

2013A1376, 2013B1173

BL20XU

BL20XU (医学・イメージング II) の現状 (2014)**Present Status of BL20XU (2014)**

鈴木 芳生、竹内 晃久、上杉 健太郎
Yoshio Suzuki, Akihisa Takeuchi, Kentaro Uesugi

(公財) 高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・バイオ・ソフトマテリアルグループ
Bio- and Soft-materials Group, Research & Utilization Division, JASRI

BL20XU はハイブリッドタイプの水平偏光真空封止アンジュレータを光源としたビームラインで、主として X 線顕微イメージング実験や、極小角散乱実験に使用されている。2013 年度における主な高度化は、X 線取り出し窓の改良と XRD-CT 装置の開発である。

キーワード：X 線取り出し窓、SiN、マイクロビーム、XRD (X-Ray Diffraction)、CT (Computed Tomography)

I . 基本性能と実験装置

(詳細は、

http://www.spring8.or.jp/wkg/BL20XU/instrument/lang/INS-0000000476/instrument_summary_view
を参照)

光源はハイブリッドタイプの水平偏光真空封止アンジュレータであり、磁場周期長 26 mm、周期数は 173 である。アンジュレータ放射の基本波で 7.62 keV から 23 keV までのエネルギー領域をカバーしている。分光器は SPring-8 標準型の二結晶分光器であり、その冷却は液体窒素による間接型液体窒素冷却で行っている。

エネルギー領域	7.62 ~ 37.7 keV (Si 111)、23 ~ 113 keV (Si 511)
エネルギー分解能	$\Delta E/E \sim 10^{-4}$
フラックス	1×10^{13} ph/s/mm ² (第一実験ハッチ、蓄積電流 100 mA、Si 111 反射の条件)
ビームサイズ (半値全幅)	1.4 mm (水平) × 0.7 mm (垂直) (第一実験ハッチ 発光点から 80 m 位置での値) 4 mm (水平) × 2 mm (垂直) (第二実験ハッチ 発光点から 245 m 位置での値)

BL20XU は多様なイメージング技術とその応用を目的として作られたため、基本的に常設の実験装置はない。実験目的に応じてその都度装置のセットアップを行う。主な実験装置としては、

以下のものがある。

- (1) 投影型 X 線顕微イメージング／マイクロ CT (μ -CT)
- (2) 硬 X 線マイクロビーム／走査型顕微鏡／結像型 X 線顕微鏡
- (3) 各種 X 線光学実験／開発（コヒーレント、位相コントラスト、3D-XRD）
- (4) 極小角散乱

