

日大 PXR 線源を用いたイメージング実験の現状

CURRENT STATUS OF IMAGING EXPERIMENTS USING LEBRA PXR SOURCE

早川恭史 *^{A)}、早川建 ^{A)}、野上杏子 *^{A)}、境武志 ^{A)}、住友洋介 *^{A)}、高橋由美子 ^{A)}、田中俊成 ^{A)}
Yasushi Hayakawa *^{A)}, Ken Hayakawa^{A)}, Kyoko Nogami^{A)}, Takeshi Sakai^{A)}, Yoske Sumitomo^{A)},
Yumiko Takahashi^{A)}, Toshinari Tanaka^{A)}

^{A)}Laboratory for Electron Beam Research and Application, Institute of Quantum Science, Nihon University

Abstract

X-ray imaging has been a main application of parametric X-ray (PXR) source at Laboratory for Electron Beam Research and Application (LEBRA), Nihon University. The X-ray source is based on the 125-MeV electron linac and has advantages in the monochromaticity, the energy selectivity and the wide irradiation-area. Using such properties of the PXR source, several advanced methods for X-ray imaging have been developed for the PXR application. Especially, computed tomography (CT) and diffraction-enhanced imaging (DEI) are significant for differentiating the PXR source from conventional X-ray sources. In addition, the PXR source has a capability of elemental analysis based on K-edge subtraction (KES) imaging.

1. はじめに

日本大学電子線利用研究施設 (LEBRA: Laboratory for Electron Beam Research and Application) では、125 MeV 電子リニアックを用いた光源利用施設であり、現在は近赤外自由電子レーザー (FEL: free electron laser)、パラメトリック X 線放射 (PXR: parametric X-ray radiation)、テラヘルツ (THz) 領域コヒーレント放射を光源と利用して応用研究に光ビームを供給している [1]。特に、PXR を利用した常設 X 線源を実用化したのは日大 LEBRA が世界初であり、現在も世界で唯一となっている。

PXR は周期構造を持つ結晶性媒質と相対論的荷電粒子の相互作用で生じる X 線放射現象であり、その X 線エネルギーは電子速度と結晶面のなす角、すなわち通常の X 線 Bragg 回折における Bragg 角に相当するもので決まり、電子エネルギーへの依存性が非常に低いという特徴がある。そのため、電子ビームエネルギー一定のまま、放射源となるターゲット結晶を回転させて Bragg 角を調整することにより、X 線エネルギーを連続的に選ぶことができる。また結晶としてシリコン単結晶のような完全性の高い結晶を用いると、非常に単色性の良い X 線が得られる。これらの特性は 100 MeV クラスの電子加速器でエネルギー可変単色 X 線源を実現するという観点で、非常に有用である。それに加え、放射円錐の広がり制動放射に比べ 2~3 倍大きく、GeV クラスのシンクロトロン放射光源と比べると、比較的短い距離で面積の大きな X 線ビームプロファイルが得られる。これは通常の X 線回折や散乱実験の様に収束され光子密度の高い X 線が要求される用途には不向きであるが、大面積の照射野が必要な X 線イメージングにとっては好都合な特性である [2,3]。

LEBRA の PXR 線源は電子エネルギー 100 MeV

で運用しているが、イメージングが主要な応用となっている。当初はエネルギー選択性を利用した 2 次元の単色 X 線吸収像の測定が主流であったが、PXR ビームの特性研究の進展および X 線画像検出器の性能向上により、現在ではシンクロトロン放射光源施設で研究開発されている高度なイメージング実験が可能となっている。LEBRA-PXR 線源を用いた X 線イメージング実験の現状について、報告する。

2. LEBRA-PXR 線源の特性

PXR は結晶媒質を相対論的な電子が通過する際に生じる放射現象であり、結晶の逆光子ベクトルを \mathbf{g} 、入射電子のエネルギーと運動量、速度をそれぞれ $E, \mathbf{p}, \mathbf{v}$ とすると、単位ベクトル に沿った方向に放射される PXR のエネルギー $\hbar\omega$ は、

$$\hbar\omega \approx \hbar \left(\frac{\omega}{c} - \mathbf{g} \right) \cdot \frac{\mathbf{p}c^2}{E} = \frac{\hbar c |\mathbf{g} \cdot \mathbf{v}|}{c - \mathbf{v} \cdot \mathbf{v}}, \quad (1)$$

と表される [4]。十分に相対論的な領域では、PXR エネルギーは電子エネルギーにほとんど依存せず、結晶と電子ビーム軸の幾何学配置で決まるという特徴がある。X 線エネルギーの調整のために電子エネルギーを変える必要が無く、結晶を回転させて Bragg 角に相当する角度を調整することにより、連続的にエネルギーを選ぶことができる。また、LEBRA-PXR 線源は 2 結晶型のシステムを採用しており、Bragg 角を変えて PXR の放射方向が変わっても、第 2 結晶による回折を利用することで PXR ビーム全体を反射し、固定したポートから PXR ビームを取り出せる。バックグラウンド放射線の少ない実験室に PXR ビームを取り出して長時間撮像が可能であることも、イメージングが主要な応用となった一因である [5]。

LEBRA-PXR では、必要な X 線エネルギー領域にあわせて Si(111) 面または Si(220) 面をターゲット結晶および反射用第 2 結晶に用いている。PXR ビー

* yahayak@lebra.nihon-u.ac.jp

ムは遮蔽壁を通して、線源から 7.3 m 離れたポリエステル膜の真空窓から取り出されるが、利用可能な X 線ビーム径はダクト内径 100 mm で制約されている。そのプロファイルは比較的一様性の高く、イメージングに適したものになっているのも LEBRA-PXR 線源の特徴である。LEBRA-PXR 線源の主な仕様を Table 1 に示す。

Table 1: Specification of the LEBRA-PXR Source

Electron energy	100 MeV
Linac average current	$\sim 2.5 \mu\text{A}$
Macropulse duration	$5 \mu\text{s}$
Macropulse repetition rate	5 pps
PXR energy range	
Si(111) target:	4.0 – 20 keV
Si(220) target:	6.5 – 34 keV
Total X-ray photon rate	$\sim 10^7 / \text{s}$ @17.5 keV
Irradiation-field size	100 mm in diameter

日大 LEBRA の電子リニアックは常伝導パルス型であるため、平均ビーム電流が数 μA に制限される。そのため、得られる X 線光子数は高々 $10^7 / \text{s}$ 程度であるが、加速器の安定性の向上と X 線画像検出器の高性能化により、長時間測定を許容できる場合は先端的な X 線イメージング実験が可能である。

3. コンピュータ断層撮像

大面積のフラットパネル検出器 (FPD: flat-panel detector) が比較的安価で入手可能となり、PXR を用いたコンピュータ断層撮像 (CT: computed tomography) が現実的なマシンタイムで取得可能となった [6]。現在、CT 撮像には検出器として酸化ガドリニウム (GOS) 系シンチレータを用いた Shad-o-Box1280HS (Teledyne DALSA 社製) を主に使用しており、ピクセルサイズは $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ 、有効面積は $128 \text{ mm} \times 128 \text{ mm}$ である。

現実的な測定時間で CT 像を得るためには、投影像 1 枚の取得にかけられる時間は数 10 秒のオーダーである。X 線のエネルギーが 34 keV 以下であり、光子密度が低いことを考えると、重元素を含んで密度が高く、厚みのある試料の測定は難しい。一方、検出器のピクセルサイズも $100 \mu\text{m}$ であるため、微小な試料の高解像度測定にも不向きである。従って、エネルギー可変単色 X 線としては比較的大きな照射野を利用した、直径数 cm 程度の低密度軽元素試料の観測に適している。Figure 1 に蝉を試料とした CT 撮像の結果を示す。PXR ビームの中心エネルギーを 15.0 keV にして撮像したもので、投影像 1 枚 20 s を 600 枚取得し、それを逆投影処理して得られた像で、3 次元レンダリングソフトとして MRICroGL を用いてノイズ低減処理を施している [7]。軽元素で構成された試料においても密度の違いが明瞭になっており、比較的低い X 線エネルギーで単色であることの有用性がわかる。また吸収によるコントラスト

が弱い羽とその葉脈が写っているが、これは試料-検出器間距離を 1.9 m 取ることにより伝搬型位相コントラストの効果が視認性の向上に寄与している可能性がある。試料に制約があるものの、CT は PXR の特徴を生かすことができる中核的な応用となっている [8]。

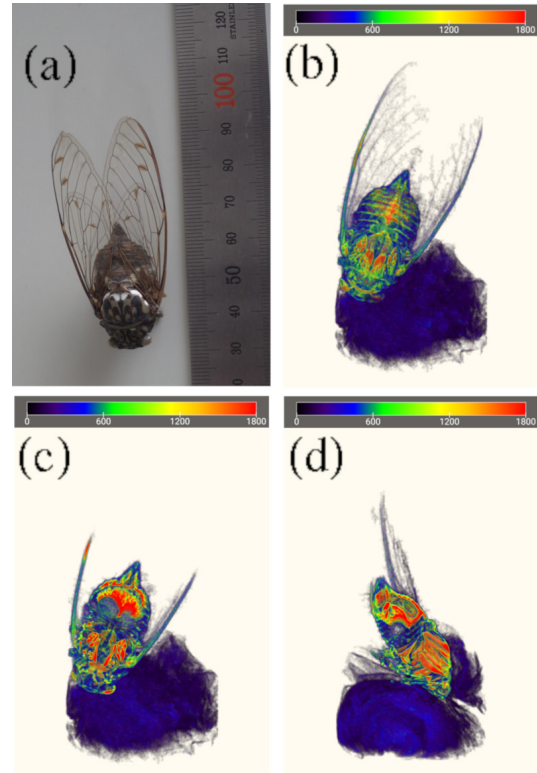


Figure 1: (a) The photograph of a cicada sample for the CT measurement. (b) The 3-dimensional volume rendering for the tomographic image obtained from the CT dataset. (c), (d) The cropped images of the tomographic image (b).

4. 回折強調イメージング

4.1 空間チャープと擬似平面波性

PXR ビームの中心は、結晶面と電子ビーム軸のなす角を Bragg 角 θ とすると、 $\phi = 2\theta$ の方向となる。ビーム中心でのエネルギーを $\hbar\omega$ とすると、中心から $\Delta\theta$ ずれた方向に放出される PXR エネルギー $\hbar\omega'$ は、Eq. (1) の近似式として

$$\begin{aligned} \hbar\omega' &\approx \hbar\omega \left(1 - \frac{\sin 2\theta}{1 - \cos 2\theta} \Delta\theta \right) \\ &= \hbar\omega \left(1 - \frac{\Delta\theta}{\tan \theta} \right), \end{aligned} \quad (2)$$

と表せる。ここで、 $\beta = |\mathbf{v}|/c \approx 1$ という近似を用いている。X 線ビームプロファイル内に空間的なエネルギーシフトがあることを意味するが、規則的で 1 次関数的な変化であるため、空間チャープとも表現できる特性となっている [9]。第 2 結晶を (+, -) と

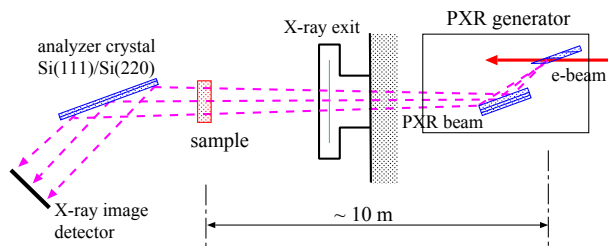


Figure 2: Schematic drawing of the setup for diffraction-enhanced imaging employing the LEBRA-PXR source (top view).

呼ばれる配置に置くと、僅かな角度デチューニングが必要であるものの、Eq. (2)に従うエネルギーシフトと円錐広がりによる角度変化が Bragg の回折条件において補償関係となり、PXR ビームの全体を平板結晶で回折することが可能となる。この性質は3番目の結晶を (+, -, +) 配置にする場合にも引き継がれ、回折曲線の幅は結晶自体の回折幅と同程度となり、ピークでは 70~80 % 程度の反射率が得られる。LEBRA-PXR 線源の電子エネルギーは 100 MeV であるため、PXR ビームは GeV クラスのシンクロトロン放射光源と比べると放射円錐広がりが大きくなっているが、回折に関して平面波的な振舞いをするという特長がある。これを利用することで、放射光施設で行われている先端的なイメージングが可能となる。

4.2 回折強調イメージング

PXR の回折における擬似的な平面波性を利用すると、Fig. 2 のような実験セットアップで回折強調イメージング (DEI: diffraction-enhanced imaging) と呼ばれるイメージング手法が PXR 線源を用いて可能となる [10, 11]。DEI は試料を投下する際に生じる X 線の屈折・散乱を下流に置かれたアナライザ結晶を回転させながら撮像することで検出する方法であり、画像の画素毎に回折曲線を測定する事に相当する。

X 線が試料物質から受ける主な相互作用として、吸収、屈折、小角散乱の 3 種類がある。回折曲線の測定において、試料の有無による回折ピーク面積の減少が吸収に相当し、屈折はピークの角度変化、小角散乱はピーク幅の増大 (ピーク高の低下) として検出される。DEI のアナライザにシリコン完全結晶を用いる場合、回折のピーク幅が 0.001° 程度かそれ以下となり、ピークの勾配を利用することで、数 μrad オーダーの屈折・散乱に対して感度を有する測定が可能となる。シンクロトロン放射光源で DEI 実験を行う場合、十分な空間コヒーレンスを得るために光源から X 線ビームを数 10~ 数 100 m 伝搬させ、照射野面積を広げるために結晶の非対称反射を用いることが多い。それに対し、LEBRA-PXR 線源では PXR ビームの円錐広がりと同擬似平面波性により、対称反射平板結晶のみ使用しながら、光源から 10 m の位置で広い照射野の DEI を実現している。

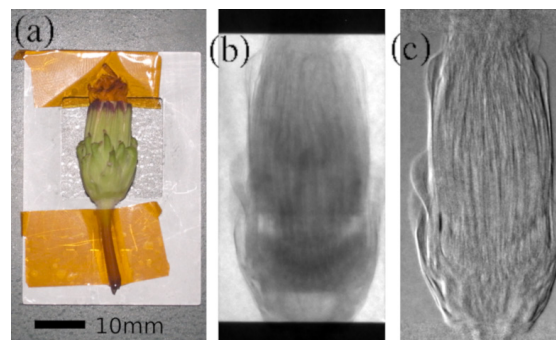


Figure 3: (a) A photograph a bud of dandelion; (b) The absorption-contrast image. (c) The phase-contrast (phase-gradient) image.

4.3 位相コントラスト (屈折) イメージング

DEI で取得できる画像の代表的な物が、位相コントラスト像である。試料物質による X 線位相変化を屈折として測定するもので、DEI では試料の無い時のアナライザ結晶の回折ピークを中心とし、DEI 測定で得られた各画像をアナライザ角度で重みをつけて足し上げ、最後に吸収コントラスト像による除算処理で規格化することにより得られる。これは各画素毎の X 線屈折角マップとなっており、より正確には位相勾配像となっており、屈折コントラスト像とも呼ばれる。Figure 3 にタンポポのつぼみ (Fig. 3(a)) を試料とする DEI の例を示す。PXR 線源、アナライザ結晶に Si(111) 面を用い、PXR エネルギー 17.5 keV で取得されたもので、Fig. 3(b) が吸収コントラスト像、Fig. 3(c) が位相コントラスト像である。位相コントラスト像は境界が明瞭になる効果に加え、吸収像ではアルミフレームの影になっている部分も、ノイズが多いながらも視認できているのがわかる。

位相コントラストイメージングは X 線の吸収差が僅かでも物体の形状を可視化できる手法であるため、被曝の少ない医療イメージングの候補として期待され、主に大規模な放射光施設で基礎研究が行われている。大学の附置施設において共同利用実験として実施可能となったことは、この分野の研究の裾野を広げるという観点でも非常に意義深い。

4.4 小角散乱イメージング

試料物質に微細構造がある場合、透過する X 線は小角散乱を受ける。DEI の測定において、小角散乱の影響は回折曲線の幅の広がりとして現れる。DEI で得られた各画素毎の値の標準偏差や分散のマップデータが小角散乱を反映した像となる。または、小角散乱によって結果的に回折ピーク高が低下することから、回折曲線のピーク位置での画像から回折曲線の裾野の画像を差し引くことにより、小角散乱を反映したコントラストの像が得られる [12, 13]。

X 線小角散乱 (SAXS: small-angle X-ray scattering) において、その散乱角は物質を構成する微細構造の大きさに依存する。この性質を利用すると、粒子状ま

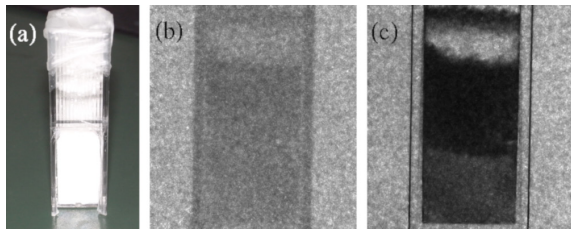


Figure 4: (a) A photograph of a flat square vessel filled with silica powder consisting of two layers; the diameters of the silica particles in the upper and lower layers are $1.0 \mu\text{m}$ and $0.2 \mu\text{m}$, respectively. (b) The absorption-contrast image. (c) The small-angle X-ray scattering (SAXS) image.

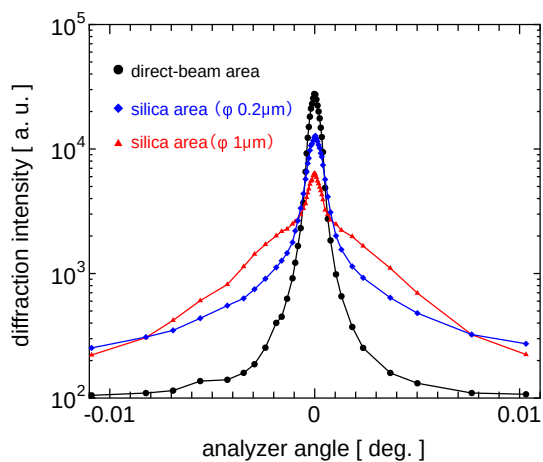


Figure 5: The rocking curves of the direct-beam area, the upper layer area and the lower layer are in the images obtained by the DEI measurement.

たは繊維状の構造の2次元分布を取得しながら、その構造の大きさの推定が期待できる。Figure 4(a)はシリカ粒子を容器に充填したものであるが、粒径の異なる上下2層となっており、上層の粒径は $1.0 \mu\text{m}$ 、下層は $0.2 \mu\text{m}$ である。これを試料として、Si(220)面を用いたPXRによるDEI測定をエネルギー23 keVで実施した。Figure 4(b)(c)がそれぞれ吸収コントラスト像とSAXS像である。SAXS像はピーク位置での画像から裾野の画像を差し引いた、回折ピークの視認性 (visibility) をコントラストとする像である。試料のシリカ粒子は粒径の違いはあっても充填率に差は無く、Fig. 4(b)の吸収像では上下2層の違いは見られない。一方、Fig. 4(c)のSAXS像では、上下2層で明確にコントラストの違いが現れている。少なくとも、密度がほぼ同じであっても、微細構造の定性的な違いを2次元分布として取得できることがわかる。

DEIはアナライザーの角度の変化として散乱角を測定で着るため、定量的な分析も期待できる。DEI像において、試料のない領域、シリカのある上層($\varphi 1.0 \mu\text{m}$)、下層($\varphi 0.2 \mu\text{m}$)領域から画像の明度値をサンプリングして回折曲線としてプロットしたグラフ

をFig. 5に示す。シリカのある領域を試料の無いダイレクトビーム領域と比べると、 0.01° を越える角度にわたって散乱X線が観測されているのがわかる。粒径 $1.0 \mu\text{m}$ の場合、散乱体が大きいため散乱が生じる確率が高く、回折曲線のピーク低下が大きくなっているが、散乱角が 0.01° 以上となる成分は比較的少ない。一方、粒径が $0.2 \mu\text{m}$ の場合は散乱確率自体は低下するものの、散乱角が大きな領域では粒径 $1.0 \mu\text{m}$ よりも散乱が強くなっていることが分かる。この結果は小角散乱の振舞いと整合しており、またこの測定法を用いて微細構造の大きさを推定できることが示唆される [14]。小角散乱のデータをGuinierプロットと呼ばれるグラフにしてフィッティング曲線を求めることにより、散乱体の慣性 (回転) 半径を評価できることが知られているが、DEIのデータから得られる回折曲線には散乱を受けないダイレクトビームの成分が重畳されているため、従来の解析手法をそのまま適用するのは難しい。定量的な分析手法として確立するためには、重畳されたダイレクトビーム成分を除外する処理法を考案し、大きさが既知である標準試料の測定による較正と検証を積み重ねていく必要がある。

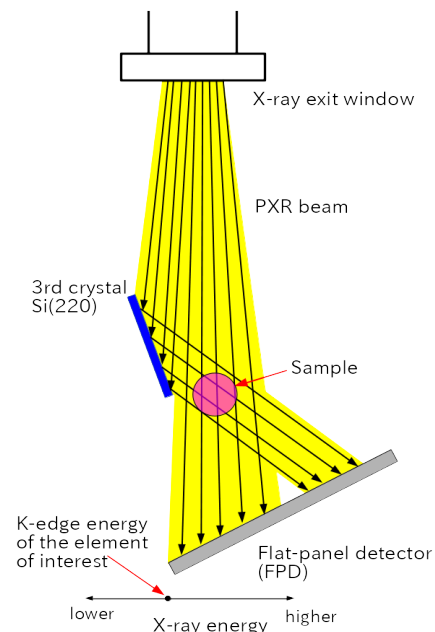


Figure 6: Schematic explanation of the experimental setup for the simultaneous KES method.

5. K端差分法による元素イメージング

PXR線源の連続エネルギー選択性を用いると、K吸収端差分 (KES: K-edge subtraction) 法と呼ばれる方法で特定元素の空間分布が測定可能である [15]。標的とする元素のK殻吸収端より高いエネルギーの単色X線による像と、低いエネルギーの単色X線による像の差を取ることでその元素の分布が得られるが、PXRの特性を利用すると、2色のX線像を同時に撮像することが可能である。

その実験系の概要を Fig. 6 に示すが、これは DEI の実験系を流用して吸収端より低エネルギーの領域のみをアナライザー結晶で反射することで、吸収端を跨いだ 2 色交差ビームを形成するものである。交差点に測定試料を置くことで 2 色同時測定が可能となるが、円柱状の試料の場合、試料の回転により 3 次元 CT 撮像も可能である [16]。実際、ストロンチウム (Sr) を含んだ試料に対する実証実験には成功しており、Sr 元素の 3 次元分布がこの方法で得られている。元素濃度に対する検出感度についても、Sr 元素の場合は重量比で 0.1 % オーダーの濃度が検出可能であることが確かめられている [17]。放射光源施設も含め、他の X 線源では実現していない手法であり、LEBRA-PXR 線源を特徴づける応用として更なる高度化を進めたい。

6. まとめと今後の課題

LEBRA-PXR 線源は、連続エネルギー選択性と単色性、均一が高く広い照射野、という特長から、X 線イメージングが中心的な応用となっている。パルス線源であり平均強度が低いという制約はあるものの、加速器の安定性の向上と X 線画像検出器の性能向上により、数時間の測定時間により 3 次元 CT 撮像が可能となっている。また、DEI という先端的なイメージング手法も既に日常的な利用研究として実績を積み重ねており、最近では KES 法と組み合わせた元素イメージングも可能となっている。

しかしながら、SAXS イメージングや KES 法による元素イメージングによる定量的な分析についてはまだ端緒についた段階であり、較正方法の確立など、今後実験的に取り組まなければならない課題も多い。また、先端的なイメージング手法は画像の演算処理によって様々な情報を可視化するため、画像検出器のノイズの影響を受けやすい。現有の検出器はノイズや量子効率の面で最先端の装置に比べて見劣りする状況となっている。先端的で高性能な画像検出器の導入も、大きな課題の一つとなっている。

参考文献

- [1] 早川恭史, 加速器 **6** (2009) 166.
- [2] Y. Hayakawa *et al.*, Nucl. Instrum. and Meth. B **252** (2006) 102, doi:10.1016/j.nimb.2006.07.010.
- [3] Y. Hayakawa *et al.*, J. of Instrumentation **8** (2013) C08001, doi:10.1088/1748-0221/8/08/C08001.
- [4] H. Nitta, Phys. Lett. A **158** (1991) 270.
- [5] Y. