

X線干渉計を用いた Z_{eff} イメージング法の開発

Development of Z_{eff} Imaging Using X-ray Interferometer

米山 明男^a, 馬場 理香^a, 竹谷 敏^b,
兵藤 一行^c, 武田 徹^d

Akio Yoneyama, Rika Baba, Satoshi Takeya, Kazuyuki Hyodo
and Tohoru Takeda

^a (株) 日立製作所中央研究所

^b (独) 産業技術総合研究所計測フロンティア研究部門

^c 高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所

^d 北里大学医療衛生学部

要旨 結晶 X 線干渉計を用いて、被写体の平均的な原子番号 (実効原子番号: effective atomic number, Z_{eff}) を可視化する Z_{eff} イメージング法を新たに開発した。単色放射光を用いてアルミ、鉄、ニッケル、及び銅の各箔を対象とした試用観察を行った結果、各金属の原子番号に対応した濃淡を示す像の取得に成功した。また、ニッケル及び銅の Z_{eff} 値は誤差 5% 以内で各原子番号と一致した。

キーワード: X 線干渉計, 実効原子番号, 位相イメージング, 吸収イメージング, Z_{eff} イメージング

1. はじめに

X 線の大きな特徴の一つは、物質との相互作用が可視光や電子に比べて小さく、透過能が非常に高いことである。この特徴を利用したレントゲンや X 線 CT は、被写体内部の構造を非破壊で 2 及び 3 次元的に観察する方法として、医療診断から製品の検査まで様々な分野で幅広く利用されている。得られる画像は被写体の線吸収係数に対応した濃淡を示すことから、被写体の形状や内部の構造等の形態を詳細に観察することができる。しかし、被写体がどのような元素で構成されているのか、元素組成に関する情報は得ることができず、蛍光 X 線分析等の他手法が必要であった。

X 線は波長の短い電磁波であり、被写体を透過した際に吸収による強度の減少に加えて、位相の変化 (位相シフト) も同時に生じる。そして、その変化の比は各元素ごとに固有の値を持つ。したがって、吸収量と位相シフトを計測し、その比を計算することによって、被写体の平均的な原子番号 (実

効原子番号) に関する情報を得ることができる。この原理に基づき、X 線用回折格子を用いたタルボ干渉計やマイクロビーム走査型 X 線顕微鏡を用いて吸収と屈折 (位相の空間微分) を測定し、各種ポリマーの実効原子番号像やその分布の可視化がこれまでに行われている^{1,2)}。

硬 X 線領域において位相シフトを検出する方法として、上記タルボ干渉計³⁾の他に、結晶光学素子で構成された X 線干渉計を利用した X 線干渉法⁴⁾、被写体を透過する際に生じた X 線の屈折角 (密度微分に比例) を単結晶の X 線回折を利用して求める屈折コントラスト法⁵⁾、及び波の伝搬によって形成されたフレネル干渉縞から求める方法⁶⁾などが開発されている。このうち、タルボ干渉法や屈折コントラスト法では位相の空間微分量を検出しているのに対して、X 線干渉法は位相シフトそのものを検出する唯一の方法であり、最も高い感度で位相シフトを検出することができる^{7,8)}。

著者らは本手法の高感度特性に着目し、バイオメディカル及びマテリアルイメージングへの適用を目的として、大視野かつ高安定なイメージングシステムの開発を行ってきた^{9,10)}。現在、高エネルギー加速研究機構放射光施設 (KEK PF) のビームライン BL14C で最大視野 50 mm × 35 mm のシステムが稼働しており¹¹⁾、がんと正常組織の無造影識別¹²⁾、アルツハイマー病モデルマウスから摘出した脳内に分布する β アミロイドの可視化と定量的な解析¹³⁾、及び低温下におけるメタンハイドレートの観察と自己保存効果の解明¹⁴⁾などを行っている。

本稿では Z_{eff} イメージング法の原理と上記 X 線干渉計を用いたイメージングシステムについて概説した後、金属箔を対象とした高精度な Z_{eff} イメージングを試用した結果¹⁵⁾について紹介する。

