

X線マイクロトモグラフィー

X-ray Micro- and Nano-tomography Techniques and Their Applications

戸田 裕之^a, 小林 正和^a, 鈴木 芳生^b, 竹内 晃久^b, 上杉健太郎^b
 Hiroyuki Toda, Masakazu Kobayashi, Yoshio Suzuki, Akihisa Takeuchi and Kentaro Uesugi

^a豊橋技術科学大学生産システム工学系

^b高輝度光科学研究センター

要旨 シンクロトロン放射光による高分解能X線トモグラフィーを念頭に、X線の吸収や屈折を利用するX線イメージングの基礎的な事項、三次元画像再構成の原理、画像のS/N比などについて詳述する。また、第三世代の大型放射光施設であるSPring-8で現在利用できるX線トモグラフィーのセットアップについて、検出器やシンチレーターの特性も含めて紹介する。これらに加え、筆者らの研究事例など、各種応用研究の現状についても簡潔に触れる。本稿では、高い空間分解能が応用研究の鍵となることに鑑み、空間分解能を本質的に規定するサンプリングの考え方をはじめ、結像光学のための光学素子、検出器系やその他の各種因子など、様々な観点から空間分解能を考えていく。これは、X線の上流から下流に至る様々な因子が複雑に重畳し、X線トモグラフィーで得られる画像の空間分解能が規定されるためである。

キーワード：トモグラフィー、X線、シンクロトロン放射光、歪計測、元素分析

1. はじめに

トモグラフィー (Computed tomography, CT) という技術は、X線吸収係数分布の三次元 (3D) 分布を計測する手法に端を発する。CTのうち、高分解能なものをマイクロトモグラフィー、ナノトモグラフィーと称している。これらの実験は、X線管球を用いたラボスケールの装置、もしくはシンクロトロン放射光 (SR) 施設を使って行われる。特に、後者はX線の輝度、単色性、発散角などからマイクロ・ナノCTには最適と言える。現在では、分解能1 μm程度の投影型CT¹⁾と並び、100 nmオーダーの最高分解能を有する結像型CT^{2,3)}も利用されている。

近年、TEM-CT、連続断層撮影、中性子CTなど、3D可視化手法の利用が進んでいる。これらの手法と比べ、X線CTは4D観察 (時間発展挙動の3D連続観察) にも容易に展開でき、また高度な可視定量化が可能な点で優れている。後者の例として、結晶粒界位置、き裂進展駆動力、力学的歪みや元素濃度などが挙げられる。これらをバルク材料内部で高密度に3D/4D計測することが可能になっている。このように情報に富む画像やデータを用い、材料工学、地球宇宙科学、生命医工学などで、複雑で局所的な現象の理解に成果を収めつつある。

2. X線吸収によるイメージング

SR施設では、一般に単色光が利用される。二結晶分光器の場合には、エネルギー分解能 $\Delta E/E \approx 10^{-4}$ (E : X線エネルギー) 程度、多層膜の場合には $\Delta E/E \approx 10^{-2}$ 程度が得られる。厚み l の均一な物体に強度 I_0 の単色X線が入射した時の透過X線強度 $I(l)$ は、Lambert-Beer則により以下のように与えられる。

$$I(l) = I_0 e^{-\mu l} = I_0 e^{-\mu_m \rho l} \quad (1)$$

ここで、 μ_m は質量吸収係数、 ρ は物質の密度、 μ は線吸収係数である。 μ は、 E に依存する係数で、マイクロCTに通常用いられる波長域では光电吸収が支配的になり、近似的には以下のように物質とX線の波長に依存する。

$$\mu = k\rho Z^\alpha \lambda^{-\alpha-1} \quad (2)$$

ここで、 $\alpha \approx 4$ 、 ρ は密度、 Z は原子番号、 λ は波長、 k は定数である。 E が5 keV以上のX線では、 Z の小さな物質の吸収コントラストは、非常に小さくなる。

3. X線の屈折によるぼやけと輪郭強調

一般に、X線の複素屈折率 \hat{n} は、以下のように表される。

$$\hat{n} = 1 - \delta + i\beta \quad (3)$$

$$\delta = N_e Z / A \rho e^2 \lambda^2 / (2\pi m_e c^2) \quad (4)$$

$$\beta = \mu \lambda / 4\pi \quad (5)$$

¹⁾ 〒441-8580 愛知県豊橋市天伯町雲雀ヶ丘1-1
 TEL: 0532-44-6697; FAX: 0532-44-6690
 E-mail: toda@pse.tut.ac.jp
 2009年5月13日受付

