1 realized a small reconstruction error without the unnecessary enlargement of the beam and was found to be suitable for 3D observation. The result will be of practical use for the design of coherent diffraction microscopes for 3D characterization of nanoscale materials and biological systems using the 3rd generation synchrotron radiation and future X-ray free electron lasers.

References

- ¹ Y.Kohmura, Y. Nishino, T. Ishikawa and J. Miao, in preparation
- ² R. W. Gerchberg, and W.O. Saxton, *Optik(Stuttgart)*, 35, 237-246 (1972).
- ³ J.R. Fienup, *Opt. Lett.* 3, 27 (1978).
- ⁴ J. Miao, D. Sayre, and H.N. Chapman, *J. Opt. Soc. Am. A* 15, 1662 (1998).
- ⁵ Y. Nishino, J. Miao, and T. Ishikawa, *Phys. Rev. B* 68, 220101 (2003).
- ⁶ J. Miao, Y. Nishino, Y. Kohmura, B. Johnson, S. H. Risbud, and T. Ishikawa, submitted.
- ⁷ M. Born, and E. Wolf, *Principles of Optics*, Pergamon Press.

近年の X 線結晶解析技術の発展により、タンパク質分子をはじめとする多くの生体分子の構造解析が進む中で、結晶化が最大のボトルネックとなっている。特に、全タンパク質の約 30%を占めると言われる膜タンパク質や、分子表面に糖鎖を付加させた糖タンパク質、多くのタンパク質が会合して形成された超分子複合体などは一般結晶化が非常に困難であるとされている。このようなタンパク質は生体内の分子機構を理解するうえで欠かせない分子であり、今後このようなタンパク質分子の構造解析を行えるような技術を開発することが、構造生物学において非常に重要な課題である。

XFEL に代表されるような干渉性、輝度ともに高い次世代放射光源とオーバーサンプリング法による位相回復を組み合わせることで、生体分子の単分子構造解析が可能になることが示唆され、その実験法がいくつか提案されている (Miao *et al.* 2004)。Miao らはルビスコというタンパク質 1 分子の回折像をシミュレーションによって計算し、その回折像からオーバーサンプリング法による位相回復で電子密度図を得ることに成功している (Miao *et al.* 2001)。三次元の回折像を得るためには実験で得られる二次元の回折像の足し合わせが必要であり、Miao らのシミュレーションでは約 10^6 枚もの 2 次元回折像の足し合わせをおこなっている。

生体分子は溶液中で存在し機能を発現するものであり、その周辺は水分子などの溶媒分子で覆われている。実際の単分子構造解析の実験では溶媒分子はランダムに生体分子周辺に付加すると考えられ、回折像の足し合わせの段階で溶媒分子の付加の不均一性が重要な問題となってくると考えられる。そこで、今回それら溶媒分子が回折強度に及ぼす影響について計算を行った。

結晶構造解析によって決定されたタンパク質分子のモデルの周辺に、結晶構造中で見ることの出来る水分子をある個数ランダムに加えたモデルを作成し(図 1)、それぞれのモデルについて FFT により回折強度(I_{PW})を計算した。水分子を加えていないタンパク質のみのモデルを使って同様に計算した回折強度(I_P) との差を下に示す R 因子で評価を行った。

$$R = \frac{\sum_{hkl} |I_{PW}(hkl) - I_P(hkl)|}{\sum_{hkl} I_{PW}(hkl)}$$

また、足し合わせの結果起こる平均化の影響も考慮に入れるため、平均強度 $\langle I_{PW} \rangle$ と I_P との間の違いを同様な計算で R_{ave} として評価を行った。その R 、 R_{ave} を加えた水分子の数でプロットしたものが、図 2 である。Miao らの行ったシミュレーションによるルビスコ分子の

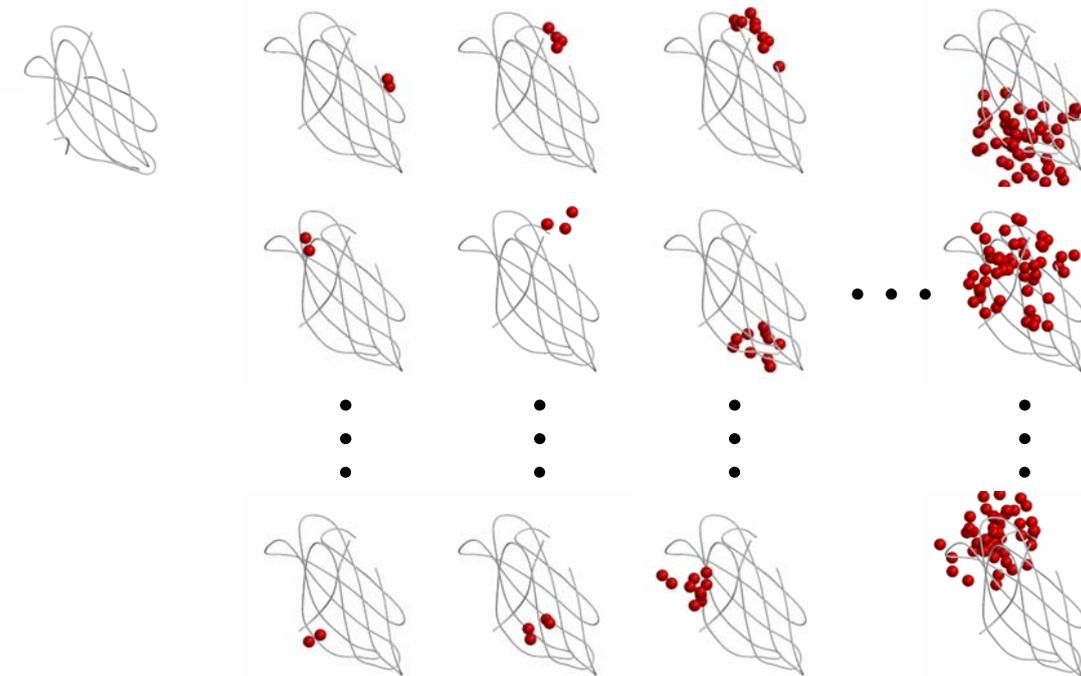


図 1. 今回の計算で使用したタンパク質モデルの構造(左)とランダムに水分子を付加したモデルの構造の例。タンパク質の構造はリボンモデルで表し、水分子は赤色の球で表している。

単分子解析では、得られた三次元回折像にあらかじめ $R=0.166$ となるようなランダムなノイズを加えて、オーバーサンプリングによる位相回復に成功している。この $R=0.166$ が仮に位相回復のための指標となるとすると、図 2 のグラフでは 8.7% の水分子を加えたところで、 R_{ave} が 0.166 に達することになる。

現在提案されている分子を X 線照射まで運ぶ手法として、ある程度生体分子の水和構造を保ったままイオン化することの出来る ESI-MS (Electro Spray Ionization Mass Spectrometry) の手法を利用することが考えられている。ESI-MS によるインタクトな分子の中では 30S リボソームサブユニットやウィルスの外殻といった巨大な分子の複合体でも試みられており、1 ~ 2 % の精度で飛ばすことに成功している (Rostom *et al.* 2000, Tito *et al.* 2000)。仮にこれらの誤差が全て水分子のランダムな付加に起因しているとしても、8.7% と比べると十分に低い値であり、水分子の付加という点では ESI-MS は単分子解析の要求を満たしていると考えられる。今回の計算では単純に FFT により三次元の回折強度データを作成しており、実際の実験、今後はより実験に近い状況を再現するために、回折実験のシミュレーションから三次元回折像の作成を行ったうえで、回折強度の変化やそれがもたらす位相回復への影響について評価を行っていきたい。

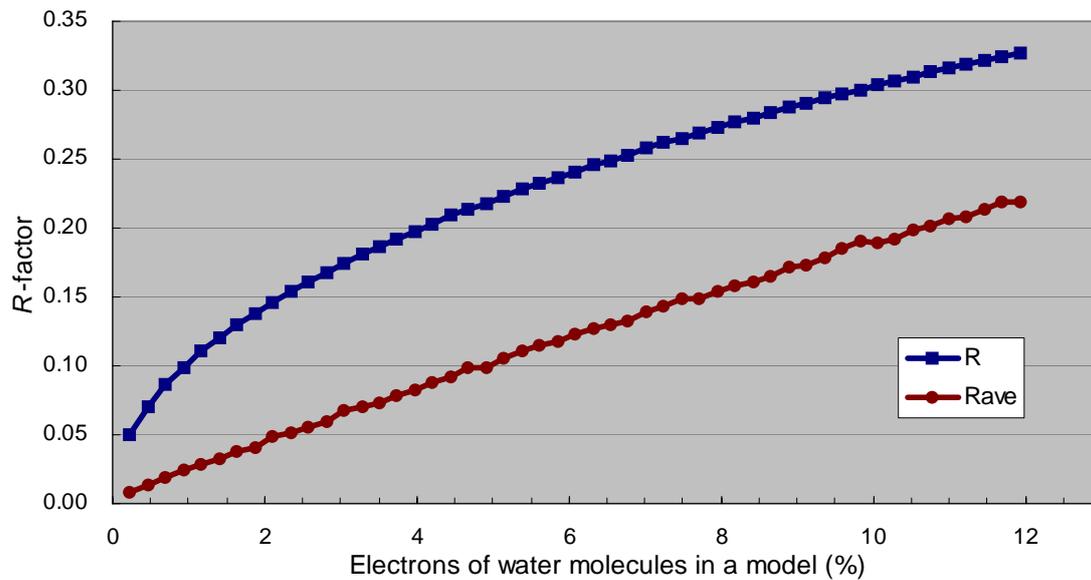


図 2. モデルに加えた水分子の数に対する、 R , R_{ave} のプロット。水分子の数はタンパク質モデルの電子数に対する加えた水分子の電子数の比で表している。

- Miao, J., Hodgson, K.O. and Sayre, D. (2001). *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **98**, 6641-6645
- Miao, J., Chapman, H.N., Kirz, J., Sayre, D. and Hodgson, K.O. (2004). *Annu. Rev. Biophys. Biomol. Struct.*, **33**, 157-176
- Rostom, A.A., Fucini, P., Benjamin, D.R., Juenemann, R., Nierhaus, K.H., Hartl, F.U., Dobson, C.M. and Robinson, C.V. (2000). *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **97**, 5185-5190
- Tito, M.A., Tars, K., Valegard, K., Hadju, J. and Robinson, C.V. (2000). *J. Am. Chem. Soc.*, **122**, 3550-3551

高分解能フーリエX線分光における位相問題

理化学研究所 玉作賢治

1. 背景

最近、我々は図1に示すような硬X線領域で利用できるMichelson干渉計を考案した。このMichelson干渉計は鏡に背面反射を用いることによって、完全に時間方向のみのコヒーレンスを測定することが出来る。この点はコヒーレンスの空間成分と時間成分を分離できない従来のMichelson干渉計に対する優れた特徴である。これによって初めてフーリエX線分光の可能性が開かれた。さらに我々のMichelson干渉計はこれまでのX線干渉計と異なり2つの結晶ブロックから構成されるという特徴も持つ。このため自由度が高く、従来のMichelson干渉計に比べて格段に大きな光路差をつけることが可能となった。

フーリエX線分光は光学的に興味深いだけでなく、実用上も重要であると考えられる。X線領域では多層膜ミラー、結晶分光器、時間領域測定により、様々なエネルギー分解能での測定が可能である。しかし、実は図2に示すように1meVから10 μ eVの間に分解能のギャップが存在する。このギャップは結晶の完全性、分解能評価の手段、検出器の時間分解能などで形成されており、従来の方法の延長でこれを埋めることは困難であると考えられる。

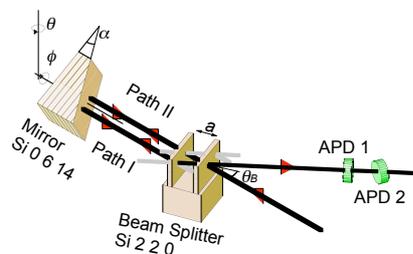


図1. Michelson干渉計。ビームスプリッタと鏡の独立な2つの結晶ブロックで構成される。

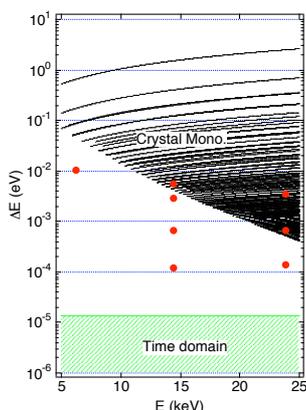


図2. 硬X線領域で利用可能なエネルギー分解能。実線はSiの完全結晶に平面波入射した場合。エネルギー分解能の評価の問題で、下限は背面反射で決められる。丸点は核共鳴線で使われる高分解能結晶分光器。核共鳴線が利用できるので、分解能は結晶格子の完全性で決められる。斜線部分は時間領域測定での分解能。上限は検出器の時間分解能(0.3nsを想定)で決められる。

一方でフーリエ分光法の場合、分解能は $\Delta E/E = \lambda/2x_m$ という簡単な関係で表される。ここで $\Delta E/E$ はエネルギー分解能、 λ は中心波長、 x_m はMichelson干渉計の最大光路差である。この関係式からX線領域では分解能を非常に高くすることが出来ることが分かる。例えば波長、

$\lambda=1\text{\AA}$ 、で光路差、 $x_m=50\text{ mm}$ 、ならば $\Delta E/E=10^{-9}$ に達する。ここで重要な点は結晶の質が分解能に（原理的には）影響しないことである。この結果、図2に開いた分解能のギャップを埋めることが可能であると考えられる。

2. 位相問題

高分解能を容易に達成できるフーリエX線分光法であるが、実用上は位相問題を避けることは出来ない。例えば上記の条件（ $\lambda=1\text{\AA}$ 、 $x_m=50\text{mm}$ ）では、干渉計の出力（インターフェログラム、 $\gamma(x)$ ）は、 $50\text{mm}/1\text{\AA}=5\times 10^8$ 回の強度変動を含む。従ってインターフェログラムを完全に測定しようとする最低でも 1×10^9 個のデータ点が必要となり、これは非現実的である。後で見るように実際はスペクトルの外形が重要であり、データの数は100点程度に減らすことが出来る。しかし、この場合でもスペクトルの外形をインターフェログラムから戻すためには光路差の絶対値を波長以下の精度で制御しなくてはならず、やはり非現実的である。こうした理由でインターフェログラムの位相（ $\arg[\gamma(x)]$ ）を測定することは不可能である。一方でインターフェログラムの絶対値（ $|\gamma(x)|$ ）は強度相関法により測定可能である。この結果、スペクトルの決定にはインターフェログラムの絶対値から位相を回復する必要が生じる。

位相問題には長い歴史があり様々な方法が考え出されたが、我々はその中から数値計算による反復法と解析的な対数Hilbert変換法を選び適用してみた。位相回復は単純なスペクトルと複雑なスペクトルの2種類に対して行った。単純なスペクトルとしては試料なしの場合、すなわちSi 1460背面反射とした。このインターフェログラムは強度相関の形（図3）でSPring-8のBL19LXUで実測されたものである。一方の複雑なスペクトルとしてはSi 1460背面反射を利用したFabry-Perot干渉計を想定して、その理論スペクトルから計算されたインターフェログラムの絶対値（図5）を利用した。

3. Si 1460背面反射

図3に示した強度相関 C からインターフェログラムの絶対値は $|\gamma(x)| \propto \sqrt{2(C-1)}$ と計算される。これを用いて反復法により位相回復し、スペクトルを再構成した結果が図4(a)である。図からスペクトルの外形はほぼ復元されていること、特に線幅は理論値とよく一致していることが分かる。ただし細かく見るとスペクトル上に $|\gamma(x)|$ のノイズに起因する負の部分が見られる。ところで反復法は1次元の位相問題に対しては解が一意に決まらないという問題が知られている。この点を評価するために独立な初期条件で500回の位相回復を行い、その偏差を調べてみた。図4(a)に示したように再構成された500のスペクトルの標準偏差は比較的小さく許容範囲内であると考えられる。

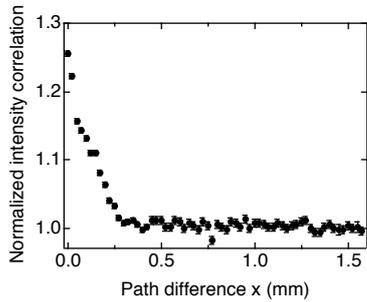


図3. Si 14 6 0背面反射スペクトルを反映した強度相関。

対数Hilbert変換を用いるには、 $\gamma(z)$ が複素上半面のどこ

で零になるかあらかじめ知っていなければならない。しかし現在まで $|\gamma(x)|$ から零の位置を決定する手段は知られていない。そこで我々はSi 14 6 0背面反射の理論スペクトルについて $\gamma(z)$ を計算し、複素平面上で零を数値的に探索した。その結果、測定範囲の近傍には零が無いことが判明した。仮にどこか遠くに零があったとしても、対数Hilbert変換の性質上、測定範囲での位相回復に与える零の影響は小さいと考えられる。

図4(b)は対数Hilbert変換により位相回復し、スペクトルを再構成したものである。スペクトルの非対称な形は再現されている。しかし反復法に比べてやや線幅が狭く出ている。この辺りはまだ積分変換の数値計算方法に改善の余地があると考えられる。

4. Fabry-Perot干渉計

図5に刃厚0.2mm、刃の間隔0.5mmのSi 14 6 0背面反射を使ったFabry-Perot干渉計のスペクトルから計算した $|\gamma(x)|$ を示す。反復法ではスペクトルの主な構造が再現できていることが分かる。一方で細かな情報、例えば中心付近の3つのピークの高さの順番など、には曖昧さが残る。前例のSi 14 6 0背面反射スペクトルと同様に500の独立な初期条件から再構成したスペクトルの偏差を図6(a)に示す。ピークの高さ等に大きなばらつきが見られる。対数Hilbert変換では、ピークの高さの順番も含めて非常に良く再現されていることが分かる(図6(b))。なおFabry-Perot干渉計の場合も理論スペクトルから、今興味のある範囲の近傍に $\gamma(z)$ の零が無いことを確認している。

5. まとめと展望

反復法と対数Hilbert変換の両方法ともスペクトルをよく再現できることが判明した。しかし反復法では解の一意性の問題があり、対数Hilbert変換では $\gamma(z)$ の複素上半

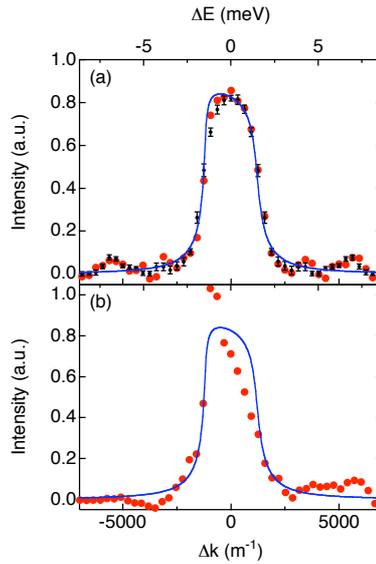


図4. (a) 反復法で再構成されたSi 14 6 0背面反射スペクトル。縦棒は500回の独立な初期条件から再構成したときの標準偏差。(b) 対数Hilbert変換で再構成されたスペクトル。実線は共に理論曲線。

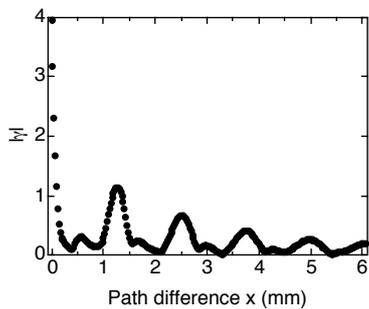


図5. Fabry-Perot干渉計のスペクトルから計算されたインターフェログラムの絶対値。

面上での零の有無の問題がある。 $\gamma(z)$ が複素上半面上で

零を持たないか、零の場所を特定する方法が分かれば、対数Hilbert変換の方が解の曖昧さが少ない。現状では本稿のように2つの独立な方法を利用することで、上記の問題の深刻さを緩和するより他に方法がないと考えられる。ただ $\gamma(z)$ の複素上半面上での零の有無や位置は物理的な意味があるという指摘もあり、遠回りでもこの方面の研究をする意義はあると考えられる。

本稿で述べた方法以外にMEM(最大エントロピー法)を利用することで、反復法で再構成されたスペクトルから無意味な微細構造や負の部分の改善することが判明した。さらに反復法で回復した位相情報をMEMにより精密化できることも知られているので、MEMの利用価値は高いと思われる。また1次元の位相問題を2次元に拡張して反復法で解く方法も有力である。今後の研究次第でスペクトルがより正確に再構成できるようになると期待される。

参考文献

- [1] K.Tamasaku, T.Ishikawa, M.Yabashi *Appl. Phys. Lett.* **83** (2003) 2994.
- [2] J.R.Fienup *Opt. Lett.* **3** (1978) 27.
- [3] E.Wolf *Proc. Phys. Soc.* **80** (1962) 1269.

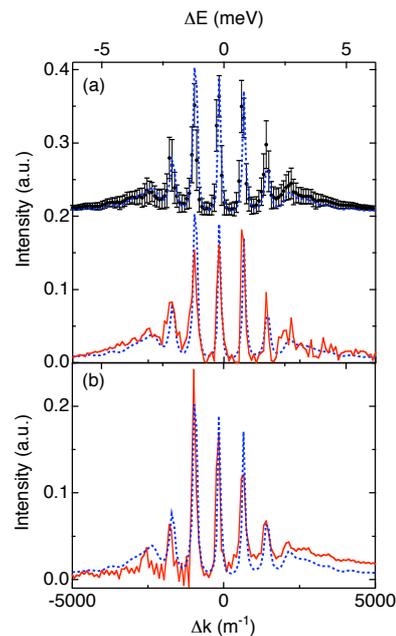


図6. (a) 反復法で再構成されたFabry-Perot干渉計のスペクトル。縦棒は500回の独立な初期条件から再構成したときの標準偏差。(b) 対数Hilbert変換で再構成されたスペクトル。点線は共に理論曲線。

XFEL と強度干渉法

矢橋 牧名 (JASRI/SPring-8)

XFEL の特長として、高いピーク輝度、高い空間コヒーレンスと超短パルスが挙げられる。これらの特性診断は、光源開発、利用研究の両面から非常に重要である。

特に、時間領域の計測（超短パルス計測）を考えてみる。よく知られているように、電場の複素振幅の時間スペクトルと周波数（エネルギー）スペクトルはフーリエ変換の関係にある。すなわち、一方を計測することで他方を決定することが可能である。例えば、パルス幅の情報は、周波数空間ではスペクトルの微細構造として現れる。実際に、既に 1980 年代東北大学核理研の線形加速器において、テラヘルツコヒーレント放射光のエネルギースペクトル計測を通して電子ビームのバンチ長が推定されている [1]。この手法は、最近では蓄積リングの短バンチ運転モードの計測にも応用されている [2]。また、NSLS の ATF において、ウィグラーからの可視放射光をシングルショットで分光することで、数 ps のバンチ長計測がなされている [3]。さらに近年では、TESLA Test Facility (TTF) において、SASE-FEL の紫外光のスペクトルをシングルショットで計測することで、100 fs 程度という極短バンチ長が求められた [4]。実時間領域（例えばストリークカメラ）ではなく、あえてエネルギー領域で計測する利点は、その簡便性にある。特に、ps を切るような極短パルスにおいても基準信号のジッターに悩まされることはない。

X 線といえども、テラヘルツ光、可視光、紫外光と同じ電磁波であり、原理的には上記の手法が適用可能なはずであるが、これまでに報告はなされていない。この原因として二つ考えられる。第一に、フーリエ限界に達していない多モードのカオス光の場合、パルスごとのエネルギースペクトル形状は異なるため、多数のパルスを平均すると微細構造がなまされてしまう。すなわち、シングルショット計測が必須である。このためには光源のボース縮重度 δ が 1 より十分大きいことが必要であるが、SPring-8 の 25 m アンジュレータでも δ は 1 以下にとどまっている。第二に、蓄積リングのパルス長は 10 から 100 ps のオーダーであるが、これに相当するエネルギースペクトルの幅は 10 から 100 μeV となり、このような分解能をもつポリクロメータを構成するのは技術的に難しい。

このような場合、モノクロメータを用いてエネルギーウィンドウを設定し、その中の単色光に対する強度変動を記録することで、スペクトルの微細構造幅を推定することができる。すなわち、ウィンドウが微細構造幅に対して十分小さい場合はショットごとの変動が大きくなるのに対し、逆の場合は変化が小さいことが期待される。これが、ハンブリーブラウンとツイスの提唱した強度干渉法の原理である。特に、微弱光の強度変動はコインシデンス法によって計測される。我々は SPring-8 において超高分解能のモノクロメータを開発し、2つの APD によるコインシデンス計測を行うことで、定量的な

ビーム診断（パルス幅及び空間コヒーレンス形状の計測）に成功した [5].

しかしながら、次世代の線形加速器を光源とする場合は 2 つの大きな相違点がある. 第一に、パルス長は 100 fs オーダーとなるが、これに相当するエネルギー幅は 10 meV のオーダーであり、はるかに簡便な光学系が使用可能である. 第二に、パルスの繰り返しレートの $f=10\sim 100$ Hz と小さい. このような場合はコインシデンス計測は不適當であり、パルスごとの光子数を計測する光子計数法がふさわしい. 一例として、SLAC で現在運転が行われている SPPS (Sub-Picosecond Pulse Source) をとりあげてみよう. パルス幅 80 fs, $E=9$ keV のビームに対し、シリコンのチャンネルカット結晶を 1 個用いてバンド幅を 10 meV のオーダーに制限し、さらに検出器として Ge-SSD を用いてパルス波高弁別によって光子計数を行うものとする. 試算の結果、この光源はレーザー光ではないにもかかわらず、短時間で高い S/N を得ることが可能であるという結論を得た.

さらに、FEL 発振した場合は、非常に大きいボース縮重度を利用して、ポリクロメータによるシングルショット計測も可能になる. 光学系としては、楕円ミラーと平板結晶の組み合わせが最も簡便であろう. 検出器としては、アレイ型かつ波高弁別可能なシステムが必要となる. 現行の CCD 検出器等がどこまで利用可能かどうか、検討の必要がある.

最後に、測定されるエネルギースペクトルは複素振幅の絶対値の 2 乗であり、正確な時間スペクトルの形状を回復するには位相情報を必要とする. これはいわゆる 1 次元の位相回復問題に相当し、2 次元に比べて困難であることが知られている. この問題を克服するために、FROG (Frequency Resolved Optical Gating) という手法が可視光領域で開発された [6]. 時間をずらして重ね合わせた電磁波のスペクトルを計測することで、2 次元の位相問題に帰着するというものである. また、SASE-XFEL の場合、モード数が非常に多いため、冗長性を活かして多次元に拡張した位相回復が可能かもしれない. このように、位相回復問題は X 線の時間領域計測においても今後重要なトピックとなるであろう.

[1] Nakazato et al., PRL **63** (1989) 1245; 池澤幹彦, 日本物理学会誌 **49** (1994) 208.

[2] 高橋俊晴, 安東愛之輔, 第 18 回日本放射光学会年会 (2005).

[3] J. Ayvazyan et al., PRL **86** (2002) 104802.

[4] P. Cartravas et al., PRL **82** (1999) 5261.

[5] M. Yabashi, K. Tamasaku, and T. Ishikawa, PRL **87** (2001) 140801; PRL **88** (2002) 244801; PRA **69** (2004) 023813.

[6] R. Trebino and D. J. Kane, JOSA A **10** (1993) 1101.

完全結晶を利用した X 線コヒーレンスの解析と加工

(財) 高輝度光科学研究センター 山崎 裕史

1 はじめに

干渉計測やイメージング技術は線源の技術革新によって全く新しい展望が拓かれる。X 線領域においては、第 3 世代放射光施設の出現によって、回折顕微鏡 [1]、ホログラフィ [2] など X 線コヒーレンスを積極的に利用する研究が進められている。位相と振幅がよく定義された X 線を試料に照射することにより、試料に起因する情報を位相に乗せて観察することができる。X 線コヒーレンスの本格的な利用に伴って、光源特性に起因するコヒーレンスを効率よく伝達するという、ビームライン技術としての基盤的な光学系の開発が要求されている。しかし、最も標準的な分光素子である結晶に対して、そのコヒーレンス特性は明らかにされていない。これは、次世代放射光のコヒーレンス特性を十分に発揮できる光学素子を設計する上で解決すべき問題である。また、具体的なアプリケーションが要求する X 線コヒーレンスを作り出すことも今後の X 線光学の課題のひとつであろう。

今後の干渉計測の進展を側面から支えるものとして、データ処理による干渉計測の高精度化が挙げられる。現実のビームがもつ有限なコヒーレンスは、干渉計測のデータを劣化させる原因のひとつである。使用するビームのコヒーレンス関数を何らかの方法で解析または推定することができれば、劣化したデータから鮮鋭なデータを数値的に回復することが原理的には可能である。これは、分光計測や画像処理において装置関数やポイントスプレッド関数の影響を取り除くのと全く同様の処理である。

上記の課題への取り組みとして、X 線を加工する最も標準的な光学素子である結晶に対して、X 線回折をコヒーレンスの観点で再構築した。その結果から、完全結晶の回折におけるコヒーレンスの変化を定式化し、コヒーレンスの加工のための基礎を築いた。また、完全結晶により得られるロッキングカーブを入射波のコヒーレンス関数を用いて定式化し、入射波のコヒーレンス関数を簡便に、かつ、定量的に解析する手法も開発した。

2 動力的回折理論 [3]

現実の X 線は時間的にも空間的にも構造をもつ波束から構成される。このような一般的な入射波に対して満足すべき動力的回折理論は、時間微分項を含むように拡張した Takagi-Taupin 方程式を厳密に解くことによって得られる。図 1 のように、入射側と反射側に逆格子ベクトル \mathbf{h} と反平行に z_o, z_h 軸をとる。点 P, Q は z_o, z_h 軸上の点とし、その座標は原点を O_o, O_h とし z_P, z_Q と与える。点 P における入射波と、点 Q における反射波を

$$A_o(P, t) \exp[i(\mathbf{K}_o \cdot \overrightarrow{O_c P} - cKt)], A_h(Q, t) \exp[i(\mathbf{K}_h \cdot \overrightarrow{O_c Q} - cKt)] \quad (1)$$

と表す。ここで、入射波と反射波の平均波数ベクトルはそれぞれ

$$\mathbf{K}_o = K\hat{s}_o + K(\theta_o - \theta_B)\hat{x}_o, \quad \mathbf{K}_h = K\hat{s}_h + Kb(\theta_o - \theta_B)\hat{x}_h \quad (2)$$

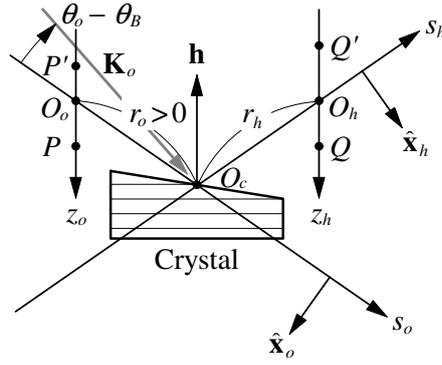


図 1: 入射波と反射波に対する座標系。

で与えられ、結晶の回転によって変化する。 \hat{h} は単位ベクトルを表し、 $b < 0$ は結晶の非対称因子である。このとき反射波の振幅は、入射波の振幅の積分変換として

$$A_h(Q, t) = \frac{iKC\chi_h}{4 \sin \theta_B} \int_{bz_Q}^{+\infty} dz_P A_o \left(P, t - \frac{r_o + r_h}{c} \right) \exp [iaW (z_P - bz_Q)] \omega (a (z_P - bz_Q)) \quad (3)$$

で与えられる。ここで、 W は無次元の複素パラメータである：

$$W = \frac{\sqrt{|b|}}{2|C|\sqrt{\chi_h\chi_{\bar{h}}}} \left[2(\theta_o - \theta_B) \sin(2\theta_B) + \chi_o \left(1 - \frac{1}{b} \right) \right]. \quad (4)$$

χ_g は結晶の分極率の g -Fourier 成分、 $a = \frac{K|C|\sqrt{\chi_h\chi_{\bar{h}}}}{2\sqrt{|b|\sin\theta_B}}$ である。重み関数は Bessel 関数を用いて $\omega(az) = J_0(az) + J_2(az)$ で与えられる。

3 相互コヒーレンスの伝播

結晶への入射波の相互コヒーレンス関数は 2 点間の時間遅延 τ をもつ波動場の相互相関関数として定義される。波動場の相関関数は、振幅の相互相関関数から容易に計算することができる。式 (3) から振幅の相関関数の伝播は

$$\begin{aligned} \langle A_h(Q, t + \tau) A_h^*(Q', t) \rangle &= \left| \frac{KC\chi_h}{4 \sin \theta_B} \right|^2 \int_{bz_Q}^{\infty} dz_P \int_{bz'_Q}^{+\infty} dz'_P \langle A_o(P, t + \tau) A_o^*(P', t) \rangle \\ &\quad \times \exp \left[iaW (z_P - bz_Q) - ia^*W^* (z'_P - bz'_Q) \right] \\ &\quad \times \omega (a (z_P - bz_Q)) \omega^* (a (z'_P - bz'_Q)) \end{aligned} \quad (5)$$

となる。点 P' , Q' は、図 1 に示すように z_o , z_h 軸上の点であり、その座標を z'_P , z'_Q とする。反射波の相関関数は入射波の相関関数の 2 次元積分変換で与えられ、数値的に計算することができる。具体的な計算例は §5 に示す。

今まで、X 線のコヒーレンスは単色性に依存する時間成分と、光源サイズと伝播距離に関わる空間成分の積として表現されると信じられてきた。しかし、式 (5) によれば、一般に結晶による反射では時間成分と空間成分が混ざり合う。結晶によって分光された X 線のコヒーレンスを扱うには時間成分と空間成分を統合した相互コヒーレンスによらなければならない。

4 相互コヒーレンスの解析 [4]

完全結晶によって測定されるロッキングカーブは、入射波のバンド幅と角度発散の影響を受ける。バンド幅と角度発散は相互コヒーレンスと密接な関係にあるので、測定されたロッキングカーブの形状から相互コヒーレンスに関する情報を引き出すことができる。測定されるロッキングカーブは

$$R(W) = \left\langle \int_{-\infty}^{+\infty} dz_Q |A_h(Q, t)|^2 \right\rangle / \left\langle \int_{-\infty}^{+\infty} dz_P |A_o(P, t)|^2 \right\rangle \quad (6)$$

で与えられる。入射 X 線の z_o 軸方向のビーム幅が同じ方向のコヒーレンス長に対して十分大きいとき、 z_o 軸上の時間遅延のない相関関数は

$$\langle A_o(P, t) A_o^*(P', t) \rangle \approx I_o \left(\frac{z_P + z'_P}{2} \right) g_o(z_P - z'_P) \quad (7)$$

で近似できると期待される。このとき、測定されるロッキングカーブは

$$R(W) = \int dW' R_i(W') \tilde{g}_o(W - W') \quad (8)$$

と計算される。ただし、 $R_i(W)$ は入射波が単色平面波のときに測定される結晶由来のロッキングカーブであり、次式で与えられる：

$$R_i(W) = \left| \frac{\chi_h}{\chi_{\bar{h}}} \right| |\tilde{\omega}(W)|^2, \quad \tilde{\omega}(W) = \begin{cases} -W - \sqrt{W^2 - 1} & (|W| > 1, \text{Re}\{W\} < 0) \\ -W + i\sqrt{1 - W^2} & (|W| \leq 1) \\ -W + \sqrt{W^2 - 1} & (|W| > 1, \text{Re}\{W\} > 0) \end{cases} \quad (9)$$

\tilde{g}_o は相互コヒーレンス関数の Fourier 変換である：

$$\tilde{g}_o(W - W') = \frac{a}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\Delta z_o g_o(\Delta z_o) \exp[ia(W - W')\Delta z_o]. \quad (10)$$

したがって、 z_o 軸方向の時間遅延のないコヒーレンス関数を、

$$g_o(\Delta z_o) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} d\theta_o R(\theta_o - \theta_B) \exp[-iK(\theta_o - \theta_B)\Delta z_o \cos \theta_B]}{\int_{-\infty}^{+\infty} d\theta_o R_i(\theta_o - \theta_B) \exp[-iK(\theta_o - \theta_B)\Delta z_o \cos \theta_B]} \quad (11)$$

により、測定されたロッキングカーブから抽出することができる。結晶の回折面を替えて複数の Bragg 角に関してコヒーレンス関数の抽出を行えば、散乱面内の相互コヒーレンス関数を空間的隔たりに関する 2 次元分布として解析することができる。

図 2 は SPring-8 の長尺アンジュレータビームライン BL19LXU で解析されたコヒーレンス関数の分布である。放射光はシリコン 2 結晶分光器により 111 反射と 333 反射を用いて 0.661 Å に単色化された。実験ハッチにセットしたシリコン結晶の 111 面とその高次面を用いてコヒーレンス関数を解析した結果である。

5 コヒーレンスの加工

解析されたコヒーレンスは 2 結晶分光器による時間成分と空間成分の混合で傾いた分布をしている。このコヒーレンスを結晶により加工して空間成分に特化された X 線を得ることが

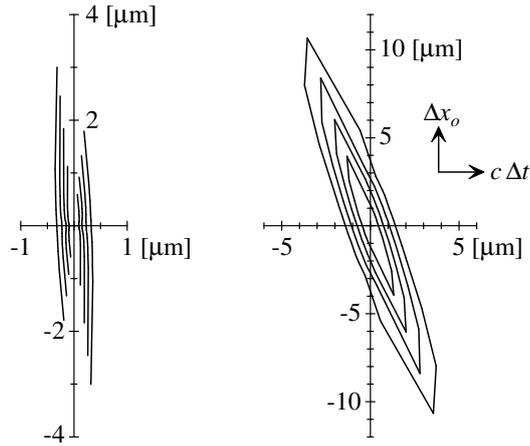


図 2: 解析されたコヒーレンス関数の等高線分布。(左) 111、(右) 333。等高線は内側から 0.8, 0.6, 0.4, 0.2 を表す。

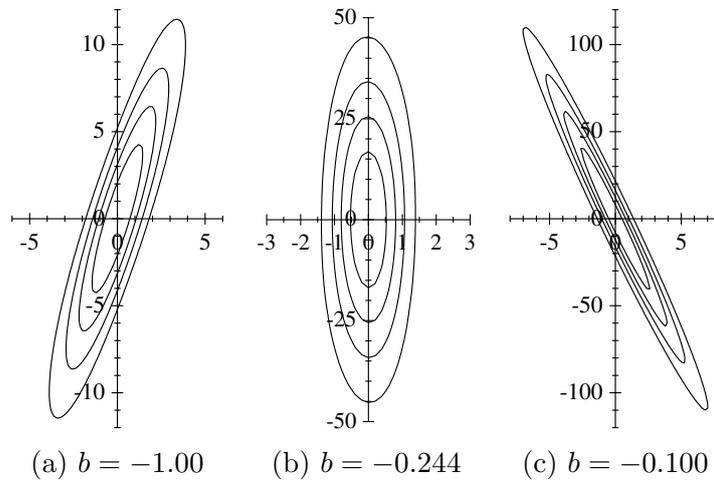


図 3: シリコン $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$ 結晶によるコヒーレンスの加工。等高線は内側から 0.8, 0.6, 0.4, 0.2 を表す。

できれば、in-line 配置の回折実験の高性能化に繋がるであろう。シリコン (333, $\bar{3}\bar{3}\bar{3}$) 配置の 2 結晶分光器で得た X 線 (図 2 右) に対して、シリコン $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$ の非対称結晶でコヒーレンスを空間的にできるかを式 (5) を使って数値シミュレーションした (図 3)。結晶による吸収は無視して、ロッキングカーブの中心 $W = 0$ にセットされると仮定した。この場合には、 $b = -0.244$ の結晶を用いればコヒーレンスを空間的に加工できることがわかる。

参考文献

- [1] J. Miao *et al.*, Proc. Nat. Aca. Sci. USA. **100**, 110 (2003).
- [2] P. Cloetens *et al.*, Appl. Phys. Lett. **75**, 2912 (1999).
- [3] H. Yamazaki and T. Ishikawa, J. Appl. Crystallogr. **35**, 314 (2002).
- [4] H. Yamazaki and T. Ishikawa, J. Appl. Crystallogr. **37**, 48 (2004).