2. Z_{eff} イメージング法の原理

図 1 に示すように X 線が被写体を透過すると吸収による強度の減少に加えて、位相の変化 (位相シフト) も同時に生じる。可視光領域において、屈折率は一般に実数としてレンズの屈折等の説明に用いられているが、X 線領域では被写体による吸収が無視できないことから、屈折を表す実部と吸収を表す虚部から構成された複素数 (複素屈折率) として取り扱う。被写体の複素屈折率 n を

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

として実部 δ と虚部 β を用いて表した場合、被写体による線吸収係数 μ は β を用いて

$$\mu = \frac{4\pi}{\lambda} \beta \quad (2)$$

で与えられるので、入射 X 線の強度を I_0 、透過 X 線の強度を I 、被写体の厚さを t としたとき

$$\ln\left(\frac{I}{I_0}\right) = -\mu t = -\frac{4\pi}{\lambda} \beta t \quad (3)$$

となる。ここで、 λ は X 線の波長である。一方、位相シフト

^a 〒 350-0395 埼玉県比企郡鳩山町赤沼 2520

2014 年 12 月 18 日受付

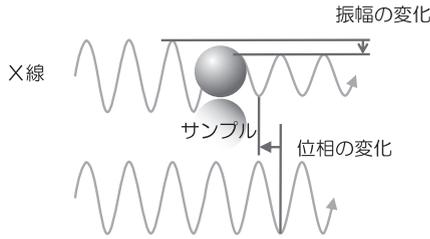


図1 X線と被写体の模式図. X線は波長の短い電磁波であり, サンプルを透過するとき振幅の減少に加えて, 位相もシフトする.

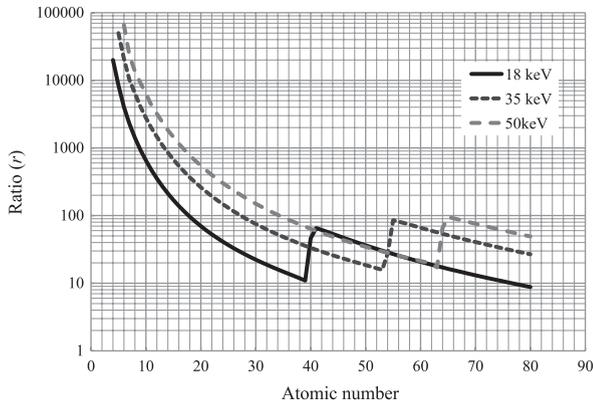


図2 各X線のエネルギーにおける原子番号と, 比rの関係. 吸収端より小さい領域の元素では, rが原子番号に1:1に対応し, rから原子番号を一意に求めることができる.

$\Delta\phi$ は実部 δ を用いて

$$\Delta\phi = \frac{2\pi\delta t}{\lambda} \quad (4)$$

で与えられる. 実部 δ と虚部 β は, 原子散乱因子の異常分散項の実部 f' と虚部 f'' , 古典電子半径 r_e , 単位体積中に含まれる i 種元素の数 n_i を用いて

$$\delta = \frac{\lambda^2 r_e}{2\pi} \sum_i n_i (Z_i + f'_i) \quad (5)$$

$$\beta = \frac{\lambda^2 r_e}{2\pi} \sum_i n_i (-f''_i)$$

と表すことができるので, 強度変化と位相シフトの比 r は厚さ t が打ち消されて

$$r = \frac{2\Delta\phi}{\ln(I/I_0)} = \frac{\delta}{\beta} \quad (6)$$

となる.

図2は各エネルギーのX線について, 各原子番号 Z と比 r の関係を計算した結果である. X線のエネルギーが吸収端のエネルギーより低い元素の領域では, r と Z は1:1に対応しており, r から Z を一意に求められることがわかる. 両者の関係を指数関数

$$Z = ar^{-b} \quad (7)$$

表1 近似式における各定数

X線のエネルギー	a	b
17.8 keV	88.42	-0.347
35 keV	121.33	-0.322
50 keV	142.88	-0.311

で近似し, 表1に示した各エネルギーにおける定数 a と b を用いると, 誤差1%以下で r から Z を求めることができる. 以上をまとめると, 測定によって求めた線吸収係数と位相シフト量から比 r を求め, 更に (7) 式により比 r から原子番号 Z , 即ち元素の種類を同定することができる.

被写体が混合物や化合物の場合, 比 r から得られる値は被写体に含まれている物質の平均的な原子番号として

$$Z_{\text{eff}} = 2.94 \sqrt{\sum_i f_i Z_i^{2.94}}$$

で定義される実効原子番号が得られることになる¹⁶⁾. ここで, f_i は各元素の原子数, Z_i は各元素の原子番号である. このため, 主構成元素が未知の場合は, 元素の種類までは同定することができない. しかし, 錆びの進行など酸化の状態や, 構成元素の変化を伴う劣化の経時的な変化や空間的な分布を可視化することが可能であり, 材料開発等における新規計測手法としても期待できる.

3. 結晶分離型X線干渉計とイメージングシステム

図3(a)に結晶分離型X線干渉計を, (b)に同干渉計を用いたイメージングシステムの模式図を示す. X線干渉計は, 2枚の薄い結晶歯を持った2個の結晶ブロックから構成されており, 入射X線は1枚目の歯(S)でラウエケースのX線回折により物体波と参照波に分割され, 2及び3枚目の歯(M1とM2)で同様のX線回折により向きを変え, 4枚目の歯(A)で重ね合わされて2本の干渉ビームを形成する. 物体波の光路中に被写体を設置すると, 被写体によって生じた位相シフトが波の重ね合わせの原理により干渉ビームの強度変動となって現れる. したがって, 干渉ビームの強度変化から逆に被写体による位相シフトを求めることができる. また, 参照波を鉛製の板等によって遮蔽すると, 干渉ビームは形成されずに被写体を透過した物体波だけとなり, 吸収像をそのまま測定することができる. このため, 被写体や光学素子を移動することなく, 同じ位置かつ同じ角度から投影した吸収像と位相シフト像を遮蔽板の有無だけで得ることができる.

上記干渉計を用いたイメージングシステムは, ビーム拡大用非対称結晶, X線干渉計, 同干渉計用位置決めステージ, サンプルステージ, 位相板ステージ, 画像検出器, 及びフィードバック機構から主に構成されている. 本システムに入射したX線は非対称結晶により横方向に5~10倍程度に拡大された後, 干渉計に入射する. 干渉計で形成された2本の干渉ビームのうち, 試料像の像鮮明度(Visibility)の高いビーム(O

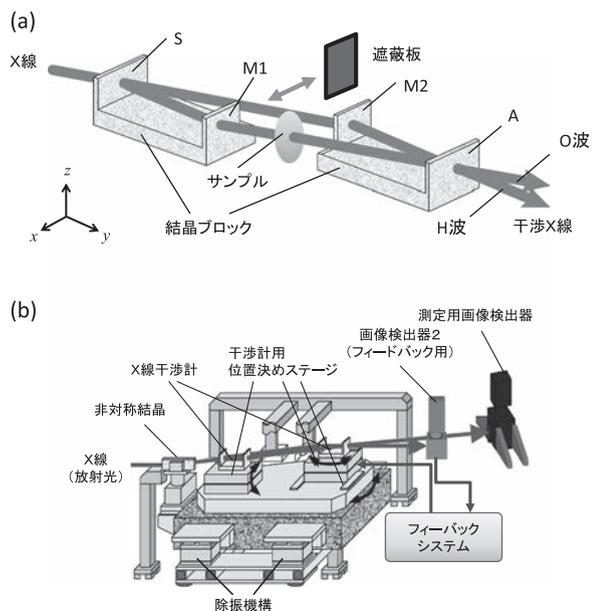


図3 (a) 結晶分離型 X 線干渉計と、(b) X 線干渉計を用いた位相コントラストイメージングシステム。入射 X 線はラウエケースの X 線回折により各ハーフミラー（結晶歯）において分割（S 歯）、反射（M1 歯と M2 歯）、結合（A 歯）されて最終的に 2 本の干渉 X 線を形成する。