ここで、 N_a はアボガドロ数、 A は質量数、 ρ は密度、 $e^2/(m_e c^2)$ は古典電子半径である。実部 $1-\delta$ は屈折や位相差を、そして虚部 β は X 線の減衰を表す。多くの物質で $Z/A \approx 0.5$ であり、 δ は極めて小さい値をとる。X 線では \hat{n} がほぼ 1 であり、屈折は非常に小さい。それでも図 1 に示すように、硬 X 線の領域では δ の方が β より桁違いに大きいため、吸収係数差によるコントラスト（吸収コントラスト）が充分に得られない場合、屈折/位相コントラストの活用が有効となる。屈折コントラストでは、特殊なセットアップを用いずとも、試料一検出器間隔 L の調整で界面に白黒濃淡のフリッジが現れ（いわゆるフレネル回折条件）、界面が強調される。試料中のマイクロ構造のサイズを D_m とすると、 $L \ll D_m^2/\lambda$ の時には界面検出に利用できる程度にフリッジが抑制され、 $L \approx D_m^2/\lambda$ ではホログラフィー領域となる⁴⁾。たとえば、 E が 20 keV ($\lambda = 0.062$ nm) で $D_m = 5 \mu\text{m}$ の場合、 $L \approx 0.4$ m となる。前者の場合に生じるフリッジの幅は、第 1 フレネルゾーンサイズ r_{FZ} により評価できる⁵⁾。

$$r_{FZ} = \sqrt{\lambda L} \quad (6)$$

界面への入射角が比較的浅い場合は偏向角が大きくなり、フリッジが明瞭に現れる。図 2 は、20 keV の X 線を用い、アルミニウム中に分散したシリコン（原子番号差が最小で、吸収では区別できない）を L を変化させながら可視化した例である。この図で Si がきれいに可視化できる $L = 30$ mm では、 $r_{FZ} \approx 1.4 \mu\text{m}$ である。この場合、 r_{FZ} が分解能程度になる $L = 20 \sim 30$ mm 辺りが適切な条件であり、図 2 でも D_m が数 μm 以上の構造に対して輪郭強調による界面検出が出来る。このような界面での屈折に加え、X 線源の見込み角の効果が重畳する。例えば、X 線源の実効的な大きさを 500 μm 、線源一試料間距離を 50 m とすれば、見込み角は 10 μrad となり、 $L = 30$ mm に対し約 0.3 μm となる。なお、フリッジが現れる条件では、線吸収係数の定量性が損なわれる点には十分に注意すべきである。

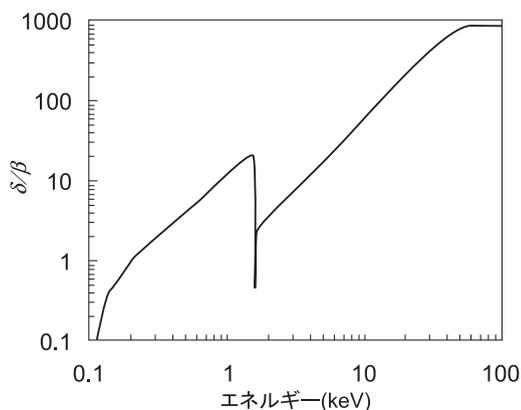


図 1 アルミニウムにおける位相と吸収の効果の比較

4. サンプリングと分解能

X 線 CT では、所望する空間分解能を得られるよう、試料内の各方向について十分短い周期でサンプリングを行う必要がある。逆に言えば、サンプリング周波数 $1/\Delta r$ (Δr : 画素サイズ) の半分の周波数（ナイキスト周波数）が分解能を規定し、これを越える周波数成分は評価出来ない。一般に、透過力が高い X 線 CT では、TEM-CT の場合に典型的に見られる特定の角度範囲のデータ欠損が生じないのが普通である。代表的なセットアップ例である図 3 に示すように、X 線の照射方向に垂直な回転軸を置く。これを中心に試料を 180° 回転させながら平面画像検出器を用いた多数回の透過像連続撮像を行う。したがって、上記の回転軸に対応する円筒座標 (r, φ, z) で、 r, z 方向には画素サイズを、また φ 方向については回転ステップを、それぞれサンプリング定理⁶⁾ を満たすよう決定することになる。

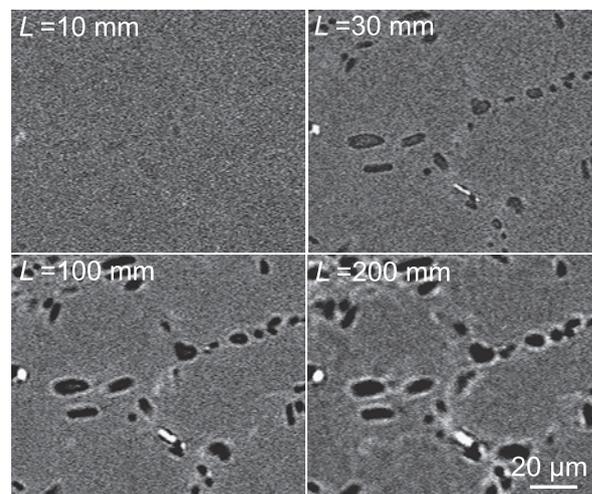


図 2 試料一検出器間隔を変化させた時の仮想断面像の変化 (Al-7%Si 合金)