図 1 に、光学系・実験ステーションレイアウトを示す。基本性能と実験装置に昨年度からの大きな変更はない。

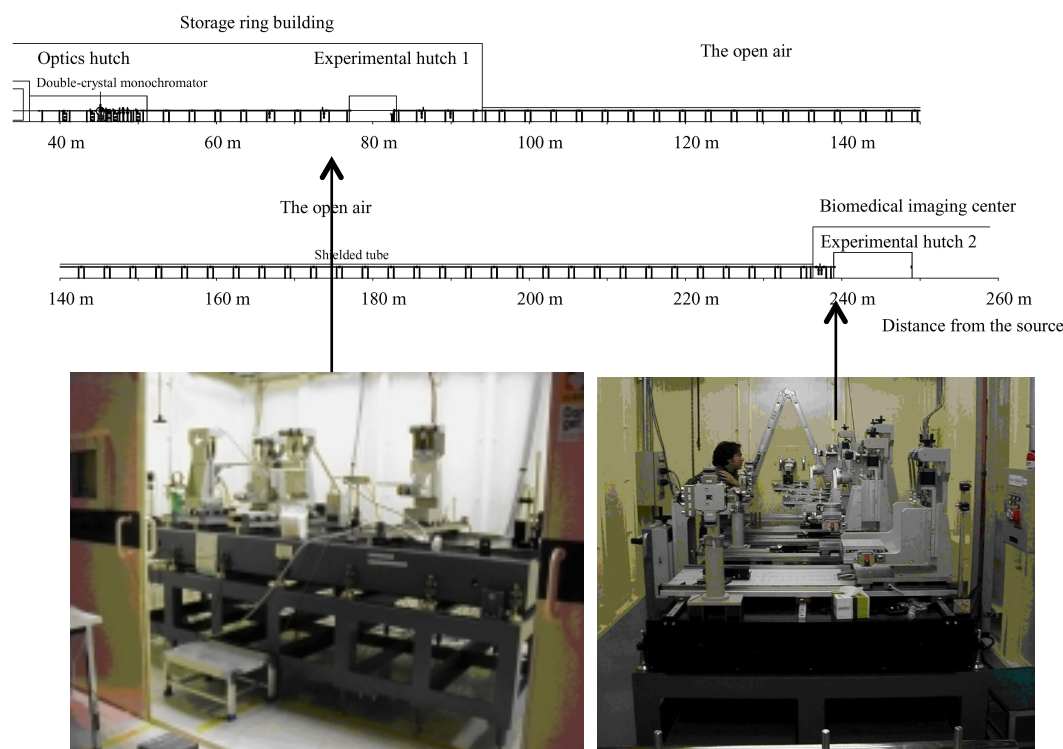


図 1 BL20XU 光学全体レイアウト

II. 利用状況

2013A 期 2013B 期合わせて 39 課題が実施された。採択率は、2013A 期、2013B 期それぞれ、69%、44%であった。図 2 (a) に、全課題に対する各装置の課題数の割合を示す。マイクロ CT に関する実験課題が最も多く、XRD と絡めた課題を合わせると半分以上の 21 課題である。図 2 (b) に、全課題に対する各分科会での採択課題数の割合を示す。利用分野としては、材料イメージング (D3) への申請課題が最も多く、11 課題、次に多いのがバイオメディカルイメージング・医学利用一般 (L3) の 9 課題であった。

近年の傾向としては、空間分解能 $1\ \mu\text{m}$ 程度の CT 計測において、高速化・高精度化を必要とする課題が増えている。特に金属材料の実験においては、密度差 2~3%しかない異なる結晶相を識別することが求められている。金属材料でかつ $1\ \mu\text{m}$ 程度の空間分解能を必要とすることから、干渉計を利用した位相計測法は利用が難しく、たとえ使用できたとしても、計測に時間がかかりす

ぎるという問題がある。今後はこれらを解決するための測定手法の開発が期待されている。また、CT 計測による 3 次元形状計測だけでは情報が不足する場合がある。特に線吸収係数の違いが僅かな物質の相を同定するには、X 線回折によるデータが有益となる。あるいは、金属を変形させたときに起こる結晶方位の変化を精密に計測することで、破壊過程における物質の挙動を 3 次元的に明らかにする際にも X 線回折は有用な手段になろう。この種の研究に対しては、膨大な回折データを迅速に取得し処理するようなシステムが必要となる。CT 計測の迅速化によりある程度の技術的蓄積はあるが、回折データは検出器の特性を補正することが難しいため、専用の検出器の開発および評価が必須となる。回折データを CT と同じセットアップでの計測を可能とすることで、一度の実験で得られる情報の質が飛躍的に高まると考えられる。

