

間接型 X 線画像検出器の開発と供用

公益財団法人高輝度光科学研究センター XFEL 利用研究推進室
国立研究開発法人理化学研究所 放射光科学研究センター

亀島 敬、初井 宇記

Abstract

マイクロメートル～サブマイクロメートル領域の空間分解能を持つレンズ結像型の間接変換 X 線画像検出器の開発状況について概説する。近年、本撮像方式の課題であったシンチレータ内で生じる光拡散による解像性能低下は、光学ガラス級の光学品質を備えた薄膜シンチレータを用いることで大きく改善された。これにより、顕微鏡光学系が本来持つ回折限界に近い解像性能を得るに至っている。一方で、X 線 CT や、小片化できない試料、または動的に変化する大型の試料の撮像等のアプリケーションにおいては、空間分解能だけでなく試料全体を同時に撮像できる広い視野サイズが求められる。以上を踏まえ、SPring-8 において透過 X 線を等倍撮像する条件の下、近回折限界性能を保持しつつ X 線ビームサイズと同程度の数 mm～数 10 mm まで視野を拡張し、供用することを計画している。

1. はじめに

我々は、SPring-8-II¹⁾に向けた研究開発を行っている。検出器に関しては、波及効果が大きな X 線画像検出器に着目し、X 線回折・散乱用の検出器 CITIUS と透過 X 線用の検出器 Diffusion-free transparent scintillator 検出器 (DIFRAS)²⁾の研究開発を進めている。本稿では DIFRAS 検出器について概説する。

マイクロメートル～サブマイクロメートル領域の構造を持つ透過 X 線像の計測にはシンチレータ・顕微鏡光学系・イメージセンサから構成されるレンズ結像型 X 線画像検出器が一般的に用いられる。本検出方式にはシンチレータ内の光学的欠陥から生じる光拡散が原因で、顕微鏡光学系が本来持つ回折限界に近い空間分解能が得られないという課題があった³⁾。また、必要とする視野サイズは、SPring-8 で等倍撮像する条件下において、プローブである X 線ビームサイズと同程度の数 mm～数 10 mm である。これに対して、1 マイクロメートルの空間分解能を持つ光学構成とした時の視野サイズは 1 mm 程度が限度となる。利用できる科学計測用 CMOS イメージセンサの解像度 2 k × 2 k に制限され、空間分解能に対するサンプリング数を 2 とした場合、1000 以上の空間分解能・視野比を得ることができないためである。

以上の理由から、X 線画像検出器の空間分解能の向上および、その空間分解能と広視野を両立できる技術

が望まれている。本稿では、高解像度化を目的としたシンチレータ光学系の開発と、14 k × 11 k の高解像度 CMOS イメージセンサを導入した広視野レンズ結像型 X 線画像検出器の開発について紹介する。

2. DIFRAS 検出器の開発

我々は本課題に対する最初の取り組みとして、レンズ結像型 X 線画像検出器の解像性能を回折限界レベルまで高めるために、神島化学工業株式会社との共同研究で光学ガラス級の光学品質を備えた透明セラミック薄膜シンチレータの開発を行った。同一ホスト材料から生成されたシンチレータと支持基板を直接接合後にシンチレータ層を顕微鏡光学系の被写界深度程度に薄化している。空隙の無い完全緻密構造・サブ nm 結晶粒界サイズを有するコンポジットを形成し^{4,5)}、シンチレータ光に対して連続的な屈折率を持つため光拡散フリーな像伝送が可能となっている。本シンチレータを Diffusion-free transparent scintillator (DIFRAS) と呼ぶ。ルテチウムアルミニウムガーネット (Lutetium Aluminum Garnet: LuAG) を材料として DIFRAS を組み込んだレンズ結像型 X 線画像検出器の開発に成功し、シンチレータが発する蛍光波長と高解像度顕微鏡光学系の開口数 (NA) で定まる回折限界に近い 200 nm line & space (L&S) パターンを解像できる性能に到達している⁶⁾。