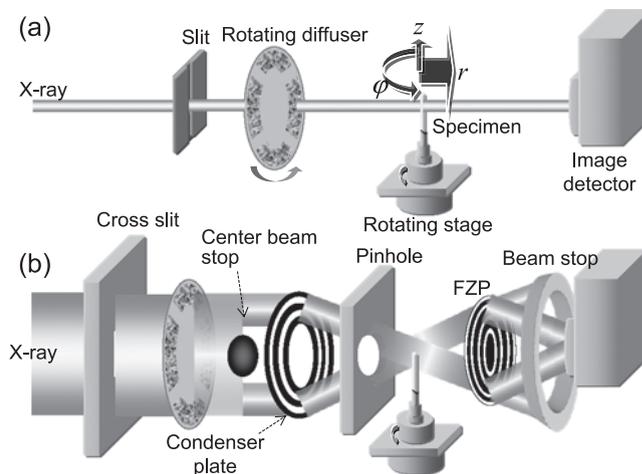


図 3 (a) 投影型 CT および (b) 結像型 CT の代表的セットアップ例。(b) ではゾーンプレートを用いたものを示している。

例えば、視野幅 D で 180° 回転中に M 投影する撮像では、視野端部において、 φ 方向で理想的には空間分解能： $d = \pi D / M$ となる。水平方向 N 画素の検出器で計測すると、 r 方向では、理想的に $d = 2D / N$ となる。多くの場合、検出器の選択肢はそれほど多くはない。そこで、もし視野内の全領域で等方的な分解能を得たいなら、投影数は $M = \pi N / 2$ となる。ただし、実際には光源から検出器に至るまでの様々な因子がこれに重畳し、実効的な分解能が決定される。これについては後述する。

5. 画像再構成

CTは、「2Dあるいは3Dの物体は、その投影データの無限集合から一意に再構成できる」との定理による。原理的には、フーリエ空間のデータを2D逆フーリエ変換することで画像再構成できる。しかし、この方法では離散的な投影データを補間する際に発生する誤差によりアーティファクト（虚像）が生じてしまう。そこで、一般的には下記に紹介するようなフィルター補正逆投影法が用いられる。化学組成や密度の分布がある物体を考え、その内部の位置 (x, y) における線吸収係数を $\mu(x, y)$ とする。X線はある方向 φ から入射した場合の投影 $p(r, \varphi)$ は、ビームに沿った線積分で与えられる。

$$p(r, \varphi) = \int_{-\infty}^{\infty} \mu(x, y) ds \\ = \int_{-\infty}^{\infty} \mu(u \cos \varphi - s \sin \varphi, u \sin \varphi + s \cos \varphi) ds \quad (7)$$

ここで、全体座標 (x, y) を角度 φ だけ回転した局所直交座標系 (u, s) (図4) を用いている。これをそのまま逆投影した場合、 $1/|f|$ に従うフィルターを作用させることになり、画像がボケてしまう。これを補正するには、 $|f|$ に比例したフィルター(図5のRampフィルター)を畳み込むことが第一義となる。これは、実は極座標系から直交座標系へ変数変換する時に現れるヤコビアンに過ぎない。次式に、逆投影手順を示す。

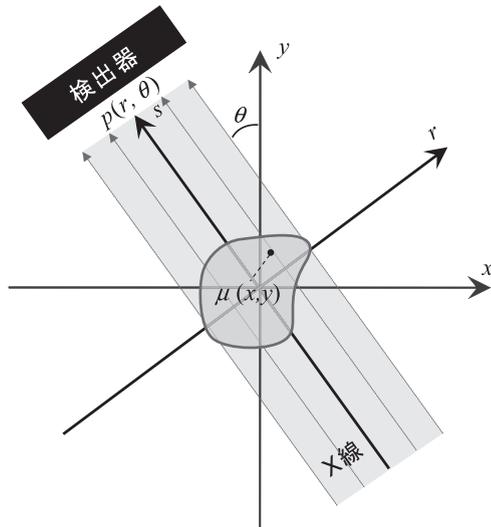


図4 全体座標系とビームに沿う局所座標系

$$q(r, \varphi) = \int_{-x}^x h(r-t) \left\{ \frac{1}{2} p(t, \varphi) \right\} dt \quad (8)$$

$$\mu(x, y) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{\pi} q_\varphi(x, y) d\varphi \quad (9)$$

なお、 $q_\varphi(x, y)$ は、 $q(r, \varphi)$ を全体座標系に再変換したものである。図5に示すRampフィルターは、ナイキスト周波数以上を不連続に切り落とす形でカットオフするため、周波数領域での振動をもたらす。このため、画像に擬似輪郭が生じる。また、高周波成分としてフーリエ空間に現れる統計ノイズをも強調してしまう。これを防止するため、一般には何らかの窓関数 $H(f)$ (f : 周波数) を導入する。代表的な窓関数であるShepp-Logan およびHannを次式に示す。

$$H(f) = \frac{2f_c \sin(\pi f / f_c)}{\pi f} \quad (f < f_c) \quad (10)$$

$$H(f) = \frac{f}{2} \left(1 + \cos \pi \frac{f}{f_c} \right) \quad (f < f_c) \quad (11)$$

ここで、 f_c はカットオフ周波数で、 f_c 以上で $H(f) = 0$ となる。これらは、いずれも空間周波数領域ではバタフライ型を呈し、空間領域では正の δ 関数の両側に負の裾野を持つような形となる。一般に、空間分解能とアーティファクトやノイズはトレードオフの関係にあり、窓関数の選択には注意を要する。観察や解析の対象となるマイクロ構造が既知である場合、その周波数特性に合わせた窓関数がふさわしいと言える。筆者らは、通常中間的な周波数を強調するHannフィルターを用いている。現実には、多分に経験的ないしブラックボックス的に扱われることが多い様に思う。

ところで、X線CTでは、大きな試料の一部(関心領域)のみを実現可能な最高分解能で撮像したいというニーズが大きい。これは、TEM-CT等と比較して分解能上の制約が大きいことと、分解能—視野幅のトレードオフ(分解能を高くすると、観察できる試料サイズが小さくなること)に起因する。たとえば、前述の結像CTでは、視野幅が $100 \mu\text{m}$ 以下に制限される場合もある。このような場合に有効な関心領域再構成法が提案されている^{7,8)}。

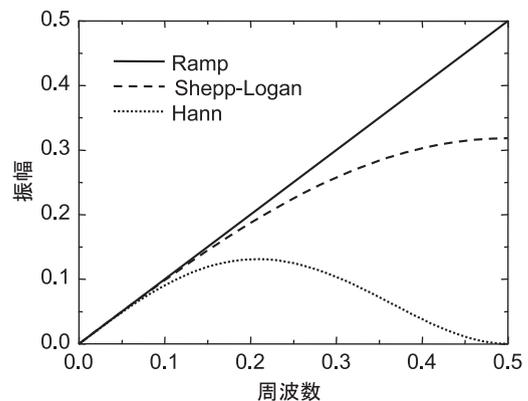


図5 一般的な各種再構成フィルター

6. 画像の統計的不確定性

6.1 フォトンノイズと光量の関係

X線CTの計測における統計的不確定性は、計測されるフォトン数が有限であることに起因し、画像中にノイズとなって表れる。このようなフォトンノイズは、 n 個のフォトンを計測する場合には \sqrt{n} で表される。また、SN比は、 $n/\sqrt{n} = \sqrt{n}$ となる。Flanneryは、フォトンノイズが支配的な場合に σ/μ の精度 (σ :ノイズの標準偏差、つまり σ/μ はNS比)で画像を再構成するため、各透過像撮影に必要なフォトン数 n_p を示している⁹⁾。

$$n_p \propto \frac{D^4 e^{\mu D}}{\Delta r^4 [\mu D (\sigma/\mu)]^2} \quad (12)$$

これより、画像の精度は n_p の平方根に比例することがわかる。また、精度 σ/μ を保ちながら Δr を小さくして分解能を上げようとする、 Δr^{-4} に比例して n_p を大きくする必要がある。

ところで、均一な線吸収係数分布を仮定すると、(12)式は $\mu D = 2^{9,10)}$ ないし $2.22^{11)}$ の場合に極値をとる。この条件で、SN比一定なら最小の露光時間で済み、 n_p 一定ならSN比が最高となる。式(1)より、この条件は $I/I_0 = 11 \sim 14$ (%)に相当する。式(2)のように μ は λ に依存し、実用的には10~20%程度の透過率が得られるような λ を調整することになる。例えば、透過厚さ1mm程度の純アルミニウム試料に対して、この条件はX線エネルギー14~16keVに相当する。著者らは、Zn, Cu, Fe等を数%程度含むアルミニウム合金に、通常20keV程度を用いている。また、次節で述べる検出器のノイズが無視できない場合、 μD の値は上記より小さくなり、より大きな透過が必要な事には注意が必要である。

6.2 検出器から出るノイズの寄与

検出器から出力される画像には、その他、読み出しノイズ、ダークノイズ等が含まれる。ダークノイズは、シリコン内部で熱的に励起されて発生する熱電子の数に応じて発生するため、暗電流の平方根に比例する。暗電流は、素子の冷却により低減できるため、SPring-8でもペルチェ素子により-50°Cまで冷却できるCCDが用いられている。

読み出しノイズ、ダークノイズをそれぞれ N_r, N_d とし、フォトンフラックスを I_{CCD} (photons/pixel/s)、露光時間を τ (s)、検出器の量子効率(検出されるフォトンの数を入射光のフォトン数で割ったもの)を η 、暗電流値を i_d とすると、トータルのノイズ N_t は(13)式で、またSN比 SNR は(14)式で表される。

$$N_t = \sqrt{n + N_d^2 + N_r^2} = \sqrt{I_{CCD}\eta\tau + i_d\tau + N_r^2} \quad (13)$$

$$SNR = \frac{I_{CCD}\eta\tau}{\sqrt{I_{CCD}\eta\tau + i_d\tau + N_r^2}} \quad (14)$$