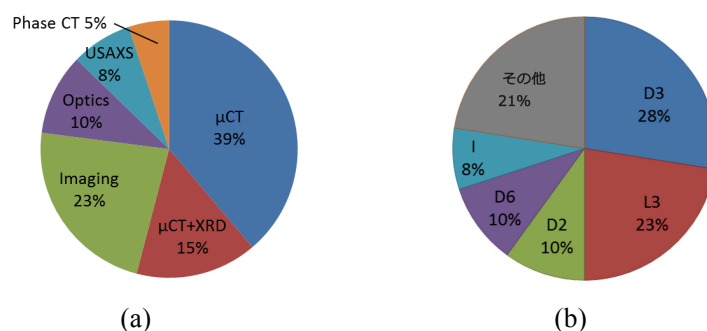


図 2 全課題に対する (a) 各装置の課題数の割合、(b) 各分科会での採択課題数の割合。

Ⅲ. 高度化の実施内容と成果

1. X 線取り出し窓の高度化

高真空下にあるビーム輸送チャンネルから大気中にある実験ステーション機器を隔てる真空窓には、X 線透過率と機械的耐性の見地から従来ベリリウムが用いられているが、内包する不純物による介在物や微小欠陥によるスペックルノイズの問題があった。また、金属ベリリウムでは X 線照射による光化学反応によって生じる酸化の問題があるため、直接大気中への窓材として用いることは難しく、大気側をポリイミド (カプトン) 薄膜としてベリリウム窓との中間を He 置換する方法が一般的であった。BL20XU ではベリリウム窓材によるスペックルノイズを避けるために、最下流の X 線取り出し窓にベリリウムを使わず、これまでは厚さ 125 μm のカプトンのみで真空窓としていた。しかしながら、有機高分子であるカプトン等では放射線損傷とそれに伴うスペックルノイズ発生の問題があった。放射線損傷の影響は特に吸収が強い低エネルギー領域 (10 keV 以下) で顕著であり、定期的な (おおよそ 1 週間程度) 交換が必要であった。また、長時間連続照射条件での安定性にも問題があった。たとえば CT の実験においては、これは得られる CT 像中にリングアーティファクトと呼ばれる輪帯状のノイズとして現れ、定量性を著しく低下させる原因となっていた。

この問題を解決するために、放射線耐性が高く、かつ均質な X 線窓材である非晶質 SiN に置き換えることを試みた。ビーム輸送チャンネル終端に設置された SiN 窓を図 3 に示す。放射線耐性と機械的強度および化学的安定性 (X 線光化学反応による酸化耐性) の点ではこれまでに X 線リ

ソグラフィーのマスクメンブレンとして、ダイヤモンド、SiC、非晶質 SiN が開発されている。機械的強度と X 線透過率の点では、ダイヤモンドと SiC が優位であるが、これらは多結晶体であるため回折によるスペックルノイズの問題があったため、今回の高度化では非晶質 SiN を選択した。SiN 膜は NTT-AT 社で製作されたものであり、厚さ 0.625 mm のシリコンウェハ上に CVD 法により製膜された厚さ 6 μm の非晶質膜であり、X 線透過率は 7 keV で 89%、8 keV で 92% となるため、通常のエネルギー領域では吸収損失は問題とならない。X 線窓開口部は 10 mm \times 10 mm の正方形である。現状の BL20XU の最下流における X 線ビームサイズは最大で 4 mm (水平) \times 2 mm (垂直) 程度であるため、窓開口 10 mm は光軸変位が無ければ十分な余裕がある。

ビームラインに設置して性能テストを行ったところ、真空封止性能はベリリウム窓と遜色無く (到達真空度 2×10^{-5} Pa 以下)、ビーム均一性と放射線耐性に関してもカプトン窓より遙かに優れた結果が得られている。

図 4 に、CT 実験時に窓材として従来のカプトンを使用した場合と、SiN 窓を使用した場合にそれぞれ得られる標準試料の CT 像の比較を示す^[1]。CT の測定中 (通常 10~30 分程度) に、窓材であるカプトンの放射線損傷によって試料に照射するビームの強度分布が微妙に変化したことにより、図 4 (a) に示すようなリングアーティファクトが像中にノイズとして現れている。窓材に SiN を用いている図 4 (b) においては、ほぼこの影響は見られなくなっている。

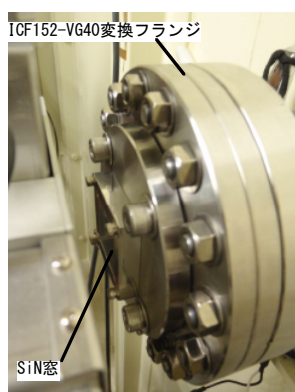


図3 ビーム輸送チャンネル終端部設置した SiN 窓

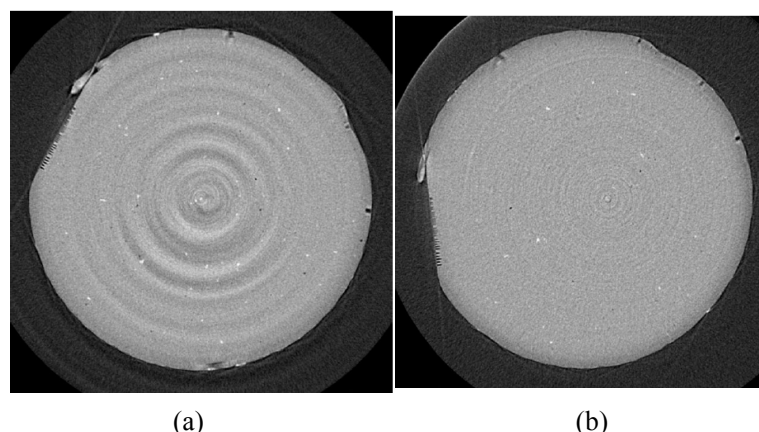


図4 アルミニウム 250 $\mu\text{m}\phi$ から作成されたテストパターンの CT 像による窓材の比較。(a) カプトン窓使用時、(b) SiN 窓使用時。X 線エネルギー : 12 keV

2. XRD-CT のための X 線マイクロビーム XRD 装置の開発

XRD-CT は、マイクロビーム X 線回折 (XRD) に CT 的手法を組み合わせることで、試料内の各結晶粒の方位と 3 次元分布を非破壊で観察することを目的とした手法である。これに、通常の吸収コントラストの X 線 CT の観察で得られる線吸収係数の 3 次元分布を組み合わせることにより、組織を構成する鉱物、あるいは化学組成の同定まで可能性を有することから、近年、材料、金属、鉱物、宇宙科学の分野で多くの試みがなされている。

前項のように、X 線 CT 計測の高精度化は BL20XU が建設されて以来継続的に行われている。これにより、吸収コントラスト CT では線吸収係数の定量的取り扱いにより物質の形状や分布を示すことが可能となっている。しかし、材料科学あるいは地球科学的な試料の場合、線吸収係数

では区別（鉱物相の同定）がきわめて難しい物質があるのも事実である。一つの解決法として、位相コントラストイメージング法が挙げられるが、計測が難しく、鉱物相を同定するための手法としては、線吸収係数と同様決めに欠ける。これを克服し鉱物相の分布を非破壊で決定しうる方法として、20年ほど前、オーストラリアのグループにより、XRD-CT法が提案されている^[2]。

BL20XUでは、吸収コントラストCT法によるデータを補完し鉱物相を同定する手法としてXRD-CT法を採用した。このために、同一の試料に対してマイクロビームを利用したXRD-CTと通常のマイクロCTを連続して行うためのシステムの開発を行っている（図5）。XRD-CTとマイクロCTともに1 μm 程度の空間分解能を達成させるために、両者の計測システムの切り替えには、1 μm オーダーの精度・再現性が求められる。また、数百 μm ～1mmサイズの試料をXRD-CTで測定するには、数十万～数百万枚のXRDパターンを記録していく必要があり、これを現実的なビームタイムの中で実施するにはマイクロビームXRDにおいて最低でも一秒あたり数十測定点と非常に高速な測定が求められる。同時に、試料には μm オーダーの領域に可能な限り大強度のX線を照射する必要があるため、スリットによるビーム形成よりも、X線光学素子を用いた集光スポットを利用する方が有利である。更に、放射光からの準平行光と違い、集光光学系は入射X線にある程度の角度発散があるため、照射領域が微小であっても結晶からの回折像を得る確率は高くなる。逆にあまりに角度発散が強いと、今度は回折像の分解能が低下してしまう。これらの事を考慮し、更にXRD-CT実験での利用が多い20～30 keVのエネルギー領域での利用を念頭においたX線マイクロビームシステムを開発した。集光素子にはNTT-AT社製フレネルゾーンプレート（FZP）を用いている。FZPの各パラメータは下記の通りである。材質タンタル厚さ2 μm 、最外線幅200 nm、直径299 μm 、焦点距離と角度発散はそれぞれ、20 keVにおいて960 mmと156 μrad 、30 keVにおいて1440 mmと104 μrad 、この素子のスポットプロファイルを図6に示す。理論値通りのスポットが得られているが、実際の実験においては1 μm 程度の分解能でよいことから、ビームラインのフロントエンドスリットを可能な限り開いて光量の確保をしている。この条件下で、試料には 10^{11} photons/s近い光量が得られ、一秒あたり約50測定点での測定で十分な強度の回折像が得られている。図7にXRD-CTセットアップにて測定した結果例を示す。試料はMurchisonと呼ばれる、炭素質コンドライト隕石の300 μm の小片である。主要構成鉱物である蛇紋石と呼ばれる粘土鉱物と、その他、輝石、かんらん石がXRD-CTを用いてはっきりと区別出来ている。この測定では1秒あたりの測定点は20、1スライスの測定時間は2時間であった。

この高度化研究は2013A1376、2013B1173で実施された。

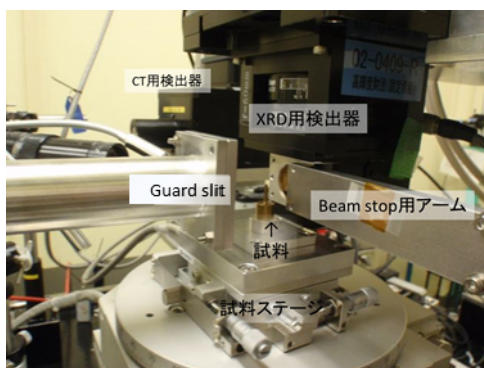


図5 XRD-CT セットアップの試料周り。奥に CT 用検出器が設置されており、通常の CT との切り替えの際は検出器、Guard slit を自動で移動できるようにしている。

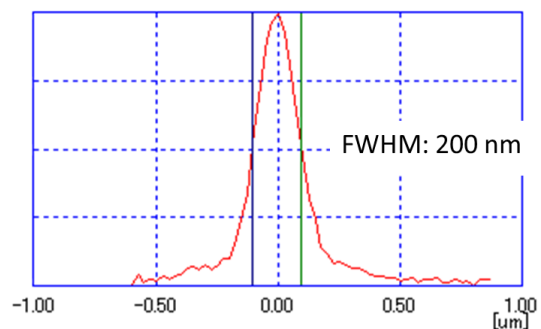


図6 XRD-CT に用いられている FZP の集光スポットプロファイル。スポットの半値幅 (Full-Width at Half Maximum, FWHM) 200 nm が得られている。

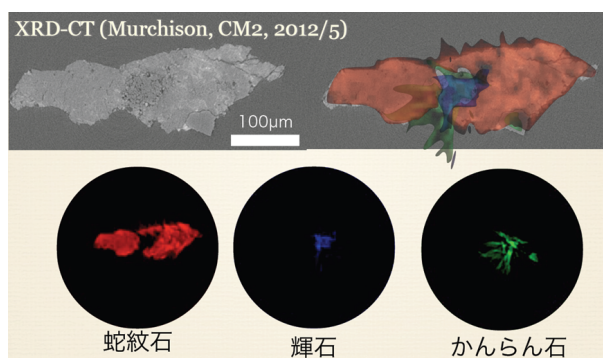


図7 Murchison 隕石の吸収 X 線 CT (左上) と、蛇紋石、輝石、かんらん石の分布。X 線エネルギー 20 keV

参考文献

- [1] R. Mizutani et al., *Micron* **41**(1), 90-95 (2010).
 [2] J. A. Grant et al., *Optical Engineering* **33**(8), 2803 (1994).

©JASRI

(Received: November 10, 2014; Early edition: December 25, 2014; Accepted: January 16, 2015;
 Published: February 10, 2015)