X線スペックルの利用

並河一道

東京学芸大学, 日本原子力研究所関西研光量子科学研究センター, CREST

1. はじめに

コヒーレントなX線が、空間的に不均一で時間的なゆらぎのある物質系に照射されると、X線スペックルと呼ばれる、乱雑で不規則な強度ゆらぎをともなう干渉像が現れる。X線スペックルは入射X線の1次の干渉性（1光子の干渉性）がないと消失する。1次の干渉性はスリットとモノクロメーターを用いて光の一部を入射切り出すことによって得られるので、原理的にはどのようなX線光源を用いてもX線スペックルを観察することができる。しかし、X線光源の輝度が小さい場合には、X線スペックル像を観察するためには時間的・空間的な強度の積算をしなければならず、速いゆらぎや長距離相関に関する情報は消失し散漫散乱が現れる。実際、X線スペックルは第三世代の高輝度放射光光源が実現して始めて観察された。しかしながら、第三世代の高輝度放射光光源といえども、空間干渉性を持つのはX線ビームの 10^{-3} に相当する部分に過ぎず、1パルスに含まれるコヒーレントX線光子数はたかだか 10^5 程度に過ぎない。それゆえ、これまで放射光を用いて行なわれたX線スペックルの実験は速くてもミリ秒程度の時間スケールの現象に限られていた。

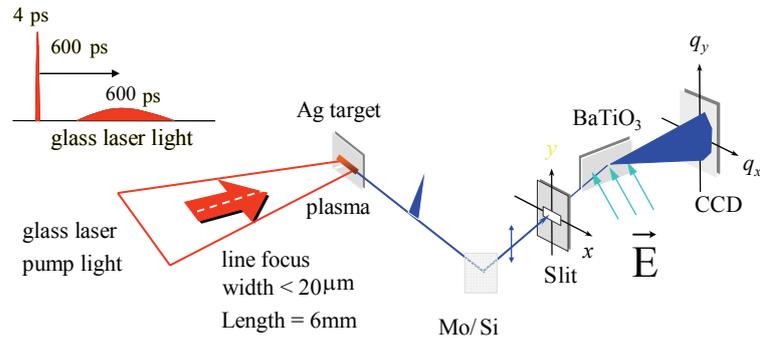
これに対し、X線レーザーは波長固定の単パルス光源という制約はあるものの、コヒーレンスに関する特性は、現在開発中のSASE-FELと比べても遜色ないものである。時間コヒーレンスはスペクトル幅に対応して0.5ピコ秒程度であり、縦モードの数は20程度と推定されている。一方、空間コヒーレンスは、ダブルターゲット方式のNi様Agターゲットレーザーではほぼ回折限界に達しており、横単一モードが実現している。この過渡利得方式のX線レーザーのパルス幅は数ピコ秒で、1パルスに含まれるX線光子数は 10^{12} 程度もあるので、 10^{10} 程度のコヒーレント光子数（ボース縮退度）が見込まれる。このX線レーザーの特性を利用して、BaTiO₃の常誘電相にはピコ秒程度の緩和時間を持つ分極クラスターが存在することがX線スペックルによって確かめられその性質が調べられた。

2. BaTiO₃の相転移¹⁾

ペロブスカイト型構造を持つBaTiO₃の常誘電相（立方晶）と強誘電相（正方晶）の相転移の機構については、光学フォノンのソフト化によるものとTiイオンの秩序無秩序型の配置によるものおよびこれらの折衷型のものが提唱されていた。しかしながら、これらのモデルにはそれぞれ幾ばくかの困難も含まれていた。これらの困難を打開する一つの考えとして、古くから常誘電相における分極クラスターの存在が想定され、またその存在を示す実験事実も報告されていたが、分極クラスターの存在を直接実験的に示した例はなかった。

X線スペックルの応用の一例として、BaTiO₃の分極クラスターの存在を確かめその性質を調べた実験を紹介する。

実験は日本原子力研究所関西研究所の光量子科学研究センターの X 線レーザーを利用して第 1 図のような配置で行なわれた。

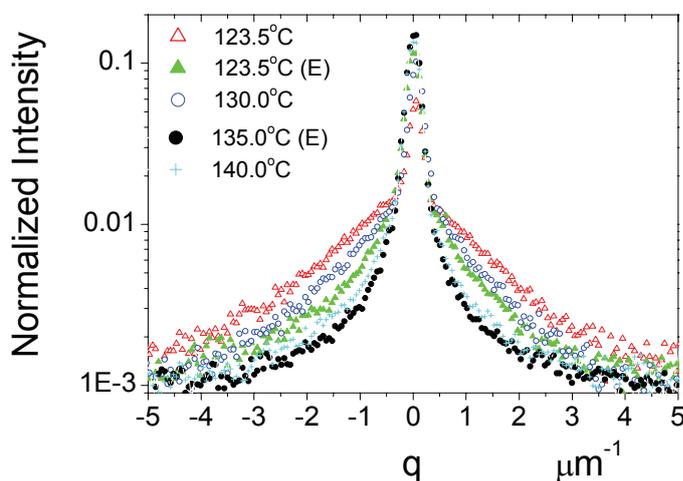


第1図 X線スペックルの実験配置

光量子科学研究センターの X 線レーザーは、過渡励起型の電子衝突励起レーザーと呼ばれるタイプで、ガラスレーザーで増強された強力なパルス幅の狭い IR 光を Ag ターゲットに線集光して Ag⁺¹⁹ イオンプラズマを作り、電子衝突励起と輻射減衰によって Ag⁺¹⁹ イオンに反転分布を発生し、この反転分布が緩和するより早く SASE モードでレーザー発光を行なうものである。発生する X 線レーザーのパルス幅は数ピコ秒で、波長は 13.9nm である。これを Mo/Si の多層膜ミラーで 90 度反射させ縦偏光ビームを得ている。試料にはフラックス法で成長した薄板状 (c 面) の単結晶を用いた。相転移温度は 122°C である。試料には板面に垂直に電場が印加できるようになっている。試料から散乱されたスペックル像は CCD カメラで記録する。

観察されたスペックル像は、鏡面反射の周りにノイズ状の強度分布が広がっている。これらの強度の広がり、試料温度が転移点から離れるほど小さくなり、また、試料に垂直に電場を印加すると高温の場合と同じように小さくなる。観察されたスペックル像の縦軸方向の強度分布の温度依存性のあらましを第 2 図に示してある。図に (E) と記してあるのは電場を印加したときのデータを意味する。これらのデータから、鏡面反射の周りにあらわれるノイズ状の強度分布は試料に散在する不均一構造によるもので、この不均一構造は転移温度に近いほど顕著になり、かつ、電場を印加すると X 線の散乱に寄与しなくなることが分かる。これらのスペックル像の特徴から、BaTiO₃ の常誘電相には、強誘電相における

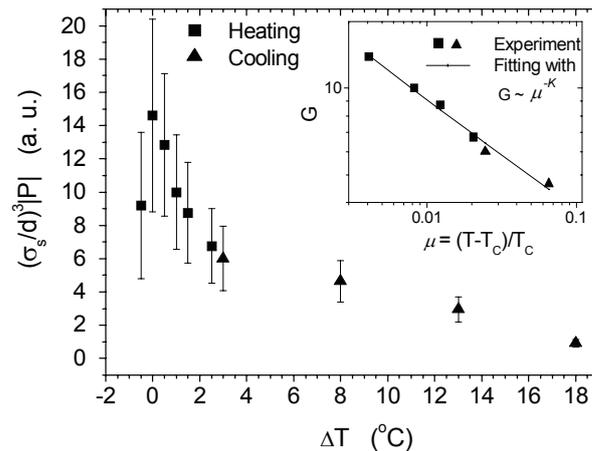
複屈折と同様な電場依存性を示す微小な散乱体、つまり分極クラスターが散在していることが分かる。



第2図 X線スペックルのプロファイル

入射 X 線に対する BaTiO₃ の応答を複素透過率でモデル化し、フレネル回折理論を用いて複素透過率の空間相関関数を求めた。この際、BaTiO₃ を透過率一定の位相物質と考えたので、相関関数は位相の相関、つまり屈折率（分極の 2 乗に比例する）の相関を表すことになる。相関関数のもつ性質から、移転点付近における分極クラスターの大きさ (σ_s)、クラスター間距離 (d)、分極の大きさ (P) などに関する知見が得られた。分極クラスターの大きさは $0.8\mu\text{m}$ 程度でほとんど変化しないのに対し、クラスター間距離は $9\mu\text{m}$ 程度 (140°C) から $2\mu\text{m}$ 程度 (122°C) まで直線的に減少する。クラスターサイズとクラスター間距離の温度依存性を表す直線は転移点のおよそ 6°C 低温側 (116°C) で交差し、この温度で試料全体に分極が発生し、ドメイン構造（単一ドメインとなることもある）が実現されることがわかる。このことは強誘電相のドメイン観察の結果とも一致している。一方、分極の 2 乗（常誘電相の屈折率 n からのずれ Δn に比例する）は移転点の 6°C 上で極大値をとる。これらの物理量の温度依存性から“試料全体の総分極量” $(\sigma_s/d)^3 P$ の温度依存性が求められた。常誘電相の平均分極はゼロであるので、この量は本来の意味の総分極量を意味しない。試料全体としてどの程度の大きさの分極がどの程度の領域にわたって発生しているかを表す。端的に言えば、試料全体に占める超常誘電双極子の大きさと割合を表す量である。適当な大きさの電場を印加すると分極クラスターの分極の向きがそろって、試料全体として $(\sigma_s/d)^3 P$ の分極が発生するはずである。分極クラスターを超常誘電双極子とみなしたときの（双極子の数と大きさが一定で双極子間相互作用で分極が発生するキュリー・ワイスの法則とは異なる意味の）“分極率”と考えることもできる。“試料全体の総分極量”の温度依存性を第3図に示す。

挿入図にはこの“分極率”の臨界指数も示してある。また $\sigma_s^3 P$ が分極クラスターの分極を表し、 d^3 が双極子ポテンシャルをあらわすので、この量を、分極クラスターの分極の向きを平行にそろえようとする分極クラスター間の近接相互作用のポテンシャルを表すものと考えられることもできる。



第3図 “試料全体の総分極量”の温度依存性

3. おわりに

物質系の時空相関関数を $G(r, t)$ とすれば、 $G(r, t)$ の空間に関するフーリエ変換で定義される中間散乱関数 $S(Q, t)$ は、相関差 t で見た空間相関の空間周波数 Q の成分を表すものである。中間散乱関数 $S(Q, t)$ は、同時刻中間散乱関数 $S(Q, 0)$ と一次の時間相関関数 $g^{(1)}(Q, t)$ の積で表されるので、シーゲルトの関係によって、時間相関関数 $g^{(2)}(Q, t) - 1$ は中間散乱関数 $S(Q, t)$ に比例する。したがって、散乱ベクトル Q に対するスペックルの X 線強度相関から中間散乱関数 $S(Q, t)$ が求まり、 $S(Q, t)$ の時間に関するフーリエ変換からファン・ホーベの動的構造因子 $S(Q, \omega)$ が求まる。コヒーレント時間 $\tau(Q)$ で衝突している気体のような単純な系の場合、強度相関関数から緩和時間 $\tau(Q)$ が求まり、 $\tau(Q)$ の逆数がゆらぎのスペクトル幅を与える。極めて短い時間差の強度相関分光法が実現されるならば、相転移に関するゆらぎの時間相関を明らかにすることができ、ピコ秒程度の緩和時間をもつ物質系の相転移の機構の解明につながるものと思われる。ERL や FEL などのコヒーレント光子数の大きな X 線光源の開発による、近い将来の、X 線強度相関分光法の展開が期待されている。

1) Picosecond View of Microscopic-Scale Polarization Clusters in Paraelectric BaTiO₃, R. Z. Tai, K. Namikawa, A. Sawada, M. Kishimoto, M. Tanaka, P. Lu, K. Nagashima, H. Maruyama, and M. Ando, Pys. Rev. Lett. **93**, 087601 (2004).

「ミロー型干渉計を用いた軟 X 線干渉計測」

NTT マイクロシステムインテグレーション研究所 芳賀 恒之

兵庫県立大学 木下 博雄

NTT アドバンステクノロジー 竹中 久貴

波長 13nm の極端紫外光を用いた次世代の半導体リソグラフィ(EUVL: Extreme Ultraviolet Lithography)で用いられる多層膜反射型マスクの欠陥検査方式として、露光波長である EUV により直接マスクを観察することができるミロー型干渉顕微鏡システムを開発した¹⁾。

開発した干渉顕微鏡の構成は、図1に示すように、輪帯開口を持つシュバルツシルト光学系(倍率:15倍)の片側の開口を用いて、検査対象となる多層膜を照明し、反対側の開口を用いて EUV 像を結像する落射顕微鏡を基本とする構成となっている。二次元イメージセンサには X 線ズーム管(浜松ホトニクス製: C5333)を用い、EUV 像の結像位置は X 線ズーム管の光電面に一致し、光電変換された後に静電レンズでさらに拡大され(倍率:10~200倍)、最終的な像として観察される。

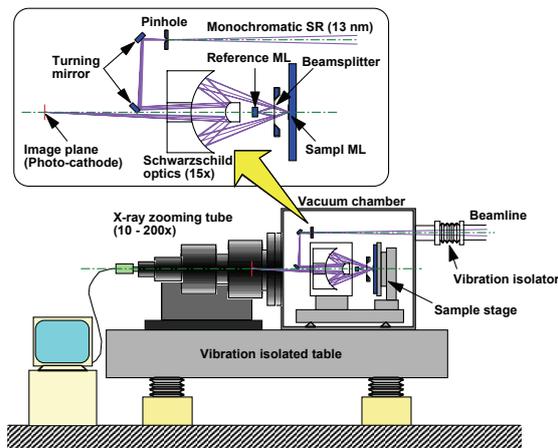


図1 開発した軟 X 線干渉顕微鏡の構成

システムとしての解像度はシュバルツシルト光学系の開口数が 0.13 であるため、13nm の波長の EUV で 50nm である。視野はズーム管の最大視野で規定され、サンプル上で最大 130 μ m である。

この軟 X 線落射顕微鏡の対物レンズであるシュバルツシルト光学系と被検査サンプルとの間に多層膜ビームスプリッタ²⁾を用いた干渉計を組み込むことにより干渉顕微鏡としている。ビームスプリッタに関してサンプルと対象の位置に参照原器である多層膜ミラーを配置したミロー型の干渉顕微鏡となっている。

干渉顕微鏡に用いたビームスプリッタは、図2に示すように、入射角 10 度で設計波長である 13nm の EUV に対し 30% ずつを反射、透過する 1 対 1 ビームスプリッタとなっている³⁾。

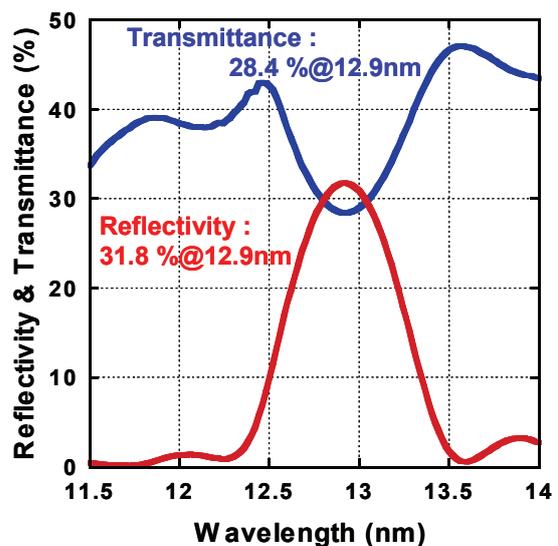


図2 多層膜ビームスプリッタの評価結果

作製した干渉顕微鏡を用いて種々の EUV マスクを観察した^{1),4),5)}。以下に代表例を紹介する。

図3(a)は干渉顕微鏡で観察された、EUVL マスク上の実欠陥で、多層膜下に埋め込まれた残渣によりできた位相型の欠陥であると考えられる。同一の欠陥を可視の微分干渉顕微鏡を用いて観察した像を図3(b)に示す。両者を比較すると、軟 X 線像は、きわめて明瞭なコントラストが得られていることがわかる。

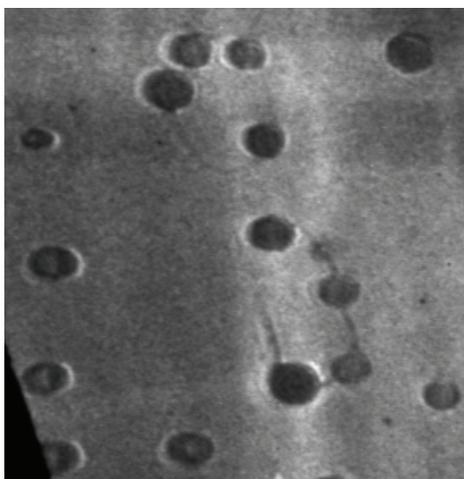


図3(a) 位相型欠陥の EUV 顕微鏡像

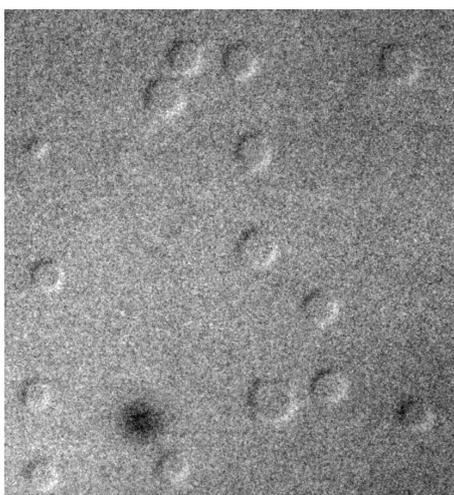


図3(b) 位相型欠陥の可視顕微鏡像

AFM を用いてこの欠陥の段差を調べると、高さが 6.5nm で極めてなだらかな形状を持つことがわかった(図3(c)、図3(d))。この結果から、開発した干渉顕微鏡は、EUVL マスクに特徴的な多層膜反射面の波面のずれにより生ずる位相型の欠陥を、高い感度で検出できることがわかった。

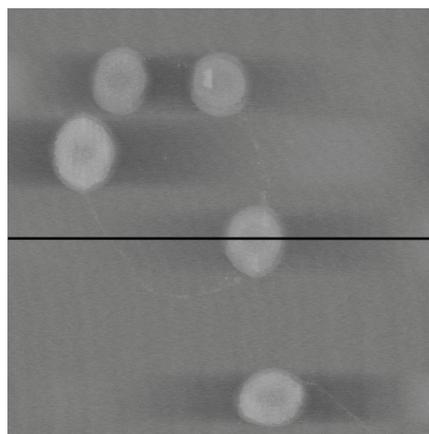


図3(c) 位相型欠陥の AFM 像

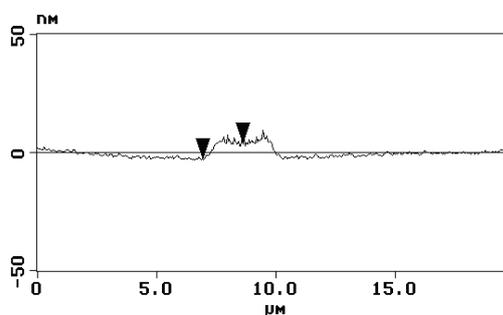


図3(d) 位相型欠陥の断面形状

EUVL のマスクの欠陥検査において、従来用いられている光や電子線による方法で検出できない欠陥の存在は、検査に伴うマスクコストを考えると大きな脅威となる。光の散乱を用いたパーティクル査装置の感度も向上しているが、現実に EUV でしか検出できない欠陥も報告されている⁶⁾。実際にわれわれのシステムにおいても、同様の欠陥が認められている。

図4(a)は、右からそれぞれ、a: 300nm L&S、b: 350nm L & 250nm S、c: 400nm L & 200 nm Sのマスクパタンの EUV 顕微鏡像である。a は明瞭にパタンが見えるが、b については、ラインがほとんどつながっており、c については全くラインが分離できていないことがわかる。

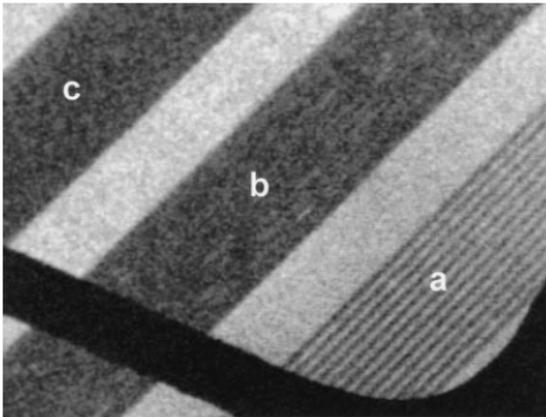


図4(a) 干渉顕微鏡によるマスクの EUV 像

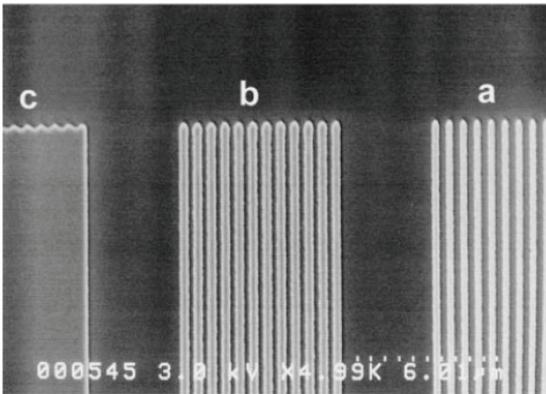


図4(b) マスクの SEM 像

これに対し、同一マスクを SEM で観察した像(図4(b))では、c はラインが分離できていないのが確認できるが、b については、あたかも分離できているように見える。これは、b のパターンではマスクの吸収体のエッチング時に残渣が残り、パターンとして不完全であるため欠陥となったものと考えられる。

このように、開発したミロー型の干渉顕微鏡は、高い空間分解能と高い位相分解能を併せ持ち、EUVL のマスクの欠陥検査として、直接的に欠陥を観察でき、かつ、欠陥の種別同定が可能である。EUVL 実現の鍵を握るマスクの無欠陥化に向けて、欠陥の由来を知る上で非常に有効なツールである。

多層膜ビームスプリッタの実現により、EUV 領域での干渉計測が可能となった。今後、コヒーレント光源の開発とあいまって、各種の干渉計測への応用へと X 線光学の分野が拡大していくことが期待される。

参考文献

- 1) T. Haga, H. Takenaka, M. Fukuda, J. Vac. Sci. Technol. B **18**, 2916 (2000).
- 2) T. Haga, et. al, J. Synchrotron. Radiat. **5**, 690(1998).
- 3) H. Takenaka, et. al, J. Physique IV **104**, 251(2003).
- 4) T. Haga, et. al, Jpn. J. Appl. Phys. **42**, 377 (2003).
- 5) H. Kinoshita, et. al, J. Vac. Sci. Technol. B **22**, 264 (2004).
- 6) M. Yi, et. al, J. Vac. Sci. Technol. B **19**, 2401(2001).

軟X線干渉法によるEUVL投影光学系の波面収差計測

兵庫県立大学高度産業科学技術研究所 新部正人

アブストラクト

EUVL投影光学系の波面収差計測法を開発するため、簡単な部品交換で5種類の軟X線干渉実験を行える干渉計をニュースバル放射光施設BL9に構築し、実験を開始した。PDI法においては、波面解析に当たってフーリエ変換法を用いてノイズ成分を除去し、波面解析が困難であったデータからの波面回復に成功した。テスト光学系の鏡筒を光軸まわりに 90° 、 180° と回転した測定を繰り返して行い、計測誤差が 0.1 nmRMS 程度となることが分かった。

1. はじめに

次世代半導体露光法として期待される極紫外リソグラフィ（EUVL）に用いられる投影光学系は、 32 nm node のパターン転写を実現するために、光学系の波面収差を 0.45 nmRMS 以下にする必要がある。しかし、従来の可視光を用いた干渉計測法は、参照球面の高精度加工が困難となり、限界にきている。また、用いられるミラーには多層膜反射に起因する、入射角に依存した反射波面の位相変化が生じるので、可視光と軟X線（～極紫外光、以下EUV）で測定した波面は、厳密には一致しない。したがって、実際の露光波長（ $\lambda = 13.5\text{ nm}$ ）を用いて波面を計測評価することが必須あり、その測定精度は 0.1 nmRMS が要求される。

この実波長(at-wavelength)波面計測を行う方法として、従来、米国ローレンスバークレイ研究所から報告されたPDI (Point Diffraction Interferometer)法やLSI (Lateral Shearing Interferometer)法が知られている[1,2]。我々は、それらの欠点をカバーする新しい3つの干渉方式を提案した。それらは、ピンホールの代わりにスリットを用いた干渉法であるLDI (Line Diffraction Interferometer)法とSLSI (Slit-type Lateral Shearing Interferometer)法、および2枚のグレーティングを用いるDLSI (Double-grating Lateral Shearing Interferometer)法である[3]。これらの測定実験を行うには、高輝度で、干渉性が高く、安定に動作するEUV光源が必要である。このため兵庫県立大学のニュースバル放射光実験施設では、長尺アンジュレータ(LU)光源を用いてEUV光での干渉実験ができる実験用干渉計システム(EEI)をBL9[4]に構築した。本研究装置では、上記の5方式を先行技術と比較しながら、最適の測定方式を見出すことを目的としている。また、次のステップとして6枚ミラーより成る実機投影露光光学系の波面収差計測に結びつける予定となっている。

2. 実験用干渉計システム (EEI)

本稿では本波面計測法の基本形であるPDI法を中心に、装置、実験法等について述べる。PDI法の原理は、光の波長を λ 、光学系の開口数をNAとして、光を $\lambda/2NA$ 以下の大きさの微小ピンホールを透過させると、ピンホールが空間周波数フィルターとして働き、ピンホール射出光は高次の周波数成分を含まない理想的な球面波となる性質を利用するものである。この球面波を参照波面に用いることにより、精密加工した参照球面を用い、高精度の干渉測定ができる。図1にPDI装置の概念図を示す。はじめに入射側ピンホールで整形した球面波を透過型回折格子(G)を通して、テスト光学系に導く。Gはビームスプリッターとしての役割を持ち、回折光の0次光と1次光はテスト光学系を通ったのち、光学系の焦点面上のわず

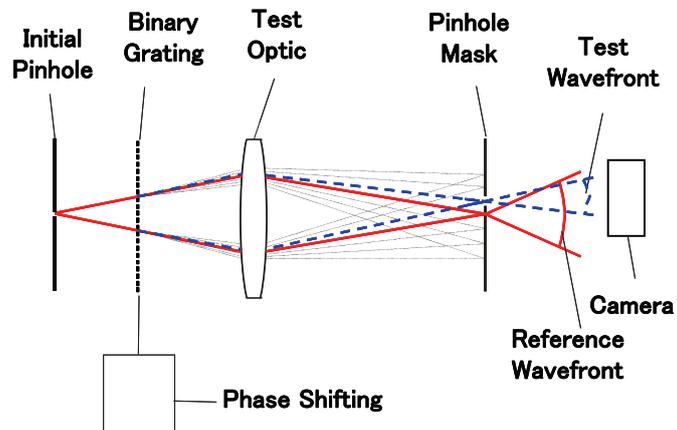


図1 PDI干渉法の概念図

かに離れた別々の点に集光する。焦点面上には第2のピンホールと1次光選択窓を開けたピンホールマスクが置かれている。0次光は第2ピンホールを透過すると、再び理想的な球面波となり、一方、1次光はテスト光学系による波面収差を持ったまま窓を透過する。これらの透過光はCCD面上で干渉縞を形成し、これを解析することにより、テスト光学系の波面収差を知ることができる。また、Gを微小に動かすことにより、0次光、1次光間の位相を変化させる位相シフト法により、データ取得している。

現在ニュースパルで稼働中のEUV干渉計（EEI）の模式図を図2に示す。EEIはPDI法を含む前記5方式が簡単な部品の交換で実現できる構成となっており、ビームラインの照明も全ての方式に対応できるように最適化した。波面測定用のテスト光学系はNA=0.2のSchwarzschild光学系である。このテスト光学系は別に開発された可視光のPDI装置により[5]、本測定に見合う波面精度(1.06nmRMS)まで組立調整し、EEIに搭載した。

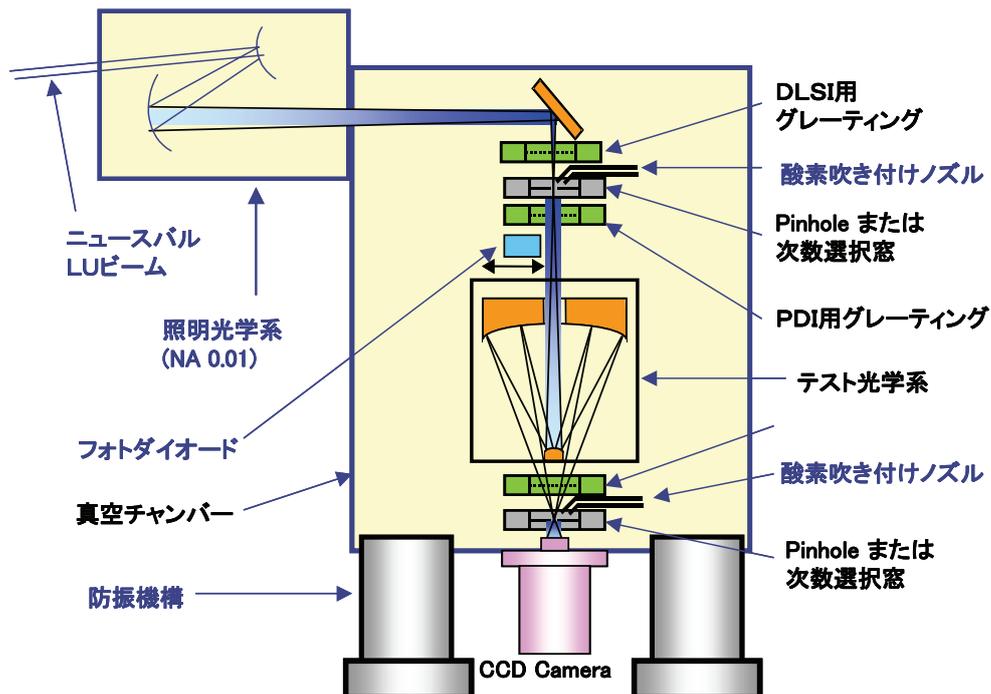


図2 実験用EUV干渉計システム（EEI）

本研究では光学部品の製作も大きな課題である。まず、ピンホール形状を最適化する必要がある。このため種々の膜厚とピンホールサイズについて、基板を透過して迷光になってしまう成分も含めた電磁場解析を進め、厚さ200nmのTaマスクのピンホール径として50nmφ、厚さ150nmのNiマスクのピンホール径として30-45nm付近が最適値であることを解析した[6]。

次にPDI、LDIでは厚さ200nm程度の自立薄膜（Ni, Ta）に数10nmオーダの超微細なピンホールあるいはスリットを加工する必要がある。本研究ではEB描画のリフトオフ法、FIBによる直接加工法等を検討し、最終的に厚さ150nmのNi自立膜に直径30-100nmまでのピンホールを開けたマスクを入手して実験に用いた。

EUV光を用いた干渉実験に当たっては、コンタミネーションによるピンホール閉塞が問題になった。ピンホールに付着した成分の分析を行い、ピンホールが炭素を主成分とする薄膜の堆積により閉塞していることがわかった。干渉計内への酸素ガスの導入や、ピンホール材質についても検討し、遮光性に優れるNiがAuやTaと比べて、低い閉塞レートを持つことを見出した[7]。

3. PDI実験の解析と結果

EEI装置で100nm径のピンホールマスクを用いて取得した干渉縞をもとに解析したテスト光学系の波面データを図3に示す。(a)は光学系の組立調整時に取得した可視光($\lambda=633\text{nm}$)PDIによる計測波面であり、(b)がEEIによる計測波面である。可視光では1.06nmRMS、EUV光では1.10nmRMSの波面が得られ、形状等も良い一致を示している。Schwarzschild光学系では、大部分の光がミラー面に対し垂直に入射するため、可視光とEUV光に波面の差異は殆ど生じな

い。よって、Schwarzschild 光学系の可視光波面は、EUV による測定波面の良い比較波面となる。

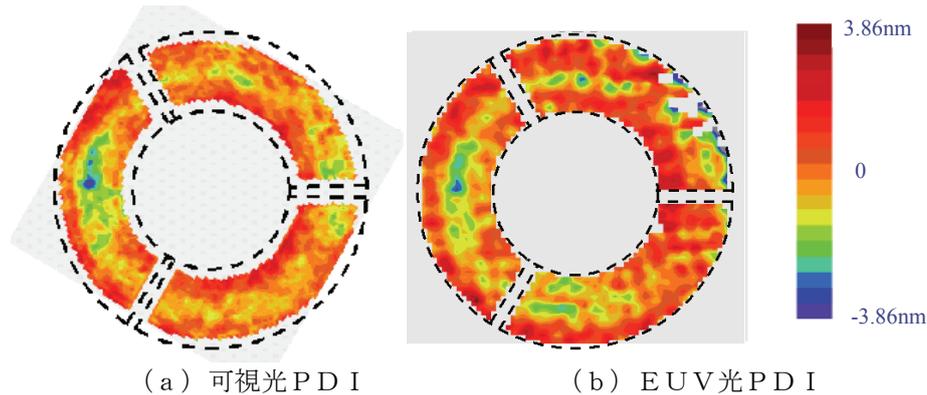


図3 可視光およびEUV光PDI法で測定されたテスト光学系の波面

ピンホール径を 50 nm 程度まで小さくすると、干渉縞のコントラストが劣化して、波面解析が困難となることがあった。これはピンホールを通る 0 次光の光量が減少するとともに、0 次光のフレア成分が 1 次光選択窓を透過して、テスト光学系の 1 次光あるいは 0 次光同士で干渉する割合が相対的に増えるためである。この問題を解決するため、得られた干渉縞に対して 2 次元のフーリエ変換 (F T) を行う方法を用いた。図 4 (a) に示すような干渉縞に対して F T を行うと、(b) に示すような空間周波数領域での形状が得られる。このうち中心のスポットは窓を通った 1 次光と 0 次光のフレア同士が干渉したもので、ノイズ (DC) 成分となる。一方その右左のスポットは、窓とピンホールを通った光同士の干渉で、この中にはテスト光と参照光の干渉のほか、参照光と自分自身のフレア光の干渉が含まれる。しかし、後者はさらに位相シフト法を用いて除去できる。空間周波数領域の右側にあるスポットのみを選択し、これをさらに逆 F T すると、DC 成分や高次干渉によるノイズが除去された、コントラストの高い干渉縞が得られる。この方法を用いて波面解析が困難であったコントラストの低い干渉縞から波面回復ができるようになった。解析した波面に対しては、Zernike 多項式による最小 2 乗フィッティングを行い、第 36 項までの Zernike 係数を得た。ここでは Fringe Zernike 多項式ではなく、輪体形状を解析するのに適した Annular Zernike 多項式[8]を用いた。

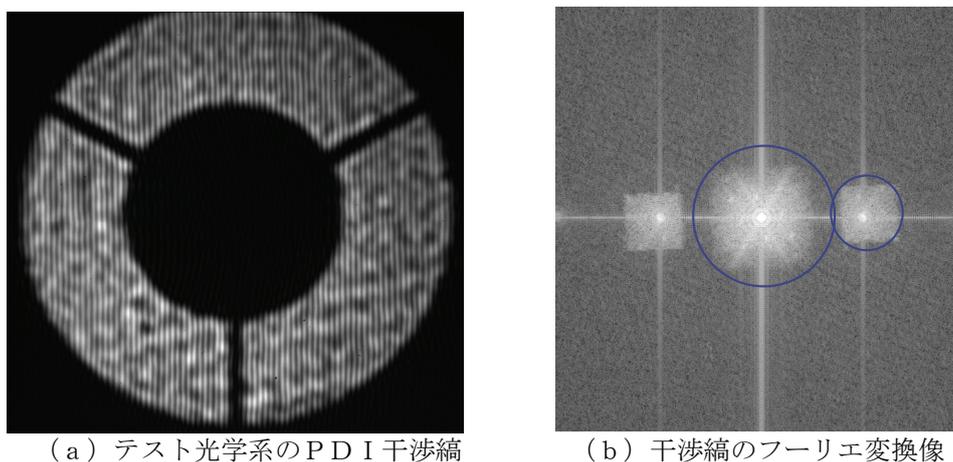


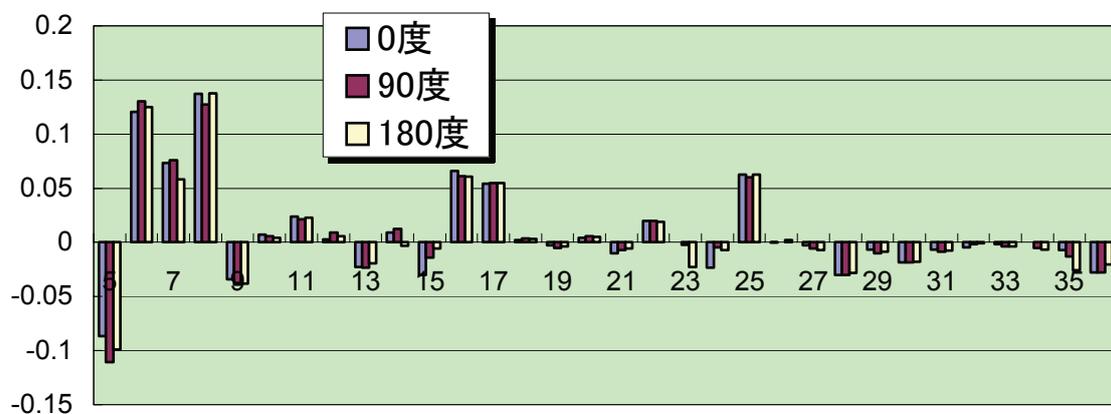
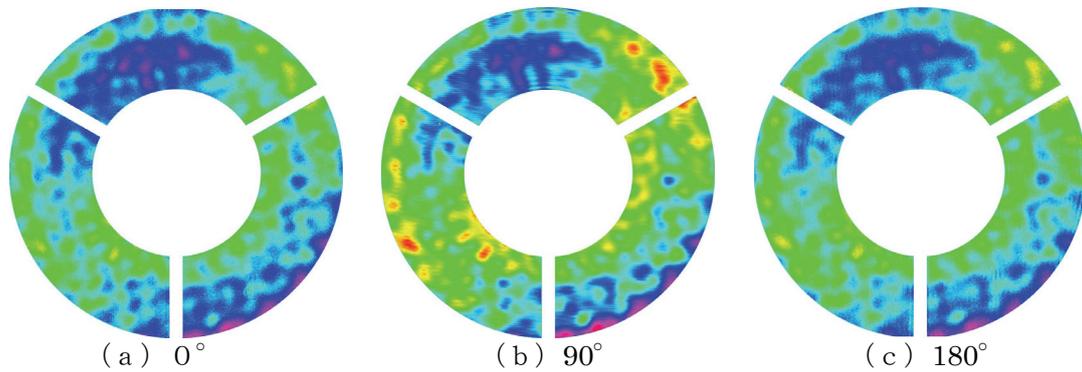
図4 測定された干渉縞とそのフーリエ変換像

4. 本干渉計測法の誤差見積もり

本測定で得られる収差の値には、テスト光学系の収差のほか、測定系に付随したシステム誤差が含まれる。システム誤差としては、照明光学系の収差、回折格子の形状から発生する収差、ピンホールで作られる球面波の収差、CCDの傾きによる収差などがある。これらのシステム誤差は、鏡筒を光軸まわりに回転して測定した波面を比較することにより、見積もることができる。

図5にテスト光学系の鏡筒を光軸まわりに90°および180°回転させた光学系について波面計

測を行った結果を示す（像は比較のため回転をもどして表示した）。この結果より3つの測定波面がよく似た形状を示しており、また、Zernike 係数もほぼ一致していることが分かる。これより、本測定のシステム誤差は0.1 nmRMS 程度であることが分かった。



(d) Zernike 係数での比較 (単位 λ : 13.5 nm)

図5. PDI, LDIおよびCGLSI法によるZernike 係数の比較

本研究は、基盤技術研究促進事業の一環として、新エネルギー産業技術開発機構(NEDO)からの委託により、技術研究組合極端紫外線露光システム技術開発機構(EUVA)と兵庫県立大学との実質的共同研究として行われた。本稿をまとめるにあたりご協力頂いた、EUVA波面計測グループの研究者各位に感謝致します。

参考文献

- 1) E. Tejnil, K. A. Goldberg, S. Lee, H. Medechi, P. J. Batson, P. E. Denham, A. A. MacDowell, J. Bokor and D. Atwood: J. Vac. Sci. Technol. B **15**, 2455-2461 (1997).
- 2) P. P. Naulleau, K. A. Goldberg, J. Bokor: J. Vac. Sci. Technol. B **18**, 2939-2943 (2000).
- 3) K. Murakami, J. Saito, K. Ota, H. Kondo, M. Ishii, J. Kawakami, T. Oshino, K. Sugisaki, Y. Zhu, M. Hasegawa, Y. Sekine, S. Takeuchi, C. Ouchi, O. Kakuchi, Y. Watanabe, T. Hasegawa, S. Hara, A. Suzuki,: Proc. SPIE Vol.**5037**, 257-264 (2003).
- 4) M. Niibe, M. Mukai, S. Miyamoto, Y. Shoji, S. Hashimoto, A. Ando, T. Tanaka, M. Miyai, and H. Kitamura: Synchrotron Radiation Instrumentation, AIP Conf. Proc. **705**, 576-579 (2004).
- 5) K. Otaki, K. Ota, I. Nishiyama, T. Yamamoto, Y. Fukuda, and S. okazaki: J.Vac. Sci. Technol. B **20**, 2449-2458 (2002).
- 6) Y. Sekine, A. Suzuki, M. Hasegawa, C. Ouchi, S. Hara, T. Hasegawa, Y. Kuramoto, S. Kato, K. Murakami, J. Saito, K. Ota, H. Kondo, M. Ishii, J. Kawakami, T. Oshino, K. Sugisaki, Y. Zhu, K. Otaki, Z. Liu: J. Vac. Sci. Technol. B **22** 104-108 (2004).
- 7) K. Sugisaki, M. Hasegawa, S. Kato, C. Ouchi, J. Saito, M. Niibe, A. Suzuki, K. Murakami: Proc. SPIE Vol.**5374**, 702-709 (2004).
- 8) S. R. Restaino, S. W. Teare, M. DiVittorio, G. C. Gilbreath, D. Mozurkewich: Opt. Eng. **42** 2491-2495 (2003).