(14)式より、光量不足の場合には読み出しノイズの寄与が相対的に大きくなり、SN比が低下することが分かる。この場合には、フォトンフラックスと露光時間の増加が等価な

効果を有する。SN比の優れた検出器は、読み出しノイズや暗電流が低いものと言える。また、ピニング(複数画素の加算)処理は、画素あたりのフォトン数を向上させ、かつ読み出し回数削減による読み出しノイズ低減やフレームレート向上にもつながる。通常 2×2 などと表示されるが、これは水平垂直の合計4画素を積算することを意味する。

CCDにおけるダイナミックレンジは、飽和電荷量と読み出しノイズの比で定義される。飽和電荷量は、CCDのピクセルサイズによってほぼ決まる。飽和電荷量が大きく、読み出しノイズが小さなCCDはダイナミックレンジが広く、試料中の局所的なX線吸収の差が非常に大きい場合であっても、定量性を担保した計測が可能になる。例えば、後述のC4880-41Sでは、飽和電荷量13,000e-に対し読み出しノイズ15e-(Fastモード)でその比は867:1となる。これを、12bitのA/Dコンバーターで変換している。

7. X線CT装置

7.1 SPring-8での現状

マイクロ・ナノトモグラフィーは、主としてビームラインBL20B2, BL20XU, BL47XUで行われている。偏向電磁石のビームラインであるBL20B2では、到達可能空間分解能が10 μ m程度に制約されるが、幅20mm以上におよぶ高画質なCT像を得ることができる。一方、挿入光源を用いたビームライン(BL20XU, BL47XU)では、1 μ m程度の空間分解能を持つ投影型CT(視野幅最大2mm)に加え、フレネルゾーンプレート(FZP)と呼ばれる回折光学素子を利用した結像型高分解能CT(ナノトモグラフィー)が利用されている。

図3(a)の投影型CTの場合、発光点から36~46mの位置に設置された二結晶分光器で単色化されたX線は、そのまま回転ステージ上に設置された試料を透過し、検出器に入る。検出器前面にはシンチレーターがセットされており、X線を可視光に変換する。発生した可視光は光学レンズで拡大され、ミラーで90°方向に反射されたあと、CCDカメラに入射する。この場合の分解能は、基本的に可視光に対するレイリーの回折限界(0.61 λ /NA, NAは開口数)、シンチレーターの分解能、(6)式で表わされるX線の回折で規定され、最高で、おおよそ1 μ m程度となる。前二者については(16)式で後述する。

また、ナノCTを実現する方法として、二枚の集光ミラーで構成するKirkpatrick-Baez光学系、およびFZPを用いる結像光学系(図3(b))が代表的である³⁾。SPring-8では、後者のセットアップが欧米に先駆けて公開され、大きな成果を生みつつある。FZPは、格子間隔が外側に行くほど徐々に狭くなる円盤状の回折格子である。 m 次の回折光について、その分解能 d_{FZP} は、最も外側の格子線幅 Δr_N により(15)式で表わされる。

$$d_{FZP} = 1.22\Delta r_N/m \quad (15)$$

本報で示す例では、 $\Delta r_N = 100$ nmのFZPを用いており、

一次光に対し $d_{FZP}=122\text{ nm}$ である。また、焦点深度 $\Delta f(=d_{FZP}/NA)$ は $280\text{ }\mu\text{m}$ 程度となり、試料サイズも物理的にこの程度に制約される。最近では、低効率や焦点深度などの問題はあつものの、 $\Delta r_N=35\sim 50\text{ nm}$ の FZP も製作されている。FZP の一次光に対する効率が 5 keV 程度でピークをもつことから、X 線エネルギーは概ね 10 keV 以下に限られる。一般に 20 keV 程度までは可能であるが、低効率、低倍率などの問題が生じる。

図 6 は、産業用 CT 装置も含め、各種セットアップで撮像した Al-Zn-Mg 系合金発泡材のマイクロ組織である¹²⁾。いずれも 3D 像の仮想断面を示している。アンジュレーター（挿入光源の一種）ビームラインでの撮像により、図 6 (c) のように投影型 CT でも明瞭な内部のマイクロ組織像が得られている。図 6 (d) に示す結像型 CT では、さらに詳細に、微細な分散粒子や時効析出物のようなマイクロ構造が鮮明に可視化できる。図 7 は、結像型 CT により Al-10mass%Ag 合金中の $\gamma\text{-Ag}_2\text{Al}$ 析出物を観察したものである¹³⁾。(0001) $_{\gamma}$ //(111) $_{\alpha\text{-Al}}$ の方位関係を持って析出する板状粒子（厚み $200\sim 700\text{ nm}$ ）が明瞭に観察される。撮像は、BL47XU で X 線エネルギー

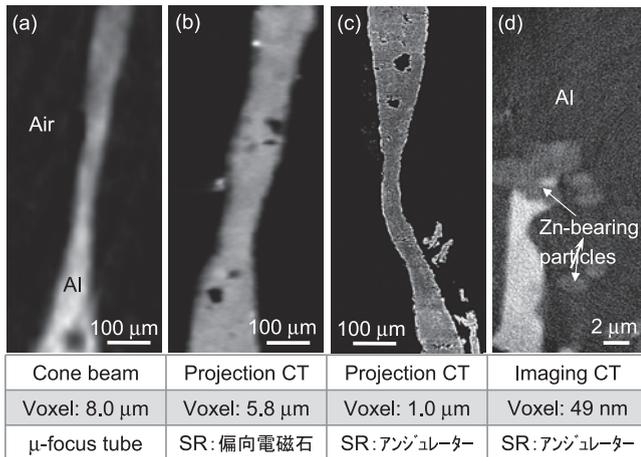


図 6 産業用 CT 装置、および放射光による投影型／結像型 CT を用いて撮像した Al-Zn-Mg 系合金発泡材のマイクロ構造。図中には、線源、画素サイズを付記した。(b) は SPring-8 の BL20B2, (c), (d) は同じく BL47XU で撮像した。

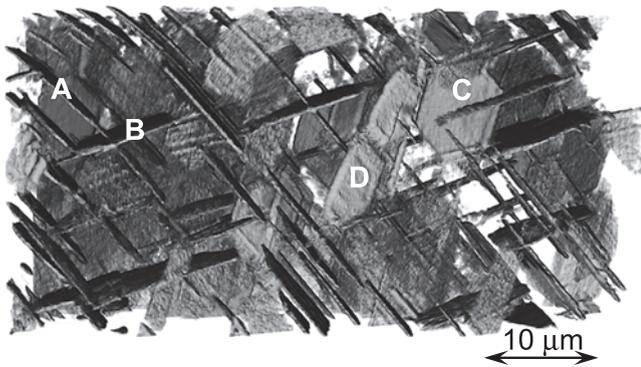


図 7 結像型 CT を用いて撮像した Al-Ag 合金の $\gamma\text{-Ag}_2\text{Al}$ 析出物

9.8 keV で行った。この場合の X 線顕微鏡としての倍率は 49.3 倍、3D 画像の画素サイズは 88 nm となっている。このセットアップで、テストパターンの $180\sim 240\text{ nm}$ のラインが透過像で分解できている¹³⁾。また、このエネルギー領域での FZP の回折効率は $10\sim 15\%$ 程度であることから、より多くの光量を得るために照明系も鍵となる。いずれの例も比較的初期のもので、図 3 のようなケーラー照明と呼ばれる集光照明系ではなく、平行照明を利用している。図 3 には集光照明系に円形の回折格子型コンデンサプレートが描かれているが、これには X 線強度の中央部への局所的集中という問題がある。その対策として、多角形コンデンサプレートが開発され、約 $100\text{ }\mu\text{m}$ の領域で均一な照明が実現されている¹⁴⁾。

7.2 現在利用できる可視光変換型検出器

著者らがよく用いる検出器を例に説明する。浜松ホトニクス製 C4880-41S カメラは、 4000×2624 画素、ピクセルサイズ $5.9\text{ }\mu\text{m}$ で、背面照射タイプである。この検出器は、図 8 のように量子効率が入射光 460 nm （青色）の時に最大で約 50% 、また $420\sim 550\text{ nm}$ で 40% 以上となっている。また、ダークノイズは -50°C 程度までの冷却により $1\text{e-}/\text{s}$ に抑えられている。ESRF（ヨーロッパ放射光施設）製の FReLoN2000 カメラ¹⁵⁾ のように、 $500\sim 800\text{ nm}$ 程度の範囲（緑～赤）で高感度な検出器もある。一般的に、正面照射では透明電極が光学的にはフィルターとして作用し、量子効率と紫外光に対する感度が低下する。一方、背面照射の場合には、高い量子効率の広い波長範囲で実現される。CCD の量子効率の波長依存性を元に、用いるシンチレーターを選定することが必要になる。

現在、SPring-8 で用いられるシンチレーターは、 $\text{Gd}_2\text{O}_3\text{:Tb}^+(\text{P43})$ 粉末を積層したもの、ないしは $\text{Lu}_2\text{SiO}_5\text{:Ce}^+(\text{LSO})$ 単結晶をカーボン基板に接着したもので、必要な分解能などに応じて使い分けられる。Ce や Eu, Tb のドーピングは、発光効率向上と、CCD カメラで撮影できるような波長で発光するようバンドギャップを制御する効果がある。図 8 に示すように、前述の C4880-41S は、LSO の青色発光特性とよくマッチしている¹⁵⁾。また、FReLoN カメラは、 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}\text{:Eu}^+(\text{LAG})$ と組み合わせて用いられる¹⁵⁾。