波）は測定用の画像検出器で検出し、他方（H 波）は後述するフィードバック機構で干渉計の安定化に利用している。

X 線干渉計を動作させるためには、光学素子である結晶ブロック間の位置を波長より短いオーダーで安定化する必要がある。図 3 (a) のように分離した本 X 線干渉計（Skew-symmetric 型）の場合、物体波と参照波は結晶ブロック間で平行になっているために平行移動による影響はなく、更に X 及び Y 軸周りの回転もほとんど影響しない。このため、Z 軸周りの回転（ θ 回転）だけを数 10 prad という極めて高い精度で安定化すればよいという特徴がある。この安定性を確保するために、本システムでは位置決めステージを可能な限りシンプルな構成にして可動部を少なくし、かつ固体滑り機構を採用することで機械的な剛性を向上し、アクティブサスペンションの除振機構により床からの振動を低減し、2 重のフードを設けることで音による振動を減少している。また、長時間にわたる安定性を確保するために、フィードバック機構を設けている¹⁷⁾。本機構では、結晶ブロック間の θ 回転が干渉像に現れている縞の動きとなって現れることを利用して、その動きを打ち消すように θ 回転を制御している。以上の対策により、本システムにおける位相の変動は $\pi/20$ （角度換算 30 prad）以下という極めて高い精度で安定化できている¹⁸⁾。

放射光は一般的に横発散のビームであり、縦方向にも大きな視野を確保するためには図 3 (b) の光学系を 90 回転し、X 線を上下方向に展開する必要がある。この場合、精密な回転位置決めが必要な軸は水平方向を向くため、重力の影響を大きく受けることになり、10 prad の位置決め安定性の確保は非常に困難になる。一方、本イメージングシステムを常設し

ているビームライン BL-14C では、世界で唯一の垂直ウィグラー（蓄積電子ビームを大きく複数回蛇行させることにより、明るい連続した高いエネルギーの X 線を取り出す装置）と呼ばれるウィグラーを光源とし、ビームは縦方向に発散している。このため、図 3 (b) のように X 線を水平面内で展開することが可能で、上記回転軸も重力の影響を受けない垂直方向になり、10 prad の極めて高い安定性を実現できている。

4. 観察結果

エネルギー 17.8 keV の単色放射光（波長 0.07 nm）を用いて、金属箔を対象とした試用実験を行った。干渉像の測定には、入射 X 線を蛍光体で可視光に変換し水冷 CCD で検出するレンズカップリング方式の X 線画像検出器を用いた。蛍光体は厚さ 30 ミクロンの GOS、CCD の画素サイズは 9 ミクロン、画素数 4096 × 4096、レンズ系の倍率は 1 : 1 である。なお、本測定では 2 × 2 画素を 1 画素として取り扱う Binning を用いたので、画素サイズは 18 ミクロンになる。位相シフトの定量的な測定には、位相シフタにより位相を $2\pi/n$ ステップで走査し、得られた干渉像から計算によって各画素における位相シフト量を求める縞走査法を用いた。本測定では走査ステップ数 n を 3 とし、各干渉像の露光時間を 5 秒とした。また、吸収像は厚さ 3 mm の鉛板で参照波を遮蔽し、露光時間 15 秒で測定した。

被写体には、厚さ 15 ミクロンのアルミ、厚さ 10 ミクロンの鉄、厚さ 5 ミクロンのニッケル、及び厚さ 5 ミクロンの銅を用いた。各箔のサイズは横 15 mm、縦 5 mm で、縦方向に並べて物体波の光路に設置した。また、厚さが打ち消されることを確認するために、右端は折り曲げることにより厚さを 2 倍にした。