卓上型放射光装置”みらくる”の放射光特性とイメージング利用

山田廣成

立命館大学 21 世紀 COE 放射光生命科学センター
草津市野路東 1-1-1

<http://www.ritsumei.ac.jp/se/re/yamadalab/home1.htm>

要旨

みらくる 6X は卓上型高輝度 X 線発生装置である。シンクロトロン電子軌道上に微細ターゲットを置くという方法で、低エネルギー、常電導、超小型シンクロトロンであるにもかかわらず高輝度硬 X 線ビームの発生に成功した。光源点の大きさは、電子ビームのサイズではなく、ターゲットサイズで決まるために、最小と言って良い 1 ミクロン ϕ という断面の光源点を実現した。微少光源点のみらくる 6X は極めて高品質の X 線を発生している。結果として、例えば、試料と検出器の間を離すだけで 20 倍の鮮明な拡大写真を位相コントラストで撮像することができ、1mm 癌の形状までをとらえることができた。みらくる 6X は今までにない高品質の X 線イメージングを実現した。

1. はじめに

筆者は、約 20 年にわたり放射光装置の小型化に取り組んできた。放射光装置を小型化して万人が享受できる装置にすることを研究のターゲットとしてきた。産業利用や医学利用に導入することが当初からの目的であった。最初の開発が超電導シンクロトロン AURORA[1,2]である。しかしながら AURORA は十分に小型ではなく、産業界に受け入れられるには至らなかった。本稿で述べるみらくるという卓上型シンクロトロン[3~6]は、そのような経緯の後に開発した装置である。外径 60cm の常電導シンクロトロン、みらくる 6X で高輝度ハード X 線を発生することに成功した[7]。

装置は昨年 12 月に完成してビーム入射に成功し、それ以降順調に X 線利用を展開している。医療イメージング、癌照射実験、非破壊検査、蛍光 X 線分析、X 線顕微鏡、蛋白質構造解析等である。

我々は高品質の X 線源を開発することを目的としている。高品質というとき、そこには多様な価値観が有る。指向性、平行性、微少光源点、発散角、Brilliance、Brightness、Flux、Emittance、大パワー、波長領域、単色性、コヒーレンス、等々である。随分たくさんの用語があり、いずれもが X 線の異なる側面を示すものである。我々はこれらの側面のどれかを選択して X 線利用を行っている。微少資料の分析に必要なのは brilliance であり指向性である。X 線リソグラフ等で重要なのは Flux や平行性となる。イメージングや X 線顕微鏡で重要なのは微少光源点であり、これが画像の空間分解能を決定する。それは、Brilliance とは少し違う特性である。放射光は Brilliance の大きな、発散角の小さな光である。高品質の X 線は目的により異なるはずであるが、それは多分 Brilliance が大きくかつ発散角の大きな光である。大きな発散角の各点で Brilliance が高ければそれはきわめて利用価値が高い。それは、指向性は低い「平行性」の高い光である。「平行性」をここでは交差することのない光と定義している。光源から発生して以降に交差することのない光が「平行性」の高い光である。このような光は、光学系を使って幾何学的に平行な光にすることができるし、微少点に収束できる。そのような光は微少光源点から発生する。上記に示した用語の中で何が最も重要な特性であるかを問えば、多分それは光源点の大きさである。光源点が小さければ必然的に平行性の高い光が得られる。光子数が高ければ Brilliance は上がる。光源点が小さく光子数が大きければ、必然的にコヒーレンスも高くなる。

みらくるは、最小光源点を実現したという意味で最高品質 X 線を発生できたと考えている。そのようなみらくるからは、新しい X 線利用がぞくぞくと生まれている。そもそも大型放射光装置をあれだけ巨大に作ったのは、光源点の大きさ即ち電子ビームの断面積を小さくするためであった。電子ビームにおけるベータトロン振動の振幅を抑えるために、なるべく電子ビームを大きく偏向しないようにした結果が、巨大装置へ行き着いた。

本稿では、今までに明らかになった、みらくる 6X の X 線特性について述べると共に、X 線利用の一端を紹介する。“みらくる 6X”は高輝度ハード X 線源であり、放射光では展開が困難であるような、みらくるならではの、新しい X 線利用について述べる。例えば医療診断や非破壊検査であるが、20 倍拡大の撮像に成功している。このことは、今後の診断技術に革新をもたらすものである。高輝度軟 X 線の発生により、X 線リソグラフを実用化できると

いう見通しも出ている。現在、新たに軟X線用みらくる 20SXを開発しているが、そのX線強度は放射光より一桁高いと予測されるし、放射角が大きいために、振動ミラーを使うことなく均一な照射ができるという特長がある。

2. みらくる 6 XのX線発生機構

開発したみらくる 6X[6]は、図1に示すように、電子軌道半径 15cmの常電導完全円形シンクロトロンである。蓄積電子エネルギーは 6MeVであるから、その臨界波長は 30 μm 程度であり、ハードX線をそのままでは発生できない。シンクロトロンであるから電子を発生し加速する入射器が必要であり、6MeVのマイクロトロンを使用している。ビーム入射には、共鳴入射と言われる方法[8]を使用しており、これにより半径 15cm(周長 1m)の周回軌道への入射が可能になった。

低エネルギー電子でX線を発生する方法は、電子軌道中にターゲットを挿入する方法であり、物理過程としては制動放射、遷移放射、パラメトリック放射である。制動放射は高エネルギーX線を出すのに適し、遷移放射は軟X線を出すのに適し、パラメトリック放射は単色X線を出すのに優れている。我々は目的に応じて放射メカニズムを使い分けている。電子ビームをターゲットに当ててX線を発生する方法はRoentgenがX線を発見したとき以来の原理であるから、古くから知られていて、新規性がないと思われるかも知れない。しかしながら、実は、放射光も制動放射の一種であることを我々は長く忘れていたように思う。制動放射は、電子の纏っている光子が、磁場または電場により揺すられて放射されるものである。従って、原子核のクーロン力による制動放射も磁場による制動放射も、放射角は電子エネルギーにより決まり、エネルギーが相対論的になると前方へ飛び出る。X線管では、主に特性X線を使用するが、これは原子から4 π に放射されるために高輝度にはなり得ない。上記の3つの放射は、いずれも電子エネルギーの逆数に比例する放射角で放射される。

図2が使用しているターゲットである。この字型のフレームにBeやマイラーでできたワイヤを張り、その中心にターゲットを置いている。ターゲットはロッドであり、その断面が電子ビームに対して直角になるように置いている。最近では、1~0.5 $\mu\text{m}\phi$ の白金でできたロッドを使用しており、長さは数 10 μm ~1mmである。従って、電子が当たる断面の面積は、0.8 $\times 10^{-12}\text{m}^2$ という極微小面積である。長手方向は電子の進行方向であるから長さによって電子のエネルギーロスとX線の減衰が決まる。従来は、ワイヤを直角に張るということをしてきたが、こうすると実効的なX線の発生領域がワイヤの幅と電子ビームの高さ方向広がり(約 1mm)で決まるために、断面積は 1000倍ほど大きくなる。ターゲットの支持材はBeやカーボンのワイヤであり、X線の発生が少ない材質を選択している。

ターゲットを電子軌道に挿入すると、ターゲットが加熱されて破壊されると考えるかも知れない。しかしながらこの点も当初論文[9]で指摘したように、ターゲットが小さく薄いために、入射電子は殆どが透過し、二次電子や発生X線もターゲットに吸収されることが無いために加熱されない。実際にターゲットは人為的に破壊されることは有っても、溶けたり破損したりすることは現在まで起きていない。

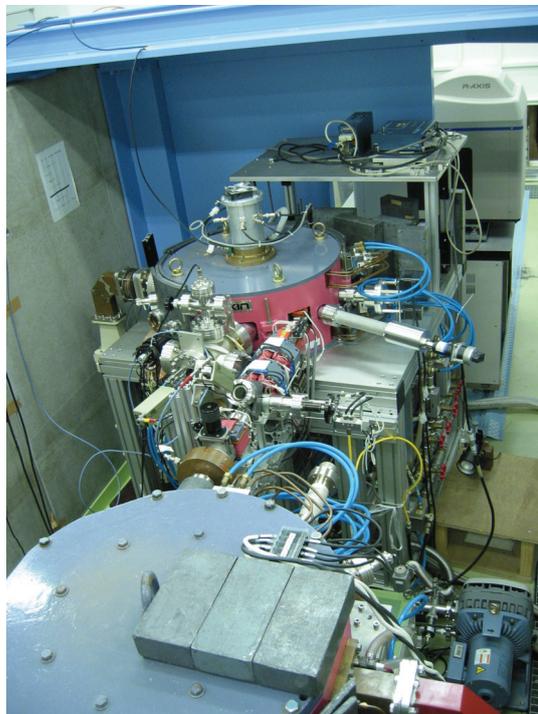


図1 みらくる 6 X高輝度X線発生システム。手前が 6MeVマイクロトロン入射器。ピンクのボディが卓上型シンクロトロン。右に突き出したアームは、ターゲット駆動機構。リングの上にあるのは、磁気パルス圧縮装置。水色シールドの向こうに見えるのはタンパク質構造解析のためのイメージングプレート(IP)システム。

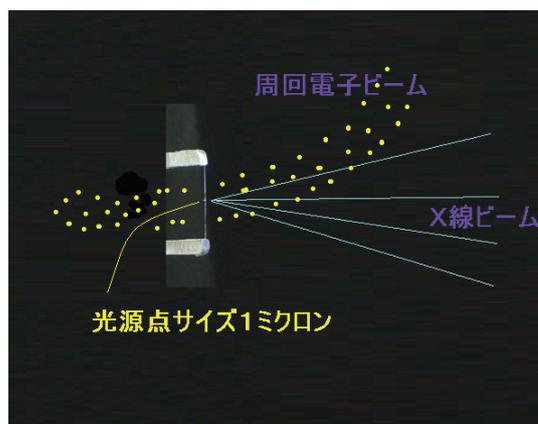


図2 図中のターゲットは実物であり、電子軌道中に挿入したところを模している。X線は、中心にある平行に置いた針のようなターゲットから放出されていることを示している。ターゲットは、Beのワイヤで釣っている。

ターゲットを小さくした場合にX線量が減ると考えるのは誤りである。1回の衝突断面積は小さくなるから、1回の衝突によるX線発生量は小さくなる。しかし、その分周回電子ビームの寿命が長くなるために、積算X線量は変わらないというのが理論である。ターゲットに衝突してエネルギーが減衰するか、もしくは散乱されて中心軌道にもどらなくなるのが原因で電子ビームはなくなるが、ターゲットを挿入しないときの本来の電子ビーム寿命が十分に長ければ、ターゲット断面積をいくら小さくても積算X線量が変わることが無い。そして、この本来の電子ビーム寿命を決めているのは、シンクロトロン性能であり、デザインである。みらくるというシンクロトロンは、実は、他のシンクロトロンとは違う大きな特徴が有る。それは、ダイナミックアパチャーとモーメンタムアパチャーが極めて大きいと言うことである。ダイナミックアパチャーとは、電子ビームの周回が許容される軌道の幅である。みらくるは実に動径方向に156±50mm、高さ方向に±5mmという幅を持っている。モーメンタムアパチャーとは、電子エネルギーのずれの許容幅である。この値が、実に6MeV±2MeVという幅である。いずれも実に大きな値であるために高輝度となる。通常のシンクロトロンにターゲットを挿入してもこのようなX線強度は得られない。とは言え、ターゲット挿入時の電子ビーム寿命はせいぜい10msである(通常のシンクロトロンならばせいぜい10μsである)。これをカバーするのが電子ビームの繰り返し入射機構である。繰り返し入射をしても中心軌道を周回している電子には影響を与えないのが共鳴入射法のもう一つの特徴である。現在は400Hzで入射を行っている。1回の入射で100mAというピーク電流を100nsの間入射出来るために、シンクロトロンの蓄積電流は3Aとなる。大型シンクロトロンでは100mAが通常であるから非常に大きな値である。周回電子数は、10¹¹個というオーダーであるが、周長が短く繰り返し数が3x10⁸Hzと大きいために大電流となる。

表1 みらくるの各種パラメーター(シンクロトロンのマシンパラメーター、ターゲットの種類と形状、相互作用の物理量、蓄積電流値、X線強度の計算例)を示す。詳しくは本文を参照されたい。

Machine parameters							
1) e-Energy [MeV]		6	6	6	6	20	100
2) Orbit radius [m]		0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15
Beam size	3) Horizontal width [m]	1.20E-02	1.20E-02	1.20E-02	1.20E-02	1.20E-02	1.20E-02
	4) Vertical width [m]	1.00E-03	1.00E-03	1.00E-03	1.00E-03	1.00E-03	1.00E-03
	5) Bunch length [m]	9.00E-03	9.00E-03	9.00E-03	9.00E-03	9.00E-03	9.00E-03
	6) Beam area [m ²]	3.77E-05	3.77E-05	3.77E-05	3.77E-05	3.77E-05	3.77E-05
7) Harmonics		8	8	8	8	8	8
8) RF frequency		2.45E+09	2.45E+09	2.45E+09	2.45E+09	2.45E+09	2.45E+09
Target parameters							
9) Target materials and shape		1μmφ C-wire	10μmφ W-wire	27μmφ Pb-rod	1μmφ W-rod	1μmφ W-rod	1μmφ W-rod
10) Target thickness/turn [m]		1.00E-03	1.00E-05	1.00E-04	1.00E-03	5.00E-03	1.00E-02
11) Target width [m]		1.00E-06	1.00E-05	1.00E-05	1.00E-06	1.00E-06	1.00E-06
12) Interaction area [m ²]		1.00E-09	1.00E-08	1.00E-10	1.00E-12	1.00E-12	1.00E-12
13) Target area/Beam area ratio		2.65E-05	2.65E-04	2.65E-06	2.65E-08	2.65E-08	2.65E-08
Circulating beam current							
21) Injection rate [Hz]		400	400	400	400	400	400
22) Injector peak current [A]		0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10
23) Efficiency*Effective pulse width		9.00E-08	9.00E-08	9.00E-08	9.00E-08	9.00E-08	9.00E-08
24) Circulating beam current [C/s]		2.63E+01	3.36E-01	2.10E+00	2.67E+00	2.72E+00	2.75E+00
25) Charge lost by target [C/s]		1.40E-01	2.42E+00	6.61E-01	8.69E-02	4.09E-02	6.14E-03
X-ray brilliance and total flux							
26) Radiation angle(=1/γ) [mrad]		85	85	85	85	25	5
27) Brightness [s,mrad ² ,0.1%band]		3.54E+08	4.49E+09	1.50E+09	1.61E+10	5.62E+11	5.63E+12
28) Brilliance [s,mrad ² ,mm ² ,0.1%band]		3.54E+11	4.49E+11	2.63E+12	2.05E+16	7.16E+17	7.17E+18
29) Total photons [s,0.1%band]		8.06E+12	1.02E+14	3.42E+13	3.67E+14	1.15E+15	4.62E+14

以上の原理を定式化[9]して計算した結果を表1に示す。電子エネルギーが6, 20, 100MeVの場合を計算している。電子エネルギーにより凡そのX線放射角(=0.511/電子エネルギー[MeV])が決まるので表1の26)に与えている。軌道半径は15cmである。電子ビームサイズはシンクロトロン磁石の収束力により決まる量であり、計算で求めることができるが、それは放射減衰をした後の平衡状態の値となる。しかしながら、低エネルギーシンクロトロンの放射減衰時間は非常に長く1分ほどかかる。ところがみらくるからの放射は、入射後数10msの間で起こるので、ここでは、放射減衰する前の値を使用している。Harmonicsとは、周回している電子バンチの数であり、加速周波数で決まる。X線ターゲットはカーボンとタングステンと鉛に付いて計算し、ターゲットの形状は3種類を計算している。10μmφワイヤの場合と、27μmφと1μmφロッドの場合である。ワイヤは電子ビームに直角に置いているが、

ロッドは電子ビームに平行に置いている。従ってロッドの断面が電子ビームの当たる面である。ワイヤの場合は、ワイヤの幅と電子ビームの Vertical width で決まる断面が電子ビームの当たる面である。そのような面積を計算したのが 12)である。13)は、電子ビームが当たるターゲットの断面積を電子ビームの断面積で割った量であるから、一回の衝突で電子ビームがターゲットに当たる割合である。14)から 20)は、相互作用の過程を計算するのに必要な物理量である。制動放射の散乱断面積 16)は古くに知られている[10]。一回の衝突で電子ビームが損失するエネルギー18)は、ターゲットが薄い場合には、5keV から 50keV という値で大きくはない。しかしながら、高エネルギー電子に対しては 1~10mm という厚いターゲットを使用しているの、大きな値となっている。大きすぎる場合には、加速空洞でエネルギーを回復するのが困難である。Beam loss rate には、非弾性散乱である 19) Brems と弾性散乱である 20) Coulomb の2つの過程があり、低エネルギーでは後者が圧倒的な割合であることを注意されたい。弾性散乱はX線を発生しないプロセスである。Beam loss rate は 1 秒間にビームが無くなる割合であるから、この逆数が電子ビームの寿命を与える。6MeV で 10 μ m ϕ W-wire を使うときの寿命が約 0.3ms である。この値は、実験値とほぼ一致している。先に述べたシンクロトロンダイナミックアパチャーとモーメンタムアパチャーにより変わる値であるが、それぞれに 156 \pm 50mm、6MeV \pm 2MeV を入れたときの値である。

Beam loss rate が分かると、平均蓄積電流値または1秒間の積算電流値が分かる。蓄積電流値は、入射した電子が300MHzで周回するときの電流値である。入射器のピーク電流値 100mA が 100nsの間パータベータによってトリガーされて蓄積する。入射効率を90%ととして計算すると、一回の入射で9nCが入るから、300MHzをかけて2.7Aが蓄積された事になる。これは初期電流値であり、これがそれぞれの寿命で減衰するとして積分し、400倍すると、周回平均電流値 24)が得られる。25)は、ターゲットに当たって消失した電荷を積算したものである。

この損失電荷 25)を電子数に直して電子一個当たりの制動放射微分断面積をかけると、単位波長当たり、単位放射角当たりのX線量 Brightness 27)が計算できる。Brilliance 28)はこれをさらに単位ターゲット断面積で割った物となるが、mm²の単位であるから、実際には、大きな値となる。26)、27)に示した値は、30keV X線に対して、波長 0.1%バンド幅で計算したものである。これは、通常の放射光で使われている単位である。10 μ m ϕ の W-rod ターゲットに対して、1 μ m ϕ の W-rod ターゲットの Brilliance が2桁上がるのは、ターゲット断面積が 1/100 になった事による。20MeV 電子シンクロトロンを用いると、7.16E+17の Brilliance が得られる。この値は、大型放射光のアンジュレータで得られる値に近い。高々100MeVのシンクロトロンで7.17E+18の Brilliance が得られると言うのは、驚異的と言って良いのではないだろうか。これは、電子エネルギーが高くなったことにより、放射角が 5mrad と小さくなったためである。我々は、この値が非常に確かであると考えている。それは、6MeV シンクロトロンで実証された事だからである。詳しくは次の章で述べる。Brilliance に対して Total photons は、電子エネルギーによって余り変わらない。これは、放射角で積分した値だからである。6MeV シンクロトロンで 1.0E+14 という光子数は、非常に大きな値である。大型放射光の偏向磁石で得られる Total photons は実は 10⁸ 個のオーダーである。大型放射光は放射角が小さいために光子密度は高いが、それを広げて医療写真で用いる 30x30cm² というイメージを撮ろうと思うと 100 倍の時間がかかることになる。放射光の場合、Brilliance はビーム中心の値であり、はずれた場所で強度は激減する。指向性が高いからである。ところが、みらくるにおける Brilliance は、ビーム中心だけではなく、85mrad という放射角のどこでもその様な値なのだと言うことを注意していただきたい。従って、大口径のX線集光素子を用いると容易に 1000 倍程度光子密度を上げることができる。我々は、現在その様な集光素子を開発中である。

2.3 位相コントラストイメージング

みらくるのX線はイメージングに最適である。①光源点サイズが小さく、②発散角が大きく、③エネルギーが高いために高解像度の非破壊検査や医療診断に適している[12~14]。放射光を用いるイメージングでは、平行性の高いビームにより位相コントラスト像[15]と呼ばれる、従来とは異なる画質の生成が知られているが、みらくるでもやはり、その平行性の高いビームにより位相コントラスト像が生成する。位相コントラストとも屈折コントラストとも言われるが、図3に示すように、密度によるX線屈折率のわずかな差により画像が生成する。X線は1よりわずかに小さな屈折率を持つために、可視光に於ける凸レンズと凹レンズの役割がX線では逆転する。密度の高い部分で発散したX線が密度の低い部分を直進したX線と干渉するために、物体の輪郭が強調されて物体が識別される。以下にみらくるで撮像した幾つかのX線画像を示し、そのイメージング特性を明らかにする。

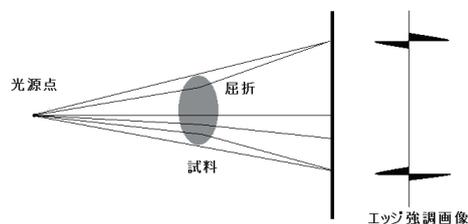


図3 位相コントラスト像の原理図。密度によりX線の屈折が起こるが、屈折率は1よりほんの僅か小さいために、可視光とは逆に、凸レンズが発散を引き起こす。

Samples (material, thickness)			
(a) Pb	0.027mm	(j) SUS	0.4mm
(b) Pb	0.2mm	(k) Al mesh	0.5mm
(c) Pb	0.5mm	(l) Al	1.5mm
(d) Pb	3mm	(m) Acryl	3.0mm
(e) Cu	0.5mm		
(f) Cu	1.5mm		
(g) PTFE	0.5mm		
(h) PTFE	1.0mm		

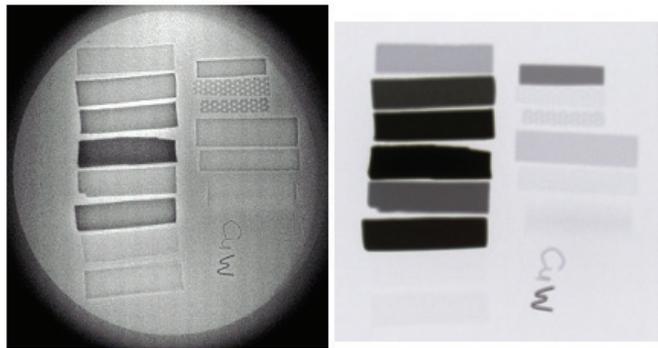


図4 左：撮像した試料の物質と厚さで右の試料の位置に対応している。中：みらくるによる撮像。右：110keV X線管による同じサンプルの撮像。違いは歴然としている。みらくるによるX線写真は、試料に関わらずエッジが強調される。アルミやテフロンなどの軽元素で出来た試料も形が鮮明に見える。X線管では見ることができない。

最初に示す写真(図4)は、みらくるとX線管による撮像の違いを示したものである[13,14]。重元素(Pb)から軽元素(テフロン)にわたり、様々な厚さの材質の資料を撮像している。両者の様子はきわめて異なっている。見慣れたX線管による像は、吸収コントラストであり、鉛は厚さに依らず黒一色に写り、テフロンやアルミは見るのが困難である。一方、みらくるでは全ての資料の形状を見ることができる。鉛もテフロンもアルミもエッジが強調されているために識別されるしエッジがシャープである。銅(Cu)とタングステン(W)のワイヤも、みらくるでは非常にシャープに見える。先に述べた様に、高エネルギーX線による透過像であり、位相コントラストによりエッジが強調されているように見える。但しこれは密着撮像である。通常位相コントラスト像は、資料と撮像素子の間を1m離して撮る。ところが、みらくるの場合にはどのような間隔でもこのようにエッジが強調される。これがみらくるによるX線像の特徴である。新しい質のX線像である。

実際の応用で、アルミとゴムで出来たバルブを撮像すると、アルミの中にあるゴムが識別できる(図5)上段は可視光像である。右はキャップをはずした状態の中にある黄色のゴムが見えている。下段がX線像で、左は生の写真である。右は画像処理している。金属の内部にあるゴムが見えたのは歴史上初めてのことに思われる。撮像にはFUJIIのイメージングプレート(IP)を用いている。



図5 ゲートバルブはアルミ製で、内部に黄色に見えるゴムが入っている。ゴムが直接見える場所でも、アルミに隠れた場所でも、内部にゴムが有るのが確認できる。

2.4 医療イメージングと拡大撮像

図6は、滋賀医大放射線科に提供いただいた人間肺の切片である。気管支はもちろんのこと、血管から毛細血管、腫瘍などがつぶさに見える。これは密着写真である。図7は、人間肺を模擬したファントム(A)の撮像である。肺等価物質の中に各種大きさの癌を模擬したウレタンの破片が肋骨内に封入されている。ウレタンの破片は最大が5mmである。(B)は密着撮影であるが露骨のエッジが強調されていることがわかる。密着でも癌の形状が判別できる。(C)は5倍拡大像であり、(D)は10倍拡大像である。5倍拡大像を引き延ばして、10倍拡大像と比較できるようにしている。10倍拡大像は明らかにその詳細がわかり、構造の凹凸までがわかる。骨の後ろにある癌も

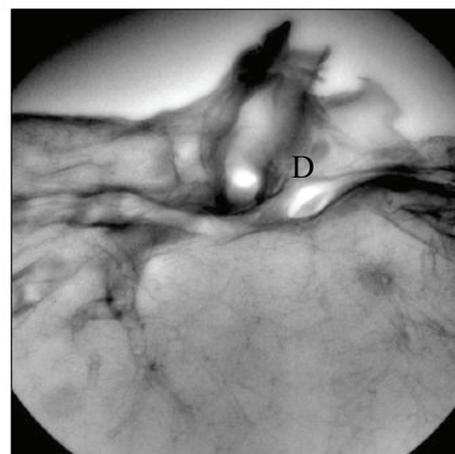


図6 人間の肺(滋賀医大放射線科の提供による)。気管支、毛細血管、腫瘍状の固まり等がつぶさに見える。造影剤は使用していない。

同じように見えている。肺等価物質にむらがあるところまで見えている。癌の形状から癌の種類が診断できれば、生体検査をするという患者の負担が軽減し、診断を迅速に行うことができると期待される。

みらくる 6X は医療診断装置として最適である。レントゲン写真は、軟組織の撮影には、バリウムやヨウ素を注入しなければならない。MRI は、軟組織の撮影に適するが解像度が得られない。**みらくる**は、MRI と CT の特性を備えた理想的な医療診断装置であり、21 世紀の医療診断装置の基本になりうる。医療ミスや、誤診を無くすることに大きな貢献が期待できる。X線撮像による放射線被曝がレントゲン写真に比べて 1/15 に減少することも証明されている[16]。不要な放射線被曝を減少させることは重要な課題である。そしてさらに、適当な時間照射すれば、癌等の放射線治療装置としても使用できることが明らかになっている[17]。6MeV という高エネルギーX線であるから、ライナック治療と同様に使用することができる。即ち、**みらくる**は、癌の診断と治療を同時に行うことの出来る装置であることが明らかとなった。癌の位置をピンポイントで特定して照射をすることにより、癌の放射線治療は新しいステージを迎える。癌をモニターしながら治療ができるために、正常組織への被曝を極力避けることができる。

3. シンクロトロン的小型化

20 世紀の物理学は、加速器を大型化して高エネルギー粒子をつくるのが主な課題であった。そのために大きな国家予算が使われたのであるが、加速器を小型化する研究は特に意図的に行われてこなかった。研究者も加速器の小型化は容易なことであり、特にロマンを感じるものがなかったようである。しかし、電子蓄積リングやシンクロトロン的小型化には大きなブレークスルーが必要であった。それは、電子ビームを入射する技術である。

電子蓄積リングという言葉は筆者はここで初めて使用するが、**みらくる**は厳密には電子蓄積リングである。しかしながら、多くのユーザーはシンクロトロン放射光という言葉に慣れ親しんでいるので、あえてシンクロトロンとしている。シンクロトロンは単発で粒子のエネルギーを加速して利用するか、もしくは電子蓄積リングや放射光リングに入射するための加速装置である。加速をしては電子蓄積リングに入射する装置である。シンクロトロンで加速できる電流値は、ピーク電流値で 1mA 程度であるから、電子蓄積リングに平均数 100mA 蓄積するには、何度も加速・入射を繰り返すのである。そのため入射は 30 分程度かかる。

さて、ビームを入射する作業は、通常どのようにするかと言えば、それは、電車を引き込み線から本線に入れるような作業である。本線のカーブ所にポイントがあり、ポイントを切り替えて電車を本線に入れるが、この電車が周回して再びポイントを通過するときには、ポイントを元に戻しておかなければならない。電車の場合には脱線するが、電子の場合には、中心軌道から離れてビームダクトに激突して消滅する。電子の軌道の切り替えにはパルス電磁石を用いるが、パルスの駆動速度は電子がリングを一周する時間である。電子の速度は光速であるから、1.3km のリングならば、1 マイクロ秒かかる。**みらくる**の周長は 1m であるので必要な時間は 3ns である。必要な磁場は電子エネルギーによるが、例えば 1kG の磁場を 1ns で on/off する技術は現在のところ無い。しかし、我々は、最大 300 ガウスという低いパルス磁場を 400ns の間励磁する。この間の 100ns にポイントに到着した電子は、リングの中心電子

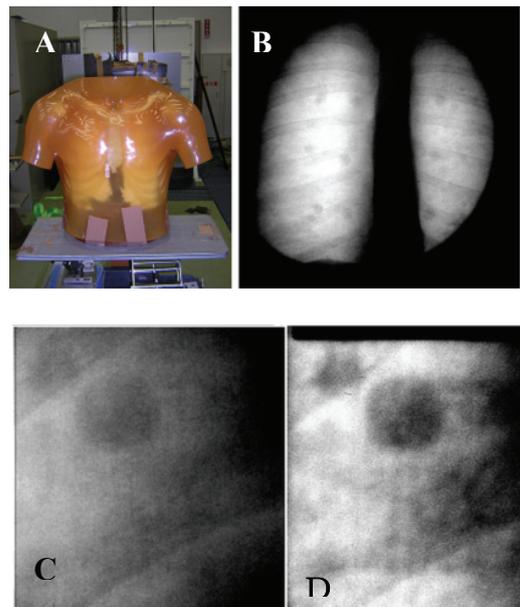


図7 肺ファントムに埋め込まれた腫瘍を模擬したウレタン性の粒の大きさは最大が 5mm (滋賀医大放射線科提供)。Bは密着像、Cは5倍拡大、Dは10倍拡大像である。腫瘍の形状が鮮明に見える。10倍拡大に於いて形状の識別はより鮮明である。

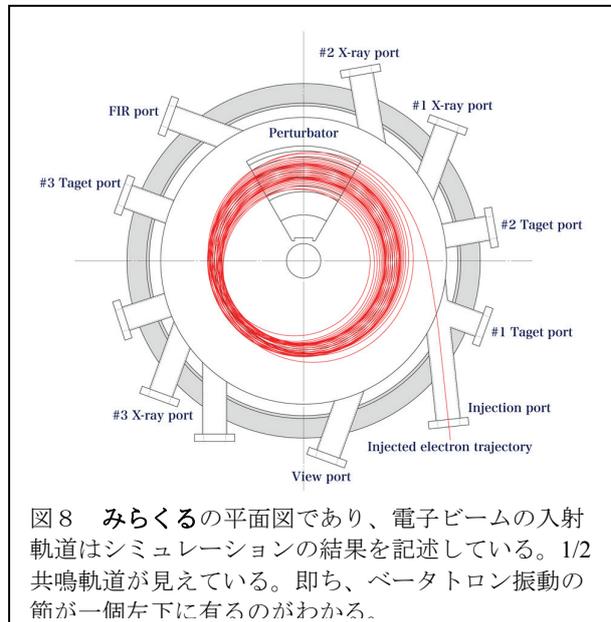


図8 **みらくる**の平面図であり、電子ビームの入射軌道はシミュレーションの結果を記述している。1/2 共鳴軌道が見えている。即ち、ベータトロン振動の節が一個左下に有るのがわかる。

軌道に取り込まれて周回する。この新しい入射技術を共鳴入射法というが、これが無ければシンクロトロンを小型化することはできなかった。

シミュレーションであるが、この入射の様子を図8に示す[6]。加速器の世界では電磁気学にもとづくシミュレーションどおりにマシンを製作できる。だからこそ巨大な加速器を作って成功するという確信が有る。**みらくる**の入射効率はほぼ100%である。100%の意味は、特定のタイミングで100nsの間に来たビームは全て入射出来されるという意味である。この値は、蓄積電流値に直すと、実に1回の入射で3Aという大電流が蓄積することを意味している。軌道長が短く周回繰り返し数が多いためにわずかな電子数で大電流が実現する。寿命が十分長ければ、400Hzで1200Aとなる。これは、トカマク並の電流値である。但し、現在の寿命は、ターゲットを挿入しない時に10ms程度であるから12A程度となる。様々なビーム不安定性が発生して10msというのはかなりの長さである。

放射光並卓上型X線源は、**みらくる**という特別なシンクロトロンを開発したことにより実現できた。ライナックにターゲットを挿入しても 10^{13} というbrillianceは不可能である。**みらくる**は非常に大きなダイナミックアパチャーを持っているのが特徴である。共鳴入射時には、電子ビームは振幅60mmに広がって周回する。150mmの周りに ± 30 mmの幅であるから、実に40%のダイナミックアパチャーを有する。これが、**みらくる**で大強度のX線を発生できる理由である。通常シンクロトロンにターゲットを挿入しても高輝度X線は発生できない。そしてさらに、共鳴入射は、中心電子軌道を動かすことなく入射をさせるために、繰り返し入射が容易なことも大強度X線を発生できる理由である。1kHz以上で運転しても電源に対する付加はそれほど無い。パルス幅が狭いためである。

5. 結論

以上、**みらくる**という名の卓上型高輝度X線源について述べた。ハードX線領域で大型放射光並のBrillianceを出すことができるが、放射光とは異なる特質を持っている。卓上型と言う点で異なるのみならず、X線の特性自体において有る意味で放射光より優れた特性を有している。光源点の大きさが $1\mu\text{m}\phi$ とSpring-8の $20\mu\text{m}\phi$ よりも小さく、従って「平行性」（指向性ではない）が極めて高い。カバーするX線エネルギー領域も広い。放射角が85mradと大きいことは、イメージングの視野が広いという点で優れている。その分Brillianceが低いと思われるかも知れないが、 $1\mu\text{m}\phi$ のターゲットを使用すると、 10^{16} 光子が得られる。しかしBrightnessは低く 10^{10} 光子である。但し、85mradという放射角のどこでもこの値が得られることに注意されたい。放射光の場合は、ビーム中心でのみ高い値となる。従って、1mrad毎に分割すれば、170本のビームラインがとれる。あるいは、集光ミラーを用いれば、容易に1000倍の強度を出すことができると言っても良い。

高輝度X線の特性をターゲットにより様々な変更できるのも**みらくる**の強みである。制動放射であっても、ターゲットの厚さを変えることで有る程度X線エネルギーを選択できる。結晶ターゲットや遷移放射ターゲットを挿入することにより、放射角の小さな干渉性の高い単色光を直接出すことも可能である。結晶ターゲットの角度を変えることにより、エネルギーも可変である。大型放射光装置に多額の国家予算を費やす必要が無くなったと言って良い。高々数億円の予算で大型放射光並の光が得られる。**みらくる**の性能は、入射器のパワーによるから、必要と有ればさらにグレードアップする事が可能である。マイクロトロンとパーターベータ電源のパワーを上げて、入射繰り返し数を上げるだけで簡単に強度を一桁上げることができる。電子エネルギーを高々100MeVにするだけで、 10^{19} Brillianceを享受できる。全国にある既存のライナックに**みらくる**を取り付ければ、何処でも高輝度X線施設が誕生し、タンパク質の構造解析を気軽に行うことができる。放射光ユーザーの数は、すぐに一桁上るのであろう。AURORAで実現できなかった、軟X線リソグラフィーを遷移放射で実現させることも日程に上っている。

みらくる 6Xは稼働して1年満たないが、X線イメージングで画期的な成果を出しつつある。10倍拡大において腫瘍の精密な形状診断が可能になった事である。従来のレントゲン写真は、2倍の拡大でも像はぼけてしまった。10倍の拡大には大きな意義が有る。100ミクロンの解像度を有するX線撮像装置を用いても、10ミクロンの解像ができると言うことである。新しい医療機器の誕生である。我々は、医療コンソーシアムを設立して、この新しい医療機器を世に出したいと考えている。

以上、**みらくる**はミラクルな光源であり、今後さらに様々な価値を付加できると期待している。**みらくる**は(株)光子発生技術研究所から発売している。既に、**みらくる 6X**の2号機を製造しており、軟X線専用マシン**みらくる 20SX**の誕生も間近い。**みらくる**は量産に向けたマシンであり、シンクロトロンが産業利用される時代となった。**みらくる**が学術、医療、産業の様々な分野で利用されることを期待している。

参考文献

1. H. Yamada, Commissioning of AURORA: the smallest synchrotron light source, J. Vac. Sci. Tech. B8(6) pp.1628 (1990)
2. H. Yamada, Present status of AURORA#1-Potential of compact SR-ring as a hard X-ray source, (Synchrotron Radiation Facilities in ASIA, IONICS PUBLISHING)(1994).

3. H. Yamada, The smallest Electron Storage Ring for High Intensity Far-Infrared and Hard X-ray Generation, *Journal of Synchrotron Radiation*, (1998) pp.1326-1331 : 山田廣成、 “卓上型シンクロトロン “みらくる-20” による新しいX線の発生 “、放射光 (解説) 15-2、2002、 pp. 15-27
4. H. Yamada, *Nucl. Instr. and Meth. A* 467-468, (2001) p. 122
5. H. Yamada, Novel X-ray Source based on a tabletop synchrotron and its unique features, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*199、2003 pp.509-516.
6. D. Hasegawa, H. Yamada, A. I. Kleev, N. Toyosugi, T. Hayashi, T. Yamada, I. Tohyama, and Y.-D. Ro, *Int. Sympo. On Portable Synchrotron Light Sources and Advanced Applications*, AIP Conf. Proc. 716, 2004, pp. 116-119
7. H. Yamada, *Int. Sympo. On Portable Synchrotron Light Sources and Advanced Applications*, AIP Conf. Proc. 716, 2004, pp. 12-17
8. T. Takayama, *Nucl. Instrm. and Meth. B* 24-25 (1987) 420.
9. H. Yamada, Super photon generator using collisions of circulating relativistic electrons and wire targets, *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 35 (1996) pp. L182-L185.
10. H. W. Koch and J. W. Motz, *Bremsstrahlung Cross-Section Formulas and Related Data*, *Rev. Mod. Phys.* 31 (1959) pp. 920-955.
11. H. Yamada, H. Saishou, T. Hirai, and J. Hirano, X-ray fluorescent analysis of heavy elements with the portable synchrotron MIRRORCLE, *Spectrochimica Acta B*, in press.
12. 山田廣成、平井暢、園田幸史、鷹繁貴之、牧進也、長谷川大祐、栗林勝、兵藤一行、松本政夫、 “卓上型シンクロトロン “みらく” を用いたX線イメージング “、*日本写真学会誌* 65(7)、2002、 pp.452-458.
13. T. Hirai, H. Yamada, Y. Sonoda, S. Maki, T. Takashige, T. Takashima, D. Hasegawa, N. Toyosugi, “Novel Edge-Enhanced X-ray Imaging by MIRRORCLE”, *Proc. Int. Conf. on Synchrotron Radiation Instrumentation*, San Francisco, 2003, Aug. 24-29.
14. T. Hirai, S. Maki, Y. Sonoda, H. Yamada, M. Sasaki, D. Hasegawa, *Int. Sympo. On Portable Synchrotron Light Sources and Advanced Applications*, AIP Conf. Proc. 716, 2004, pp. 132-134
15. R. Fitzgerald, Phase-Sensitive X-Ray Imaging, *Physics Today*, New York, R. A. Nanna, Vol. 53 No. 7 (2000) pp. 23-26.
16. Y. Suetsugu, H. Yamada, T. Takuya, D. Hasegawa, T. Hirai, and M. Inoue, Problem of Radiation Safety in the Diagnosis using MIRRORCLE, *Int. Sympo. On Portable Synchrotron Light Sources and Advanced Applications*, AIP Conf. Proc. 716, 2004, p. 139
17. T. Tesima, T. Ogata, A. Kawaguchi, Y. Suzumoto, D. Hasegawa, N.M.-Oda, H. Yamada, The biological effects on cancer cells by synchrotron radiation generated from MIRRORCLE-6X, *Int. Sympo. On Portable Synchrotron Light Sources and Advanced Applications*, AIP Conf. Proc. 716, 2004, pp. 73-77
18. T. Hirai, T. Tokunaga, H. Yamada, M. Sasaki, D. Hasegawa, Y. Ogasaka, and H. Yamashita, , *Int. Sympo. On Portable Synchrotron Light Sources and Advanced Applications*, AIP Conf. Proc. 716, 2004, pp. 128-131
19. M. Sasaki, T. Hirai, H. Yamada, Protein crystallography beam line for MIRRORCLE, *Int. Sympo. On Portable Synchrotron Light Sources and Advanced Applications*, AIP Conf. Proc. 716, 2004, p. 141
20. (株) 光子発生技術研究所、Photon Production Laboratory Ltd.: 4-2-1(808) Takagaichominami, Omihachiman-city, SHIGA, 523-0898, Japan. URL: <http://www.photon-production.co.jp>
21. Y. Okazaki, N. Toyosugi, H. Yamada, Y. Narazaki, T. Takashima, S. Imai, “Development of low energy and high brilliance x-ray source using a portable synchrotron MIRRORCLE”, , *Int. Sympo. On Portable Synchrotron Light Sources and Advanced Applications*, AIP Conf. Proc. 716, 2004, p. 124

位相コントラスト技術のデジタル乳房 X 線撮影への応用

コニカミノルタエムジー株式会社・開発センター

本田 凡、大原 弘、石坂 哲、島田 文生

Application of Phase Contrast Imaging to Digital Mammography

*C. Honda, H. Ohara, A. Ishisaka and F. Shimada

Research & Development Center, Konica Minolta M&G Inc.

*e-mail: chika.honda@konicaminolta.jp

1. はじめに

X線吸収の小さい物体の画像コントラストを、X線の屈折で上昇できることを Somenkov らが報告し、さらにその医学利用の有用性を指摘した[1]。Burattini らは放射光単色 X 線を用いた乳房画像撮影を報告し[2]、Fitzgerald は位相イメージングの総説の中で、その乳房撮影での有用性を指摘した[3]。Wilkins らは、微小焦点 X 線管を用いると、多色 X 線でも横方向の可干渉性が高いときに位相イメージングが可能であることを報告した[4]。その考え方を受け Kotre らは乳房 X 線撮影で用いるモリブデン陽極 X 線管を用いて位相イメージングにチャレンジし、横方向の可干渉性を得るために、X 線焦点と物体との距離が通常撮影(≒0.6m)を超す、2m以上離す方法を提案した[5]。また Wu らは、焦点サイズが 25 μm で焦点から被写体までの距離を 0.4~0.6m とする、現実的な撮影距離の乳房 X 線撮影で、位相イメージングが実現できることを理論的考察から提案した[6]。

ここで我々は、干渉性がない X 線を用いることを前提としたアプローチにより、現在乳房 X 線撮影に用いられている 100 μm 焦点のモリブデン陽極 X 線管(Mo 管)で、焦点と被写体距離を従来の乳房撮影程度とした位相イメージングが可能であることを示した[7]。そして、フルフィールドの高画質デジタル乳房 X 線撮影システムを PCM デジタル乳房撮影システムとして実用化した[8]。本報告では、その実用化の考え方と X 線画像の画質向上について概説する。

2. 100 μm 焦点の Mo 管から X 線の可干渉性の考察

横方向の X 線の干渉性について、青木によれば『電子線励起 X 線源のような平面状のインコヒーレント光源の場合、干渉性のある領域は古典的な考え方で定義できる。注目する平面上の 2 点が十分な可干渉性をもつ距離 D は、

$$D = 0.16 \lambda L/r \cdots (1)$$

で表される。ここで L は光源から注目する平面までの距離、r は光源を円形とみなした場合の半径である』と論じている [9]。なお、λ は X 線波長である。

「注目すべき平面上の2点」を検出器の解像力とすると、医療画像診断用のデジタル X 線検出器の画素サイズは例えば $50\mu\text{m}$ である。そこで Mo 管の 17keV の特性 X 線を用いて被写体上で横方向の可干渉性をえるには、X 線管から「注目する平面」までの距離を $L=0.65\text{m}$ とすると円形焦点の半径 $r=0.18\mu\text{m}$ となる。

また、横方向の干渉性はマックス・ボルンとエミル・ウオルフによって、可干渉度 (degree of coherence $|\mu_{12}|: 0 \leq |\mu_{12}| \leq 1$) として定義されている [10]。すなわち 1 が理想的な場合で可干渉度の上限であり、0 は可干渉性がない。例えば 17keV の X 線で、焦点サイズが $100\mu\text{m}$ 、関心領域が $50\mu\text{m}$ 、X 線焦点と関心領域までの距離を 0.65m とすると、可干渉度 $|\mu_{12}| \approx 0$ となる。すなわち、焦点サイズが上記結果の三桁も大きい通常の乳房 X 線撮影系では、X 線の可干渉性を期待することはできないことは自明である。

3. 幾何光学的アプローチ

上述のように一般の乳房 X 線撮影に用いる X 線は可干渉性でない。このことは、幾何光学的取り扱いが可能であることを示唆している。ここで光線追跡法を用いたシミュレーション結果を Fig.1 に示す [11]。焦点サイズ $100\mu\text{m}$ で焦点から物体までの距離 $R1$ を 1m 、物体から像面までの距離 $R2$ を 0.5m の 1.5 倍拡大撮影

で X 線は 20keV としたとき、直径が 1mm のプラスチックファイバーを被写体の、X 線の屈折に起因するエッジ効果のシミュレーション結果である。直線が光線追跡法の結果によるものである (なお、波線はフレネル回折近似によるもの)。このシミュレーション結果が示すところは、まず焦点サイズが $100\mu\text{m}$ でいどの通常の Mo 管を用いても十分に X 線の屈折によるエッジ効果が得られることである。そして上述を繰り返すが、この撮影系では X 線の干渉のエッジ効果への寄与は非常に小さいということである。

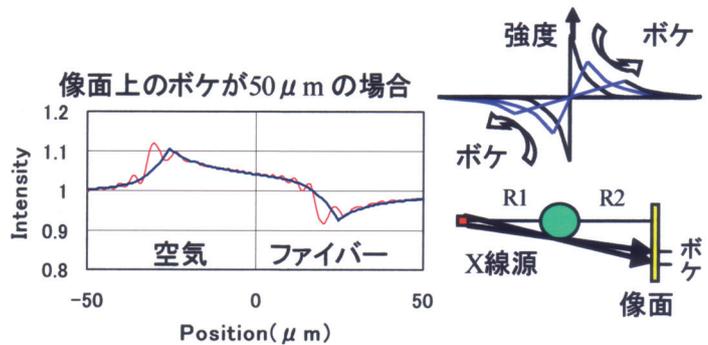


Fig.1 幾何学的不鋭の位相コントラストへの影響

4. デジタル撮影系への適用

多くの位相イメージングの検討には、例えば工業用 X 線フィルムなどが用いられてきた。この場合、空間分解能は $5\mu\text{m}$ 程度もあり 100lines/mm に匹敵する。一方、医療用のデジタル撮影系では、せいぜい空間分解能は $50\mu\text{m}$ である。ここで Fig.2 で示すように、エッジ効果を生ずる位相コントラストの山と谷が同一の画素に存在すると、相殺してエッジ効果は消滅する。一方、像面上でボケが存在すると、その

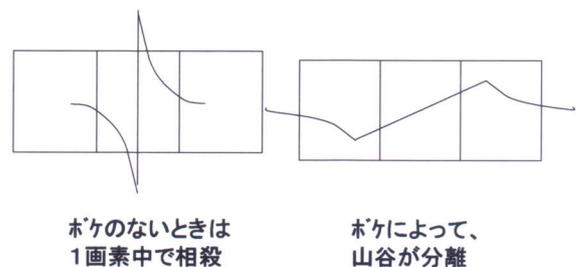


Fig.2 デジタル検出器での位相コントラストの検出

ボケによって山と谷が 1 画素から分離され、むしろ効率的にエッジ効果を捉えることができる [12]。

5. 画質の向上

位相コントラストによるエッジ効果は、例えば銀塩写真感光材料の現像時に発生する「隣接効果」と同様に、画像の鮮鋭度を上昇させる。また、デジタル画像におけるボケマスク処理による画像鮮鋭度の向上も同様の効果である。一方、熱電子管を用いる位相イメージングでは、被写体と画像検出器との間を離すため、拡大撮影になる。幾何学的不鋭が十分に小さくなるような拡大撮影を行うと、いわゆる「リスケイリング効果」によって鮮鋭度は向上する [13]。すなわち、小焦点 X 線管を用いると、位相コントラストによるエッジ効果と拡大撮影によるリスケイリング効果によって、画像の鮮鋭度が大きく向上する。

拡大撮影画像では、密着撮影と比較すると X 線検出器に照射される X 線量が低下するため、X 線量子ノイズの増加で画像の粒状が劣化する。ここでデジタル撮影においては、拡大撮影された画像を「被写体サイズ」にもどす画像縮小処理は容易である。そこで、拡大撮影画像を原寸に縮小することによって、拡大撮影に起因する X 線量子ノイズによる粒状の劣化をとりもどすことができる。このように、位相コントラスト撮影で、拡大撮影の被曝線量を密着撮影と同じにした場合、拡大撮影画像を画像出力で被写体サイズにもどすことで、密着撮影画像と比較して粒状度の劣化を招かず、鮮鋭度を向上することができる。

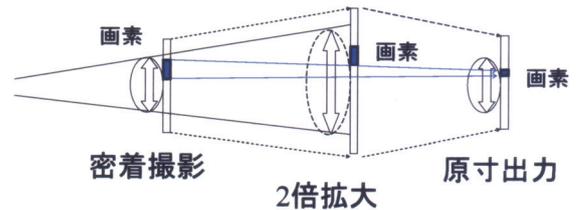


Fig. 3 空間分解能の実質的向上

デジタル撮影においては、撮影システムの画素サイズに依存して空間分解能が決定される。

ここで、位相イメージングは拡大撮影であるため、この空間分解能の制限を拡大率分だけ改善することができる (Fig.3)。

6. 画質向上による診断性の向上

位相コントラスト技術を適用した PCM デジタル乳房撮影システムを開発した (Fig.4)。これは 1.75 倍拡大撮影を行い、コンピューテッド・ラジオグラフィでデジタル画像撮影を行う。このとき、 $43.75 \mu\text{m}$ ピッチで画像読み取りを行い、読み取った画像情報は拡大率分だけ縮小してドライイメージャで $25 \mu\text{m}$ 画素の出力画像をフィルム上に描写する。この出力画像の空間分解能は 20lines/mm で

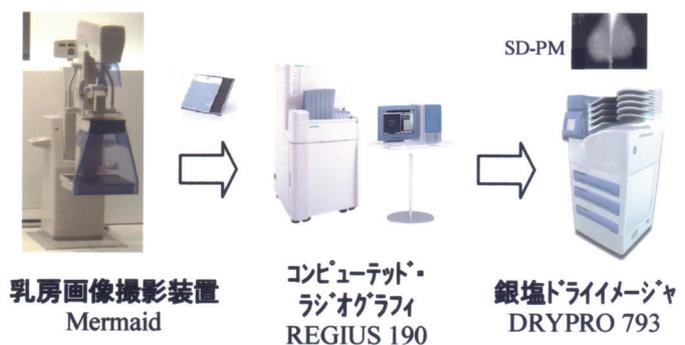


Fig.4 PCMデジタル乳房撮影システム

あって、従来のスクリーン・フィルム乳房撮影と同等である。

このシステムの臨床画像を、従来のスクリーン・フィルム乳房撮影システム画像と比較した。すなわち、まず従来のスクリーン・フィルム乳房撮影を行い、その後に同等の被写体入射線量で本システムの撮影を行った。このようにして、同一患者の本システムとスクリーン・フィルムシステムとの画像を比較検討したところ、本システムの方が微小石灰化および腫瘍像の描写性とも従来のスクリーン・フィルムシステムより良好であるという結果を得た〔14〕。

7. まとめ

(1)干渉性のない X 線を用いた位相イメージングは可能であり、 $100\mu\text{m}$ 焦点のモリブデン陽極 X 線管を用いたデジタル撮影で、エッジ効果による鮮鋭性の向上が得られた。

(2) デジタル位相イメージングにおいて「拡大撮影→縮小実寸出力」によって、粒状性の劣化を招くことなく、鮮鋭度と空間分解能を向上させることができた。

(3) $25\mu\text{m}$ 画素のデジタル出力画像を実現し、SF 乳房撮影システムと同等の 20lines/mm の空間分解能が得られる位相コントラスト撮影システムを開発した。

(4)このデジタル位相イメージング乳房画像撮影システムの臨床画像撮影において、微小石灰化および腫瘍像の描写性は従来の SF 乳房撮影画像を凌ぐ結果を得た。

<謝辞>

本システムの臨床テストを行って頂きました、滋賀医科大学に感謝申し上げます。

参考文献

- 1) V.A.Somenkov *et al.*, Sov. Phys. Tech. Phys., 36(1991)1309.
- 2) E.Bratinni *et al.*, Radiology, 125(1994)239.
- 3) R.Fitzgerald, Physics Today, July(2000)23.
- 4) S.W.Wilkins *et al.*, Nature, 384(1996)335.
- 5) C.J.Kotre *et al.*, Phys. Med. Biol., 44(1999)2853
- 6) X.Wu *et al.*, Med.Phys. 30(8)(2003) 2169.
- 7) 本田凡他、医学物理、22(2002)21.
- 8) T.Gido *et al.*, SPIE Conference on Medical Imaging, 5745(2005)511.
- 9) 青木貞雄、光学、27(1998)273
- 10) M. Born *et al.*, Principles of Optics, 2nd ed. (Macmillan Company, New York, 1964) 491
- 11) A.Ishisaka *et al.*, Optical Review, 7(2000)566.
- 12) H.Ohara *et al.*, Proc. SPIE Conference on Medical Imaging, 4682(2000)616.
- 13) C.C.Shaw *et al.*, *ibid.*, 3977(2000)466.
- 14) T.Tanaka *et al.*, Investigative Radiology, in printing

X線タルボ干渉計による位相イメージング

東京大学新領域創成科学研究科 百生 敦

1 はじめに

近年、X線の位相情報を画像形成に利用する位相イメージング手法の研究が活発になってきている¹。これは、X線の波が物体中を伝播する速さの違い(すなわち位相シフト)を検出するものであり、従来の吸収コントラスト法では難しい軟組織の無造影観察に有効であるという利点がある。ただし、位相情報は単純な強度計測では失われるために、何らかの光学的工夫が必要となる。現在、結晶によるブラッグ回折を用いる光学素子(X線干渉計や角度アナライザなど)を利用する方法や、微小X線源によるフレネル回折を利用する方法が知られている。しかしながら、X線位相イメージングの医療応用は必ずしもスムーズに進んでいるとはいえない。X線源を含めて光学系がどうしても高度なものとなり、十分なスループットを持つ装置化が難しいことがその理由として挙げられる。

我々は、回折格子2枚からなるX線タルボ干渉計による位相イメージング研究を行っている²⁻⁴。比較的簡便な構成による高スループットX線光学系が構築でき、将来的には普及型位相イメージング法として期待できるものである。ここでは、X線タルボ干渉計の原理と、シンクロトロン放射光を用いた位相イメージングおよび位相CTの実施例を示し、今後の展望について議論する。

2 原理

X線タルボ干渉計の動作はタルボ効果⁵に基づく。タルボ効果とは空間的に可干渉な照明下(波長 λ)にある回折格子(周期 d)があると、回折格子から特定の距離(Z_T)において、回折格子のパターンに対応する強度分布(自己像と呼ぶ)が再構成される効果である。 Z_T は

$$Z_T = m \frac{d^2}{\lambda} \quad (1)$$

で与えられ、ここで m は、振幅回折格子の場合整数であり、位相型回折格子では半整数となる。この現象は、回折格子からのフレネル回折の効果、あるいは、回折格子からの複数の回折波による多波干渉として理解される。硬X線領域でもこの効果は確認されている⁶。

回折格子前面に位相物体があるとき、そこでの位相シフト($\Phi(x, y)$)を反映して、自己像が変形する(図1)。この変形量は位相シフトの微分(言い換えれば屈折)に対応したものとなっている。回折格子の周期より十分高い空間分解能の検出器を使えば、自己像の変形から位相シフトの微分の情報を得ることができる。しかし、タルボ効果が発生するためには、その原理から回折格子の周期がX線の空間的可干渉距離より小さいことが要求されている。一般的には数ミクロンが妥当な回折格子周期であり、したがってミクロンオーダーの空間分解能が必要となってしまう。

一方、自己像の位置に第二の回折格子を配置すれば、両者の重ねあわせにより自己像の変形がモアレ縞として可視化される。一般的にモアレ縞間隔は回折格子周期よりも格段に大きいので、検出器に特別高い空間分

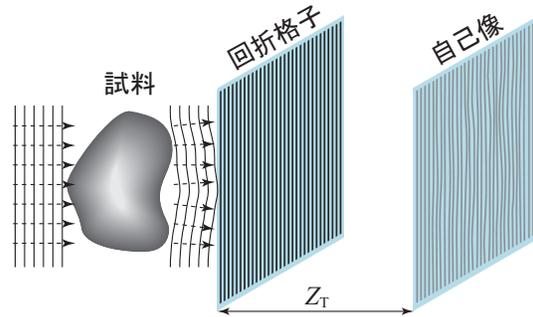


図1: タルボ効果の様子。コヒーレント照射されている透過回折格子の特定距離 Z_T (本文参照)において、回折格子と同じ周期の強度パターン(自己像)が形成される。回折格子に入射する波面が試料による位相シフトなどによって歪んでいると、それを反映して自己像も変形する。

解能を要求しなくても、位相シフト情報によるコントラストが得られることになる。これがタルボ干渉計の原理である^{7,8}。

モアレ画像 $I(x, y, z_T)$ は、屈折による x 軸方向の光の偏向角

$$\varphi_x(x, y) = \frac{\lambda}{2\pi} \frac{\partial \Phi(x, y)}{\partial x} \quad (2)$$

を用いて、

$$I(x, y, z_T) = b_0 c_0 + 2 \sum_{n>0} b_n c_n \cos \left[2\pi \frac{n}{d} \{y\theta + z_T \varphi_x(x, y) + \chi\} \right] \quad (3)$$

で与えられる。ここで、 b_n および c_n はそれぞれ自己像および第二回折格子の強度透過率のフーリエ成分である。回折格子が対称な矩形プロファイルを持てば、モアレ縞のプロファイルは三角波になる。なお、 $\theta \ll 1$ および χ は2枚の回折格子について、それぞれ光軸まわりの回転ずれおよび x 軸方向の並進ずれである。

モアレ図形を記録するだけでも有用な場合はあるが、被写体に関する情報である $\varphi_x(x, y)$ を計測できれば、より広い応用が広がるであろう。この目的には縞走査法が利用できる。すなわち、 M を3以上の整数として、一方の回折格子を x 軸方向に d/M ずつ並進させれば（すなわち (3) 式において $\chi = d/M \lambda$ 、高次の項 ($n \geq 2$) が無視できれば、

$$y\theta + z_T \varphi_x(x, y) = \frac{d}{2\pi} \arg \left[\sum_{k=1}^M I_k(x, y, z_T) \exp \left(-\frac{2\pi i k}{M} \right) \right] \quad (4)$$

から $\varphi_x(x, y)$ が決められる。高次成分は、 M を大きくとればある程度キャンセルされ⁹、 X 線の有限の可干渉性や回折格子の不完全性も結果的に高次項の低減に働く。実際に (4) 式が適用できることは、次節の計測結果において示そう。

$\varphi_x(x, y)$ が計測されれば、それを積分することにより、 $\Phi(x, y)$ が得られる。被写体の屈折率を $1 - \delta$ で与えると、

$$\Phi(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda} \int \delta(x, y, z) dz \quad (5)$$

であるので、被写体を回転させて複数の投影方向で位相シフトを計測すれば、それを通常のとモグラフィのアルゴリズムで処理することにより、 $\delta(x, y, z)$ を再構成することができる（位相CT）。

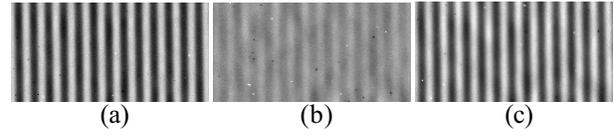


図 2: X線タルボ効果の検証。周期 $8 \mu\text{m}$ の回折格子を波長 0.1 nm のX線で照射し、回折格子から (a) 32 cm、(b) 64 cm、(c) 96 cm 下流で画像を記録した²。

3 位相イメージング結果

まず、SPring-8, BL20XU にてX線のタルボ効果を確認した結果²を示す。周期 $8 \mu\text{m}$ の回折格子に波長 0.1 nm のX線を照射し、回折格子からの距離を変えながら画像を記録した。ここで、回折格子は 0.15 mm のガラス基板上にUVリソグラフィにより金のストライプパターンを形成したものである。金の厚さは約 $1.25 \mu\text{m}$ とした。これは、位相シフトが $\pi/2$ になるように選んだ値であり、自己像のコントラストが最も大きくなる厚さである。画像検出器には、X線を蛍光スクリーンで可視光に変換し、それをCCD上に結像させるタイプのものを用いた。実効的な画素サイズは $0.54 \mu\text{m}$ である。図2にX線タルボ効果を検証した画像を示す。回折格子からの距離が (1) 式を満たす 32 cm および 96 cm でコントラストが増加しており、X線タルボ効果が確認された。

次に、X線タルボ干渉計を構成した。第二の回折格子は、金の厚さが約 $8 \mu\text{m}$ であること以外は第一回折格子と同じである。厚さ $8 \mu\text{m}$ は振幅型回折格子とするには不十分であるが、UVリソグラフィで製作可能な限界値であった。それでもある程度のモアレ縞可視度が達成できるはずであるので、これを用いて実験を行った。図2と同じく、波長 0.1 nm のX線を用いて、プラスチック球（水中）を観察した結果を図3に示した。回折格子間隔は 32 cm とした。

図3(a) はモアレ画像であり、回折格子を約 2 度傾けたために、背景にもモアレ縞が現れている。プラスチック球による屈折のためにモアレ縞が曲がっていることがわかる。球の内部の気泡も捉えられている。なお、画像上部の黒い影はプラスチック球を取り付けたステンレス棒である。

モアレ縞のプロファイルは正弦波に近いものであった（僅かに3次成分が検出された）。図3(b)には縞走査法で得た位相微分像を示した。縞走査のステップ数

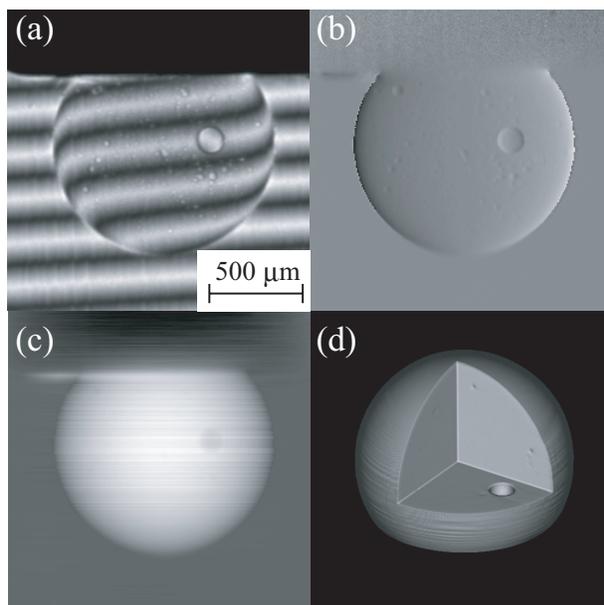


図 3: X線タルボ干渉計によるプラスチック球の観察例³。(a) モアレ画像、(b) 位相微分像、(c) 位相シフト像、(d) 位相CT像。

は5とした。すなわち、一方の回折格子を $1.6 \mu\text{m}$ ずつ x 軸方向にシフトさせ、得られた5枚の画像から(4)式を用いて計算した。なお、 $\arg[\]$ には逆正接演算が含まれるので、図3(b)を得るために更にアンラップ処理を施した。

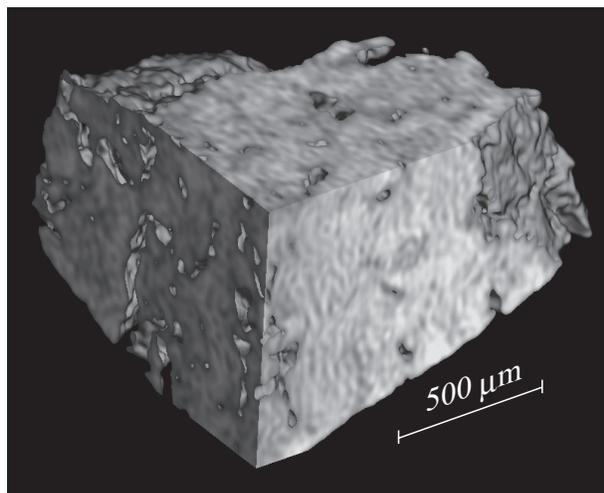


図 4: X線タルボ干渉計によるウサギ腎臓組織の観察例⁴。

図3(c)は図3(b)を積分して得た。被写体周辺を零になるように積分定数を定めた。プラスチック球を y 軸に沿った回転軸周りに 0.72 度ずつ回転し、この計測を250回行った。これをコンポリューション逆投影法により像再生したのが図3(d)である。

図4には生体組織としてラットの腎臓を観察した結果を示した。尿管など、管構造が描出できている。

4 今後の展望

X線タルボ干渉計による位相イメージングの利点をまとめると、下記ようになる。

- ・結晶光学素子を使わないので、広いバンド幅のX線でも機能する。 $\Delta E/E < 0.1$ であれば、自己像が平均化されて消滅することはない。したがって、ハイスループットの光学系が構成できる。
- ・結晶光学素子を使わないので、コーンビームに使用できる。これもハイスループット光学系の構成に有効であり、大視野形成にも有利である。
- ・原理的に100%のコントラストを生成できる。
- ・振動などの擾乱に強い。
- ・モアレ縞検出により、適度な分解能の検出器を採用できる(自己像を解像するだけの空間分解能は必ずしも必要ない)。
- ・位相CTによる三次元観察も可能。

したがって、必ずしもシンクロトロン放射光を必要とせず、コンパクトなX線源との組み合わせにより、実用的なX線位相イメージング装置としての発展が今後期待される。ただし、通常のX線源では、X線発生領域が大きく、空間的干渉性が乏しいために、そのままではX線タルボ干渉計と組み合わせることは難しい。新規なコンパクトX線源の開発が求められる。

また、X線回折格子の製作が別の課題として挙げられる。X線タルボ干渉計の原理上、第二回折格子は振幅型でなくてはならない。しかし、これは回折格子のパターン厚が極めて大きいことを要求し、結局非常に高いアスペクト比の構造を製作せねばならないことになる。特に医用画像などの応用を意識すると、図3,4で使ったX線エネルギーよりも大幅に高いエネルギーのX線を使う必要がある。例えば、波長 0.04 nm のX線では、比較的吸収係数が高く微細加工に適してい

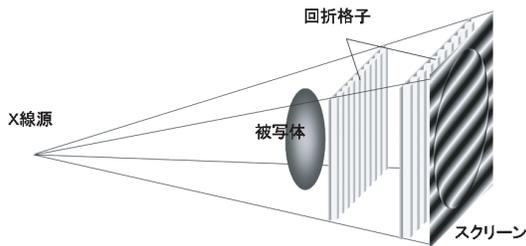


図 5: コーンビーム X 線を用いる場合の X 線タルボ干渉計の構成。

る金を材料に考えた場合でも、透過率を 20% に抑えるためには、約 $35 \mu\text{m}$ の厚さが必要となる。一方、回折格子の周期は干渉距離に同等かそれより小さいことが望ましいので、回折格子パターンのアスペクト比は 10 に近くなる。このような構造の製作は、UV リソグラフィでは達成が極めて難しく、我々は L I G A プロセスの適用を開始した。L I G A は X 線リソグラフィをベースにしているので、高アスペクト比の構造形成には有効である。レジストに所望のパターンを形成し、その隙間に金を鍍金成長させて回折格子が形成できる。現在、周期 $8 \mu\text{m}$ で高さ $20 \sim 30 \mu\text{m}$ の金回折格子の試作に成功している¹⁰。

X 線タルボ干渉計をコーンビーム X 線を用いて構成する場合、図 5 の構成が考えられよう。回折格子の周期は X 線の角度広がりに応じて下流側を大きく作る。X 線画像検出器と回折格子とを一体と考えて、あらためてそれを位相敏感 X 線画像検出器として捉えれば、従来と同じ X 線撮像構成であることに気づく。

今後、より品質の高い回折格子（有効領域目標：100 mm 角以上）を試作し、実験室 X 線源を用いた位相イメージング装置の開発を計画している。

5 まとめ

X 線タルボ干渉計を初めて構築し、それを用いて新規な X 線位相イメージングおよび位相 CT を行った。回折格子を用いているために、振動に強く、明るい光学系が構築できる。バンド幅の広いコーンビームに対しても機能するので、シンクロトロン放射光以外のコンパクトな X 線源を用いた装置化が期待される。高アスペクト比の回折格子の製作が課題であるが、L I G A プロセスを適用している。

謝辞

シンクロトロン放射光による実験は、SPring-8 利用研究課題 2004A0537-NM-np により行い、(財)高輝度光科学研究センターの鈴木芳生博士に技術的サポートを賜った。また、図 4 の試料は、筑波大学の武田徹、呉勁両博士の提供による。本研究は、現在、科学技術振興機構、先端計測分析技術・機器開発事業の課題「X 線位相情報による高感度医用撮像技術の開発」により推進しており、L I G A による回折格子の試作は、兵庫県立大の服部教授により行われている。

参考文献

- [1] A. Momose, *Jpn. J. Appl. Phys.*, in press.
- [2] A. Momose, S. Kawamoto, I. Koyama, Y. Hamaishi, K. Takai, and Y. Suzuki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **42** (2003) L866.
- [3] A. Momose, I. Koyama, Y. Hamaishi, S. Kawamoto, K. Takai, K. Uesughi, and Y. Suzuki, *AIP Proc.* Vol. 705 (2004) 1259.
- [4] A. Momose, S. Kawamoto, I. Koyama, and Y. Suzuki, *SPIE Proc.* Vol. 5535 (2004) 352.
- [5] H. Talbot, *Philos. Mag.* **9** (1836) 401.
- [6] P. Cloetens, J. P. Guigay, C. De Martino, and J. Baruchel, *Opt. Lett.* **22** (1997) 1059.
- [7] S. Yokozeki and T. Suzuki, *Appl. Opt.* **10** (1971) 1575.
- [8] A. W. Lohmann and D. E. Silva, *Opt. Commun.* **2** (1971) 413.
- [9] K. A. Stetson and W. R. Brohinsky, *Appl. Opt.* **24** (1985) 3631.
- [10] 瀧口欣司、松本昌岳、杉山嘉也、村越庸一、前田龍太郎、百生敦、服部正、2005 年度精密工学会春季大会学術講演会講演論文集 pp. 91-92.

屈折プリズムを用いた X 線二光束ホログラフィの開発

竹内晃久、鈴木芳生

JASRI / SPring-8

ホログラフィによるイメージング法が Gabor によって提案されて以来、可視光領域においてはレーザーの発明もあいまって、広くこの手法は利用されるようになった。X 線領域に於いても、Gabor の in-line 型光学系が早くから試されてきた。しかしながら、この手法は、実像と共役像が重なり合う、いわゆる “twin-image” という問題がある。この問題を解決するには、参照波を光軸（物体波）から傾けて照射すればよい。こうすることによって、実像と共役像が分離できることが Leith と Upatnieks によって示された。

現在、X 線領域でも幾つかの干渉計が考案されている。代表的なものとして、結晶光学を利用した Bonse-Hart 型がある。¹⁾ 振幅分割型であるこの手法は、ビームのコヒーレンスを必要とせず、X 線領域では最も優れた干渉計の一つといえる。しかしながら、用いる結晶のアクセプタンスが非常に小さく、広角に広がる物体波を透過しない。そのため、顕微鏡的目的やホログラフィへの適用には適していない。一方、Lloyd ミラー²⁾や Fresnel バイプリズム³⁾といった波面分割型の光学系は、X 線領域においても早くから試されてきた。しかしこれらの実験は、当時まだ十分なコヒーレンスが得られる X 線源が無かった事から、2、3本の干渉縞が見えただけに留まった。上記理由で、波面分割型は、つい最近まで X 線干渉計としては実用的な方法とはいえなかった。

近年、第三世代放射光光源の出現により、X 線領域でも高い空間コヒーレンスが容易に得られるようになった。これを利用して、我々は、SPring-8 アンジュレータ光源を利用した屈折プリズムによる Fresnel バイプリズム型 X 線干渉計、または Leith-Upatnieks 型ホログラフィの開発を行っている。^{4,5)} 準平行光のコヒーレントな X 線の一部がプリズムにより曲げられ、像面においてダイレクト光と重なり合う。硬 X 線領域における物体の屈折率は 1 に極めて近いが、プリズムの表面を全反射条件に近い視射角に設定すると、大体 100 μ rad のビーム偏向角が容易に得られる。SPring-8 のビームラインで得られるコヒーレント領域が数百ミクロン程度であることを考えると、像面をプリズムから数m後方に置けば、十分な視野を確保できる。ホログラフィのセットアップとしては、フレネルホログラム、フーリエ変換ホログラム、イメージホログラムの 3 通りに大きく分類されるが、ここでは特にフレネルホログラムの実験について述べる。まず、放射光から得られる準平行光を利用した平面波による二光束ホログラフィを、ついで、フレネルゾーンプレート(Fresnel zone plate, FZP)を使った集光ビームによる球面波二光束ホログラフィを紹介する。更なる詳細については文献 6)に、また、イメージホログラムの手法については本プロシーディングス内で鈴木芳生氏により紹介されているので参照されたい。

【平面波-平面波ホログラフィ】

実験セットアップを図 1 に示す。実験は SPring-8 中尺ビームライン BL20XU で行った。X 線波長は 1 Å。開口幅約 20 μ m \times 20 μ m の仮想光源スリットを用いている。仮想光源から実験ハッチまでの距離 a は $a = 195$ m。プリズムはアクリル樹脂製で、プリズムの頂角は 90 度である。プリズムの視射角 θ 、

ビームの偏向角 $\Delta\theta$ が共に1に対して充分小さいとき、これら2つは、

$$\Delta\theta \sim \delta / \theta \quad (1)$$

という関係が成り立つ。ここで δ は屈折率 n に対して $n = 1 - \delta$ として表される量である。ここでは、プリズム視射角 θ は2 deg (34.9 mrad)、アクリル樹脂に対する δ を $\delta = 1.62 \times 10^{-6}$ とすると、 $\Delta\theta$ は約46.4 μ radである。サンプル-像面間距離 b は $b = 6.247$ mで、プリズム-サンプル間距離は0.23 m。ホログラムは、浜松ホトニクス社製ズームング管を使用した。この検出器の空間分解能は0.7 μ mである。⁷⁾ サンプル

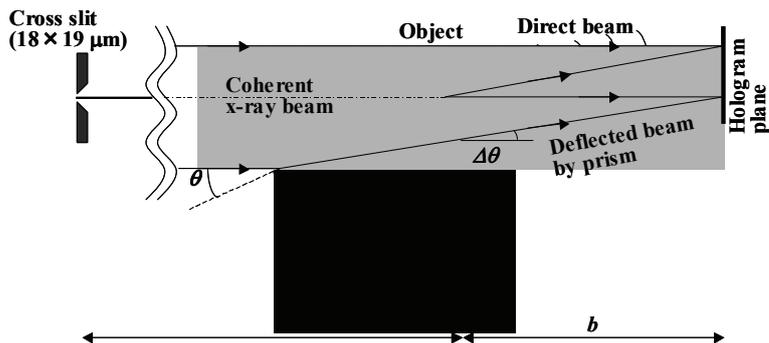


図1 平面波-平面波ホログラフィの実験セットアップ。

$a = 195$ m, $b = 6.247$ m, $\theta = 2$ deg, $\Delta\theta = 46.4$ μ rad.

に分解能評価用 Ta 製テストパターンを用いたときの、このセットアップで得られたホログラムを図2(a)に示す。ホログラムのピクセルサイズは0.3 μ m、視野は300 μ mである。一部拡大したものを右側に示す。2つの波面の干渉によるキャリアフリンジが確認できる。このフリンジのピッチ d は約2 μ mであった。このホログラムを計算機上で再構成したものが図2(b)である。中心のゼロ次光を挟んでプラス1次による実像(図中右下)とマイナス1次による共役像(図中左上)が分離して再構成されていることが分かる。

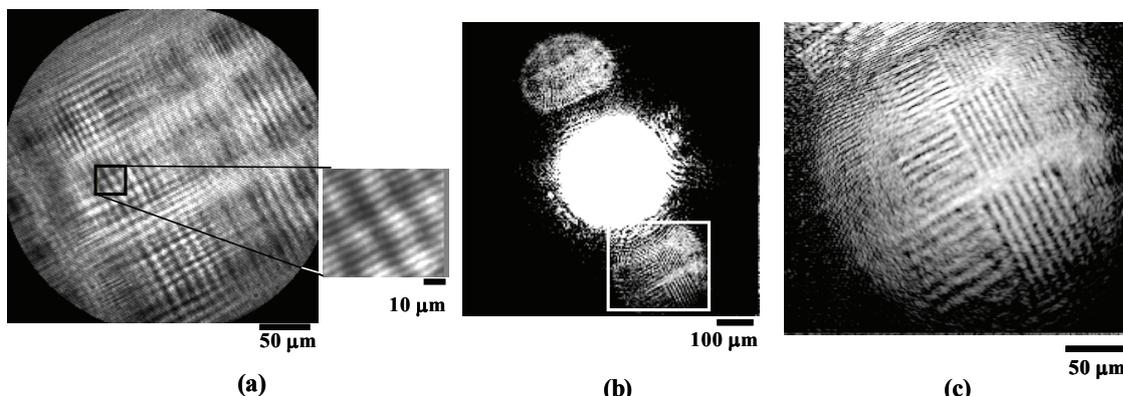


図2 平面波-平面波ホログラフィで得られた Ta テストパターンのデータ。(a) ホログラム、(b) 再構成像(図中中心がダイレクト、右下が実像、左上が共役像)、(c) 図2(b)の一部(実像)。ピクセルサイズ0.3 μ m、視野300 μ m、露光時間5分

ここで、この光学系の空間分解能について考える。二光束ホログラフィの、ビームが偏向される方向の回折限界は、コヒーレンス、検出器の視野が充分大きいとすると、

$$\text{回折限界} = \frac{\lambda}{\Delta\theta} \quad (2)$$

で表される。式(2)は、式(1)の関係を用いて $\Delta\theta$ を適当に変えることによって、回折限界を小さくできることを意味する。一方で、検出器分解能は、ホログラム面上に生成されるフリンジピッチ d よりも小さくなければならない。この関係は、

$$\text{検出器分解能} < d = \frac{a+b}{a} \frac{\lambda}{\Delta\theta} \quad (3)$$

と表される（ここで、プリズム-検出器間距離を、サンプル-検出器間距離と同じ b とした。通常、物体波と参照波の断面積をできるだけ大きくしようとすると、プリズム-サンプル間距離は、 a, b に対して非常に小さくなるのでこの近似は適当である）。式(3)は、系の分解能が検出器分解能によって制限を受けることを意味する。本光学系のような平面波照明の場合、 $a \gg b$ という関係が成り立つので、式(2)、(3)から、[検出器分解能] < [回折限界] となり、系の空間分解能は結局検出器分解能によって決まることになる。このセットアップでは、回折限界（～ 干渉縞ピッチ d ）は、約 $2 \mu\text{m}$ である。これを実験データと比較してみる。再構成像図 2 (b) の実像を拡大したのが図 2 (c) である。再構成像から、約 $5 \mu\text{m}$ ピッチのパターンまで解像されていることが分かる。また、別のパターンの像から、ピッチ $1 \mu\text{m}$ のパターンは解像できていなかった。これらのことから、この系の空間分解能は $1 \sim 5 \mu\text{m}$ の間であったと言える。

【球面波-球面波ホログラフィ】

式(3)において、 $a < b$ となるような条件下だと、フリッジピッチ d は回折限界よりも $(a+b)/a$ だけ大きくなるので、その分検出器分解能の条件は緩和される。球面波を使った光学系は、このように検出器分解能の制約を受けなくなる分、更なる高分解能を期待できる。球面波-球面波ホログラフィの実験セットアップを図 3 に示す。微小点光源を作るために X 線集光素子である

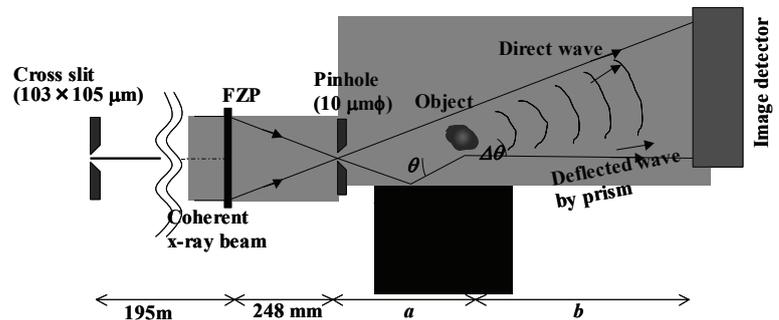


図 3 球面波-球面波ホログラフィの実験セットアップ。

$$a = 0.728 \text{ m}, b = 5.273 \text{ m}, \theta = 1 \text{ deg}, \Delta\theta = 92.8 \mu\text{rad}.$$

FZP (NTT-AT 製) を用いた。この FZP は Ta 製、厚さ $1 \mu\text{m}$ 、直径 $100 \mu\text{m}$ で、半値幅 $0.25 \mu\text{m}$ のスポットを生成できる。⁸⁾ このスポットを光源として、光源-サンプル間距離 $a = 0.728 \text{ m}$ 、サンプル-検出器間距離 $b = 5.273 \text{ m}$ でそれぞれが配置されている。よって $(a+b)/a = 8.24$ となり、式(3)から、キャリアフリッジピッチはホログラム面上で 8.24 倍拡大されることになる。FZP より 195 m 上流の仮想光源スリットの開口幅は $100 \times 100 \mu\text{m}$ とした。プリズムの視射角 $\theta = 1 \text{ deg}$ (17.4 mrad)、ビームの偏向角 $\Delta\theta = 92.8 \mu\text{rad}$ とした。ホログラム面上でのピクセルサイズ $0.8 \mu\text{m}$ 、ホログラムの視野は $800 \mu\text{m}$ 。その他のパラメータは平面波-平面波セットアップと同じである。この光学系で得られたホログラムを図 4 (a) に示す。サンプルは Ta 製テストパターン (図 2 に示したものは別のパターン) である。ホログラム面上に見られるキャリアフリッジのピッチは約 $8 \mu\text{m}$ であった。図 4 (b) はホログラムから計算機再構成で得られた再構成像の実像部分である。比較のために、図 4 (c) に、同じサンプルを平面波-平面波セットアップで測定したときの再構成像を示す (白枠内が図 4 (b) と同じ部分に相当)。両者を比べると、明らかに球面波-球面波セットアップにより空間分解能が向上したことが分かる。図 4 (b) から、ピッチ約 $1 \mu\text{m}$ まで解像できていることが分かる。式(2)から、この系の空間分解能は約 $0.8 \mu\text{m}$ であり、実験データとほぼ一致している。

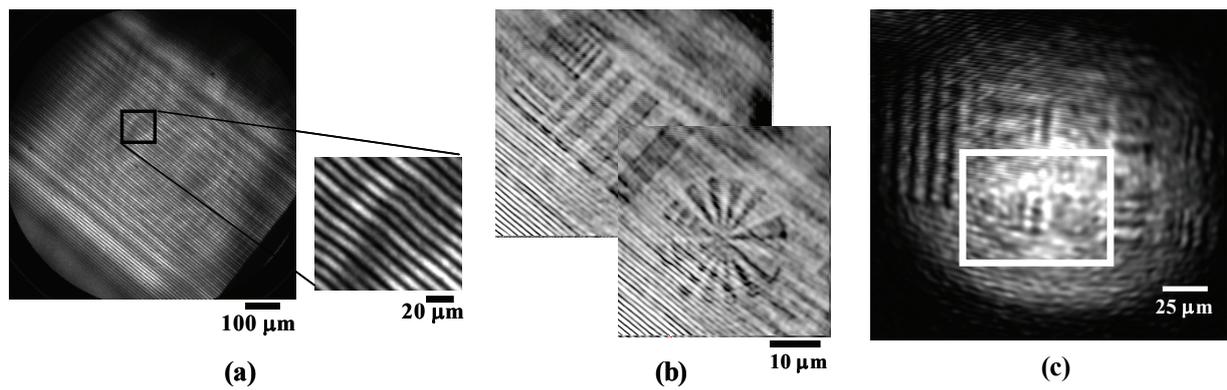


図 4 球面波-球面波ホログラフィで得られた Ta テストパターンのデータ。(a) ホログラム、(b) 再構成像 (実像のみ、二つのデータを繋げて表示している)、(c) 同じパターンを平面波-平面波ホログラフィで測定したもの (白枠内)。ピクセルサイズ $0.8 \mu\text{m}$ 、視野 $800 \mu\text{m}$ 、露光時間 10 分

1. U. Bonse and M. Hart: Appl. Phys. Lett. **6** (1965) 155.
2. W. Linnik: Naturwiss. **18** (1930) 354.
3. A. R. Lang and A. P. W. Makepeace: J. Synchrotron Rad. **6** (1999) 59.
4. Y. Suzuki: Jpn. J. Appl. Phys. **41** (2002) 1019.
5. Y. Suzuki: AIP Conf. Proc. **705** (2003) 724.
6. A. Takeuchi, and Y. Suzuki, to be published in Jpn. J. Appl. Phys. 44 (2005).
7. H. Takano, Y. Suzuki, K. Uesugi, A. Takeuchi, and N. Yagi: Proc. SPIE, **4499** (2001) 126.
8. Y. Suzuki, A. Takeuchi, H. Takano, T. Ohigashi, and H. Takenaka: Jpn. J. Appl. Phys. **40** (2001) 1508.

プリズムとゾーンプレートを用いたX線結像ホログラフィー

鈴木芳生、竹内晃久

JASRI/SPring-8

波面計測の代表的な手法はホログラフィーである。硬X線領域のホログラフィーに関しては、SPring-8の高輝度アンジュレタ放射と長尺ビームライン（1 kmあるいは250 m）の稼働により、広い空間的コヒーレント領域で十分な強度のX線が得られるようになり、新しい展開が始まった。¹⁻⁴⁾ ひとつの例として、屈折プリズムによる二光束干渉計を用いたホログラフィーがある。これは図1に示すように、非常に単純かつ古典的な光学系である。干渉計そのものはフレネルのバイプリズムとして知られているものと同一であり、ホログラフィーとしてはLeithとUpatnieksが1962年に発表したレーザーホログラフィー⁵⁾ とまったく同じものである。図2に波長1 Åで記録したテスト試料のホログラムと再生像の例を示す。

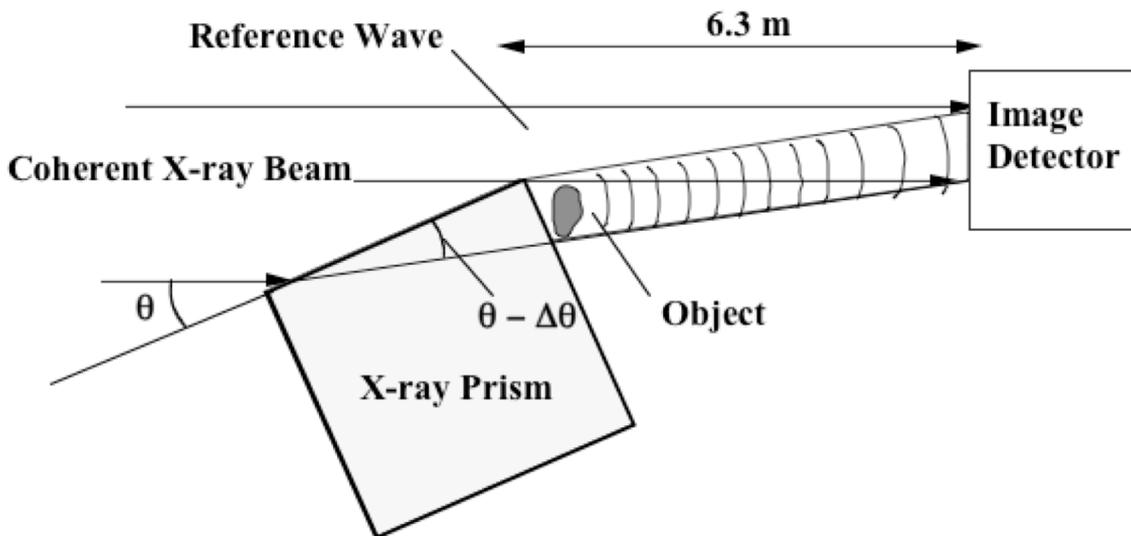


図1. プリズムを用いた2ビームX線ホログラフィーの光学系

しかしながらこの形式のホログラフィーでは、再生像の空間分解能が原理的に記録媒体の解像度で制限されている。図2の例では高解像度X線検出器である浜松ホトニクスของズームング管を用いているが、それでも空間分解能は $0.7 \mu\text{m}$ 程度である。レーザーホログラフィーでは一般に銀塩フィルムが記録媒体として使われる。高解像度写真フィルムは $0.5 \mu\text{m}$ 程度の解像度があり、可視光光学系の理論限界分解能と同程度である。そのためレーザーホログラフィーに対して写真フィルムは十分な解像度を持っていることになる。もしX線用のフィルムが十分な解像度を有すると仮定すれば、そのホログラムをレーザー光で再生することによって波長比に相当する倍率が得られることから、高分解能X線ホログラフィーが可能になるように思えるが、実際には球面収差の問題や可視光それ自体の回折限界の問題があるため、この方法で光学顕微鏡を超える解像度のホログラフィーは不可能である。

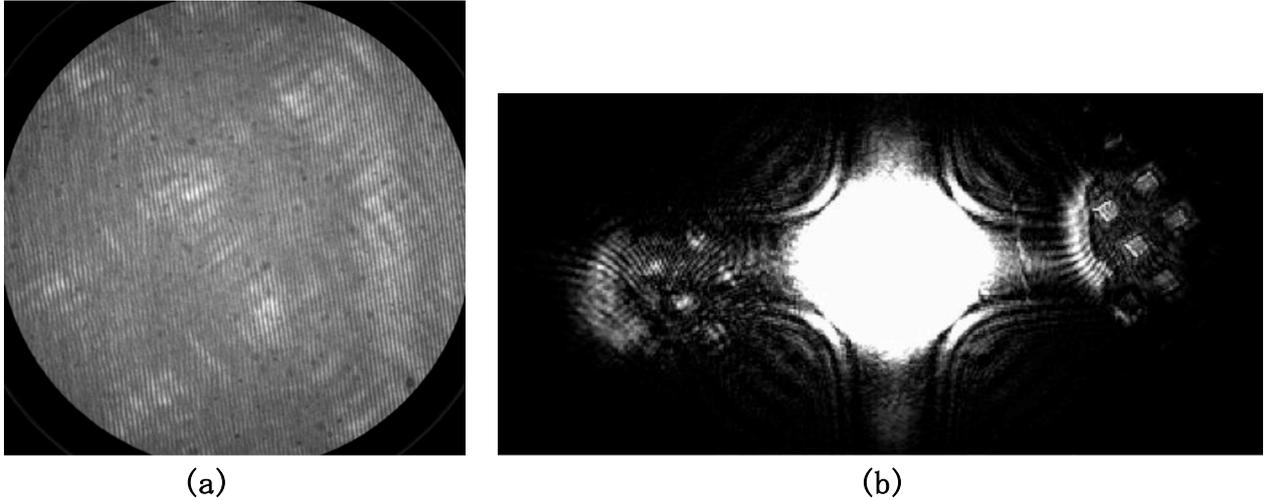


図2. プリズムを用いたX線ホログラフイーの実験結果の一例
 (a) ホログラム。試料：銅メッシュ（400ライン/インチ、 $64\mu\text{m}$ 周期）。X線波長 1Å 。プリズムの視射角約2度、ビーム偏向角 $50\mu\text{rad}$ 、干渉縞ピッチ $2\mu\text{m}$ の条件。検出器はX線ズームング管。電子光学系の倍率120、リレーレンズ倍率1/2。CCDは浜松ホトニクスC48880-10-14A（ 1000×1018 画素、画素サイズ $12\mu\text{m}$ ）を用い、像面での画素サイズが $0.2\mu\text{m}$ の条件で撮影されている。露光時間は5分。
 (b) 数値再生による再生像。図右側が実像。図左に現れているのは共役像であり、こちらには焦点が合っていない。

光学顕微鏡を超える分解能の二光束X線ホログラフイーを実現する方法としては、

- (1) 高分解能記録媒体（たとえばX線リソグラフィ用レジスト）でホログラムを記録し、電子顕微鏡やSTM等の高分解能顕微鏡を用いてホログラムを読み出して再生する
 - (2) 参照波を微小点光源からの球面波としてホログラムを記録する。この場合、参照波光源が試料の比較的近傍にあるときは、分解能は参照波光源の大きさによって決められる
 - (3) X線ホログラムの干渉縞をX線光学系で拡大して記録する。この場合、分解能は最初のホログラムの場所での干渉縞周期とX線拡大結像光学系の性能で決められる。
 - (4) 物体波と参照波を同一のX線結像光学系で拡大結像してから、参照波と物体波を重畳させる。この場合も分解能はX線結像光学系の性能で決められる。
- といった方法が考えられる。

今まで硬X線領域では適当な結像光学系が無かったため、X線ホログラフイーとしてはレンズを使わない形式、いわゆる Lensless Fourier 変換ホログラフイー、が望ましい姿と考えられていた。しかしながら、近年硬X線領域の結像光学系の技術が格段に進歩し、フレネルゾーンプレートで 50nm 程度の分解能が可能になってきており、⁶⁾ X線結像光学系を用いたホログラフイーを考えることに意味があるようになってきた。

ここでは(4)の方法で高分解能X線ホログラフイーを実現する手法（X線結像ホログラフイー顕微鏡）について述べる。この方法はイメージホログラムとも呼ばれ、実は電子線ホログラフイーの分野では以前から使われている方法である。電子線ホログラフイー顕微鏡は、コヒーレント電子銃に電磁レンズと電子線バイプリズムを組み合わせることにより実現されている。X線領域でも同種の光学系が同一平面上に軸ずらしで配置した二つのゾーンプレートを使って実現できることが既に示されている。⁷⁾ なお、(2)の方法に関しては本プロシーディングスにおける竹内氏の論文を参照されたい。また、(3)の干

渉縞を拡大結像する方法に関しては別に文献に報告してある。8)

図3に結像ホログラフィーの光学系の概念を示す。コヒーレント平行光で物体を照明すると共に、対物レンズの片側半分は物体の無い部分を通る参照波を受ける。プリズムは対物レンズの後焦点面と像面の間に置かれ、波面分割干渉計を形成する。この結像ホログラフィーではレンズの焦点距離に対する像面-レンズ距離と後焦点面-プリズム間を選ぶことにより、結像倍率と干渉縞倍率（干渉縞の間隔）を任意に決められる自由度がある。図4に銅メッシュ（#2000）をテスト試料として観察した例を示す。実験はSPRING-8 BL20XUで行った。X線波長は1 Åである。結像光学系としては電子線リソグラフィの方法で作成した最外線幅 100nm、波長1 Åでの焦点距離 155 mm のFZP（NTT-AT社製）を用いた。プリズム頂角は90度、材質はアクリル樹脂である。図4aが通常の明視野像であり、それに参照波を重畳させたホログラムを図4bに示す。試料による位相シフトが定量的に観測可能であると同時に、分解能がX線結像光学系で決められていることが確かめられている。

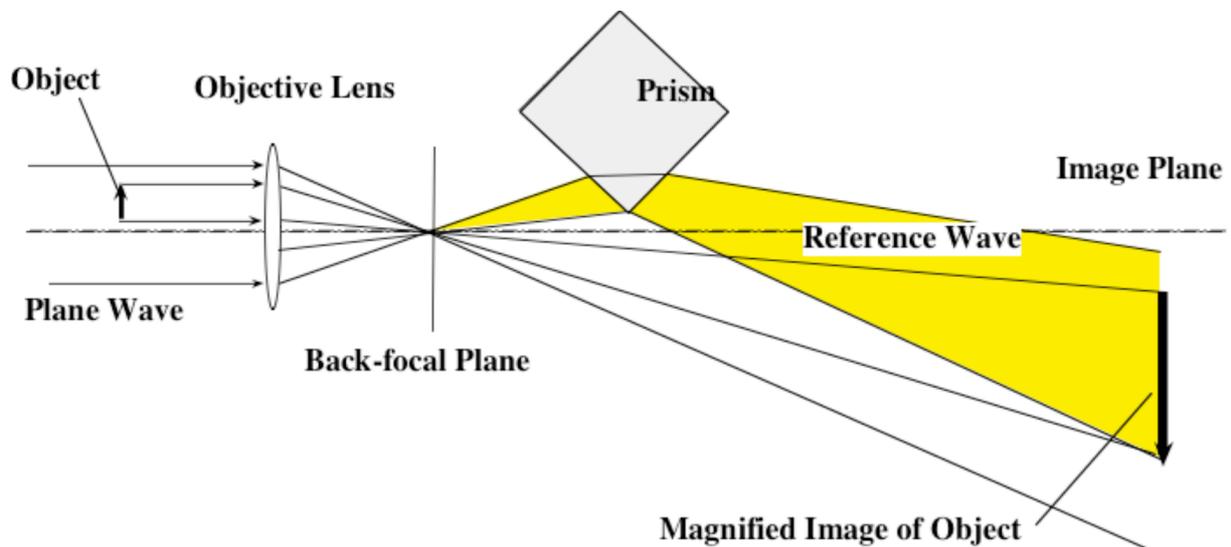


図3. 拡大結像光学系とプリズムによる波面分割干渉計を組み合わせた結像ホログラフィーの光学系

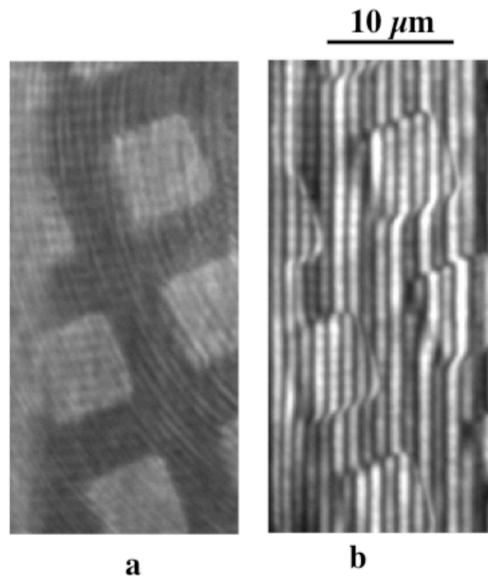


図4. 結像ホログラフイーの測定例

X線波長 1 \AA 。試料は銅メッシュ (2000ライン/インチ、 $12.7 \mu\text{m}$ ピッチ)。プリズム偏向角 0.2 mrad 。像倍率は40.6、干渉縞倍率は97.2。(a) プリズム無しの条件で撮影した明視野像。(b) プリズムによる参照波を重ねたイメージホログラム。

参考文献

1. Y. Suzuki, Jpn. J. Appl. Phys. **41** (2002) L1019.
2. Y. Suzuki, Rev. Sci. Instrum. **75** (2004) 1026.
3. Y. Suzuki, AIP Conf. Proc. **705** (2004) 724.
4. 鈴木芳生 日本放射光学会誌 **18** (2005) 75.
5. E. N. Leith and J. Upatnieks, J Opt. Soc. Amer. **52** (1962) 1123.
6. Y. Suzuki, A. Takeuchi, H. Takano and H. Takenaka, Jpn. J. of Appl. Phys. **44** (2005) 1994.
7. T. Koyama, et al., Jpn. J. Appl. Phys. **43** (2004) L421.
8. Y. Suzuki and A. Takeuchi, SPring-8 User Experiment Report, 2004A-0172.

拡大視野硬 X 線位相差顕微鏡による生体試料観察

青木貞雄、並河忠宏、星野真人、渡辺紀生

筑波大学 数理物質科学研究科

1. はじめに

X 線顕微鏡による生体試料観察は、生試料を高い分解能で観察できる利点から活発に研究が進められている。特に、「水の窓」軟 X 線波長域 (2.3~4.3 nm) では、様々な X 線結像法の工夫によって高分解能観察 (~20 nm) も可能になって来た。最近では、CT の原理を X 線顕微鏡に応用した 3 次元画像再構成なども急速に進展している。しかしながら、この領域では、吸収コントラストが得やすい反面、取り扱える試料の厚さに制限が生じ、比較的厚い試料 (~10 μ m 以上) の観察が困難になる。更には、試料室の窓材や空気層の厚さなどの吸収の制約から、試料周りの自由度が制限され、取り扱いが不便である。

これら試料や周辺の不便さを解決する手段のひとつとして、比較的透過率の高い短波長 X 線を使う方法がある。その場合には比較的大きな試料 (~100 μ m ~) の観察も容易になり、利用範囲も格段に広がる。しかしながら、透過率の向上に伴い吸収コントラストが急激に低下する。これを補う手法として位相差法によるコントラスト増強法がある。

ゾーンプレート利用によるゼルニケ型位相差顕微鏡は、光学系が比較的扱いやすく高い分解能と高いコントラストが期待できる。しかしながら、平行性の高い放射光利用のゾーンプレート X 線顕微鏡では、観察視野はゾーンプレート径の半分程度であり、比較的大きな試料を一度に観察できない。本研究では、その問題を解決するために、結像面での最大画角を決め、試料をその画角の大きさに合わせて走査し、それぞれの画像をつなぎ合わせて大きな視野を得る「結像走査型位相差顕微鏡」を構築した。

2. 結像走査型硬 X 線位相差顕微鏡光学系

実験は、高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 Photon Factory BL3C2 で行った。光学系を図 1 に示す。偏光電磁石からの白色 X 線を Si(1 1 1)₂ 結晶分光器を用いて 6~9 keV に単色化し、X 線を数 mm × 数 mm 程度に整形し、実験ハッチの光学系へは平行光をそのまま入射させた。

2 結晶分光器からの単色 X 線を Pt ピンホール (直径: 100 μ m ϕ) によってビーム整形し、試料に照射した。試料を透過した X 線をゾーンプレートによって、検出器面上に結像させた。光学系の倍率は実験ハッチ BL3C2 の大きさ (光軸方向に約 3m) によって制限され、約 22 倍である。ゾーンプレートを光軸上に置くとそこからの 0 次光、 ± 1 次光が重なってしまい、大きなバックグラウンドになってしまう。従って、0 次光と ± 1 次光を分離させるために、ゾーンプレートを光軸から水平方向に 50 μ m 程度ずらした。

検出器として CCD Camera と原子核乾板の 2 つを使用した。CCD Camera は浜松ホトニクス社製 C4880、素子名 : TC215、1pixel : $12\mu\text{m}$ を使用した。また、原子核乾板は Fuji EM GOC-15 を使用した。粒子径は約 $1\mu\text{m}$ である。原子核乾板は乾板であるため撮影後に現像・定着という手順に 20 分程度要し、リアルタイムでの観察は不可能である。そこで、CCD Camera と組み合わせ、光学系調整や数 μm 程度の粗い構造の観察など高い分解能を必要としない像の取得には CCD Camera を使用し、テストパターンの観察やサブミクロン程度の構造をもつ試料を観察する場合には、CCD Camera で調整の後、原子核乾板を用いた。

視野拡大は、検出器面で視野を矩形に制限し、試料をその矩形の辺の大きさに合わせて走査することで全体像を撮影し、コンピューターを用いて結合する方法をとった。

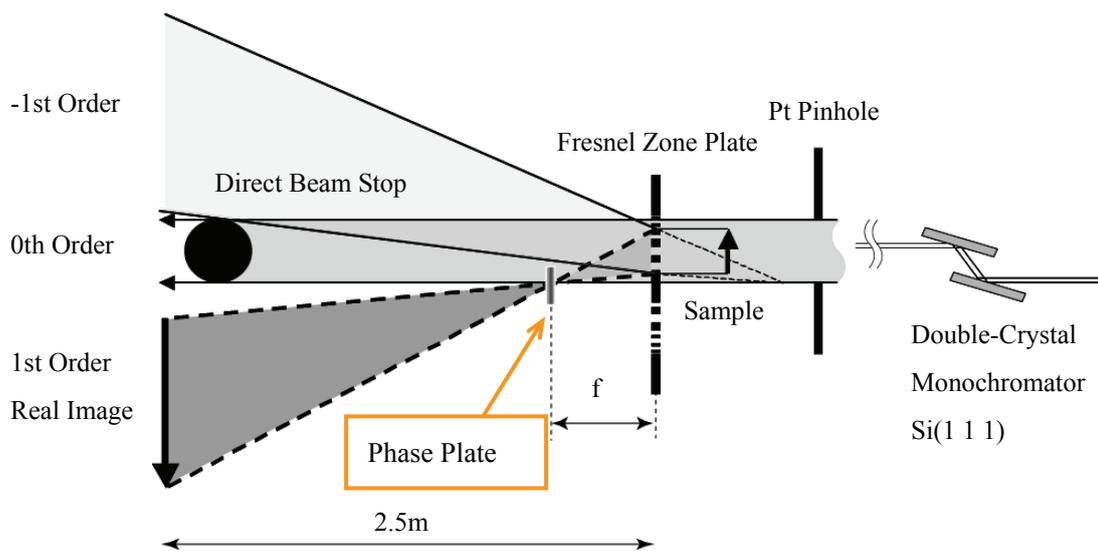
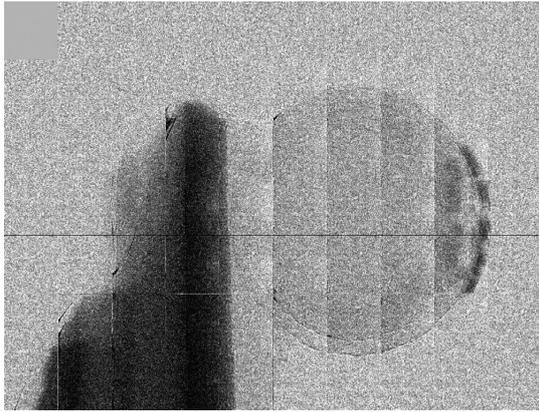


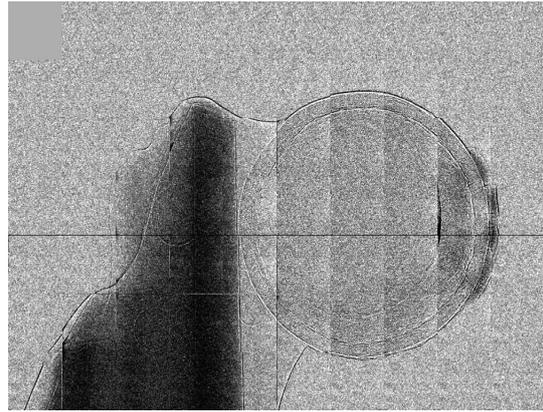
図1 ゼルニケ型ゾーンプレート硬 X 線位相差顕微鏡光学系

3. 生体試料観察

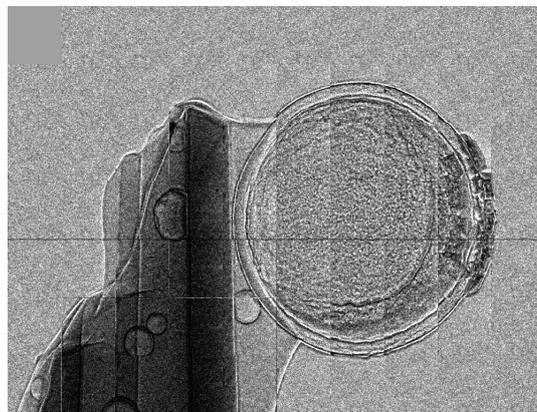
位相差顕微鏡は、生体試料のような吸収が少なくコントラストのつきにくい物体に対して有効である。ここでは、試料の大きさや比較的短い時間（1日前後）で成長するプランクトンの卵、アルテミアを対象にした。アルテミアは甲殻類に属し、この卵は、休眠卵で産み落とされた後、乾燥すると仮死状態となり、酸素と水分の供給によって発生が再開される。乾燥状態で少なくとも 2~10 年は生きるといわれ、また、この卵は 100°C から -20°C まで耐えられる非常に丈夫な卵である。卵が割れ中から個体が出てくるまでに要する時間はおおよそ 20 時間程度である。観察は、海水に浸した後、数時間毎に行った。観察時の試料の状態は、一部含水状態と思われる。位相差像の有効性を示すために、吸収像および屈折コントラスト像との比較を図 2 に示す。卵の径はおおよそ $200\mu\text{m}$ である。観察は、海水に浸した後、数時間後経たものである。図からも明らかなように、位相差顕微鏡像が最も良い像コントラストを示している。重ね合わせ画像数は 5×10 である。



吸収コントラスト像



屈折コントラスト像



位相コントラスト像

図2 吸収と位相差コントラストの比較 (8keV)

3. 結び

ここで紹介した視野拡大の手法は、比較的大きな試料に適用できるので、変化の緩やかな観察対象に対して有効である。X線顕微鏡は様々な分野への利用が始まっているが、生体試料観察に関しては、分解能の向上に伴って、像コントラスト低下の問題が出始めている。屈折コントラストなどの手法に加え、位相差法は比較的簡単な光学系でコントラストの増大が図れる。位相差像の定量的な解析法が進めば、利用される機会が増えるものと期待される。

硬 X 線顕微干涉計による高空間分解能位相計測

小山貴久、高野秀和、津坂佳幸、籠島 靖、松井純爾¹

兵庫県立大学大学院物質理学研究科

¹ 兵庫県立先端科学技術支援センター

1. はじめに

第三世代放射光施設の出現により、硬 X 線領域において位相コントラストを用いたイメージング技術の研究が活発に行われるようになってきた。これは、X 線の位相情報を引き出すためにはある程度位相のそろった強力な X 線源が必要であるからである。X 線顕微鏡に注目してみると、ゼルニケ位相差顕微鏡のような位相コントラストを用いた顕微鏡がある¹⁾。この方法では高いコントラストの像が得られるが、像のコントラストと位相変化との関係は簡単な関数では表せず、正確な位相情報を回復することは困難である。一方、位相回復のための幾つかの方法が報告されている。中でも干渉法が最も直接に位相回復を行える方法として提案されている。硬 X 線領域では、Bonse-Hart 型干渉計²⁻⁵⁾、X 線プリズムを用いた 2 光束干渉計⁶⁾などが位相回復に使われている。さらに他の方法では、伝播ベース法⁷⁾、タルボ干渉計⁸⁾などがある。しかしながら、これらは基本的に投影光学系であるために顕微鏡スケールの高い空間分解能を得ることが難しい。本研究では、結像光学系と干渉計を組み合わせた新しい X 線顕微干涉光学系を提案し、試料の高空間分解能位相計測を試みたのでその結果を報告する⁹⁾。

2. X 線顕微干涉計の光学系

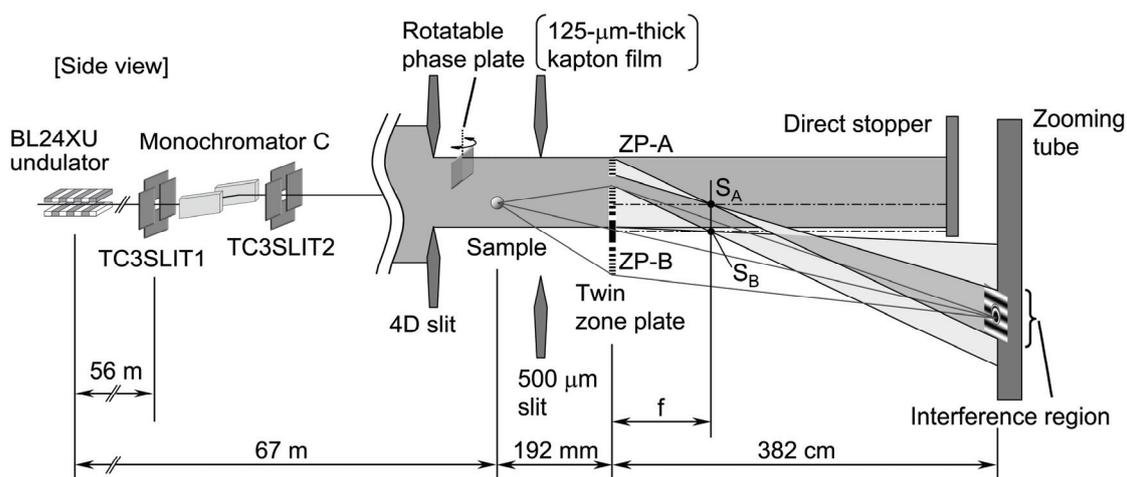


図 1. X 線顕微干涉計の模式図(側面図)

図 1 に示すように、同一基板上に作製された 2 枚のゾーンプレート(ZP-A、ZP-B)をコヒーレントに照明できれば、その後側焦平面の位置に 2 つの 2 次点光源(S_A 、 S_B)が形成される。この 2 つの点光源を中心とした 2 次球面波が広がって伝播するので、それら 2 光波の重なる空間

において干渉縞が観測される。ゾーンプレートによる複数の回折光が干渉領域に混入しないように参照波用のゾーンプレート(ZP-A)を三日月形とした。我々はこの光学素子を「ツインゾーンプレート」と呼んでいる。材質は Ta 製で、厚さは $1\ \mu\text{m}$ であり、NTT-AT 社に製作を依頼した¹⁰⁾。詳細なパラメータを図 2 に示す。

実験は SPring-8 の兵庫県ビームライン (BL24XU) で行った。アンジュレータ光からシリコン二結晶分光器を用いて $9\ \text{keV}$ のエネルギーを取り出し、実験ハッチ C に導く。実験ハッチ C

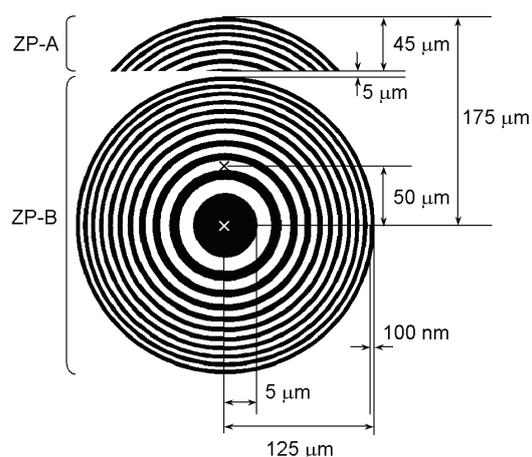


図 2. ツインゾーンプレートの仕様

の空間的コヒーレント領域は鉛直方向で約 $200\ \mu\text{m}$ であり、像面上で重なり合う 2 光波のゾーンプレートに入射する距離はこれ以下でなければならない。また、時間的コヒーレント長はシリコン二結晶分光器のエネルギー分解能から約 $0.5\ \mu\text{m}$ である。この光学系の 2 光波の光路差は幾何学的な関係から $0.1\ \mu\text{m}$ 以下となり干渉条件は満たされている。ゾーンプレートに入射する光を制限するため、4 象限スリットを配置した。ZP に入射した光は多数の回折光となって出射するため、実像に対応する +1 次光を空間的に分離する必要がある。スリットによって ZP-B を半分だけ照明すれば、結像面において 0 次光と ± 1 次光を分離できる¹¹⁾。高次の回折光は回折効率が低いので事実上無視できる。これらの内、実像である +1 次回折光を X 線画像検出器であるズーム管を用いて観察する。また、ZP-A は ZP の一部分のみで作られているので入射した光はすべて分離される。ZP-A、ZP-B それぞれの +1 次光が重なり合った場所が干渉領域となる。ZP の上流に試料を配置すれば、試料を透過した光(物体波)は ZP-B によって拡大結像される。一方、試料を通らず ZP-A に入射した光は、参照波となって結像面で物体波と重なり干渉縞を形成する。参照波の光路、すなわち ZP-A に入射する光の光路に位相板 ($125\ \mu\text{m}$ 厚カプトン膜) を配置して縞走査法を行えるようにした。位相板は回転ステージの上に乗せ、回転させることによって参照波の位相を変えることができる。干渉縞の位相の異なった複数の干渉像から再構成を行い、位相シフト像を得た。

3. 観察例

干渉縞の縞間隔は 2 枚のゾーンプレートの中心間距離と光学系の倍率で決まり、本研究では $10\ \mu\text{m}$ に設定した。得られた干渉縞の可視度は約 60% であり、高い可視度の干渉縞の生成に成功した。

軽元素試料として $75\ \mu\text{m}$ 厚のカプトン膜を用いた。この試料の $9\ \text{keV}$ の X 線に対する透過率は 96.3% である。図 3 に観察結果を示す。(a) は吸収像、(b) は干渉像、(c) は位相シフト像である。像を見ると吸収像(a)ではわずかに試料のエッジが観察される程度であるが、干渉像(b)では試料のエッジで干渉縞がはっきりとシフトしていることがわかる。さらに、縞走査法を施して

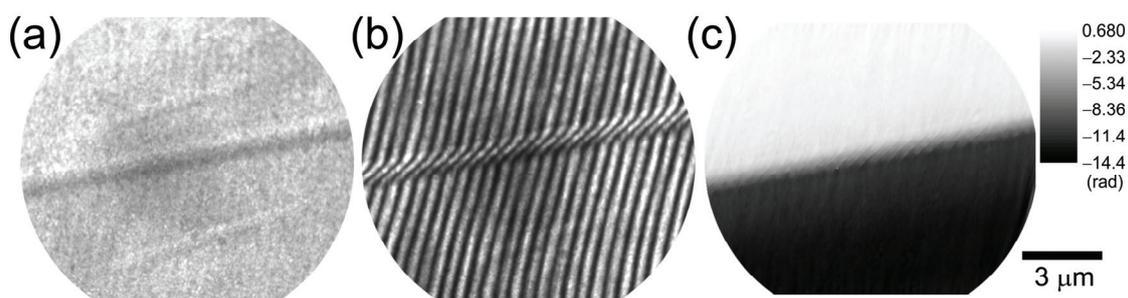


図 3. カプトンエッジの観察

得られた位相シフト像(c)ではコントラスト良く観察できている。また、75 μm 厚のカプトン膜は 9 keV の X 線に対して 12.9 rad の位相変化を与えるが、これは得られた位相シフト像とよく一致する。

次に試料としてポリスチレンの微粒子を用いた。密度は 1.1 g/cm^3 、形状は直径 7 μm の球形である。図 4 に観察した像を示す。(a)吸収像、(b)干渉像、(c)位相シフト像である。この試料の透過率は 99.8%であり軽元素で構成された微粒子であるため、吸収像(a)ではほとんど観察することができない。また、干渉像(b)を見ても微粒子であるため位相シフト量が少なく、試料による干渉縞のシフトはほとんどわからないが、縮走査法を施した位相シフト像(c)では、試料が鮮明に観察できる。また、空間分解能を評価するために銅#2000 メッシュのエッジ構造を観察した。その位相シフト像から、空間分解能は 160 nm と見積もられた。

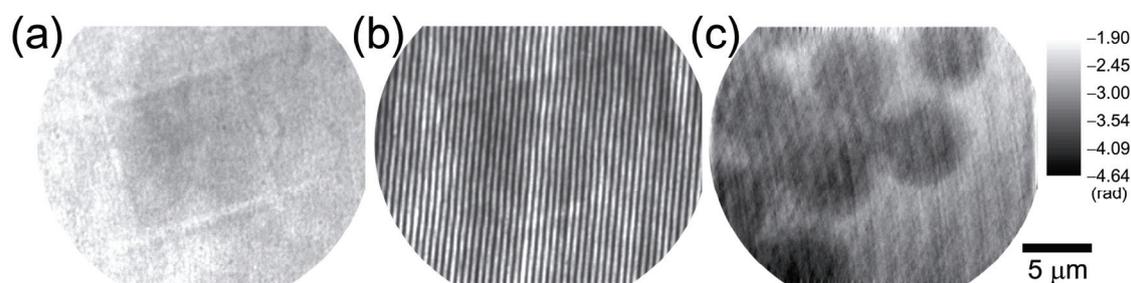


図 4. ポリスチレンの観察

4. まとめ

結像光学系と干渉計を組み合わせた新しい X 線顕微干渉光学系を提案し、試料の高空間分解能位相計測を試みた。その結果、高い可視度の干渉縞を生成でき、軽元素で構成される硬 X 線に対して透明な試料の定量的な位相シフト像を得ることができた。また、位相シフト像の空間分解能は 160 nm であると見積もられた。

参考文献

- 1) Y. Kagoshima, T. Ibuki, Y. Yokoyama, Y. Tsusaka, J. Matsui, K. Takai and M. Aino: Jpn. J. Appl. Phys. **40** (2001) L1190.
- 2) U. Bonse and M. Hart: Appl. Phys. Lett. **6** (1965) 155.

- 3) U. Bonse and M. Hart: Appl. Phys. Lett. **7** (1965) 99.
- 4) A. Momose: Nucl. Instrum. & Methods **A352** (1995) 622.
- 5) A. Momose, T. Takeda, Y. Itai and K. Hirano: Nature Med. **2** (1996) 473.
- 6) Y. Kohmura, T. Ishikawa, H. Takano and Y. Suzuki: J. Appl. Phys. **93** (2003) 2283.
- 7) P. Cloetens, W. Ludwig, J. Baruchel, D. Van Dyck, J. Van Landuyt, J. P. Guigay and M. Schlenker: Appl. Phys. Lett. **75** (1999) 2912.
- 8) A. Momose, S. Kawamoto, I. Koyama, Y. Hamaishi, K. Takai and Y. Suzuki: Jpn. J. Appl. Phys. **42** (2003) L866.
- 9) T. Koyama, Y. Kagoshima, I. Wada, A. Saikubo, K. Shimose, K. Hayashi, Y. Tsusaka and J. Matsui: Jpn. J. Appl. Phys. **43** (2004) L421.
- 10) A. Ozawa, T. Tamamura, T. Ishii, H. Yoshihara and Y. Kagoshima: Microelectron. Eng. **35** (1997) 525.
- 11) Y. Kagoshima, Y. Yokoyama, T. Ibuki, T. Niimi, Y. Tsusaka, K. Takai and J. Matsui: J. Synchrotron Rad. **9** (2002) 132.

ゾーンプレートを用いたX線干渉顕微鏡の開発

筑波大学 数理物質科学研究科

電子・物理工学専攻 渡辺紀生

1. はじめに

エネルギー数 keV 以上の硬 X 線で試料を観察する場合、一般的に吸収の差よりも位相変化の違いを観察した方がコントラスト良く観察することが可能である。特に顕微鏡の場合には、もともと試料のコントラストが低いために、このような位相コントラストによってしか観察できないことも多い。このため、硬 X 線領域の顕微鏡開発では、位相差顕微鏡、微分干渉顕微鏡、干渉顕微鏡といった様々な位相コントラスト結像法が開発されてきた。この中で、干渉顕微鏡は試料による位相変化を正確に測定するには最も適したものであると考えられる。X 線干渉計としては、古くから **Bonse-Hart** 型干渉計が知られているが、結晶反射の角度許容幅が小さく試料で回折された X 線は取り込めないため、顕微鏡として用いることが出来ない。このため、干渉顕微鏡の開発ではいかに参照光を当てるかが問題となる。ひとつの方法として、拡大結像系の横からコヒーレントな参照光を像面に対して照射してその干渉縞を測定する方法が報告されており、フリンジスキャンにより試料の位相像が得られている[1]。この方法の欠点としては、(1) X 線領域ではこのような **off-axis** での干渉は干渉縞の間隔が数ミクロン程度となるため、高分解能な検出器が必要となること、(2) 像はフリンジスキャンによって位相を計算するまで良くわからないこと、がある。このような欠点は参照光を同軸で干渉させれば克服できる。ここでは、ゾーンプレートを 2 枚用いて作成したこのようなタイプの干渉顕微鏡に関する我々の実験結果を紹介する[2]。

2. 光学系の原理

図 1 に光学系の原理を示す。同じスペックを持つゾーンプレートを 2 枚、焦点距離の 2 倍離して光軸上にセットし、ゾーンプレートの中心に対して対称な位置に 2 本の光束を入射させる。上側の光束で試料を照明し、1 枚目ゾーンプレートの 1 次光で検出器面上に試料の像を作る。矩形の模様を持つゾーンプレートの場合、その 1 次光と -1 次光は同じ強度を持つ。また、ただ単に透過する 0 次光が存在する。この結像では、1 枚目の 1 次光と 2 枚目の 0 次光が像を形成することになる。下側の光束の場合、ゾーンプレート 1 枚目の 0 次光と 2 枚目の -1 次光は、図のように試料を結像している光と同じ経路を取って検出器に到達することになる。つまり、どちらの光束も 2 つのゾーンプレートの中間の 1 点から出たようになる。このことは、試料が無い場合に像面での干渉縞を完全に消すことが可能であることを意味する。また、下側の参照光の位相を適当に変化させることによって、像の明暗をコントロールすることが可能となる。実際の光学系では、その他の次数の組み合わせが像にかぶってこないように、図 1 に示すようなビームストップが必要である。

このようにゾーンプレートを 2 枚組み合わせた干渉顕微鏡のアイデアは、すでに **Wilhein** 等の論文で検討されている[3]。しかし、彼らはゾーンプレートの使っていない次数の回折光がオーバーラップするという理由でうまくいかないと結論づけている。そこで、彼らは 2 枚のゾーンプレートを近接させて横方向に僅かにずらして微分干渉顕微鏡を作成して実験を行っている。我々は、

試料手前にダブルピンホールを用いることと、図1のように2箇所にはビームストップを用いることにより、ゾーンプレートの不要な次数の回折光を除くことに成功した。

3. 実験した光学系

図2に実験を行った光学系を示す。2枚のゾーンプレートには直径 $155\ \mu\text{m}$ 、最外輪帯幅 $0.1\ \mu\text{m}$ (NTT アドバンステクノロジー)のものを用いた。実験は SPring-8 BL20XU で行った。この光学系では、ゾーンプレート手前のダブルピンホールを透過する光のうち、光軸に対して近い側同士、遠い側同士が干渉する。ピンホール間の距離が $50\ \mu\text{m}$ なので、空間コヒーレンスとして $150\ \mu\text{m}$ の領域が必要となる。このため、空間コヒーレンスを向上させるためにフロントエンドスリットを $0.2 \times 0.2\ \text{mm}^2$ に制限して使用した。2結晶モノクロメータで分光した $10\ \text{keV}$ X線を試料に照射し、図1の光学系で検出器 (P43 蛍光板+CCD カメラ、浜松ホトニクス ビームモニター2) 上に結像した。CCDの1ピクセルに対応する蛍光板上のサイズが $6.4\ \mu\text{m}$ で、ゾーンプレートによる拡大率が50倍なので、試料面上に換算すると1ピクセル $0.13\ \mu\text{m}$ となる。ゾーンプレートの理論的分解能は $0.12\ \mu\text{m}$ と計算されるが、全体の空間分解能はこのピクセルサイズの影響で若干悪くなり、テストパターンの結像では $0.3\ \mu\text{m}$ 線幅までは結像できたが $0.2\ \mu\text{m}$ 線幅は結像出来なかった。参照光の位相シフターとして、厚さ $62\ \mu\text{m}$ の石英板を回転させて用いた。

図3に得られた珪藻の像を示す。これらは、照明むらを除くために試料を抜いた像で割った像を表示している。図3 (a) は、2枚目のゾーンプレートを外して撮影した吸収コントラスト像である。若干、off-focusによるエッジが観察されるが、明るさ自体はバックグラウンドとほとんど変わらない。それに対して図3 (b) 及び (c) は2枚目のゾーンプレートを入れて干渉顕微鏡として撮影した像である。図3 (b) は位相シフターを試料が最も暗くなるように調整して撮影した像、図3 (c) は試料が最も明るくなるように調整して撮影した像である。コントラストが完全に反転していることがわかる。このように、この方法では1枚の像だけで位相像を観察することが可能である。また、フリンジスキャンと組み合わせれば、干渉縞の間隔が非常に大きくなったことに対応して位相決定の精度も向上すると思われる。

なお、本研究の成果は、青木貞雄 (筑波大)、武田佳彦 (筑波大)、星野真人 (筑波大)、並木孝嗣 (筑波大)、佐藤真理子 (筑波大)、竹内晃久 (SPring-8)、鈴木芳生 (SPring-8) との共同研究による。

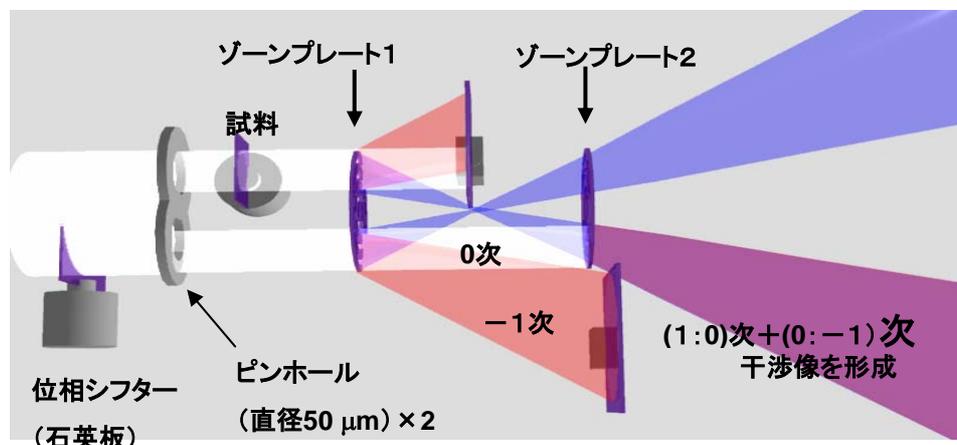


図1 2枚のゾーンプレートを用いた干渉顕微鏡光学系

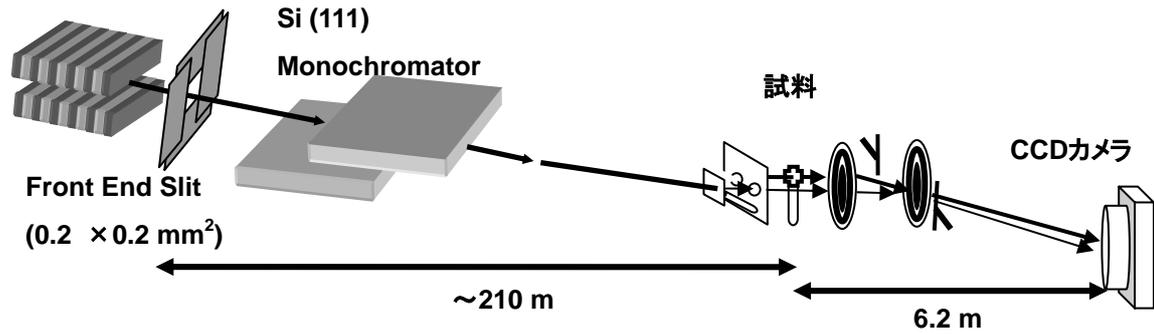


図2 SPring-8 BL20XU 下流ハッチに設置したX線干渉顕微鏡

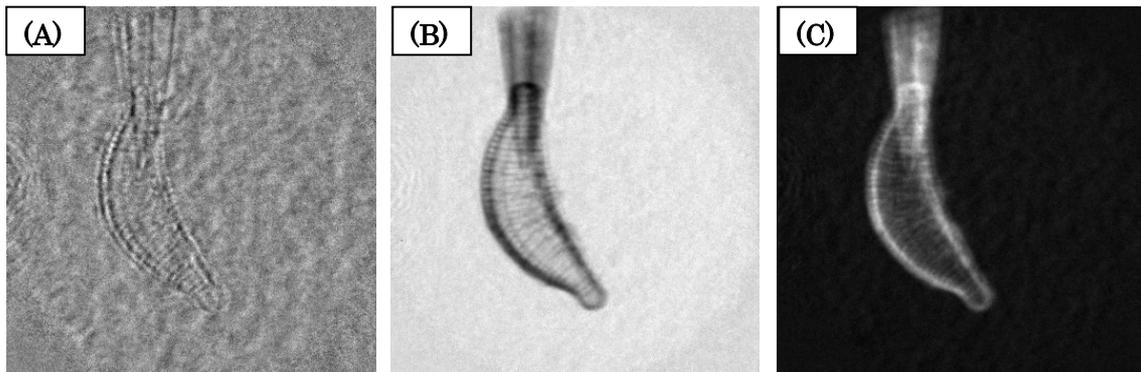


図3 珪藻のX線顕微鏡像、(A): 下流のゾーンプレートを外して撮影した吸収コントラスト像、(B): 試料が最も暗くなるように位相シフターを調整した干渉顕微鏡像、(C): 試料が最も暗くなるように位相シフターを調整した干渉顕微鏡像。X線エネルギー: 10 keV、露光時間 20 s、また、像は試料を抜いた像強度で割って表示している。スケールは、画像の横幅が試料位置で $50 \mu\text{m}$ に対応している。

参考文献

- [1] T. Koyama, Y. Kagoshima, I. Wada, A. Saikubo, K. Shimose, K. Hayashi, Y. Tsusaka, and J. Matsui, *Jpn. J. Appl. Phys.* 43 (2004) L421.
- [2] 渡辺紀生、青木貞雄、星野真人、佐藤真理子、武田佳彦、並木孝嗣、竹内晃久、鈴木芳生、第52回応用物理学関係連合講演会 29a-YX-5、2005年3月29日
- [3] T. Wilhein, B. Kaulich, and J. Susini, *Opt. Commun.*, 193 (2001) 19.

X線集光ビームを利用した位相計測 ～トモグラフィへの拡張～

高野 秀和 (兵庫県立大学)

上杉 健太郎、竹内 晃久、鈴木 芳生 (JASRI/SPring-8)

はじめに

物体におけるX線の位相変化を像コントラストとして利用する“位相イメージング”は、これまで広く利用されてきた吸収コントラスト法に対して極めて高い感度を持つという点で非常に有用な手法である。軽元素試料や僅かな密度差の定量が可能であり、雰囲気下観察、その場観察等への広い応用が期待される。定量測定においては Bonse-Hart 型干渉計^{1,2)}が先進的な役割を果たしており、現在までに様々なアプローチでの位相計測手法が試みられている³⁻⁵⁾。一方で、X線領域における光学的顕微技術も進歩を遂げており、特にX線集光技術は、現在サイズ 100 nm 以下のコヒーレントビーム形成が可能となっている^{6,7)}。X線結像顕微鏡光学系を組み合わせた干渉計による高空間分解位相計測も可能となってきているが⁸⁾、我々は集光ビームによる走査系を用いたX線位相計測をこれまで行っており、高い空間分解能と位相感度を実現している⁹⁾。

X線 Computed Tomography (CT)法は物体における3次元内部構造の観察が可能であり、これまでも大きな役割を果たしている。今回はこれまで開発してきた高空間分解位相計測法にCT法を組み合わせた位相定量(屈折率定量)について紹介する。

計測光学系

図1にSPring-8中尺ビームラインBL20XUにおいて構築した光学系の概要を示す。光源はアンジュレータであり、シリコン二結晶分光器により8 keVに単色化している。分光器直後にはクロススリットを配置し光学縮小用光源とすることで、下流の空間コヒーレンスを分光器の振動影響を受けずに制御することが可能である。クロススリットから実験ステーションに置かれた集光素子まで約200 mの伝搬長が確保できるため、集光素子に対して十分に空間コヒーレンスの高い照明が可能である。集光素子には最外線幅250 nmのフレネルゾーンプレート(FZP)を使用しており、コヒーレント集光ビーム生成が可能である¹⁰⁾。試料走査ステージは光軸に対して垂直面内での並進2軸と水平面内回転軸を組み合わせ、3次元走査に対応した。検出器には吸収像取得用に2台のイオンチェンバーを使用し、位相像を得るための画像検出器を配置した。画像検出器は粉末シンチレーターとリレー光学系により可視光変換像を高速読み出し冷却CCDに導入可能である。CCDフレームの部分読み出しとピクセルビンギングを併用する事により最速28 Hzでの動作が可能である。

コヒーレントな集光ビームを焦点深度内で試料に照射した場合、試料は集光ビームサイズの平行光束に照明されている。このとき微小領域内の試料を微小プリズム状と近似して考えると、入射光は微小プリズムによる屈折を受ける。画像検出器から屈折の方向と角度

を求める事により、微小プリズムの位相勾配が求まる。全ての走査点に対して位相勾配を求め経路積算する事により、試料の相対位相分布が求まる。実際には試料をステップスキャンし、その度に画像を取りこむ事により測定が行われる。走査光学系を用いて CT 法による 3 次元データを得るためには試料を 3 次元走査する必要があり、現状では多大な測定時間を要すが、水平並進と水平回転の 2 次元走査のみでも試料単断層面の情報を得ることができる。

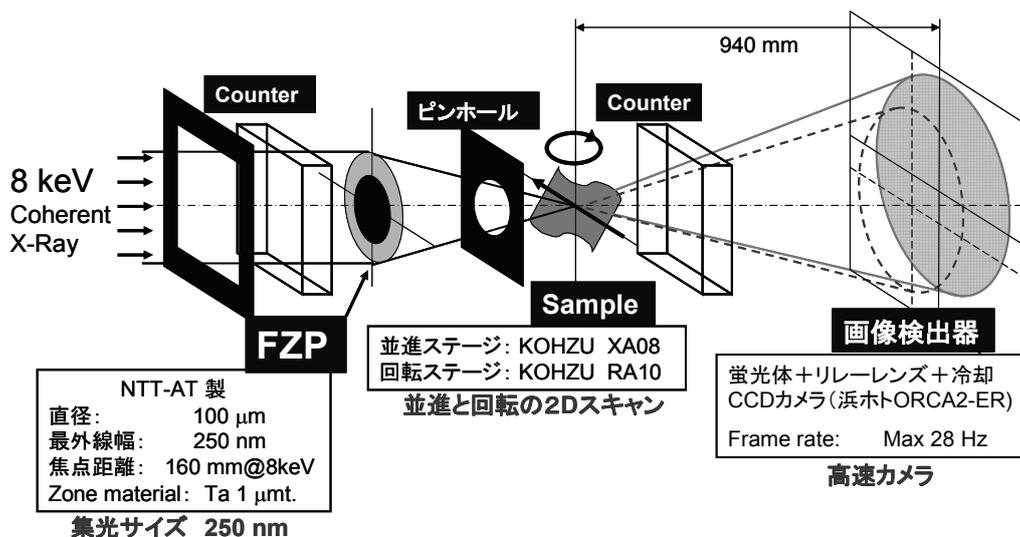


図 1 計測光学系の概要図

光学系の評価

標準的な試料の単断層走査を行い、その CT 再構成像から空間分解能評価、感度評価を行った。図 2 に直径 5 ミクロンのガラス繊維の像を示す。(a)は実験データから得られた位相再構成像(シノグラム)であり、(b)は CT 再構成した断層像(屈折率分布)である。断層像から 2 本のガラス繊維が接着剤により接着している様子が分かる。位相再構成により求まる位相は基本的に経路積算原点からの相対位相であるが、CT 法は走査範囲水平方向内に試料を収める必要があるため、水平方向の経路積算原点及び終点を常に 0 (位相変化無し)と置くことが可能となる。これにより求まる位相は絶対量となり、さらに前述の近似による誤差を抑えることもできる。実際に測定時において同時に得られた吸収 CT 像と比較すると、ガラス部のバックグラウンドに対する S/N 比で 10 倍以上の高い感度が得られている。また実際の測定データにおいて、試料ステージの駆動時温度変化(主にモーターの熱変動)に起因すると考えられる水平方向への試料ドリフトが見られた。この影響によりシノグラムに対する回転中心が決まらず、CT 再構成が困難となってしまう。この影響を低減させるため、位相シノグラム(図 2(a))において全ての投影角に対する位相重心を揃えるように補正を行い、その場所を回転中心として CT 再構成を行った。システムの空間分解能は原理的には集光サイズによって決まるが、これらの補正誤差や回転ステージの軸ブレ等の原因

により実際の空間分解能は低下する。CT再構成像のガラス部分布の立ち上がりプロファイルより空間分解能の評価を行い、約 400 nm が得られた。

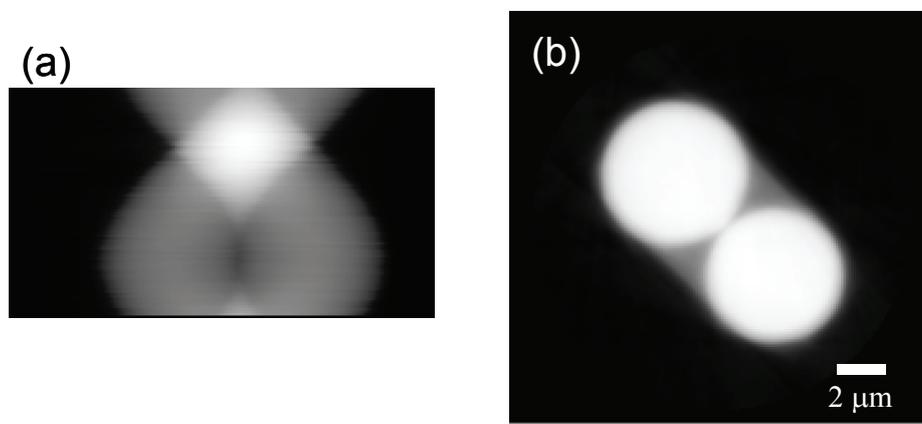


図2 ガラス繊維の位相像（断層像）

(a) 実験により得られた位相再生像、(b) CT再構成により得られた断層像（屈折率分布）

まとめ

X線集光ビームを用いた走査顕微鏡による位相計測にCT法を適用する事で、高空間分解、高感度での試料断層像の取得に成功した。フィードバック制御等による走査精度の向上、測定の高速度等の今後の改良により、高空間分解3次元位相計測への展開を進めていきたい。

文献

- 1) U. Bonse and M. Hart, Appl. Phys. Lett. **6**, 155 (1965).
- 2) A. Momose, T. Takeda, Y. Itai and K. Hirano, Nature Medicine **2**, 473 (1996).
- 3) J. Miao, P. Charalambous, J. Kirz and D. Sayre, Nature **400**, 342 (1999).
- 4) P. Clotens, W. Ludwig, J. Baruchel, D. Van Dyck, J. Van Landuyt, J. P. Guigay and M. Schlenker, Appl. Phys. Lett. **75**, 2912 (1999).
- 5) Y. Kohmura, T. Ishikawa, H. Takano and Y. Suzuki, J. Appl. Phys. **93**, 2283 (2003).
- 6) Y. Suzuki, A. Takeuchi, H. Takano and H. Takenaka, Jpn. J. Appl. Phys. **44**, 1994 (2005).
- 7) H. Mimura, S. Matsuyama, H. Yumoto, H. Hara, K. Yamamura, Y. Sano, M. Shibahara, K. Endo, Y. Mori, Y. Nishino, K. Tamasaku, M. Yabashi, T. Ishikawa and K. Yamauchi, Jpn. J. Appl. Phys. **44**, L539 (2005).
- 8) T. Koyama, Y. Kagoshima, I. Wada, A. Saikubo, K. Shimose, K. Hayashi, Y. Tsusaka and J. Matsui, Jpn. J. Appl. Phys. **43**, L421 (2004).
- 9) H. Takano, K. Uesugi, A. Takeuchi, K. Takai and Y. Suzuki, J. Phys. IV France **104**, 41 (2003).
- 10) Y. Suzuki, A. Takeuchi, H. Takano, T. Ohigashi and H. Takenaka, Jpn. J. Appl. Phys. **40**, 1508 (2001).

定量化に向けた蛍光 X 線ホログラフィーの最近の進展

東北大学金属材料研究所 林 好一

1. はじめに

蛍光 X 線ホログラフィーは、結晶中に存在するある元素からの蛍光 X 線を波源とし、散乱されずに試料の外に放出される蛍光 X 線を参照波、そして、近接原子等によって散乱された蛍光 X 線を物体波とみなし、これらの干渉パターンであるホログラムを試料から遠方の蛍光 X 線の空間強度分布として記録する撮像技術である。表面構造の解析に利用されている光電子回折(ホログラフィー)と基本的な原理は同じである。X 線の原子による散乱は位相シフトも極めて小さく、多重散乱の影響も無視できるため、単純なフーリエ変換によって、三次元原子像の再生が簡単に行える。X 線の侵入深さが約数 μm 程度であるために、表面構造のみでなく物質内部の構造も探索可能である。また、上述したノーマル法に対し、その光学的相反定理を利用したインバース法が存在する。インバース法は、直接、蛍光 X 線発生原子に到達する入射 X 線を参照波、近接原子等によって散乱された後に到達する入射 X 線を物体波とし、入射 X 線の方位を変えた際の蛍光 X 線の強度変化をホログラムとして記録する方法である。蛍光 X 線ではなく入射 X 線の干渉を利用するために、ホログラムを記録する波長の選択が可能という特徴をもつ。波長可変な放射光と組み合わせ、多波長測定することにより、原子像の精度を向上させることができる。

蛍光 X 線ホログラフィーの特徴は、特定元素周辺の原子の三次元座標が半径 10\AA 程度まで決定可能なことであり、第一近接のみならず、第七、八近接の原子位置まで同定することが可能である。このため、現段階に置いてもユニークな物質の構造情報を提供することができる。さらに、原子像の元素同定に関する情報や原子位置を精度良く決定できれば、強相関電子系物質やドーパントを含む半導体における、目的領域の局所格子歪みの定量を行うことができる。ここでは、それらの解明を目的とした、蛍光 X 線ホログラフィーの定量化に向けた二つの試みを紹介する。

2. 複素 X 線ホログラフィー¹⁾

我々は、新たに元素の吸収端近傍の共鳴散乱を利用する蛍光 X 線ホログラフィー技術として、複素 X 線ホログラフィーを考案した。図 1 に複素 X 線ホログラフィーにおける 3 つのエネルギー (E^A, E^B, E^C) と異常分散項の関係を示す。ここで、 f_1, f_2 はそれぞれ異常分散項の実部、虚部成分を表し、3 つのエネルギーにおいて異常分散項はそれぞれ $\Delta f_1 = f_1^C - f_1^B$, $\Delta f_2 = f_2^A - f_2^B$, $f_1^B \approx f_1^A$, $f_2^C \approx f_2^B$ の関係を持つ。次に 3 つのエネルギーにおけるホログラム χ^A, χ^B, χ^C の差分を

$$\frac{\chi^B(\mathbf{k}) - \chi^C(\mathbf{k})}{\Delta f_2} \approx 2r_e \sum_j \frac{\cos(\varphi_{k,a_j})}{a_j} = \chi_{real},$$

$$\frac{\chi^A(\mathbf{k}) - \chi^B(\mathbf{k})}{\Delta f_2} \approx 2r_e \sum_j \frac{\sin(\varphi_{k,a_j})}{a_j} = \chi_{imag}, \quad (1)$$

のようにとる。ここで、 r_e : 古典電子半径, \mathbf{k} : X 線の波数ベクトル, a : emitter と scatterer 間の距離である。さらに $\chi_{complex} = \chi_{real} + i\chi_{imaginary}$ と線形結合することによって複素情報でのホログラム(複素ホログラム)

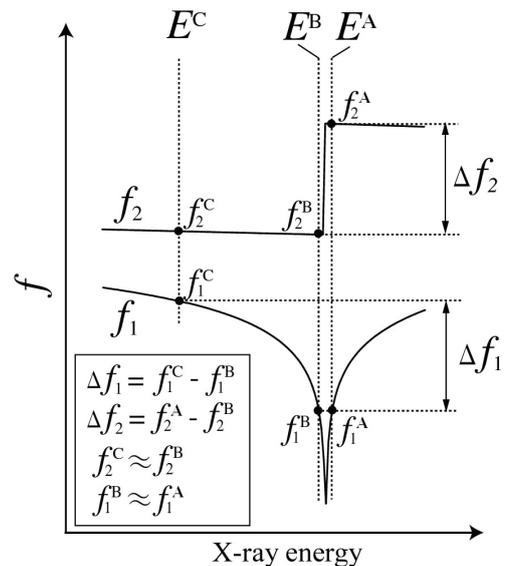


図 1 複素 X 線ホログラフィーにおける 3 つのエネルギーと異常分散項の関係。

となる。我々は、この理論に基づき、GaAs に関してコンピューターシミュレーション行ない、ツインイメージの存在しない、As 原子のみが強調された原子像を得ることに成功した。

さらに複素 X 線ホログラフィーを実験的に検証するために、SPring-8 の BL37XU で実験を行った。複素 X 線ホログラフィー法で最低必要な 0.01% 程度の強度変動を測定するために、N₂ ガス吹き付け型クライオストリームにより試料を約 100K まで冷却するシステムを開発した。これにより原子の熱振動の寄与が軽減されホログラムのシグナルが室温測定時に比べ 10~30% 増大した。また、円筒状グラフィイトアナライザーの開発も行った。試料には GaAs(110) 単結晶を使用した。入射 X 線のエネルギーは、11.872 keV (Ec+5eV), 11.865 keV (Ec-2eV) 及び 121.767 keV (Ec-100eV) に設定した。(Ec は As の K 吸収端(11.867 keV)) 入射 X 線のビームサイズは 4 象限スリットで縦 0.5 mm 横 0.3 mm にし、ポリイミドフィルムを X 線が透過する際に発生する散乱 X 線の強度を Si PIN photodiode にて測定し I₀ 強度をモニターした。試料から発する Ga の K_α 線は上記グラフィイトにて分光した後 Si PIN photodiode にて検出した。ここでは、検出器を試料の法線方向に配置する pure インバース法を用いて測定した。角度は、0° ≤ φ ≤ 360°, 25° ≤ θ ≤ 70° の範囲で走査した。1 ホログラムの測定時間は、6 時間である。

図 3 は、Barton のアルゴリズムより得られた原子像である。ホログラムデータは、結晶の対象性を利用し、完全球面体に拡張している。比較のために、図 3(a) には 11.767 keV で測定した単一エネルギーホログラムからの原子像を示している。これには、第一及び第二近接原子の As 及び Ga が表示されているが、本来の原子位置より大きく外側にずれていることが分かる。また、観測されるアーティファクトの数も非常に多い。これに対し、図 3(b) の複素ホログラムから再生した原子像には、異常散乱に起因する As 原子のみが強調して表示されており、しかも As のツインイメージも抑えられ、正確な原子配置を示している。また、原子位置のエラーも 0.1 Å 以内となっており、複素 X 線ホログラフィー法の従来技術に比べたポテンシャルの高さが分かる。