シンチレーターとして重要な特性は、X 線の阻止能、空間分解能、変換効率、発生光波長の CCD とのマッチング、減衰時間、発光と入射 X 線フラックスの線形性、可視光に対する透明性などである¹⁵⁾。LSO は、YAG や LAG, P43 などと比べて高密度で有効原子番号も大きく、阻止能に優れている。また、空間分解能は、厚み、蛍光 X 線の発生などによって規定される。次式は、検出器系の分解能 d_{det} についてのシミュレーション結果を定式化したものである¹⁶⁾。

$$d_{\text{det}} = [(B/NA)^2 + (C l_s NA)^2]^{1/2} \quad (16)$$

ここで、 $B=0.18$ 、 $C=0.075$ 、 l_s はシンチレーターの厚みである。第一項は回折、第二項は焦点深度に関する。 $l_s \leq 10\text{ }\mu\text{m}$ かつ $NA > 0.2$ の場合に、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以下の分解能となるこ

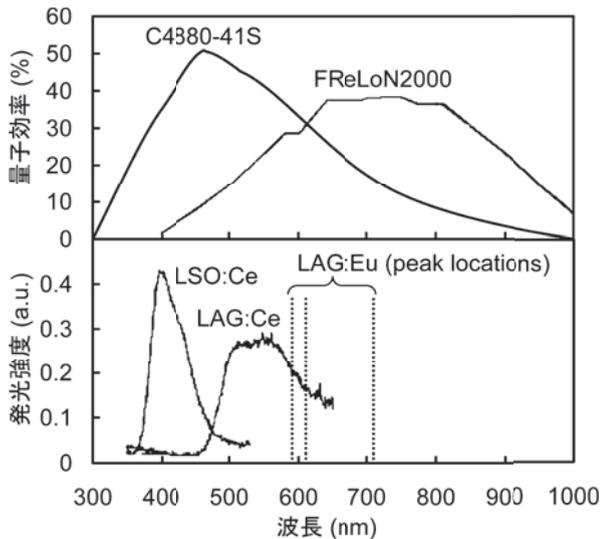


図8 シンチレーター物質と検出器の組み合わせ

とが示されている。このように、現在利用されているいくつかのシンチレーターでは、分解能は可視光の回折限界の水準に達している。シンチレーターの特性が問題となるのは、高時間分解能を必要とする場合である。その場合、明るい発光と迅速な減衰が必要になる。減衰時間の短縮には複数のドーパントの使用が、また発光効率に関しては、等方的に放射される可視光を一方方向に集光する構造化シンチレーターの試みが、それぞれ報告されている¹⁵⁾。

7.3 分解能に影響する他の因子

X線CTで得られる3D画像の空間分解能を左右する他の要因として、ビームやステージの安定性、ステージの動作精度、熱ドリフトを含む試験片の相対的ドリフト、各種アーティファクトなどが挙げられる。

SPring-8では、一定の蓄積電流を実現するトップアップ運転が2004年5月から導入された。ビーム入射は頻繁に行われるものの、その時の蓄積ビームの振動はわずかである。また、分光結晶の冷却を液体窒素による間接冷却方式とし、ビームドリフトを最小限に抑えている。これらにより、1回の計測中、あるいは多数回連続撮像する場合にも、X線の輝度変化は無視できるレベルであり、安定した撮像が可能となっている。

X線CTでは、回転ステージの精度も時として分解能を大きく左右する。この対策として、エアベアリングやスライドガイド式の回転ステージが用いられ、最高で回転ぶれ精度 $\pm 70 \text{ nm}/360^\circ$ が実現されている¹⁾。これは、現行の結像型CTに対しても十分な値と言える。

8. 応用例

冒頭にも述べたように、X線CTは4D観察への発展性に大きなメリットがある。ESRFでは、輝度に優れた白色X線を利用し、これに60 frames/sの高速度カメラを組み合わせることで、数十 s/scanの高速度撮像を実現している。4D観察

では、き裂進展挙動^{17~22)}やデンドライトの成長²³⁾、高温での粒子やポアのおストワルド成長²⁴⁾、塑性加工中の微視欠陥の消滅と再発生²⁵⁾など、様々な現象がその場観察され、有意義な成果が生まれつつある。また、4D画像内部に見られる分散粒子やマイクロポアなどのマイクロ組織特徴点を外乱下で追跡することにより、き裂進展駆動力^{18,19,21,22)}や歪^{20,25,26)}、変位などの様々な力学量が4Dでマッピングされている。この時利用されるマイクロ組織特徴点は、典型的な撮像域の体積である 0.2 mm^3 あたり、数千~数万点にもおよぶ。高精度でエラーのない追跡のための手法開発も精力的に行われ^{25,26)}、高密度な4Dマッピングが実現されている。これは現在、不透明な材料内部で、き裂進展駆動力や歪などを計測する唯一の手法と言える。この応用として、多結晶材料で粒界粒子を追跡することによる結晶粒追跡法も報告されている²⁷⁾。筆者らは、3D-X線回折との組み合わせによる3D結晶方位解析法を開発中である。また、3D画像を用いたイメージベースシミュレーション^{20,28)}もX線CTの重要な応用例と思われるが、4D歪マッピングは、これを直接かつ精密に比較検証できる唯一の実験手法という点でも非常に重要である。

この他、特定元素でX線吸収端の直上と直下で得た画像を画素差分する元素濃度3D/4Dマッピングも試みられており²⁹⁾、マイクロ組織の空間的な不均一性、およびその破壊への影響評価などに活用されている。