上記条件の測定で取得した位相像（位相シフトの空間分布）と吸収像を図 4 (a) 及び (b) に示す¹⁹⁾。上から鉄、ニッケル、銅、アルミの順であり、位相像ではアルミだけでなく銅やニッケルのような原子番号の大きな元素についても、吸収像よりも高感度に表面の凸凹などを可視化できていることがわかる。図 4 (c) は (a) と (b) の各画素について比 r を求め、さらに (7) 式により算出した実効原子番号を濃淡とした像 (Z_{eff} 像) である。各金属箔の濃淡が原子番号に正しく対応し、アルミ、鉄、ニッケル、銅の順に明るくなっていることがわかる。また、折り曲げて二重にした領域においても濃淡はほとんど変化していないことがわかる。

表 2 には各金属箔の測定値と原子番号を示す。銅とニッケルに関しては、測定値は原子番号と誤差 5% 以内で一致しており、単一元素で構成された被写体であれば、元素の種類を同定可能なことがわかる。なお、元素番号が小さいほど誤差が大きくなる傾向があるが、この原因はアルミなどでは吸収が小さく線吸収係数の検出誤差が大きいことが考えられる。なお、上述したように試料が混合物や化合物で複数の元素から構成されている場合、平均的な原子番号（実効原子番号）が得られることになる。このため、元素の種類まで同定

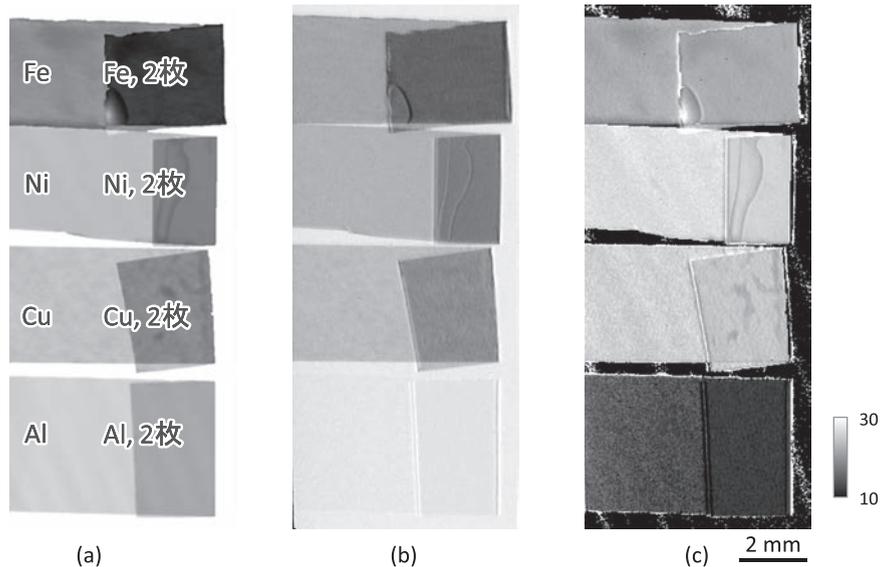


図4 金属箔の観察結果. (a) 位相コントラスト像, (b) 吸収コントラスト像, (c) Z_{eff} 像. 箔は上から鉄 (10 ミクロン), ニッケル (5 ミクロン), 銅 (5 ミクロン), アルミニウム (15 ミクロン). (c) の Z_{eff} 像の濃淡は原子番号に正しく対応し, ニッケルと銅に関しては元素を同定することができる.

表2 各金属箔の測定値と原子番号

	測定値 (Z_{eff})	原子番号
アルミ	14.6	13
鉄	25.4	26
ニッケル	27.9	28
銅	28.8	29

することができないが, 経時的に原子番号が変化するような (酸化の状態など) 観察には有効であると考えられる.

5. おわりに

X線干渉計を用いて計測した吸収率と位相シフト量から, 被写体の実効原子番号を可視化する Z_{eff} イメージング法を開発した. エネルギー 17.8 keV の単色放射光を用いて, 金属箔を対象とした試用イメージングを行った結果, 各元素の原子番号に対応した濃淡を示す Z_{eff} 像の取得に成功した. ニッケル及び銅の Z_{eff} 値は理論値と誤差 5% 以内で一致しており, 被写体が単一元素で構成されている場合は元素の種類まで同定できることがわかった. 今後は Computed Tomography と組み合わせた 3次元観察への拡張を進めると同時に, 生体等を対象とした各種試料への適用を検討する予定である.

謝 辞

本研究における放射光を用いた実験は, 高エネルギー加速器研究機構放射光施設の G 型課題 2012G148, 及び 2013G584 のもとで実施した.

文 献

- Qi, Z., Zambelli, J. and Chen, G.H.: *Phys. Med. Biol.*, **55**, 2669 (2010)
- Mukaide, T., Watanabe, M., Takada, K., Iida, A., Fukuda, K. and

- Noma, T.: *Appl. Phys. Lett.*, **98**, 111902 (2011)
- Momose, A., Kawamoto, S., Koyama, I., Hamaishi, Y., Takai, K. and Suzuki, Y.: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **42**, L866 (2003)
- Momose, A. and Fukuda, J.: *Med. Phys.*, **22**, 375 (1995)
- Davis, T.J., Gao, D., Gureyev, T.E., Stevenson, A.W. and Wilkins, S.W.: *Nature*, **373**, 595 (1995)
- Snigirev, A., Snigirev, I., Kohn, V., Kuznetsov, S. and Schelokov, I.: *Rev. Sci. Instrum.*, **66**, 5486 (1995)
- Yoneyama, A., Wu, J., Hyodo, K. and Takeda, T.: *Med. Phys.*, **35**, 4724 (2008)
- Yoneyama, A., Baba, R., Hyodo, K. and Takeda, T.: The European Congress of Radiology 2015/C-0531.
- Yoneyama, A., Momose, A., Seya, E., Hirano, K., Takeda, T. and Itai, Y.: *Rev. Sci. Instrum.*, **70**, 4582 (1999)
- Yoneyama, A., Momose, A., Koyama, I., Seya, E., Takeda, T., Itai, Y., Hirano, K. and Hodo, K.: *J. Synchrotron. Rad.*, **9**, 277 (2002)
- Yoneyama, A., Takeda, T., Tsuchiya, Y., Wu, J., Lwin, T.T., Koizumi, A., Hyodo, K. and Itai, Y.: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, **523**, 217 (2004)
- Yoneyama, A., Takeda, T., Tsuchiya, Y., Wu, J., Lwin, T.T. and Hyodo, K.: *AIP Conference Proceedings*, **705**, 1299 (2004)
- Noda-Saita, K., Yoneyama, A., Shitaka, Y., Hirai, Y., Terai, K., Wu, J., Takeda, T., Hyodo, K., Osakabe, N., Yamaguchi, T. and Okada, M.: *Neuroscience*, **138**, 1205 (2006)
- Takeya, S., Honda, K., Yoneyama, A., Ueda, K., Hyodo, K., Takeda, T., Mimachi, H., Takahashi, M., Iwasaki, T., Sano, K., Yamawaki, H. and Gotoh, Y.: *J. Phys. Chem. C*, **115**, 16193 (2011)
- Yoneyama, A., Hyodo, K. and Takeda, T.: *Appl. Phys. Lett.*, **103**, 204108 (2013)
- Spiers, F.W.: *Br. J. Radiol.*, **19**, 52 (1946)
- 米山明男, 竹谷 敏, 兵藤一行, 上田和浩, 武田 徹: 顕微鏡, **46**, 71 (2011)
- Yoneyama, A., Nambu, A., Ueda, K., Yamada, S., Takeya, S., Hyodo, K. and Takeda, T.: *J. Phys.: Conference Series*, **425**, 192007 (2013)
- 米山明男, 竹谷 敏, 兵藤一行, 武田 徹: 応用物理, **83**, 737 (2014)