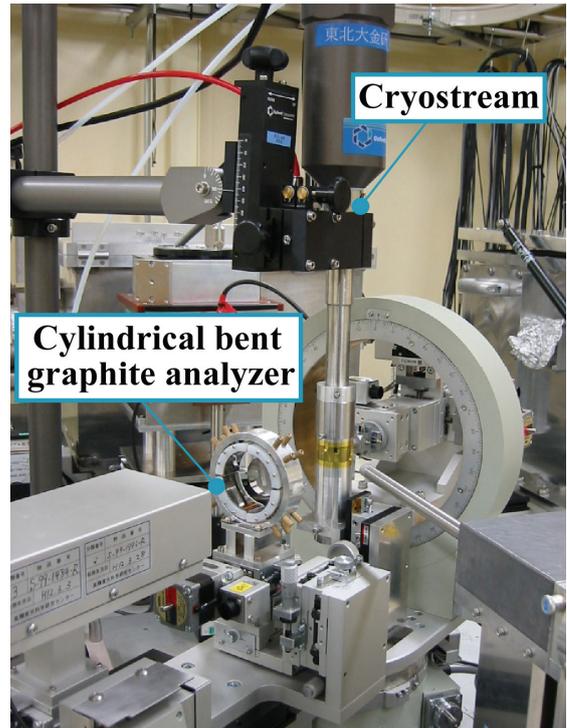


図 2 ホログラフィー装置の写真。

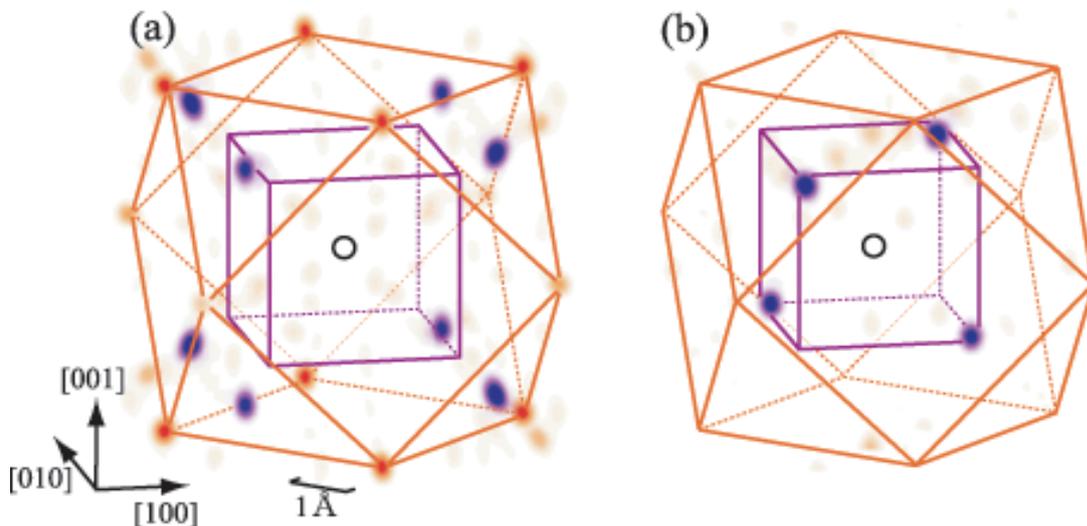


図 3 GaAs の三次元原子像。(a): 単一エネルギーホログラムによって再生されたもの。(b): 複素 X 線ホログラムによって再生されたもの。

3. 逆フーリエ解析²⁾

X線吸収微細構造法(EXAFS)においては、電子の運動量を横軸とした振動パターンをフーリエ変換することによって、動径分布関数を求めている。動径分布関数のある一つのピークを選択して逆フーリエ変換することにより、そのピークのみ起因した振動パターンを抽出し、それを理論計算によるものと比較することにより原子間距離を精度良く決定する。これがEXAFSにおける一般的な構造解析法である。我々は、このアルゴリズムを蛍光X線ホログラフィーに適用した新しいデータ解析法を提案した。

最初にAuの二量体モデルを用いたホログラムパターンの計算を示す。図4(a)に、二量体のモデルを示す。原子間距離は、Auのバルク結晶におけるAu-Auの結合距離に対応する2.884 Åとした。ここでは、左の原子を散乱原子、右を蛍光X線の発光原子と仮定した。図4(b)は、インバースモードにおいて、22.5 keVの入射X線で記録したと仮定したホログラムを示す。このストライプ状のパターンは、図4(c)に示すよう k_x 軸に投影できる。これは、ホログラムの球面上を k_x 及び k_y 方向に平均化したことに対応する。

$$\chi_{kx}(k_x) = \frac{\iint_S \chi(k) dk_y dk_z}{\iint_S dk_y dk_z} \quad (2)$$

図4(c)に示される振動は、 k_x の増加とともに減衰するコサイン関数であることが分かる。他にも、24.0及び25.5 keVで記録されたホログラムから得られる振動パターンを図4(c)に示すが、記録できる波数空間が伸びているが、基本的には同じ形状の振動パターンを示している。従って、各々のホログラムの k_x の最小値を0と定義した場合、これら、平均化したホログラムの足し合わせても、そのパターンは同じ周期・位相を示す。

次に、16726個のAu原子によるクラスターのホログラムを計算した。クラスターは、実際のAuの結晶と同じく $a=4.079\text{Å}$ のfcc構造をもち、その半径は約40 Åである。計算で用いた入射X線のエネルギーは、22.5 - 26.0 keV(0.5 keV)である。ここでは、 k_x 軸を金の[110]方向と同一であると定義し、式(2)を用いて平均化したホログラムを各々のエネルギーに対して得た。単純な二量体モデルによって計算したものとは異なり、存在する全ての原子の信号を含んでいるために、 x 軸以外に存在する原子からの信号も若干含まれる。これらの成分は、異なるエネルギーの平均化ホログラムを足しこむことで、キャンセルアウトされる。図5は、22.5 - 26.0 keV(0.5 keV)のホログラムから得られた平均化ホログラムである。ここに表示してある振動はEXAFSのものとよく似ている。

フーリエ変換によって得られた、[110]軸に沿った強度を図6に示す。10 Åまでの再生強度の中には、第一近接の $\frac{1}{2}\frac{1}{2}0$ 、第三近接の110、さらには $\frac{3}{2}\frac{3}{2}0$ に対応するピークが見える。1 Åの位置に見えるのは、アーティファクトに起因するものである。逆フーリエ変

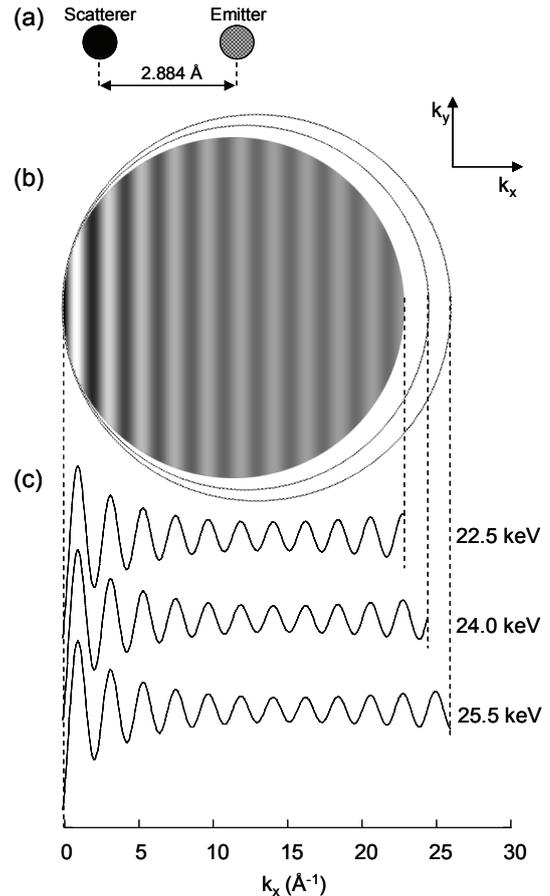


図4 二量体におけるホログラムパターン。(a): 二量体モデル, (b): ホログラムパターン, (c): k_x 軸に平均化した一次元ホログラム。

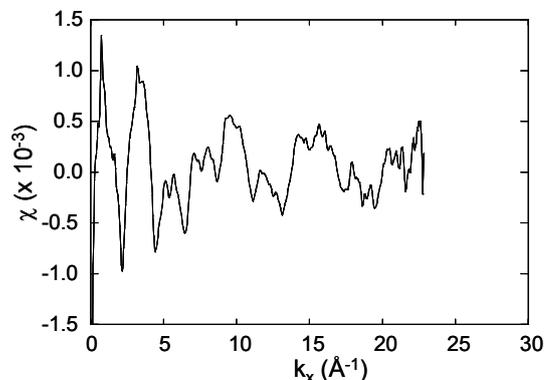


図5 16726原子のクラスターによるホログラムから得られた一次元ホログラム振動。

換に用いる R の範囲を 2.46–3.08 Å とし、 $\frac{1}{2}\frac{1}{2}0$ ピークの逆フーリエ変換を行った。図 7 に、逆フーリエ変換によって得られたホログラム及び、図 4 に示す二量体によるホログラムの両者を示す。これらを比較すると k_x において、 17 \AA^{-1} までは位相が良く一致していることが分かる。我々は、フィッティング関数を

$$\chi'_{kx}(k_x) = \sum_{i=0}^5 a_i k_x^i \cdot \cos(a_6 k_x + a_7) \quad (3)$$

と定めた。ここで、 a_i ($i = 0 - 7$) はフィッティングパラメータである。この関数は、単純に 5 次の多項式関数とコサイン関数の積である。式 (3) を用いて、我々は両者の振動に対して、パラメータ a_i の決定を行った。フィッティングに用いた k_x の範囲は $0 - 16.5 \text{ \AA}^{-1}$ である。コサイン関数の周期を意味する a_6 の値は原子間距離に比例する。クラスター及び二量体に対する a_6 の値は、各々、 0.1653 及び 0.1658 \AA^{-1} である。二量体の原子間距離は 2.884 \AA であるため、クラスターのものは 2.893 \AA と計算できる。その差は、 0.009 \AA である。その他にも、100, 110, $\frac{3}{2}\frac{1}{2}0$, 200 及び $\frac{3}{2}\frac{3}{2}0$ 原子に対しても行っており、 0.01 \AA の精度で原子間距離が決定されている。

また、逆フーリエ解析法を、実験的に得た Au の単結晶に対して適用した。測定は SPring-8 の BL39XU で行った。入射 X 線のエネルギーは $22.5 - 30.0 \text{ keV}$ (0.5 keV steps) とし、16 パターンのホログラムを測定し、それらのデータより、 $\frac{1}{2}\frac{1}{2}0$, 100, 110, $\frac{3}{2}\frac{1}{2}0$, 200 及び $\frac{3}{2}\frac{3}{2}0$ の原子間距離を求めた。得られた原子間距離のほとんどが、 0.3% の精度で決定されており、実験データに対しても、本手法が適用可能であることが分かった。

5. まとめ

蛍光 X 線ホログラフィーを真に実用的な構造解析技術として活用させるためには、原子像の強度及び位置に関する定量的なデータ解析技術の開発は避けられない。ここでは、ツインフリーでかつ元素識別可能な複素 X 線ホログラフィー、及び原子間距離の高精度解析が可能な逆フーリエ解析法を紹介した。今後、これらの技術を用いることにより、様々な実用材料に対し、新しい知見が得られていくことが期待される。

謝辞

本研究の遂行にあたり、松原英一郎教授(京都大学)、高橋幸生氏(理化学研究所)には、多大なご尽力を頂いた。また、鈴木基寛氏(JASRI)及び寺田靖子氏(JASRI)には、ビームライン担当者として、実験時に協力頂いた。この場を借りて、深くお礼申し上げる。

参考文献

- 1) Y. Takahashi, K. Hayashi and E. Matsubara, Phys. Rev. B71 134107 (2005).
- 2) K. Hayashi, Phys. Rev B in press.

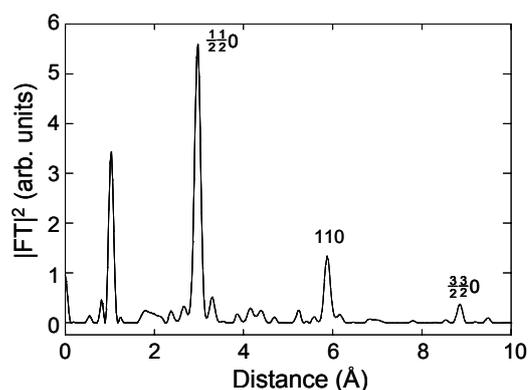


図 6 [110] 軸に沿った再生強度。

図 6 [110] 軸に沿った再生強度。コサイン関数の周期を意味する a_6 の値は原子間距離に比例する。クラスター及び二量体に対する a_6 の値は、各々、 0.1653 及び 0.1658 \AA^{-1} である。二量体の原子間距離は 2.884 \AA であるため、クラスターのものは 2.893 \AA と計算できる。その差は、 0.009 \AA である。その他にも、100, 110, $\frac{3}{2}\frac{1}{2}0$, 200 及び $\frac{3}{2}\frac{3}{2}0$ 原子に対しても行っており、 0.01 \AA の精度で原子間距離が決定されている。

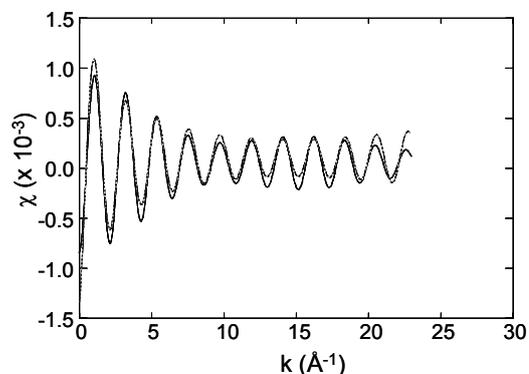


図 7 $\frac{1}{2}\frac{1}{2}0$ ピークを逆フーリエ変換することによって得られた振動パターン。

マイクロ位相CTによる生体組織及びポリマーブレンドの観察

東京大学新領域創成科学研究科 百生 敦

1 はじめに

X線の位相を検出することによる弱吸収物体の高感度観察は、X線CTを行う場合にも同様に可能である(X線位相CT)。筆者がLLL干渉計を用いて初めてX線位相を実現してから¹、他の方法によってもX線位相CTが行えるようになってきている²⁻⁵。大きく分類すると、(1)干渉計測に基づく方法¹、(2)微分干渉計測に基づく方法²⁻⁴、および(3)光の伝播から位相回復する方法⁵、に分けられる。どの手法であっても、X線位相CTの基本となるのは、被写体による位相シフト $\Phi(x, y)$ の計測である。

被写体の屈折率を $1 - \delta(x, y, z)$ で表すとき、

$$\Phi(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda} \int \delta(x, y, z) dz \quad (1)$$

の関係がある。 z をX線の伝播方向とした。すなわち、 $\Phi(x, y)$ は $\delta(x, y, z)$ の投影で与えられる関係にあるので、いろいろな投影方向で位相シフトを計測すれば、通常X線CTのアルゴリズムを用いて $\delta(x, y, z)$ を再構成することができる。

我々は現在、(1)および(2)の方法でX線位相CT計測を行っている。ここでは、この技術に関する最近の進展と、観察結果、および(必ずしも同じ条件下であるとは言えないが)画質の比較を試みる。

2 LLL干渉計によるX線位相CT

LLL干渉計は、Bonse と Hart により 1965 年に発表されたX線領域最初の干渉計である⁶。図1にその構成および実際に我々が作成したもの⁷の写真を示す。3枚の結晶板が等間隔に位置するように、シリコン単結晶インゴットから一体で削りだされている。結晶板表面に垂直な格子面に対してブラッグ条件を満たすようにX線が入射すると、結晶板の裏面からX線が2本(回折ビームおよび前方回折ビーム)に分かれて出射する。第二の結晶板においても同様に回折が起き、内側の

2本のビームが第三の結晶板の位置で重なり合う。ここでも同じく回折が起きるので、第三結晶板の裏面より出射するビームは、二つの光路のX線が重なり合った干渉ビームとなる。一方の光路に位相物体を配置すると、位相シフトの等高線に対応した干渉縞が発生する。一般的には

$$I(x, y) = a(x, y) + b(x, y) \cos [\Phi(x, y) + \Delta(x, y)] \quad (2)$$

と干渉図形 $I(x, y)$ が表現される。ここで $a(x, y)$ 、 $b(x, y)$ および $\Phi(x, y)$ はそれぞれ、平均強度、干渉縞振幅および位相シフトである。LLL干渉計は、一般的にある程度の歪みを持っており、位相物体がない状況でも干渉縞を発生させることがある。その影響を $\Delta(x, y)$ で表した。

さて、上で述べたように、X線位相CTには $\Phi(x, y)$ を計測しなくてはならない。一般に、 $I(x, y)$ から

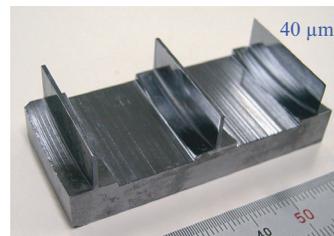
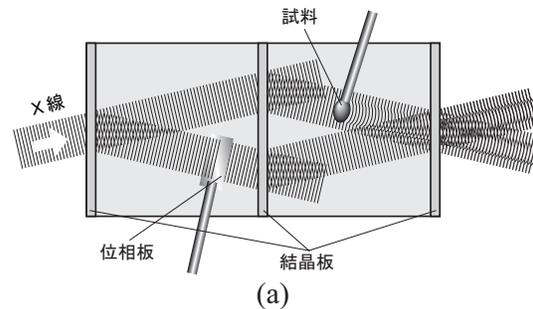


図1: X線干渉計とビームパス (a) および使用した干渉計⁷の写真 (b)。

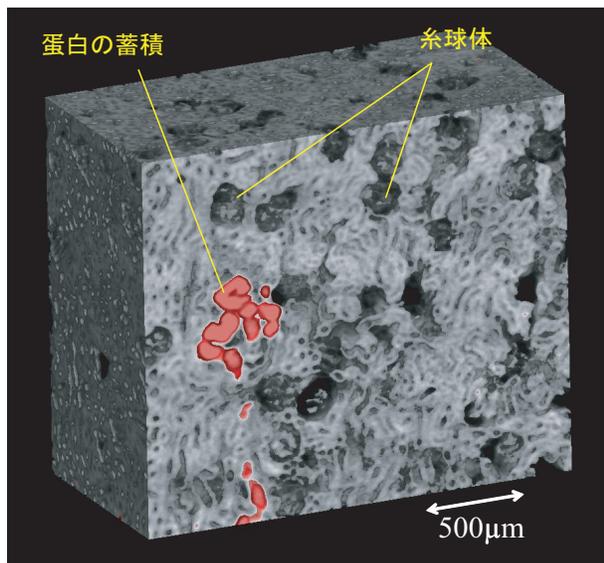


図 2: L L L 干渉計を用いた X 線位相 C T で計測したラット腎臓組織¹⁰。

$\Phi(x, y)$ を決めることは難しく、縞走査法⁸やフーリエ変換法⁹が用いられる。ここでは、実際に利用した縞走査法の概要を述べる。図 1(a) にあるように、参照波ビームに位相板を用いる。ビームに対する角度が可変になっており、実効的な厚さを変えることにより与える位相差を調整できるようになっている。このようにして、一連の干渉図形

$$I_k(x, y) = a(x, y) + b(x, y) \cos [\Phi(x, y) + \Delta(x, y) + 2\pi k/M] \quad (k = 1, 2, \dots, M) \quad (3)$$

が得られるとする。すなわち、位相板を調整しながら $2\pi/M$ ずつ位相差を付与し、 M 枚の干渉図形を得る。これらを用いて

$$\Phi(x, y) + \Delta(x, y) = \arg \left[\sum_{k=1}^M I_k(x, y) \exp \left(-2\pi i \frac{k}{M} \right) \right] \quad (4)$$

が成立する。この関係を用いれば、位相物体が無いときに ($\Phi(x, y) = 0$) 予め $\Delta(x, y)$ を決めておけば、 $\Phi(x, y)$ を求めることができる。この測定を位相物体を回転させて繰返せば、X 線位相 C T による像再生のためのデータセットが得られる。

図 2 に生体組織 (ラット腎臓) の観察例¹⁰を示した。測定は SPring-8, BL20XU において 12.4 keV の X 線

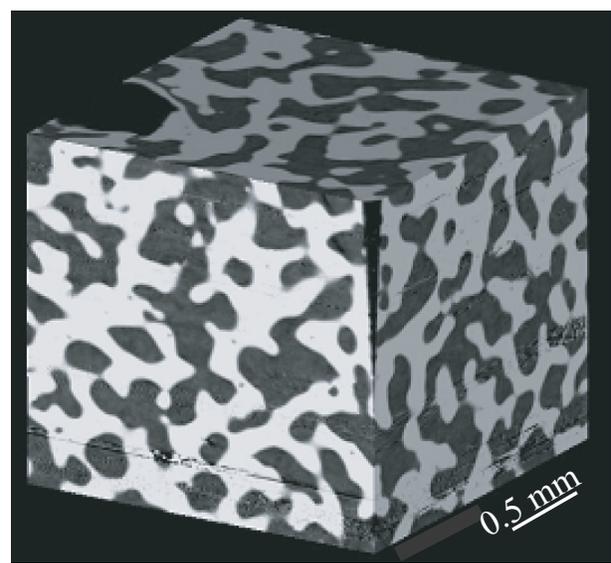


図 3: L L L 干渉計を用いた X 線位相 C T で計測した PS/PMMA ブレンド¹¹。

で行った。糸球体の他、尿道や血管などの管構造の経路が描出され、一部が蛋白で塞がれているのがわかる。図 3 には高分子ブレンド (ポリスチレン (PS) / ポリメチルメタクリレート (PMMA)) の観察例¹¹を示した。同じく SPring-8, BL20XU において、17.7 keV で測定した。高分子ブレンドは、分子レベルで完全に混ざり合っていない、相分離構造を示す。PS/PMMA ブレンドは、マクロ相分離を示すよく知られた系であり、PS-rich 相と PMMA-rich 相が分離して時間と共に構造が大きくなってゆく。図 3 は体積分率 50 : 50 の混合体を、180°C で 3 時間相分離させたものである。二つの相が互いにネットワークを組むいわゆる共連結構造が明瞭に捉えられている。

現在、一回の位相 C T スキャンに、スキャンパラメータに依存するが、数時間を要している。しかし、SP8 の X 線輝度をもってすれば、本来数分から数十分の X 線露光で十分という計算になる。すなわち、画像転送・保存などによる膨大なデッドタイムがスキャン時間に含まれている。そこで、比較的早く動作する X 線用サチコンを用いたクイック X 線位相 C T 装置も開発している⁴。位相計測の際、俊敏に位相板を駆動しなくてはならないが、それが振動源とならないよう、図 4 に示す構造の位相板を開発した。円盤を M 等分 ((3) 式の M に対応) して、各セグメントには回転方向に順に $2\pi/M$ ずつ位相差を増加させるように、所定の厚さ

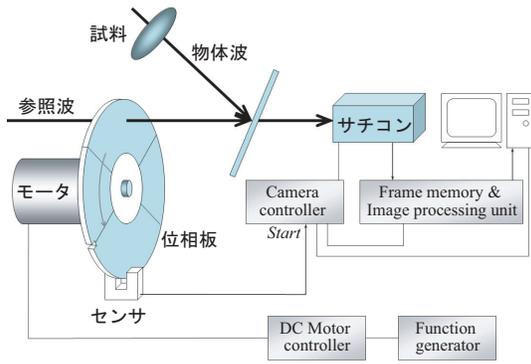


図 4: クイック X 線位相 CT の構成⁴。

のアルミ箔が取り付けられている。すなわち定速回転するこの位相板により、一回転が一回の縞走査に対応する。位相板のある位置に設けた切欠きを光センサで読み取り、それをサチコンコントローラのスタート信号に使うことで、スキャンが行える（試料も定速回転する）。この装置により、スキャン時間約 6 分で三次元観察が行えるようになった。もちろん図 2、3 よりは画質が低下してくるが、それが許容できる範囲であれば、時分割三次元観察などに利用できる。

3 DEI による X 線位相 CT

X 線は波面に垂直な方向に伝播するので、位相シフトによって波面が変形すると、それに伴って進行方向も変化することになる。これはいわゆる屈折である。屈折によって X 線が曲げられる角度 ($\Theta_x(x, y)$, $\Theta_y(x, y)$) は

$$\Theta_r(x, y) = \frac{\lambda}{2\pi} \frac{\partial \Phi(x, y)}{\partial r} \quad (i = x, y) \quad (5)$$

と、 $\Phi(x, y)$ に関係付けられる。DEI (Diffraction Enhanced Imaging) は、完全結晶 (アナライザ結晶) による回折を用いて、屈折した X 線を選別する方法である^{12, 13}。典型的な DEI の実験配置を図 5 に示す。アナライザ結晶の回折強度曲線を $R(\theta)$ とすると、検出器位置で観察される画像 $I(x, y; \theta)$ は

$$I(x, y; \theta) = R(\theta - \Theta_x(x, y)) \quad (6)$$

で与えられる。X 線位相 CT を行うためにはまず、アナライザ結晶の角度をブラッグ角近傍で変化させ、複

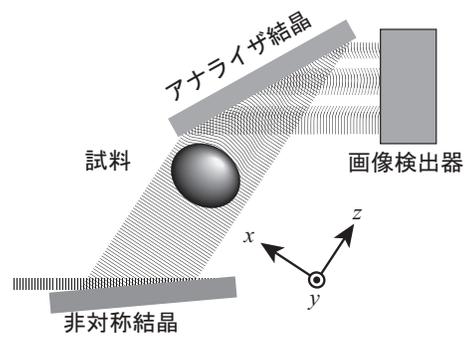


図 5: DEI による X 線位相 CT の実験配置。

数の角度位置 θ_k での画像 $I(x, y; \theta_k)$ から

$$\Theta_x(x, y) = \frac{\sum_k \theta_k I(x, y; \theta_k)}{\sum_k I(x, y; \theta_k)} \quad (7)$$

を計算する³。さらに、

$$\Phi(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda} \int \Theta_x(x, y) dx \quad (8)$$

で $\Phi(x, y)$ を得ることができる。なお、積分定数は x 軸方向の画像の端では被写体が無いこと（これは CT の測定において既に要請されている）から矛盾なく定める。試料を回転させながらこの測定を繰返して、X 線位相 CT を行う。

図 6 にラットの尾を観察した例¹⁴を示す。測定は Photon Factory, BL-14B にて 17.7 keV の X 線を用いて行った。骨と軟組織の構造が同時に描出できているところが特徴である。

4 タルボ干渉計による X 線位相 CT

X 線タルボ干渉計¹⁵とそれによる X 線位相 CT^{4, 16}については、本プロシーディングスに別途報告しているので、ここではその詳細は割愛するので、 $\Theta_x(x, y)$ を計測し、それを積分して $\Phi(x, y)$ を得る処理の流れは、上で紹介した DEI による X 線位相 CT と同様である。撮像結果については、上記ふたつの手法との比較の意味もあるので、ラット腎臓組織の観察結果¹⁶をここでも掲載する（図 7）。図 3 の画質には至らないものの、腎臓の管構造が描出されている。

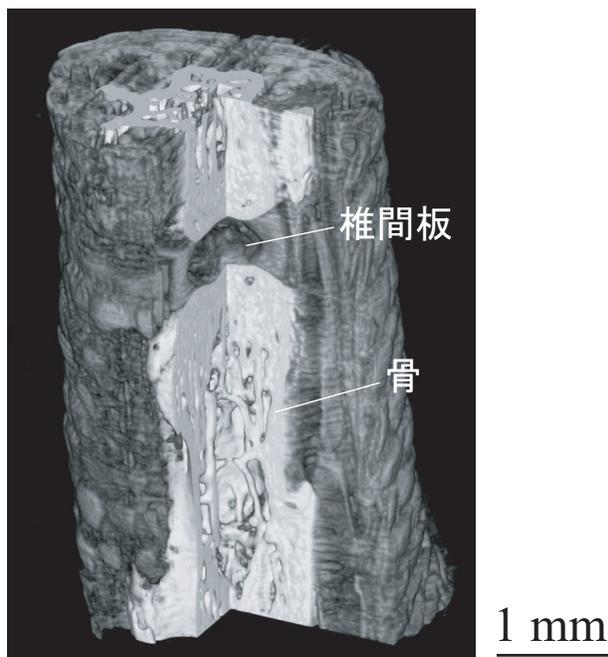


図 6: DEI による X 線位相 CT で計測したラット尾¹⁴。

5 各手法の特徴

ここまで、三つの手法による X 線位相 CT を紹介してきた。行った実験は必ずしも同じ条件で行ったものではないが、ここで、それぞれの空間分解能と濃度分解能に関する議論を試みる。空間分解能は、再構成画

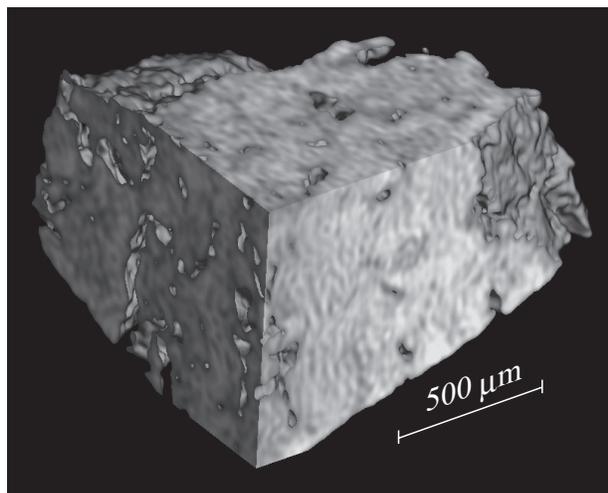


図 7: タルボ干渉計による X 線位相 CT で計測したラット腎臓組織¹⁶。

表 1: 本研究で示した各方式に基づく X 線位相 CT 画像の比較。

項目	LLL	DEI	タルボ
X 線エネルギー (keV)	17.7	17.7	12.4
画素サイズ (μm)	3.14	8.3	3.14
空間分解能 (μm)	10	25	28*
密度分解能 (mg/cm^3)	3.6	10.5	4.5

* 周期 $8 \mu\text{m}$ の回折格子を使用

像面内において、試料の表面部分などのコントラスト変化が激しい部位において、プロファイル微分の半値幅で与えた。濃度分解能は、均一な部位（実際には試料周辺の水）でのノイズの標準偏差の 3 倍で評価した。なお、 δ は電子密度にほぼ比例し、且つ、軽元素からなる物質については質量密度にも比例すると近似できる。したがって、濃度分解能を密度分解能として表現する。表 1 に結果をまとめた。使用した X 線画像検出器の画素サイズ、X 線源の輝度、X 線エネルギーなど、必ずしも比較を念頭に揃えたものではないが、各手法のおおよその特徴が整理できるであろう。

まず、微分干渉に基づく方法（3 節および 4 節）では、屈折が大きいほど強いコントラストが得られる。それに反して、干渉に基づく方法（2 節）では、屈折が大きいほど干渉縞が細くなり、解像が難しくなってくる。すなわち、両者がそれぞれ得意とする感度領域は重複しない。干渉に基づく方法は軟組織に強いが、X 線を大きく屈折させる骨などがあると、観察が難しくなるのに対し、微分干渉に基づく方法では骨などがあっても撮像が容易である反面、軟組織に対する感度はある程度低くなっている。このように、干渉に基づく方法は最も感度が高く、微分干渉に基づく方法は、吸収コントラスト法の感度領域までをカバーしていると捉えることができよう。

6 まとめ

X 線位相 CT は、LLL 干渉計を用いる干渉法から始まった。現在複数の方式で X 線位相 CT が実施可能となっているが、ここでは 2 種類の微分干渉法に基づく実験も紹介した。それぞれの原理から判断して、また実験結果から示唆されるとおり、干渉法による X 線

位相CT 微分干渉法によるX線位相CT 従来型X線CTという関係で、それぞれの感度領域が整理できる。試料によってこれらを相補的に利用することにより、効果的な三次元撮像研究が展開できるであろう。

謝辞

本研究において、生体試料は筑波大学、武田徹講師および呉勤博士の協力によるものであり、PS/PMMAブレンド試料の作製には、京都工芸繊維大学の陣内浩司助教授の協力を賜った。実験は、SPring-8 利用研究課題 2003A0459-NML2-np、および物質構造科学研究所共同利用研究課題 2003G224 により行われた。LLL干渉計の開発研究は、文部科学省、科学技術振興調整費総合研究「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」によるものである。

参考文献

- [1] A. Momose, *Nucl. Instrum. & Methods A* **352** (1995) 622.
- [2] F. A. Dilmanian, Z. Zhong, B. Ren, X. Y. Wu, L. D. Chapman, I. Orion, and W. C. Thomlinson, *Phys. Med. Biol.* **45** (2000) 933.
- [3] I. Koyama, Y. Hamaishi, and A. Momose, *AIP Proc.* Vol. 705 (2004) 1283.
- [4] A. Momose, I. Koyama, Y. Hamaishi, S. Kawamoto, K. Takai, K. Uesugi, and Y. Suzuki, *AIP Proc.* Vol. 705 (2004) 1259.
- [5] P. Cloetens, W. Ludwig, J. Baruchel, D. Van Dyck, J. Van Landuyt, J. P. Guigay, and M. Schlenker, *Appl. Phys. Lett.* **75** (1999) 2912.
- [6] U. Bonse and M. Hart, *Appl. Phys. Lett.* **6** (1965) 155.
- [7] A. Momose, I. Koyama, Y. Hamaishi, H. Yoshikawa, T. Takeda, J. Wu, Y. Itai, K. Takai, K. Uesugi, Y. Suzuki, *J. Phys. IV* **104** (2003) 599.
- [8] J. H. Bruning, D. R. Herriott, J. E. Gallagher, D. P. Rosenfeld, A. D. White, and D. J. Brangaccio, *Appl. Opt.* **13** (1974) 2693.
- [9] M. Takeda, H. Ina, and S. Kobayashi, *J. Opt. Soc. Am.* **72** (1982) 156.
- [10] A. Momose, *Optics Express* **11** (2003) 2303.
- [11] A. Momose, A. Fujii, H. Kadowaki, Y. Nishikawa, and H. Jinnai, *Macromolecules* **38** (2005) 7197.
- [12] T. J. Davis, D. Gao, T. E. Gureyev, A. W. Stevenson, and S. W. Wilkins, *Nature* **373** (1995) 595.
- [13] D. Chapman, W. Thomlinson, R. E. Johnston, D. Washburn, E. Pisano, N. Gmür, Z. Zhong, R. Menk, F. Arfelli, and D. Sayers, *Phys. Med. Biol.* **42** (1997) 2015.
- [14] I. Koyama, A. Momose, J. Wu, Thet Thet Lwin, and T. Takeda, *Jpn. J. Appl. Phys.*, in press.
- [15] A. Momose, S. Kawamoto, I. Koyama, Y. Hamaishi, K. Takai, Y. Suzuki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **42** (2003) L866.
- [16] A. Momose, S. Kawamoto, I. Koyama, Y. Suzuki, *SPIE Proc.* Vol. 5535 (2004) 352.

位相 X 線イメージングを用いた生体試料観察

武田 徹

筑波大学大学院人間総合科学研究科

X線は、光と同様に物質と相互作用し屈折する。原子1個に対する屈折の感度は、生体構成元素に対して従来の透過信号より約1000倍高い[1-2]。そのため、生体軟部組織の微妙な密度差を高感度に検出できる屈折情報を捉えた新しい生体イメージングが可能となる。この屈折の違いを捉え画像化する位相型X線イメージング、1)干渉計法、2)アナライザー法、3)平行度の高いX線を用いた屈折法が試みられている。これらの中でX線干渉計[3]を利用した技術は、最も感度が高く物質の微妙な密度差を計測する事ができる。実際、本法により種々の生体組織内構造の3次元的な描出に加え、生きたマウスに移植した癌の画像化に成功したので、これらの成果を報告する。

研究の経過

研究が始まった1994年から1998年までは、使用できる干渉計が小さく撮影視野が5mm角と限られていたが、位相型X線CTにより癌組織の詳細な画像化が可能になると、世界中で本法が注目を浴びるようになった[4]。1997年より6年間、文部科学省振興調整費の補助を受け、干渉計を用いた大視野生体イメージング装置の基礎的な技術開発研究が行われた。初期の目標は、乳腺撮影で用いられる撮影エネルギー18keVで、20mm角の画像を撮影できる一体型と分離型[5]の干渉計システムを開発する事であった。また、本研究は高エネルギー加速器研究機構の特別推進課題に選定され、1999年にビームライン改造(BL14C)がなされ、一体型で30mm角、分離型で30mmx60mmの視野が、さらに2004年秋の改造で入射ビームの高さが70mmとなり、より大視野の画像が得られるようになって来ている。

位相 X 線 CT 像

X線干渉計システムにより種々の摘出癌標本や動物試料の位相X線CT画像を収集した。癌の密度(屈折率は密度に対応)は、肝臓癌、大腸癌で正常組織に比べ低い事が示された[6]。また、ホルマリン非固定標本でも、癌はホルマリン固定のものと同様に低密度な画像として示された[7]。大きな試料を撮影するには、試料によるX線の吸収が問題となるので、吸収の少ない35keVの高エネルギーX線で撮影を行ったが、著明な画像コントラストの低下は見られない事が明らかとなった[8]。大型試料における位相X線CTにおいて、高エネルギーX線での撮影は非常に重要になると考えられた。

生きたマウスに移植した癌の位相 X 線 CT 像

生きたマウス臀部に移植した直径約10mmの癌部の位相X線CT像を、位相型X線装置により世界で初めて撮影する事に成功した。皮膚、薄い筋層、癌の部位が描出されている(図1)[9]。撮影X線

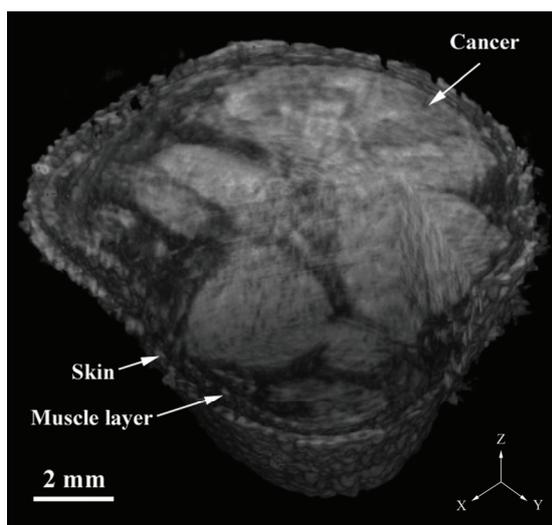


図1 生きた担癌モデル(ヌードマウス)の腫瘍部位の位相X線CT画像

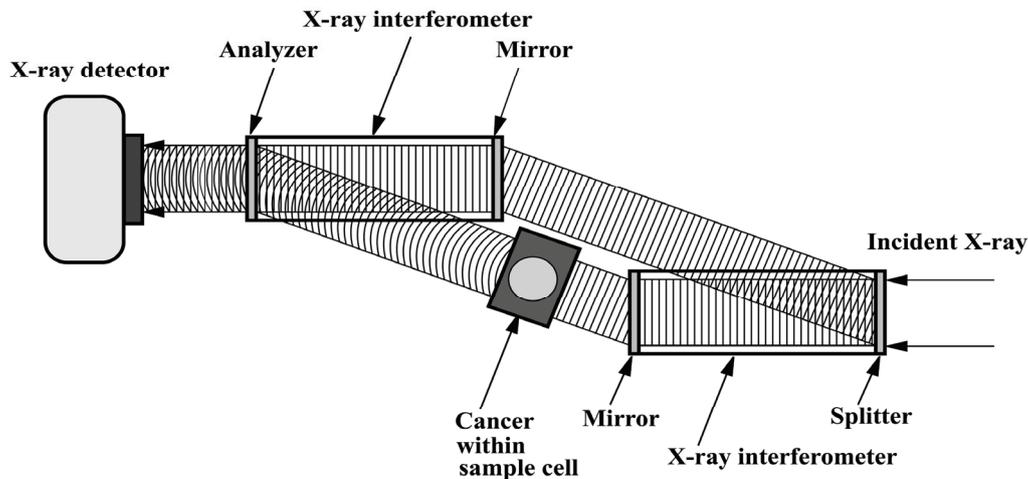


図2 分離型位相X線 system

エネルギーは 35 keV で、麻酔下で約 1 時間の撮影時間を有した。被射体と干渉計の歯との距離を広げる事が可能で、生きた被射体からの体温の影響を除去できる分離型X線干渉計システム(図2)は、位相X線撮像技術による in-vivo 撮影には不可欠であった。

位相型X線マモグラフィー

本研究では、本法の最初の臨床応用として、乳癌の診断を考え位相型X線マモグラフィーの可能性を追求した。乳腺撮影は、微細な石灰化や軟部組織病変を検出するために約 18keV の 低エネルギーX線が用いられているので、同じX線エネルギーで摘出乳癌組織の位相X線投影像を撮影した。しかし、乳癌組織は、脂肪、軟部組織、微細石灰化を含む非常に複雑な構造体で、密度差の変化が非常に多いため得られた干渉縞が重なり合い画像再構成(アンラップ処理)がほとんどの症例でできなかった。この問題を解決するため、画像感度が多少低下するが、撮影エネルギーを 18keV から 51keV に高め画像収集する事により、画像再構成が可能となった[10]。画質は、従来の透過X線法と比べ格段と良好で、従来の吸収X線では全く描出されない軟部組織病変や小さな転移性腫瘍、さらに 0.036mm の微細石灰化の検出も可能であった。また、高エネルギー化により被射体の被曝が大幅に低減されうる可能性が示された。

2-3 位相型X線イメージングの将来展望

位相X線イメージングにより、ホルマリン固定標本、さらには生きた生体の撮影にも成功した。また、2004 年秋の改造で入射ビームの高さが 70mm となり、さらに大視野の画像が得られるようになって来ている。現時点での最大の問題は、検出器として使用しているX線 CCD カメラの感度が低く且つ画像データの計算への転送が遅い点である。生きた生体試料を撮影するためには、麻酔下での撮影時間を短縮しないと体動等の影響により画像がブレてしまうので、高速撮像が不可欠である。最近、現在使用している撮像装置の 5 倍以上の速度で画像収集できる検出器も開発されており、これらの装置導入を計画している。また、密度差の大きな試料を高い空間分解能で撮影するために、高エネルギーで撮影可能な高精度な薄型干渉計と干渉計システムの開発も重要となって来ている。

4. まとめ

干渉計を用いた位相型X線イメージング装置により得られた生体試料の撮影結果を紹介した。この技術を21世紀の新しいX線画像技術として利用するために、多くの試料を短時間で撮影できる高速データ収集技術の確立が急務になって来ている。

謝辞

本研究は、科学技術庁振興調整費等の補助を得て行われた。実験結果は、筑波大学の呉勁、Thet-Thet-Lwin、土屋佳則、D. V. Rao、日立製作所基礎研究所の米山明男、平井康晴、東京大学の百生敦、小山一郎、高エネルギー加速器研究機構の兵藤一行、平野馨一の協力により得られた。実験実施に対し、ビームラインの整備や実験時間を優先的に配分していただいている高エネルギー加速器研究機構に深謝いたします。また、使用したセル等の作製に協力していただいた筑波大学の小林浩三氏に感謝致します。

[文献]

1. Momose A, Fukuda J. : Phase-contrast radiographs of nonstained rat cerebellar specimen. *Med. Phys.* 22: 375-379, 1995
2. Takeda T, Momose A, Itai Y. : Phase-contrast imaging with synchrotron x-rays for cancer lesion. *Acad. Radiol.* 2: 799-803, 1995
3. Bonse U, Hart M. : An X-ray interferometer. *Appl. Phys. Lett.* 6: 155-156, 1965
4. 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
5. Yoneyama A, Takeda T, Tsuchiya Y, et. al. : A phase-contrast X-ray imaging system-with a 60x30mm field of view-based on a skew-symmetric two-crystal X-ray interferometer. *Nucl. Instrum. Meth. A* 523: 217-222, 2004
6. 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
7. Takeda T, Momose A, Wu J, et. al. : Phase-contrast x-ray computed tomography of non-formalin fixed biological objects. *Nucl. Instrum. Meth. A* 467-468, 1322-1325, 2001
8. Takeda T, Wu J, Tsuchiya Y, et. al. : Interferometric phase-contrast X-ray CT image of VX2 rabbit cancer at 35keV x-ray energy. *AIP Conf. Proc.* 705:1328-1331, 2004
9. Takeda T, Yoneyama A, Wu J, et. al. : In-vivo imaging of cancer implanted in nude mice by two-crystal interferometer-based phase-contrast x-ray CT. *Jpn J Appl Phys* 43:L1144-L1146, 2004
10. Takeda T, Wu J, Tsuchiya Y, et. al. : Interferometric X-ray imaging of breast cancer specimens at 51 keV X-ray energy. *Jpn J Appl Phys* 43:5652-5656, 2004

X線屈折コントラスト法の金属学への応用

島根大学総合理工学部

水野 薫

金沢大学医学部

岡本博之

長崎大学教育学部

古谷吉男

1. はじめに

古くは水素脆化による鋼鉄の破断の問題から近年は水素吸蔵合金の開発を目指した研究にみられるように、水素と金属の相互作用の解明は金属学の主要な研究テーマの一つである。このような広範囲にわたる研究において、金属中の水素または水素化物の検出はアイソトープを用いる場合を除けば、電気抵抗や磁化率さらには分解放出させた水素を質量分析計で検出するなど、間接的な検出方法を用いていた。直接観察はその必要性が深く認識されていたにも関わらず、その手段は皆無に等しかった。すなわち、従来のX線吸収コントラスト法はもとより、電子顕微鏡を用いても特殊な場合を除き、観察することは不可能であった[1]。

最近、放射光の利用によりX線屈折コントラスト法が医学利用を中心に進展し、X線結晶学の専門家でなくてもこの方法を用いることができるような状況が実現している。そこで、構造材料、機能材料の両方面において高度の利用が期待されているチタンを用いて、X線屈折コントラスト法で水素化物の直接観察を試みた。まず高度なX線光学系を必要としないX線 Refraction-enhanced imaging 法[2]により、水素焼鈍したチタンおよび電解チャージ法により表面に水素化物を形成させたチタン試料の断面の観察を行った。この方法で水素化物の観察が可能であった[3]。しかし、試料の圧延、成型等の前処理において屈折像と吸収像の分離が難しくなる欠陥の発生が明らかになった。そこで屈折像の分離が容易であるX線 Diffraction-enhanced imaging 法[4]により、同様な試料中の水素化物を観察した結果について報告する。

2. 実験方法

本研究で用いた試料は純度 99.99at%のチタン多結晶である。試料のサイズは 5 X 10 X 1 mm 程度である。成形に際して圧延した結晶と圧延していない2種類の試料を準備した。まず 800°Cで1時間真空焼鈍を行った。次に結晶中に水素化物を生成させるため、1気圧の水素ガス中で 560°C, 20分および 60分の焼鈍を行った。ガスチャージした試料とは別に電解チャージにより表面だけ水素化物を作製し、その断面を観察できるようにした試料も準備した。電解チャージは1規定の硫酸中で 5mA/mm²の電流密度で 20時間行った。電解チャージの後に 1mm厚に切り出した。なお、電解チャージ後に 550°C, 1時間の真空焼鈍で水素化物を熱分解した断面観察用試料も作製した。

X線 Diffraction-enhanced imaging 法による屈折写真の撮影は KEK-PF の BL-14Bで行った。実験装置の配置は図1に示す。垂直ウイグラーからの白色X線をモノクロメータで 10keVの単色X線にしたのち、コリメータ結晶(Si, 220, 10° off)でビームサイズを拡大した。この後、1mm厚のアルミニウム板で基本波を吸収し、3倍高調波の 30keV X線だけを試料に照射した。試料を透過したX線をアナライザー結晶(Si, 220)

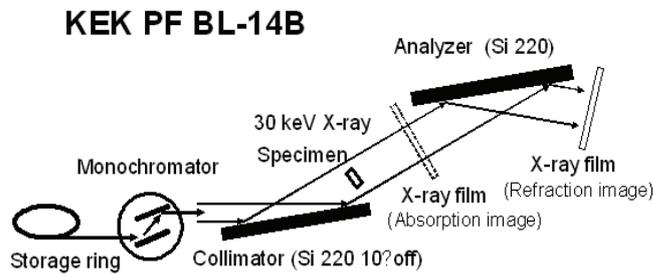


図1. 実験装置

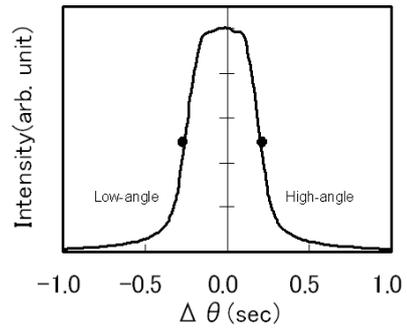


図2. ロッキングカーブ

で回折した後にX線フィルム(Kodak, Min-R2000)で撮影した。撮影時間は2, 3分を要した。撮影に際して, X線ビームが必ず試料表面に垂直に入射するように試料を回転した。なお, アナライザ結晶の前にフィルムを設置して, 吸収コントラスト写真も撮影した。

3. 実験結果と考察

図2に試料を透過後にアナライザーで回折したX線のロッキングカーブを示す。試料は真空焼鈍後の純チタン結晶である。撮影条件はロッキングカーブにおいて黒丸で示してある。すなわち, ピーク位置から低角側には 0.30", 高角側には 0.25" の offset 位置で持っている。図3に図2で示した低角, 高角側で撮影した屈折写真を示す。この写真において水平の太い筋はモノクロメータの汚れである。縦の細い筋は圧延時の表面の傷である。矢印で示されている画像は内部に存在していたポロシティ欠陥が圧延により潰されてできた傷である。この傷の一部は表面に達しており, 光学顕微鏡写真で観察できた。このように空気を含んでいる傷は屈折率の差が大きいいため, 鮮明な画像が得られている。図3の四角で囲んだ領域の拡大写真を図4に示す。図4の(a)は低角側の写真, (b)は高角側の写真である。図4に右下がりの斜めに白黒のコントラストを示す像がみられるが, (a)では左側が白, 右側が黒であるのに対して, (b)では白黒が逆転している。このことはこの像がX線の屈折により生じていることを示している。図5は図3の写真を撮影後に水素ガス中で焼鈍した試料の低角側と高角側の屈折コントラスト写真を示す。図5で示す写真には図4に示す画像以外に弱

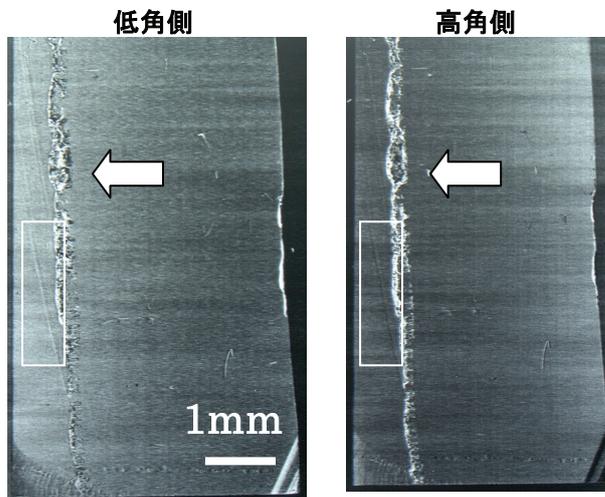


図3. 真空焼鈍後の試料の屈折写真

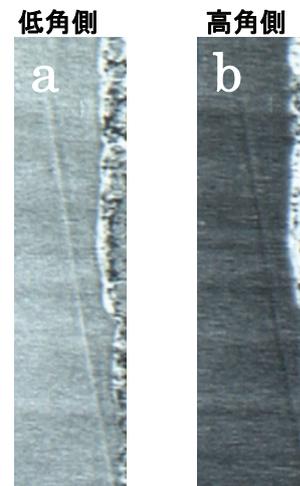
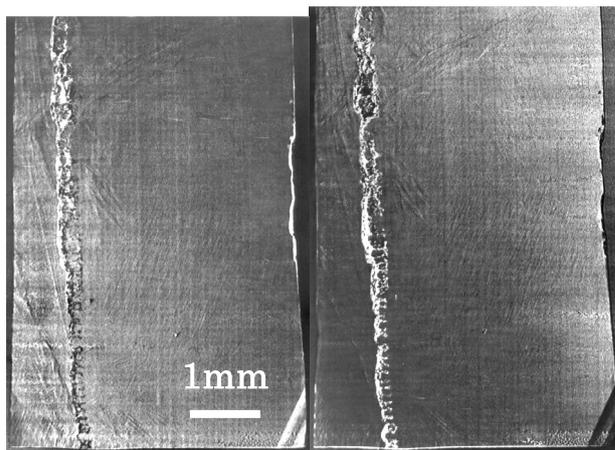


図4. 白枠内の拡大写真



低角側 高角側
図5. 水素焼鈍した試料の屈折写真

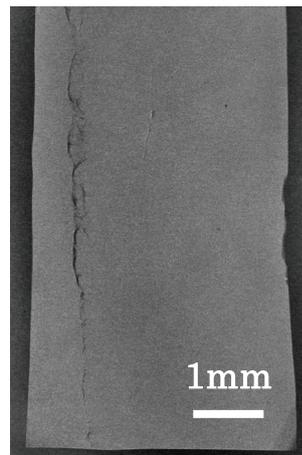
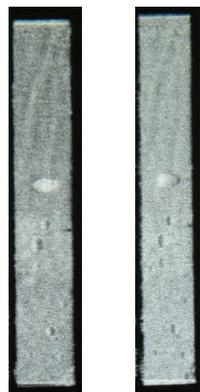


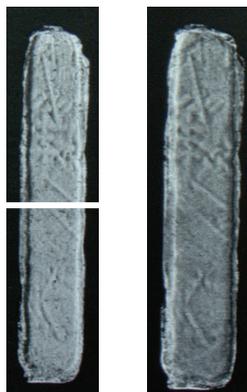
図6. 吸収コントラスト写真

い曲がった筋状のコントラストが観察できる。そしてその像は低角側で撮影した写真と高角側の写真で白黒のコントラストが反転している。このことから曲がった筋状の像の正体は水素焼鈍により形成された水素化物であり、屈折コントラスト法により検出できることを示している。図6に同じ試料の吸収コントラスト写真を示す。この図には図5に見られる筋状の像が見られないことから屈折コントラスト法によって水素化物を可視化できることが確かめられた。しかしながら、図5に示される水素化物は高温で形成されたため、その形状が複雑でそこから物理的な情報を得ることは難しそうである。そこで、単純な形の水素化物が形成されるような低温(室温)での水素添加が可能な電解チャージを行った。チタン中の水素の拡散の活性化エネルギーは約0.5eVと大きいため、電解チャージ法では試料の表面にしか水素化物は形成されない[4]。そこで試料の断面を観察できるようにチャージ後の試料を切断・整形した。図7に水素添加前の試料の断面を観察した低角側と高角側の屈折コントラスト写真を示す。この図には結晶の上下にエッジの影響による白い像とポロシティ欠陥が見られるほかは何もない。図8に電解チャージした試料の断面の低角側と高角側の屈折コントラスト写真を示す。この写真には試料の周辺部に水素化物の像が見られる。そして高角側と低角側の写真で白黒のコントラストが反転しているが、その他に同一の写真の右側と左側で水素化物の像が白黒反転している。図9に電解チャージ後に真空焼鈍により水素化物を分解させた試料の断面の屈折写真を示す。この写真では多少の痕跡が認

低角側 高角側



低角側 高角側



低角側 高角側

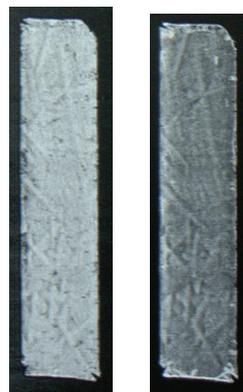


図7. 電解チャージ前

図8. 電解チャージ後

図9. 電解チャージ後焼鈍

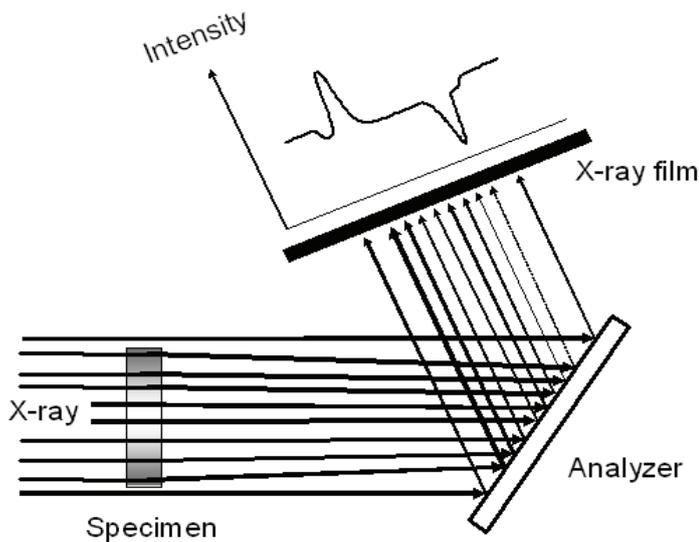


図10. コントラストの反転の理由



電解チャージ前 チャージ後
図11. チタン・アルミニウム合金

められるが、表面層の水素化物は分解・消滅していることがわかる。また、図8、9では試料に中央部に水素化物に修飾された二次的な α 相も見られる。図8で水素化物の像が試料の右側と左側で反転していた理由の説明を図10に示す。水素化物の濃度勾配により中央方向に屈折したX線はアナライザーにより回折する。このときこの図で上方方向に屈折したX線に回折条件がきちんと合っているとすると、下方に屈折したX線は回折条件からずれるため、回折強度は非常に弱くなる。その他のX線はある程度回折条件に合っているため、回折後のX線強度は上または下方に屈折したX線の中間の強度を示す。それがフィルムに記録されるが、そのときの強度分布は図に示されたようになる。この強度分布は図8の低角側の写真の水平な白線に沿っての強度分布と同様になる。つまり、同一写真の右端と左端における白黒の反転は水素化物の分布の濃度勾配に起因することがわかる。図11にチタン・アルミニウム合金の低角側の写真を示す。この写真には水素添加前後の写真に変化はほとんど見られない。すなわち、アルミニウムがチタンの水素化を阻止しているものと考えられる。

以上の結果からチタン中の水素化物の可視化がX線屈折コントラスト法で可能である事が示された。チタンとチタン水素化物のX線に対する屈折率の差がわずかに 10^{-8} しかないにも関わらず、区別できたことから、水素化物に限らず多元系の合金においてそれら構成する成分を可視化できる可能性が明らかになった。

参考文献

- [1] K. Aoyagi, E. P. Torres, T. Suda, S. Ohnuki: J. Nuclear Materials **283-287** (2000) 876
- [2] N. Yagi, Y. Suzuki, K. Umetani, Y. Kohmura and K. Yamasaki: Med. Phys. **26**(1999), 2190.
- [3] K. Mizuno, H. Okamoto, K. Kajiwara, M. Kuga, Y. Furuya and K. Kawasaki: Trans. Mater. Res. Soc. Jpn. **29** (2004) 3337.
- [4] D. C. Chapman, W. Thomlinson, R. E. Johnston, D. Washburn, E. Pisano, N. Gmur, Z. Zhang, R. Menk, F. Arfel and D. Sayers: Phys. Med. Biol. **42** (1997) 2015.
- [5] H. Wipf, B. Kappesser and R. Werner: J. Alloys and Compounds **310**(2000), 190.

臨床応用のためのX線暗視野法の開発

杉山弘^{1,2}, 国定俊之³, 島雄大介², 武田健³, 兵藤一行^{1,2}, 橋詰博行³,
井上一³, 安藤正海^{1,2}

KEK-PF¹, 総研大², 岡山大・医³

X線が物体を通過する際の屈折角 $\Delta\alpha$ は通常 10^{-6} rad程度以下と極めて小さく、

$$\Delta\alpha \approx \frac{1}{k} \frac{\partial\phi(x)}{\partial x}$$

ここで k はX線の波数、 $\phi(x)$ は z 方向に進行するX線の伝播関数 $\psi(x, z) = \psi_0 \exp[ikz + i\phi(x)]$ とした場合の物体による位相の変化分を意味する。物体による位相変化は吸収に比べて桁違いに大きく特に軽元素では 1000 倍程度感度が高くなる。したがってX線の位相情報を反映した屈折を利用すれば通常の吸収像に比べて非常に感度の高いイメージングを行うことができる。比較的軽元素だけで構成された生体物質や医学試料などは吸収像ではコントラストのつきにくいため、位相情報によるイメージングが適している。特に対象物のサイズが大きく試料の透過強度を保つために 30 keV程度以上の硬X線を利用しなければならない臨床応用には最適と言える。ただし、実際に臨床応用を実施するためには 10cm角程度の視野を確保することが必須である。

筆者らが開発を行ってきた X 線暗視野法は、物体で屈折した X 線をアナライザによって分離し、屈折成分だけで画像化する方法である。他の位相関連イメージングに比べて比較的簡単な光学系で十分な感度や分解能が得られることから臨床応用へ向けての視野の大型化を進めてきた。ここではその現状について報告する。

微小な屈折情報を十分に取り出すために、コリメータによってX線ビームの発散角を、試料での屈折角よりも小さくして試料に入射する。試料後方位置にアナライザ結晶を設置し、試料が無い場合には入射ビームがアナライザによって全て回折する

ようにする。このときアナライザで回折されるビームの発散角がコリメータからのX線ビーム発散角と同程度であることが必要である。この条件では試料によって屈折したX線ビームはアナライザに対してはブラッグ条件から外れるため、回折されずにアナライザをそのまま透過する。一方試料による単純な吸収や前方散乱成分はアナライザによって全て回折され、ビームの進行方向が屈折成分からは大きく逸れることになる。

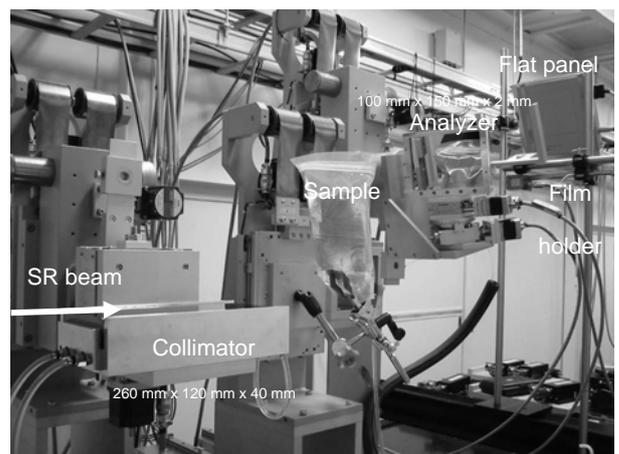
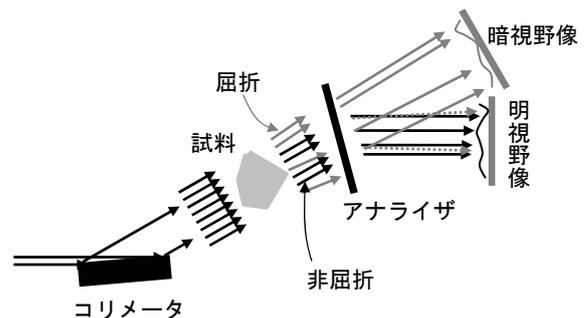


図1 実験配置図

こうして試料による屈折成分はアナライザ透過方向（暗視野像）に、それ以外の成

分はアナライザ回折方向（明視野像）に分離して画像化がすることができる。

実験は SPring-8 の BL20B2 で行った。33 keV の X 線を用い、厚さ約 2~3mm の Si 440 回折アナライザを用いた。実験配置を図 1 に示す。光学結晶の角度安定性を保つために室温で 1/100°C 程度に安定化した水を結晶ホルダーに循環させている。またアナライザ結晶の湾曲を防ぎ、X 線強度の減衰を極力避けるために両面を鏡面研磨した Be 板でアナライザ結晶をサポートしている。視野は 90mm×90mm である。

このような光学系を用いて実際に献体より摘出した大腿骨頭（図 2）、肩関節部（図 3）の撮影を行い、通常吸収像では検出できない軟骨の撮影に成功した。とくに肩関節部の撮影では皮膚や筋肉組織などが付いた状態で撮影を行い、ほぼ通常の臨床応用と同じ条件で軟骨撮影に成功している。

今後の課題としては撮影時間の短縮や視野の均一化、15cm 角程度までの大視野化、被曝量の低減、などがある。また、実際の臨床に向けては PF-AR での展開が最適であるとの観点から、SP-8 で行ってきたものと同等の光学系の展開を進めている。

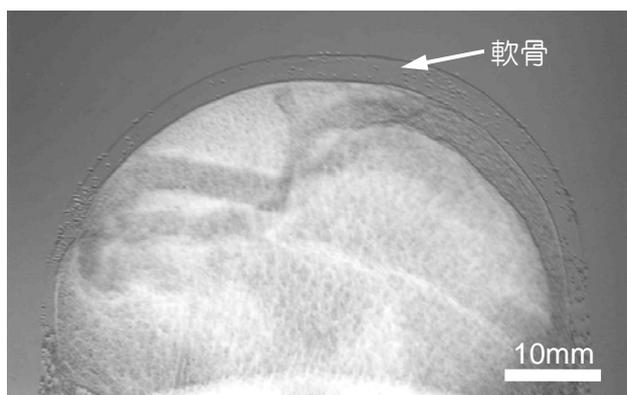


図 2 献体より摘出した大腿骨頭の暗視野像。大腿骨頭部分を水中に入れ、原子核乾板で撮影を行った。撮影時間は約 5 分

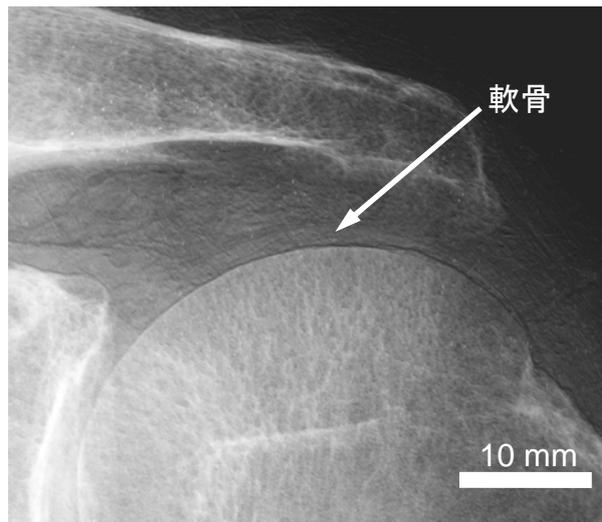


図 3 献体より摘出した肩関節部分の暗視野像。ここでは筋肉や皮膚組織が付いた状態で、ほぼ臨床応用と同じ条件で撮影を行った。撮影時間は約 15 分で原子核乾板を使用した。

5. 参加者リスト 五十音順

- 青木 貞雄 (筑波大学数理物質科学研究科教授)
〒305-8573 茨城県つくば市天王台 1-1-1
TEL:029-853-5299 FAX:029-853-5205 e-mail:aoki@bk.tsukuba.ac.jp
- 足立 伸一 (KEK-PF 助教授)
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1
e-mail:shinichi.adachi@kek.jp
- 安達 弘通 (KEK-PF 助手)
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1
e-mail:hiromichi.adachi@kek.jp
- 飯田 厚夫 (KEK-PF 教授)
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1
e-mail:atsuo.iida@kek.jp
- 石川 哲也 (独立行政法人理化学研究所播磨研究所 X 線干渉光学研究室主任研究員)
〒679-5148 兵庫県佐用郡三日月光都 1-1-1
TEL:0791-58-2805 FAX:0791-58-2807 e-mail:ishikawa@spring8.or.jp
- 伊藤 健二 (KEK-PF 助教授)
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1
e-mail:kenji.ito@kek.jp
- 稲田 康宏 (KEK-PF 助教授)
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1
e-mail:yasuhiro.inada@kek.jp
- 岩住 俊明 (KEK-PF 助教授)
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1
e-mail:toshiaki.iwazumi@kek.jp
- 上エ地 義徳 (東京大学大学院新領域創成科学研究科助手)
〒277-8561 千葉県柏市柏の葉 5-1-5
e-mail:ueji@k.u-tokyo.ac.jp
- 植村 知正 (関西大学工学部システムマネジメント工学科教授)
〒564-8680 吹田市山手町 3-3-35
e-mail:umra@kansai-u.ac.jp
- 大原 弘 (コニカミノルタエムジー(株))
〒192-8505 東京都八王子市石川町 2 9 7 0
e-mail:hiromu.oohara@konicaminolta.jp

籠島 靖 (兵庫県立大学大学院物質理学研究科教授)
〒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.u-hyogo.ac.jp

加藤 龍一 (KEK-PF 助教授)
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1
e-mail:ryuichi.kato@kek.jp

神山 崇 (KEK-KENS 助教授)
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1
e-mail:takashi.kamiyama@kek.jp

河田 洋 (KEK-PF 教授)
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1
e-mail:hiroshi.kawata@kek.jp

神原 一暁 (東京大学大学院新領域創成科学研究科雨宮研究室学部学生)
〒277-8561 千葉県柏市柏の葉 5-1-5

北島 義典 (KEK-PF 助手)
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1
e-mail:yoshinori.kitajima@kek.jp

栗山 徹 (東京大学大学院新領域創成科学研究科修士課程 1 年)
〒277-8561 千葉県流山市美原
e-mail:kuriyama@x-ray.k.u-tokyo.ac.jp

郷原 一寿 (北海道大学大学院工学研究科応用物理学専攻教授)
〒060-8628 札幌市北区北 1 3 条西 8 丁目
e-mail:gohara@eng.hokudai.ac.jp

香村 芳樹 (独立行政法人理化学研究所)
〒679-5148 兵庫県佐用郡三日月光都 1-1-1
TEL:0791-58-2806 FAX:0791-58-2807 e-mail:kohmura@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
e-mail:kojima@kohzu.co.jp

小山 貴久 (兵庫県立大学大学院物質理学研究科博士後期課程 2 年)
〒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:koyama@sci.himeji-tech.ac.jp

櫻井 辰幸 (兵庫県立大学大学院物質理学研究科博士前期課程 2 年)
〒678-1297 兵庫県赤穂郡上郡町光都 3-2-1
e-mail:t-sakura@spring8.or.jp

清水 孝文（東京大学大学院新領域創世科学研究科学部 4 年）
〒277-8561 千葉県柏市柏の葉 5-1-5
e-mail:shimizu@x-ray.k.u-tokyo.ac.jp

新田 裕子（コニカミノルタエムジー(株)）
〒192-8505 東京都八王子市石川町 2 9 7 0
e-mail:yuuko.shinden@konicaminolta.jp

杉山 弘（KEK-PF 助手）
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1
TEL:029-864-5200 FAX:029-864-3202 e-mail:hiroshi.sugiyama@kek.jp

鈴木 芳生（財団法人高輝度光科学研究センター利用研究促進部門Ⅱ）
〒679-5148 兵庫県佐用郡三日月光都 1-1-1
TEL:0791-58-0833 FAX:0791-58-0830 e-mail:yoshio@spring8.or.jp

高野 秀和（兵庫県立大学大学院物質理学研究科助手）
〒678-1297 兵庫県赤穂郡上郡町光都 3-2-1
TEL:0791-58-0233 FAX:0791-58-0236 e-mail:htakano@sci.u-hyogo.ac.jp

高橋 幸生（理化学研究所播磨研究所石川 X 線干渉光学研究室基礎科学特別研究員）
〒679-5148 兵庫県佐用郡三日月町光都 1-1-1
e-mail:yukio@spring8.or.jp

高橋 敏男（東京大学物性研究所教授）
〒277-8581 千葉県柏市柏の葉 5-1-5
e-mail:ttaka@issp.u-tokyo.ac.jp

高見沢 忠（東京大学大学院新領域創成科学研究科物質系修士課程 2 年）
〒277-8561 千葉県柏市柏の葉 5-1-5
e-mail:takamizawa@x-ray.k.u-tokyo.ac.jp

竹内 晃久（財団法人高輝度光科学研究センター）
〒679-5148 兵庫県佐用郡三日月光都 1-1-1
TEL:0791-58-0833 FAX:0791-58-0830 e-mail:take@spring8.or.jp

武田 徹（筑波大学大学院人間総合科学研究科講師）
〒305-8575 茨城県つくば市天王台 1-1-1
TEL:029-853-3887 FAX:029-853-3658 e-mail:ttakeda@md.tsukuba.ac.jp

武田 佳彦（筑波大学数理物質科学研究科博士課程 4 年）
〒305-8573 茨城県つくば市天王台 1-1-1
e-mail:takeda@mml.k.u-tokyo.ac.jp

竹中 久貴（NTT-AT）
〒319-1193 茨城県那珂郡東海村白方白根 162
e-mail:takenaka@ibaraki.ntt-at.co.jp

玉作 賢治 (独立行政法人理化学研究所播磨研究所 X 線干渉光学研究室)
〒679-5148 兵庫県佐用郡三日月光都 1-1-1
TEL:0791-58-2806 FAX:0791-58-2807 e-mail:tamasaku@spring8.or.jp

張 小威 (KEK-PF 助手)
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1
e-mail:zhang.xiaowei@kek.jp

中山 貫
並河 一道 (東京学芸大学教育学部物理学科教授)
〒184-8501 東京都小金井市貫井北町 4-1-1
TEL:042-329-7481 FAX:042-329-7481 e-mail:namikawa@u-gakugei.ac.jp

新部 正人 (兵庫県立大学高度産業科学技術研究所助教授)
〒678-1205 兵庫県赤穂郡上郡町光都 3-1-2
TEL:0791-58-0468 FAX:0791-58-0242 e-mail:niibe@lasti.u-hyogo.ac.jp

西野 吉則 (独立行政法人理化学研究所播磨研究所)
〒679-5148 兵庫県佐用郡三日月光都 1-1-1
TEL:0791-58-0802 FAX:0791-58-2807 e-mail:nishino@spring8.or.jp

芳賀 恒之 (NTTマイクロシステムインテグレーション研究所ユビキタスインターフェ
ース研究部バイオセンシング研究グループ)
〒243-0198 神奈川県厚木市森の里若宮 3-1
TEL:046-240-2644 FAX:046-240-4728 e-mail:haga@aecl.ntt.co.jp

林 好一 (東北大学金属材料研究所助教授)
〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1
TEL:022-215-2078 FAX:022-215-2076 e-mail:khayashi@imr.tohoku.ac.jp

樋口 直輝 (東京大学大学院新領域創成科学研究科修士課程 1 年)
〒277-8561 千葉県柏市柏の葉 5-1-5
TEL:04-7166-3997 FAX:04-7166-3997 e-mail:higuchi@mml.k.u-tokyo.ac.jp

平井 暢 (立命館大学理工学研究科博士課程)
〒525-0055 滋賀県草津市野路東 1-1-1
e-mail:thv21016@se.ritsumei.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

本田 凡 (コニカミノルタエムジー株)
〒192-8505 東京都八王子市石川町 2 9 7 0
TEL:0426-60-9604 FAX:0426-60-9588 e-mail:chika.honda@konicaminolta.jp

間瀬 一彦 (KEK-PF 助教授)
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1
e-mail:kazuhiko.mase@kek.jp

松下 正 (KEK-PF 教授)
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1
e-mail:tadashi.matsushita@kek.jp

水野 薫 (島根大学総合理工学部助教授)
〒690-8504 島根県松江市西川津町 1060
TEL:0852-32-6404 FAX:0852-32-6409 e-mail:mizuno@riko.shimane-u.ac.jp

百生 敦 (東京大学大学院新領域創成科学研究科助教授)
〒277-8651 千葉県柏市柏の葉 5-1-5
TEL:03-7136-5470 FAX:04-7136-4058 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
e-mail:mori@ipu.ac.jp

森竹 雅史 (東京大学新領域創成科学研究科学部 4 年)
〒277-8561 千葉県柏市柏の葉 5-1-5
TEL:04-7166-3997 FAX:04-7166-3997 e-mail:moritake@mml.k.u-tokyo.ac.jp

矢代 航 (東京大学新領域創成科学研究科助手)
〒277-8561 千葉県柏市柏の葉 5-1-5
TEL:04-7166-3997 FAX:04-7166-3997 e-mail:yashiro@mml.k.u-tokyo.ac.jp

矢橋 牧名 (財団法人高輝度光科学研究センタービームライン・技術部門)
〒679-5148 兵庫県佐用郡三日月光都 1-1-1
TEL:0791-58-0831 FAX:0791-58-0830 e-mail:yabashi@spring8.or.jp

山崎 裕史 (財団法人高輝度光科学研究センタービームライン・技術部門)
〒679-5148 兵庫県佐用郡三日月光都 1-1-1
TEL:0791-58-2806 FAX:0791-58-2807 e-mail:yamazaki@spring8.or.jp

山田 廣成 (立命館大学 21 世紀 COE 放射光生命科学研究センター教授)
〒525-8577 滋賀県草津市野路東 1-1-1
TEL:077-561-2684 FAX:077-561-2680 e-mail:hironari@se.ritsumeai.ac.jp

山田 悠介 (KEK-PF 助手)
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1
TEL:029-864-5200 FAX:029-864-2801 e-mail:yusuke.yamada@kek.jp

山本 樹 (KEK-PF 助教授)
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1
e-mail:shigeru.yamamoto@kek.jp

渡辺 紀夫（筑波大学数理物質科学研究科電子・物理工学専攻講師）

〒305-8573 茨城県つくば市天王台 1-1-1

TEL:029-853-5318 FAX:029-853-5205 e-mail:watanabe@bk.tsukuba.ac.jp