9. まとめ

X線マイクロ・ナノトモグラフィーの基礎と現状について概説した。現在、30 nm程度までの高分解能化、1 s/scanまでの超高速化が模索されており、今後、その有用性はますます向上すると期待される。

同手法は、それでもTEMやSEMと比べて決して分解能に優れるわけではない。しかし、得られる3D情報は極めてInformation-richであり、何物にも代えがたいものがある。SPring-8でも、X線光学、医学・生命、地球・宇宙物理学、材料科学、産業技術など多岐にわたる分野の研究者が集まって研究会活動が始まるなど³⁰⁾、数年前からこの分野の活性化が見られる。今後、この技術を4D観察に拡張すれば、物質・生命内部のナノ~マクロ構造を通して複雑かつ動的な現象の解明にダイナミックにアプローチできると考えられる。そのためにも、実在する物質・生命の複雑な形態をこれまでの理論に取り込む科学と技術のインターフェース作りが必要と考えている。3D・4D観察に基づく確度の高い実証性とそれと体系的に整合する実画像ベースの論理的推論を十分に活用すれば、X線マイクロ・ナノトモグラフィーが単なる可視化ツールのレベルを超え、3D・4Dサイエンスとも言うべき新しい学術領域の核となり得ると確信する。

文 献

- 1) Uesugi, K., Suzuki, Y. et al.: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, 467-468, 853-856 (2001)

- 2) Tekeuchi, A., Uesugi, K. *et al.*: *Rev. Sci. Instru.*, **73**, 4246–4249 (2002)
- 3) Suzuki, Y., Toda, H. and Schroer, C.: *Advanced tomographic methods in materials research and engineering*, Oxford Univ. Press, Oxford, 181–210 (2008)
- 4) Cloetens, P., Boller, E. *et al.*: *Europhysics News*, **32**, 46–50 (2001)
- 5) Ishisaka, A., Ohara, H. *et al.*: *Optical Review*, **7**, 566–572 (2000)
- 6) Hutton, B.: *J. Nucl. Med.*, **37**, 1915–1916 (1996)
- 7) Defrise, M., Noo, F. *et al.*: *Inverse Problems*, **22**, 1037–1053 (2006)
- 8) Li, L., Toda, H. *et al.*: *J. Appl. Phys.*, **102**, 114908-1-9 (2007)
- 9) Flannery, B.P., Deckman, H.W. *et al.*: *Science*, **237**, 1439–1444 (1987)
- 10) Grodzins, L.: *Nucl. Inst. and Mech.*, **206**, 541–545 (1983)
- 11) Graeff, W. and Engelke, K.: *Handbook of Synchrotron Radiation*, Vol. 4, Elsevier, Amsterdam, 361–405 (1991)
- 12) Toda, H., Ohgaki, T. *et al.*: *Metall. Mater. Trans. A*, **37A**, 1211–1220 (2006)
- 13) Toda, H., Uesugi, K. *et al.*: *Appl. Phys. Lett.*, **89**, 143112 (2006)
- 14) Takeuchi, A.: *Proc. XRM2008*, 2008, P2_060
- 15) Martin, T. and Koch, A.: *J. Synchro. Rad.*, **13**, 180–194 (2006)
- 16) Koch, A., Raven, C. *et al.*: *J. Opt. Soc. Am. A*, **15**, 1940–1951 (1998)
- 17) Qian, L., Toda, H. *et al.*: *Appl. Phys. Lett.*, **87**, 241907 (2005)
- 18) Toda, H., Hiramatsu, T. *et al.*: *Acta Mater.*, under review (2009)
- 19) Toda, H., Yamamoto, S. *et al.*: *Acta Mater.*, **56**, 6027–6039 (2008)
- 20) Qian, L., Toda, H. *et al.*: *Phys. Rev. Lett.*, **100**, 115505 (2008)
- 21) Zhang, H., Toda, H. *et al.*: *Acta Mater.*, **57**, 3287–3300 (2009)
- 22) Toda, H., Sinclair, I. *et al.*: *Acta Mater.*, **52**, 1305–1317 (2004)
- 23) Limodin, N., Salvo, L. *et al.*: *Acta Mater.*, **57**, 2300–2310 (2009)
- 24) Toda, H., Hidaka, T. *et al.*: *Acta Mater.*, **57**, 2277–2290 (2009)
- 25) Toda, H., Minami, K. *et al.*: *Acta Mater.*, **57**, 4391–4403 (2009)
- 26) Kobayashi, M., Toda, H. *et al.*: *Acta Mater.*, **56**, 2167–2181 (2008)
- 27) Kobayashi, M., Toda, H. *et al.*: *Proc. ICAA11*, 680–685 (2008)
- 28) Toda, H., Takata, M. *et al.*: *Adv. Engng. Mater.*, **8**, 459–467 (2006)
- 29) Toda, H., Takami, Y. *et al.*: *Proc. MetFoam 2007*, 445–448 (2008)
- 30) <http://www-bl20.spring8.or.jp/nmct/>