

2012A1146

BL28B2

BL28B2 における非対称反射結晶の導入 Introduction of Asymmetrically Cut Crystal at BL28B2

梶原 堅太郎
Kentaro Kajiwara

(公財)高輝度光科学研究センター
JASRI

標準モノクロメータから得られる 37 keV 以上の X 線は、Si(311)回折や Si(511)回折によるものであり強度が弱い。37 keV 以上の X 線を用いた CT 測定の測定時間を短縮するために、強度が強い Si(111)回折で高エネルギー X 線が得られるモノクロメータを BL28B2 に準備して実験を行った。モノクロメータ結晶には非対称反射のシリコン結晶を準備し、X 線の強度を重視して迅速な測定を目指した。83 keV の X 線を用いて断面が 1.5 mm × 1.5 mm の鉄鋼材料中のき裂や介在物を観察することができた。

キーワード： X 線 CT、金属材料、高エネルギー X 線

背景と研究目的：

BL28B2 で得られる X 線は幅広いエネルギー帯の X 線を含んでいる白色 X 線である。本ビームラインの特徴を活かすために、白色 X 線を試料に照射するエネルギー分散型の応力・ひずみ測定や白色 X 線トポグラフィが実施されてきた。BL28B2 において単色化した X 線を試料に照射する実験を行うことはなく、単色 X 線を使った実験は標準のモノクロメータを準備しているビームラインで実施されてきた。

しかしながら、標準のモノクロメータでは対応が難しい実験が増えつつある。その一つが高エネルギーの単色 X 線を用いた CT 測定である。BL19B2 における牧野らの CT 観察は現状 37 keV の X 線を使って断面 0.5 mm × 0.5 mm の高強度鋼中のき裂発生・進展挙動を観察しているが、より厚い試料の観察が必要となってきた^[1,2]。SPRING-8 標準のモノクロメータは特定のエネルギーの X 線のみシリコン単結晶で回折させて取り出している。図 1(a)に示すように角度 α を調整することで、111 面や 311 面による回折を選択することが可能である。装置の機械的な制限により回折角度 θ は最小で 3° であり、このとき得られる X 線のエネルギーは Si(111)および Si(311)回折ではそれぞれ 37 keV および 73 keV である。37 keV 以上の X 線を使用する場合は Si(311)回折など高次の回折を用いることになるが、Si(111)回折と比較して強度が弱い。回折強度は以下の式で表される積分反射能 R に比例する^[3]。

$$R = \frac{8}{3\pi} \frac{r_e}{v_c} |F| \lambda \frac{|P|}{\sin 2\theta} \quad (1)$$

ここで、 r_e は古典電子半径、 v_c は結晶の単位格子の体積、 F は結晶構造因子、 λ は X 線の波長、 P は偏光因子および θ は回折角度である。回折指数の違いのみ考えると、 R は $|F|/\sin 2\theta$ に依存し、高次の回折ほど小さくなることは明らかである。現状 CT 測定時間は数時間に及ぶ場合があり、さらに長い測定時間での実験は現実的ではなくなってくる。一方、高エネルギーの白色 X 線を試料に照射して CT 測定を行った場合は、バックグラウンドの増加やビームハードニングなどの画像劣化が顕著となるため、入射 X 線のエネルギー帯を制限することは必要である。

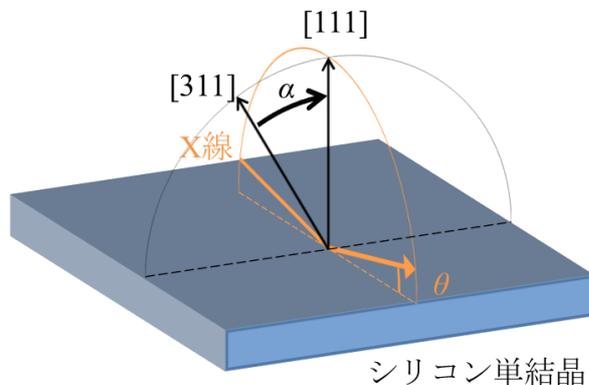
そこで白色 X 線のビームラインの特徴の一つとしてモノクロメータを自由に設計し設置できることを提案し、高エネルギーの単色 X 線を用いた CT 実験環境整備を目的として実験を行った。特に、この際に非対称反射のモノクロメータを用いることで、より強度の強い X 線を得ることを目指した。図 1(b)に示すように結晶表面と回折面とが角度を持つとき、散乱面内において X 線の空間的な広がりが増えるため単位面積当たりの X 線強度を増加させることができる。入射 X 線の幅 l_0 と回折 X 線の幅 l_g は非対称因子 b を用いて表され、非対称因子は以下の式で定義される。

$$l_g = \frac{l_o}{b} \quad (2)$$

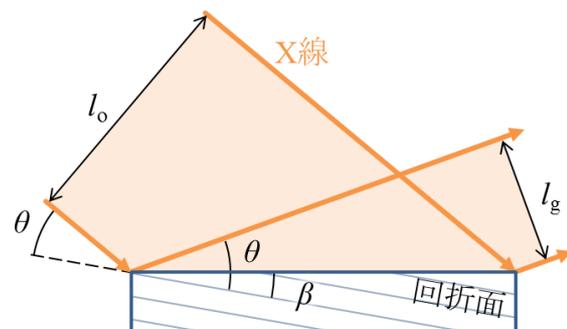
$$b = \frac{\sin(\theta + \beta)}{\sin(\theta - \beta)} \quad (3)$$

実験の評価項目として、「高エネルギーX線を使った際のき裂検出の可否」、「測定時間の長さ」、「検出可能なき裂サイズの下限值」および「時間に対するX線の強度およびエネルギーの安定性」が挙げられるが、今回は第一回目の実験であるため、まずは「高エネルギーX線を使った際のき裂検出の可否」および「測定時間の長さ」を評価した。

尚、課題申請では非対称反射のモノクロメータを用いたX線CTだけでなく、X線トポグラフィの実験も計画していたが、SPring-8の特徴をより活用することが可能である高エネルギーのCT実験に多くの時間を費やした。X線トポグラフィの実験は予備実験的に比較用のシリコン結晶のトポグラフィ像を測定したに留まり、今回の課題ではそれ以上の測定は行わなかった。また、CTの観察においては試料としてセメント粒子を挙げていたが、高エネルギーX線の必要性が明らかな鉄鋼材料の観察のみを行った。



(a) Si(111)回折と Si(311)回折の切り替え



(b) 非対称反射

図1. モノクロメータ結晶によるX線の回折。

実験：

実験はBL28B2で行った。試料は高強度鋼であり、断面が0.5 mm × 0.5 mmのもの(試料Aと呼ぶ)と1.5 mm × 1.5 mmのもの(試料Bと呼ぶ)を準備した。試料の長さはおよそ10 mmであり、長手方向の中央付近を観察した。それぞれの試料をCT観察した時のレイアウトを図2に示す。いずれの実験においてもモノクロメータ結晶はシリコンであり、表面が111面から0.75°傾いたものを用いた。単色化における散乱面は図2に示すxy面(水平方向)である。散乱X線によるノイズの増加を防止するために、スリット、モノクロメータ、試料および検出器のそれぞれ間にステンレス製のパイプを設置した。検出器はCMOSカメラ(Flash2.8 浜松ホトニクス社製)とビームモニタを組み合わせたものを用いており、ビームモニタはBM2(浜松ホトニクス社製)とBM3(浜松ホトニクス社製)を準備した。ビームモニタでは試料の透過X線像を可視光の像に変換しレンズで拡大することが可能であり、CMOSカメラの実効的な画素サイズを小さくすることができる。CMOSカメラとBM2およびCMOSカメラとBM3の組み合わせにおける実効的な画素サイズは、それぞれ1.74 μmと0.63 μmであった。視野サイズはそれぞれ横1.2 mmと縦2.1 mmおよび横1.1 mmと縦0.9 mmであった。き裂検出の可否および測定時間の長さは検出器の画素サイズに依存するため、2種類の検出器を準備した。試料AおよびBの測定においてモノクロメータ結晶表面とX線のなす角度は2.26°と2.11°とした。この配置で得られるX線のエネルギーはそれぞれ75 keVと83 keVであり、回折角度はそれぞれ1.51°と1.36°である。非対称因子はそれぞれ2.97と3.44である。図3はX線のエネルギーと測定可能な鉄の厚さを計算した結果である。測定可能な厚さはX線の透過率が1/e(e:ネイピア数)になる厚さとした。試料の対角方向のビームパスであっても測定可能なX線のエネルギーを選択したことが分かる。試料は0.2°ステッ

および 0.1° ステップで、 0° から 180° まで回転させて、各角度ステップにおいて試料の透過像を測定した。透過像の露光時間は 8 s と 10 s とした。CT 測定における試料の回転軸は図 2 に示す z 軸と平行である。表 1 はこれらの実験条件をまとめたものである。測定条件ごとに測定 1-測定 4 と呼ぶこととする。測定 1 は実験初期に行ったものであり、実験条件が定まっていない。角度ステップは測定 1 においては試験的に 0.2° としたが、測定 2 以降は統計精度を向上させるために 0.1° とした。測定 1 における露光時間は検出器が飽和する露光時間とした。測定 1 以外の測定において、表 1 に示した露光時間では検出器が飽和することはなかった。統計精度を向上させるためには飽和直前まで溜め込むことが望ましかったが、測定時間が長くなりすぎるため今回の実験では露光時間は 10 s 程度とした。結晶と試料との距離 L_1 と試料とカメラの距離 L_2 は測定 1 においては 335 mm と 350 mm としたが、シリコン結晶からの散乱線によりスパイクノイズが多数検出されたため、シリコン結晶とカメラの距離 (L_1+L_2) を離す必要があった。試料とカメラの距離 L_2 を長くすると屈折コントラストの影響が強くなるため、 L_1 を長くし測定 2 以降ではその値を 1100 mm とした。

試料の断面像再構成前に測定画像のスパイクノイズをメディアンフィルタで除去し、また、画像を滑らかにするために平均化フィルタを施して、その後再構成を行った。再構成はフィルタードバックプロジェクトン法を用いた。

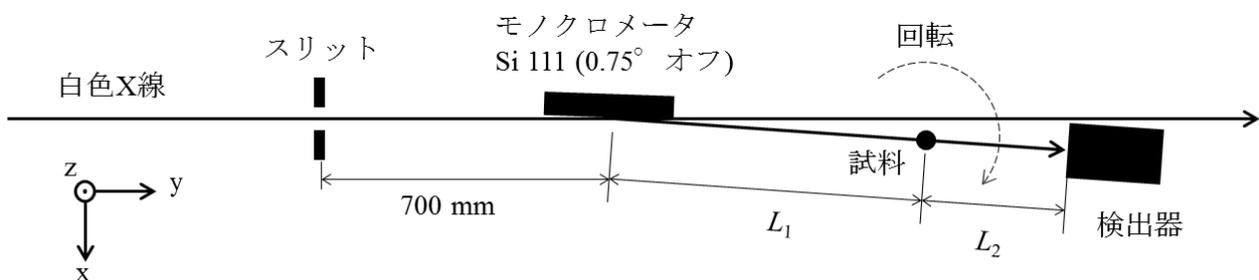


図 2. 実験レイアウト(上から見た図).

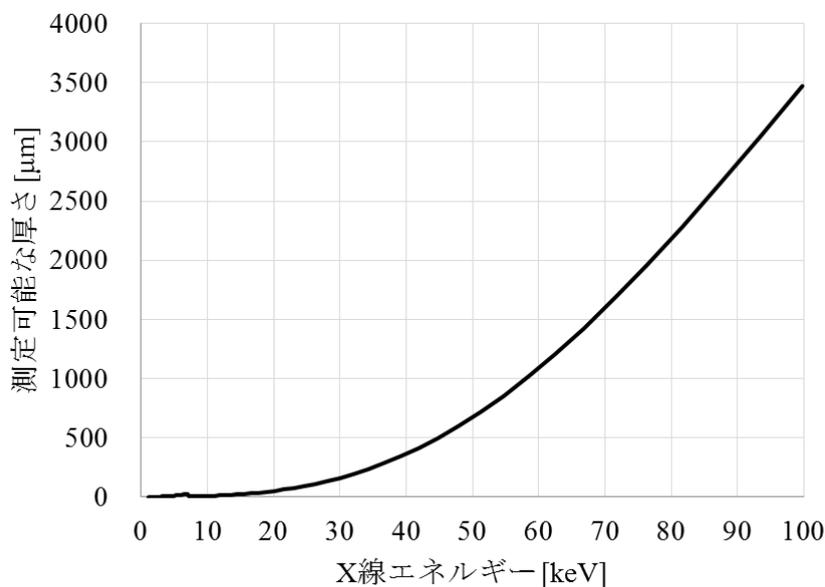


図 3. 鉄鋼材料の測定可能な厚さ. 密度 7.8 g/cm^3 として計算した。測定可能な厚さは入射 X 線の強度が $1/e$ となる厚さとした。e はネイピア数である。

表 1. 実験条件.

	試料	エネルギー [keV]	検出器	画素 サイズ [μm]	角度 ステップ [$^{\circ}$]	露光時間 [s]	結晶と試料 の距離 [mm]	試料とカメラ の距離 [mm]
測定1	試料A	75	CMOSと BM2	1.74	0.2	10	335	350
測定2	試料A	75	CMOSと BM3	0.63	0.1	10	1100	300
測定3	試料B	83	CMOSと BM2	1.74	0.1	8	1100	550
測定4	試料B	83	CMOSと BM3	0.63	0.1	10	1100	550

結果および考察：

CT の再構成において、測定した透過像に飽和した画素が含まれていると再構成後の画素の値が正しい値を示さない。従って露光時間は透過像内で最もカウント数が高い部分が飽和しない時間以下で、可能な限り長い(統計精度を高めるため)時間となる。測定した透過像において最もカウント数が高い部分(空気の部分)の値を調べると測定 1-4 でそれぞれ 4000 カウント、300 カウント、800 カウントおよび 300 カウントであった。今回使用した検出器の最大カウント数は 4000 カウントであるため、測定 1-4 の適切な露光時間は、表 1 に示した露光時間の 1 倍、13 倍、5 倍および 13 倍である。すなわち、10s、130s、40s および 130s が適切な露光時間だということが分かった。図 4 に透過像測定例を示す。これらの画像は CMOS カメラの暗電流画像の減算および試料がない状態で得た入射 X 線の画像での除算による規格化を行ったものであり(メディアンフィルタと平均化フィルタは施していない)、透過率の分布を示している。明るい色は透過率の高い部分である。図 4(a)-(d)はそれぞれ測定 1-4 において CT の回転角が 0° のときの画像である。図 4(b)の四角で囲んだ部分は試料がない部分でのスパイクノイズの存在を拡大して示した例である。図 5 は図 4 の試料部分のヒストグラムである。計算上、厚さ 0.5 mm の鉄に対する 75 keV の X 線の透過率と厚さ 1.5 mm の鉄に対する 83 keV の X 線の透過率は、それぞれ 0.77 と 0.52 である。測定 1、測定 3 および測定 4 は概ね良い値を示したが、測定 2 は値が小さかった。その原因として検出器の交換作業中にシリコン結晶が動いた可能性がある。検出器を動かさなければ、検出器で X 線の位置を確認することで回折角度が変わったか否かを判断できるが、検出器を交換する場合は回折角度を丁寧に確認する必要があることが分かった。

ヒストグラムの幅を比較すると、検出器に BM3 を用いた測定(測定 2 と測定 4)では幅が広がった。これは露光不足による統計精度の低さが原因である。BM3 を用いた検出系は実効画素サイズが小さいため露光時間を長くすべきではあったが、露光時間を長くすると、後述するスパイクノイズが非常に多くなったため長くできなかった。ノイズ対策を行い、露光時間を延ばす工夫が必要である。

図 4 にはスパイク状のノイズが多く含まれていた。測定画像は X 線像を可視光像に変換して CMOS カメラで測定されるべきであるが、これらのノイズは高エネルギーの散乱 X 線が CMOS カメラに直接入射したことによるものである。X 線の散乱源であるシリコン結晶から検出器を離したり、カメラにシールドを施したりしたことでノイズは低減した(図 4 はノイズ低減後のもの)が、図 4(b)の四角で囲んだ部分を見て分かる通りまだ多くのノイズが検出されていた。実験ハッチのサイズや装置のレイアウトの制限のため、今回の実験ではシリコン結晶と試料の距離は最大 1100 mm しかとれなかったが、今後の運用では更に距離を離れた方が良く考えている。

図 4(c)と(d)は試料 B を観察したものであるが、入射 X 線の横幅(水平方向の幅)が試料の横幅より小さかった(視野の横幅は入射 X 線の横幅に合わせて切り出したものである)。入射 X 線の横幅はモノクロメータに用いたシリコン結晶の長さで決まり、今回の実験では回折面と表面とがなす角度が当初の予定より大きかったため、入射 X 線の横幅を試料の横幅より大きくすることができなかった。CT 測定においては試料の横幅は視野の横幅より小さくしなければ再構成した断面の線吸収係数が正しい値を示さないが、今回の実験ではこのまま実験を実施した。

図 6 に再構成した断面像の例を示す。断面像の画素値は線吸収係数を示しており、色が明るいほど線吸収係数が小さいことを示している。図 6(a)と(b)を見ると、断面 0.5 mm \times 0.5 mm の鉄鋼材料中の

き裂を 75 keV の X 線を使って観察できたことが分かる。いずれの検出器を用いてもき裂および介在物は検出できており、今回の試料に対しては同じ露光時間でも統計精度が高い BM2 を用いた検出器の方が効率的であることが分かった。それぞれの検出器で検出可能なき裂および介在物の下限値の調査は今後の課題とした。

図 6(c)と(d)は 83 keV の X 線を使って断面 1.5 mm×1.5 mm の鉄鋼材料を観察した結果である。中央部分は部分的に材料が剥離した領域であり空隙である。空隙の形状、介在物やき裂を観察することができている。剥離部を含まない断面でも介在物が観察されており X 線の透過長さが 1.5 mm を超える鉄鋼材料でも観察可能であることが分かった。

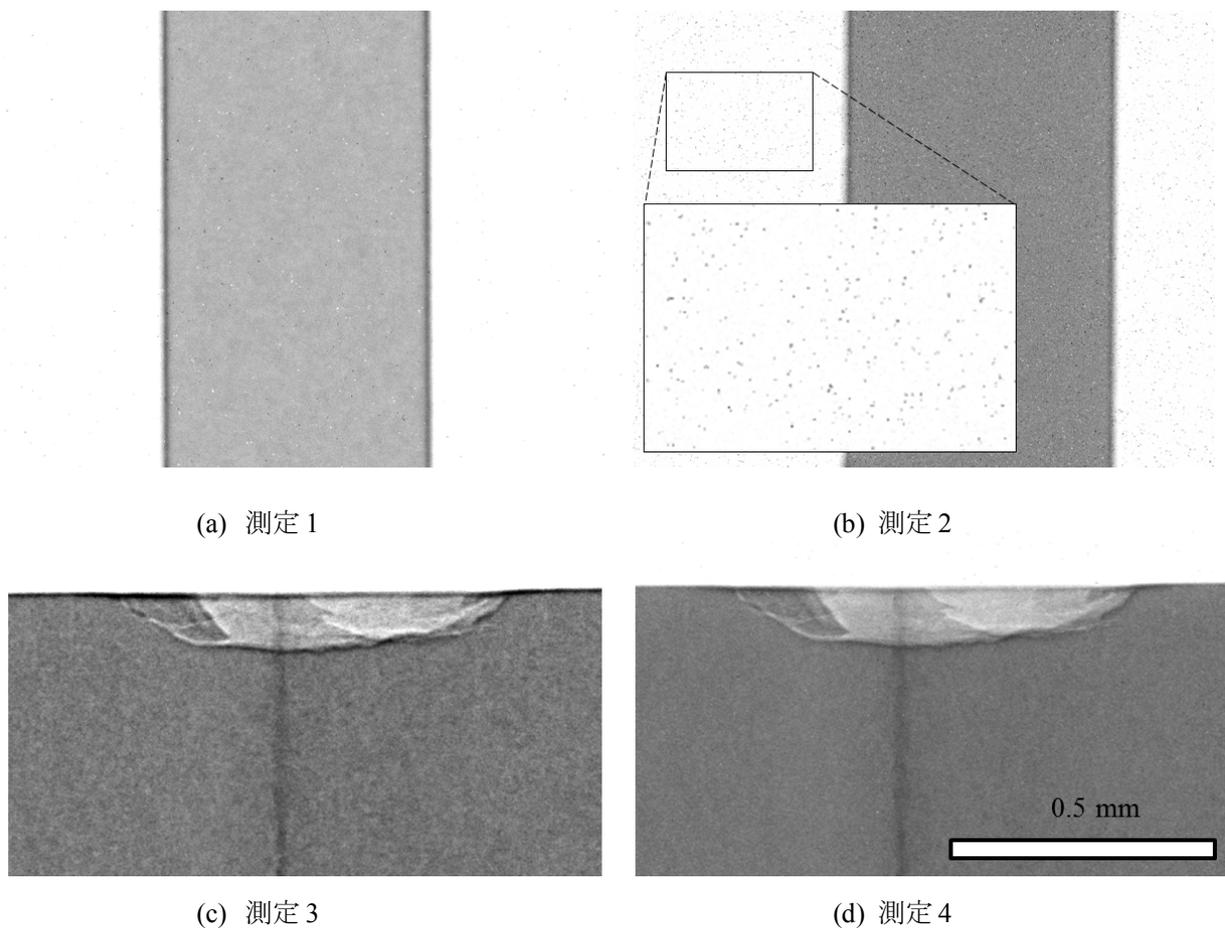


図 4. 鉄鋼材料の透過像.

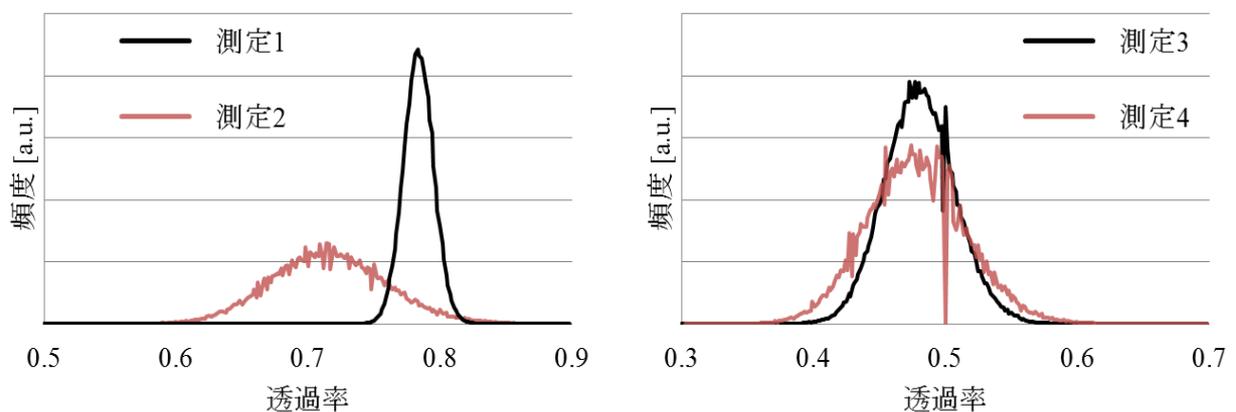
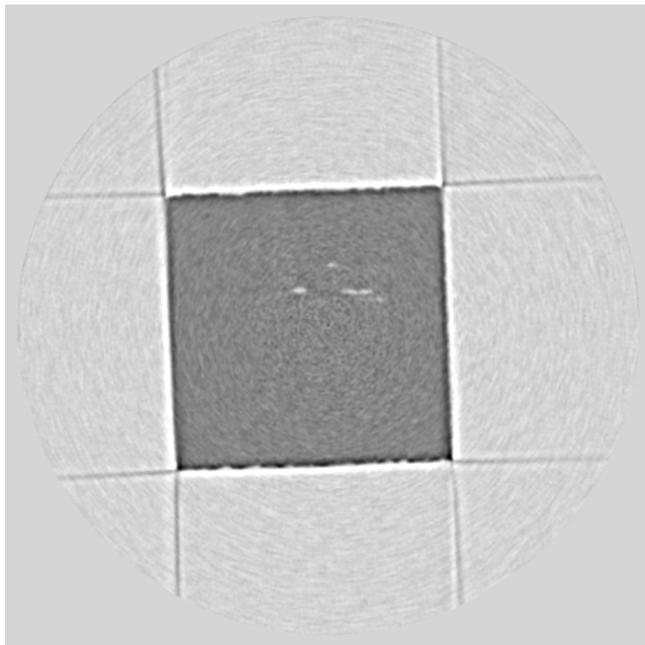
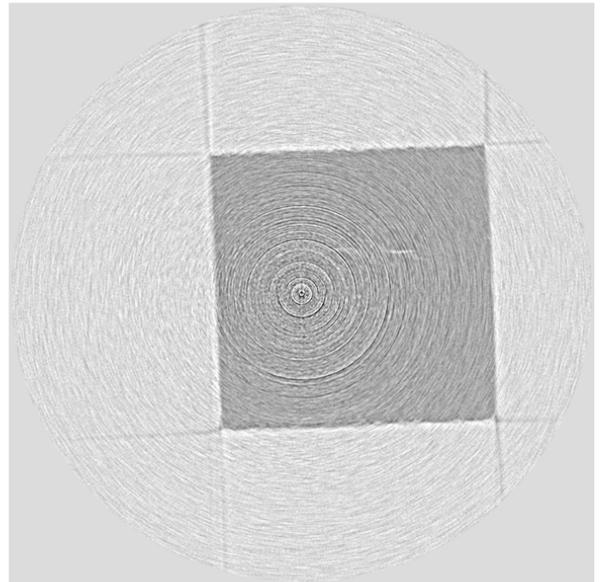


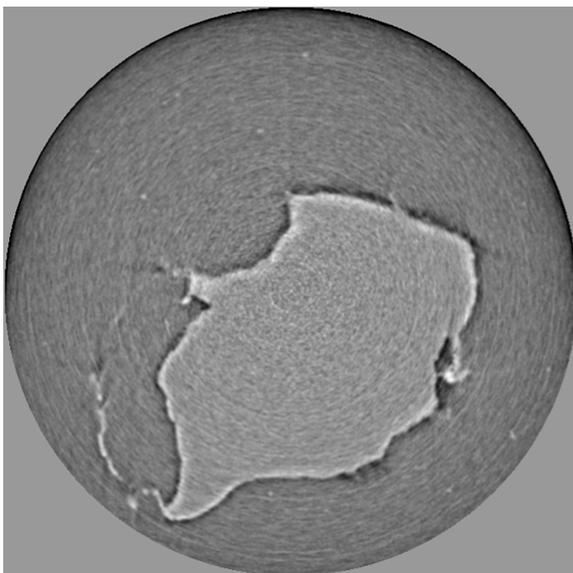
図 5. 図 4 の試料部分のヒストグラム.



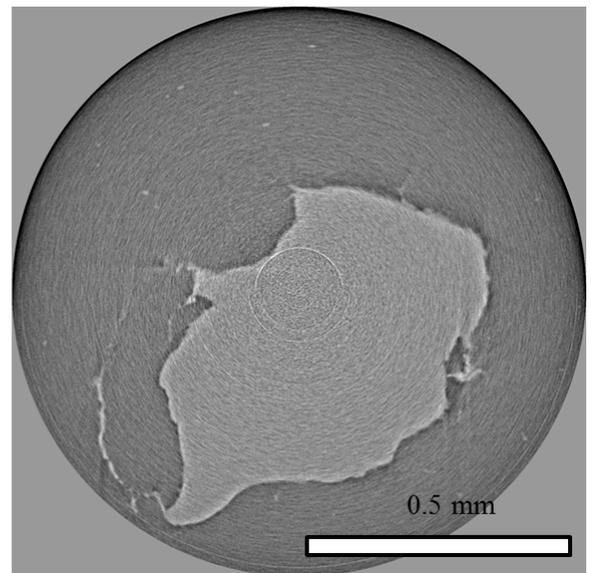
(a) 測定 1



(b) 測定 2



(c) 測定 3



(d) 測定 4

図 6. 鉄鋼材料の断面再構成像.

今後の課題：

BL28B2 に Si(111)回折で 37 keV 以上の X 線を得るためのモノクロメータを導入した。83 keV の X 線を使って断面 1.5 mm × 1.5 mm の鉄鋼材料中のき裂や介在物を検出することができた。

今回の実験において、透過像を得るための適切な露光時間は 60-120 s であった。この値を目安に実験に必要な時間を検討することができる。

ユーザー実験へ提供するためには「検出可能なき裂サイズの下限值」および「時間に対する X 線の強度およびエネルギーの安定性」を評価する必要がある、また、ノイズ対策もさらに強化する必要があることが分かった。

参考文献 :

- [1] T. Makino, Y. Neishi, D. Shiozawa, Y. Fukuda, K. Kajiwara, Y. Nakai, *Int J Fatigue*, **68** (2014), 168–177
- [2] 牧野泰三, 根石豊, 中井善一, 塩澤大輝, SPring-8 利用研究成果集, **1** (2013), 27-30
- [3] 菊田惺志, X線回折・散乱技術〈上〉東京大学出版会

©JASRI

(Received: March 24, 2016; Early edition: June 15, 2016;
Accepted: June 24, 2016; Published: July 25, 2016)