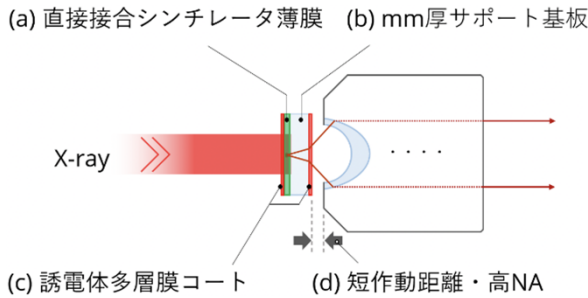


図1 DIFRAS 検出器シンチレータ光学系の概略

DIFRAS 検出器は近回折限界性能に加えて、極めて高いX線耐性を有している。図1はDIFRASの光学配置の概略図となる。開発されたシンチレータはダメージフリーな直接接合(図1(a))で形成されていることに加えて、サポート基板部分がX線の遮蔽体として機能する(図1(b))。1mm厚の無添加LuAG基板で10keVのエネルギーを有したX線を遮蔽する場合、その強度は $\sim 10^{43}$ レベルまで減衰するので、X線光軸上に設置される対物レンズやイメージセンサをX線損傷から守ることができる。また、シンチレータ光伝送効率の向上と迷光侵入の抑止のためにシンチレータX線照射面に反射膜を、逆の面に反射防止膜を有している(図1(c))。強度の高い誘電体多層膜で形成しており、SACLA/SPRING-8のフルパワーX線ビームの照射にも耐えられる。これらの放射線耐性・遮蔽能力を備えたシンチレータ光学系を用いることで、高NAを持つ作動距離の短い対物レンズをX線光軸上に配置することを可能とし(図1(d))、長時間かつ安定な高解像度撮像・メンテナンスフリーな検出器運用を実現している。

3. 間接型X線画像検出器の性能を決める因子

間接型X線画像検出器の性能指標として、空間分解能と検出量子効率(DQE)の2つがある¹⁷⁾。空間分解能はレーリー基準である、

$$\delta = 0.61 \times \lambda / NA \dots (1)$$

等の顕微鏡光学系が持つ解像性能を指標とすることができる。 λ はシンチレータ発光波長、NAは顕微鏡光学系の開口数である。実際には、シンチレータ内の光学的欠陥や放射線ダメージから生じる光拡散で空間分解能が低下する。本研究ではこの回折限界に近い性能を得るためにDIFRASを使用している。DQEは間接型X線検出器のカスケードノイズ伝搬をモデルとした、

$$DQE = \eta_{xqe} \left(1 + \frac{1}{\eta_{ly} \cdot \eta_{ce} \cdot \eta_{vqe}} \right)^{-1} \dots (2)$$

の式で見積もることができる^{18,9)}。 η_{xqe} はX線量子効率(シンチレータ吸収効率)、 η_{ly} はX線1光子に対して生成される可視光子数(Light yield)、 η_{ce} は光学系の光回収効率、 η_{vqe} はイメージセンサのシンチレータ発光波長に対する量子効率である。式(2)括弧内の第1項はX線ショットノイズからの影響を、第2項はシンチレータ光ショットノイズからの影響を示している。 η_{xqe} はシンチレータ材料の質量減弱係数 μ_m と密度 ρ ・シンチレータ厚 d から、

$$\eta_{xqe} = 1 - e^{-\mu_m \rho d} \dots (3)$$

で表せる。デフォーカス光による像の劣化を防ぐためにシンチレータ厚を顕微鏡光学系のNAに応じた被写界深度程度に薄くする必要がある。適切なシンチレータ厚は、イメージセンサを搭載した顕微鏡用に拡張されたBerekの式、

$$d = \frac{\lambda \cdot n_s}{NA^2} + \frac{n_s}{M \cdot NA} p \dots (4)$$

を用いて得られる。 n_s はシンチレータ屈折率、 M は光学倍率、 p はイメージセンサのピクセルサイズに相当する。第1項は波動光学被写界深度、第2項は幾何光学被写界深度と呼ばれる¹⁰⁾。Light yieldである η_{ly} は光子エネルギーに対して線形に応答すると仮定して算出できる。例えばCe添加LuAG(LuAG:Ce)を用いる場合、1MeV光子に対するLight yieldは16,000 photonsなので¹¹⁾、10keVのX線を利用する際は160 photonsのシンチレータ光子に変換される。光学系の光回収効率 η_{ce} はレンズ開口数NA・シンチレータ屈折率 n_s ・光学系透過率 t ・シンチレータ反射膜の反射率 r を用いて、

$$\eta_{ce}(NA) = \frac{1}{2} \left(1 - \sqrt{1 - (NA/n_s)^2} \right) \cdot t(1+r) \dots (5)$$

で表される。第1因子 $(1 - \sqrt{1 - (NA/n_s)^2})/2$ は対物レンズに入射するシンチレータ発光の立体角 $2\pi(1 - \cos \theta)$ srを全立体角 4π srで割ることによって得られる。 θ_s はシンチレータ内の開口角である。NAが小さい値の場合、

$$\eta_{ce}(NA) = \frac{NA^2 \cdot t(1+r)}{4n_s^2} \dots (6)$$

に近似できる。

4. 広視野設計と供用を計画している検出器

我々は開発したDIFRAS検出器の広視野化を計画している。透過X線を等倍撮像する条件において、横方向で最大50mmの視野が要求されている。また、SPRING-8-II計画で高強度化が見込まれる30~200keV領域の高感度化が求められている。DQEを高める必要があるため、NAを大きくした光学系が望ましい。一般的に1xより高い倍率を持つ拡大光学系はNAを大きくした光学設計が可能である。以上を踏まえると、

- 1) センサピクセルサイズ > 50/Nmm
 - 2) シンチレータ発光波長に対する高量子効率
- がセンサに対する要求仕様となる。Nは横方向のピクセル数であり、1)を満たすことで1x以上の倍率で光学設計が可能となる。これらの要求を満たし、市場で入手可能な最大級の解像度を有するイメージセンサを導入し、シンチレータと顕微鏡光学系の最適化を行う。我々はSONY IMX411^[12]の採用を決定した。イメージフォーマット14,192 × 10,640、3.76 μm pixels、チップサイズ53.3 × 40 mm²、16 bit階調の裏面照射型CMOSイメージセンサである。量子効率はLuAG:Ceのピーク発光波長520nmに対して95%を超える。センサ対角は66.7mmであり、これに応じた顕微鏡光学系イメージサークル・実効視野と同等サイズの薄膜シンチレータが必要となる。

イメージセンサの読出ノイズがショットノイズより十分に小さい条件下において、DQEはシンチレータ厚とNAの大きさで決まる。レンズ結像型X線画像検出器はこれに当てはまるケースが多いので本稿では読出ノイズの影響を考慮しない。NAを大きくすると、レンズの光回収効率η_{ce}は大きくなるが、被写界深度に応じてシンチレータ厚を薄くする必要があるためη_{xqe}は小さくなる。つまり、η_{xqe}とη_{ce}はトレードオフの関係にある。以上を踏まえ、DQEを最大とするNAを決定する。式(4)を拡張し、ピクセルサイズの代わりに幾何光学で定まる空間分解能：許容錯乱円を代入すると空間分解能Rを得る上で許容される被写界深度は、

$$d = \begin{cases} \frac{\lambda \cdot n_s}{NA^2} + \frac{n_s}{NA} \sqrt{R^2 - \delta^2}, & \text{for } p < \sqrt{R^2 - \delta^2} \\ \frac{\lambda \cdot n_s}{NA^2} + \frac{n_s}{NA} p, & \text{for } p > \sqrt{R^2 - \delta^2} \end{cases} \dots (7)$$

となる。ここで√(R² - δ²)は許容錯乱円の半径を示している。δは式(1)のレーリー基準の回折限界空間分解

能：エアリーディスク半径である。空間分解能R、X線エネルギーEを固定値として入力し、式(2),(3),(7)からDQEのNA依存性を、

$$DQE(R, E, NA) = \frac{\eta_{xqe}(R, E, NA)}{1 + \frac{1}{\eta_{ly}(E) \cdot \eta_{ce}(NA) \cdot \eta_{vqe}}} \dots (8)$$

で定義できる。図2はR = 2 μm (1 μm L&S)と定めた時のDQE曲線である。横軸はNA、縦軸はDQEを示しており、5~200keVの光子エネルギー毎にプロットしている。式(1)からNA = 0.1586がR = 2 μmを得られる最小のNAであるので、NA < 0.1586のデータはプロットしていない。NAを大きくすることで光回収効率η_{ce}を高め、シンチレータ光のショットノイズの影響を抑えることができる。図2(a)の5、10 keVにおいてNA > ~0.5にDQEピークを持つように、この効果は特に発光効率η_vが小さい低エネルギー光子を用いる際に顕著となる。一方で、図2(b)に示すように50~200 keVの高いエネルギー領域では小さいNAでDQEピークが得られる。小さいNAは光学系の被写界深度が深く、シンチレータを厚くできるのでX線に対する阻止能η_{xqe}が大きくなる。この効果はDQEに対し50 keV以上で高いウェイトを持つことを示している。

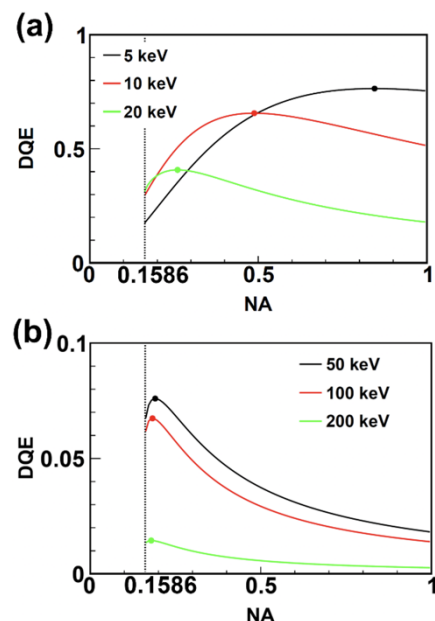


図2 空間分解能R = 2 μm (1 μm line & space)におけるレンズ結像型X線画像検出器DQEのX線エネルギー・NA依存性。各X線エネルギーにおけるDQE最大値に円をプロットしている。

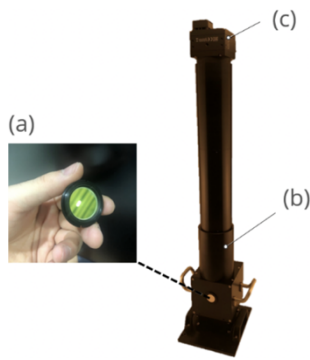


図3 Lens A4を搭載したDIFRAS 検出器。(a)50 μm厚・φ22 LuAG:Ceシンチレータ、(b) Lens A4、(c) SVS-VISTEK shr411 カメラ。

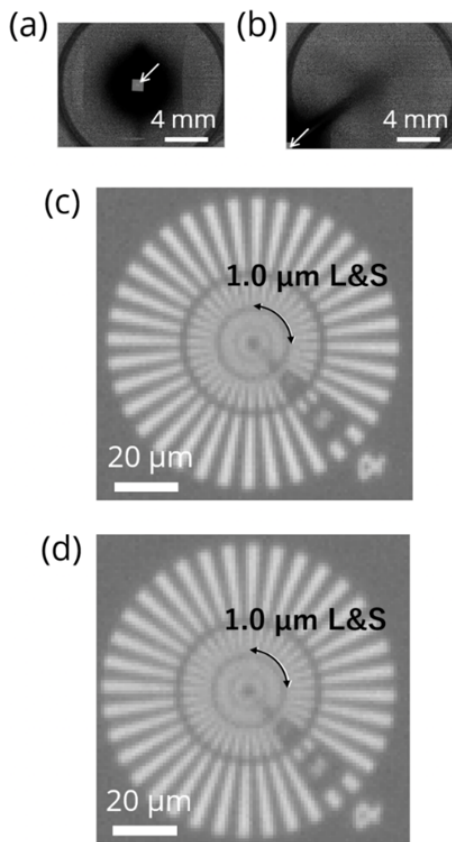


図4 試作機で撮像したテストチャート X 線透過像。(a) 視野中心にチャートを配置時の全視野像、(b) 視野左下隅にチャートを配置時の全視野像、(c) (a)のチャート部を拡大した像、(d) (b)のチャート部を拡大した像。

本モデルをベースとして、目標の空間分解能・光子エネルギーを定め、2~50 mm 視野範囲を対応できるように 5 つのレンズパラメータを選定し光学設計を行った。表1 は供用を計画している広視野 DIFRAS 検出器の性能一覧となっている。それぞれで、近回折限界性能に加えて、ターゲットとなる光子エネルギー領域でピーク付近の DQE が得られるように設計した。Lens A1 に関しては、該当する市販レンズがないためカスタムで製作が必要である。光学シミュレーションの結果、技術的に実現可能な光学性能と分かっている。

Lens A4 を搭載したレンズ結像型 X 線画像検出器の構築を行った (図3)。被写界深度に合わせた 50 μm 厚・FOV 15 × 11 mm² 全面を十分にカバーできる φ22 を有した LuAG:Ce シンチレータの製作に成功した。SONY IMX411 センサを搭載したカメラ shr411IMXGE (SVS-VISTEK GmbH) を検出器に組み込んだ。シンチレータ径・光学系イメージサークル・センサ対角が全てマッチした設計としている。その性能評価を BL29XU にて実施した。X 線ビームパラメータは光子エネルギー7.0 keV、フラックスが 7.7×10^{11} photons/sec (シンチレータ面上で) であり、高調波カットミラー、拡散板を用いてビーム強度プロファイルのフラット化を行い試料に照射を行った。計測試料は NTT-AT 社製のタンタル X 線テストチャートを用いた。図4 が取得した X 線透過像データとなる。像は 150 ms の露光時間で得られたデータにフラットフィールド補正を行い、像内の X 線強度を規格化している。図4(a),(b)は検出器の全視野像であり、矢印が挿す位置に試料が映るように検出器を配置して取得した。最も光学性能が高い視野中心および最も光学性能が低い視野隅の解像力を確認することで視野全体の性能を評価した。シンチレータ波長 520 nm と Lens A4 の NA で定まる回折限界性能 1.0 μm L&S に近い、1.2 μm L&S

表1 供用を計画している検出器性能一覧

		A1 ^a	A2	A3	A4	A5
空間分解能	[μm L&S]	~0.2	0.45	0.6	1.0	3.8
光子エネルギー	[keV]	≤ 10	10	10	50	200
視野	[mm ²]	2.6 × 1.9	7.6 × 5.7	10 × 7.7	15 × 11	53 × 40
NA		-	0.35	0.27	0.159	0.083
シンチレータ厚	[μm]	-	10	20	50	500
DQE		-	0.41	0.47	0.071	0.10

^a調査した限りでは、レンズ A1 の性能を満たす市販レンズは見つかっていない。専用レンズ製作することで技術的に実現可能な光学パラメータである。

パターンを視野中心 (図 4(c)) および視野左下隅 (図 4(d)) で解像できている。この結果は、視野全体で近回折限界性能の解像力を持つことを示している。

5. まとめ

本稿では SPring-8/SACLA で供用している DIFRAS 検出器の開発・整備状況について紹介を行った。Photo-diffusion-free な透明シンチレータを採用することで顕微鏡光学系が本来持つ近回折限界の性能に到達し、これを安定的に利用実験に提供することができる状況にある。本撮像方式のもう一つの課題であった、シンチレータおよび顕微鏡光学系の X 線ダメージによる像質の劣化を解決し、メンテナンスフリーな検出器運用を行っている。本技術はシグマ光機株式会社に移転済みで、SPring-8/SACLA のみならず、他の施設でも導入可能となっている。

また、レンズ X 線画像検出器の性能指標について概説を行った。紹介した DQE モデルを用いることで、空間分解能・X 線エネルギー毎に最大の DQE を得る光学パラメータを特定し、実験系に応じた最適な検出器設計を行うことができる。

SPring-8-II 計画に向けて、DIFRAS 検出器の高度化を進めており、広視野化・高エネルギー X 線領域の感度向上を満たすため、150 M pixels の高解像度イメージセンサの導入および広視野顕微鏡光学系パラメータの最適化を実施した。光学倍率 20x、7x、5.2x、3.5x、1x の 5 つの倍率で構成し、SPring-8 ビームサイズ 2 ~ 50 mm をカバーする。DIFRAS、広視野 3.5x 光学系、150 M pixels イメージセンサから構成されるレンズ結像型 X 線画像検出器は近回折限界性能である $1.2 \mu\text{m}$ L&S に到達し、視野 $15 \times 11 \text{ mm}^2$ の視野中心および視野隅で同等の性能を示した。他の倍率構成を持つ残りの 4 つにおいても本コンセプトは機能すると考えている。これらを性能評価完了後に SPring-8/SACLA で順次展開していく予定である。

謝辞

神島化学工業株式会社の皆様に薄膜シンチレータを製作していただきました。シグマ光機株式会社の皆様にイメージングユニットの構築、顕微鏡光学系の設計、シンチレータのコーティングをしていただきました。

SVS-VISTEK GmbH の皆様、株式会社アド・サイエンスの皆様には 150 M pixels のカメラの実装をサポートしていただきました。謹んで感謝申し上げます。ここで紹介した研究は、JSPS 科研費 JP19K12640 の助成を受けたもので、理化学研究所 SPring-8 利用研究課題 (Proposal No. 20210067) として行われました。

参考文献

- [1] SPring-8-II Conceptual Design Report, (RIKEN SPring-8 Center) <http://rsc.riken.jp/pdf/SPring-8-II.pdf>
- [2] T. Kameshima *et al.*: *Opt. Lett.* **44** (2019) 1403.
- [3] H. Graafsma and T. Martin: *Advanced tomographic methods in materials research and engineering* (2008) 277-302.
- [4] H. Yagi *et al.*: *Jpn. J. Appl. Phys.* **45** (2006) 133.
- [5] H. Yagi *et al.*: *Opt. Mater.* **29** (2007) 1258-1262.
- [6] 村松克洋他: *OPTRONICS* **31** (2012) 123-126.
- [7] T. Martin and A. Koch: *J. Synchrotron Rad.* **13** (2006) 180-194.
- [8] M. Stapanoni *et al.*: *Nucl. Inst. and Meth. A* **491** (2002) 291-301.
- [9] U. W. Arndt and D. J. Gilmore: *J. Appl. Cryst.* **12** (1979) 1-9.
- [10] S. Inoué: *Video Microscopy* (Plenum Press, New York, 1986).
- [11] T. Yanagida *et al.*: *IEEE Nucl. Sci. Symp. Conf. Rec.* (2010) 1612-1614.
- [12] SONY IMX411 Product Information (https://www.sony-semicon.co.jp/products/common/pdf/IMX411ALR_AQ_R_Flyer.pdf)

亀島 敬 KAMESHIMA Takashi

(公財) 高輝度光科学研究センター XFEL 利用研究推進室
(国) 理化学研究所 放射光科学研究センター
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0992
e-mail : kameshima@spring8.or.jp

初井 宇記 HATSUI Takaki

(国) 理化学研究所 放射光科学研究センター
(公財) 高輝度光科学研究センター XFEL 利用研究推進室
〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0900
e-mail : hatsui@spring8.or.jp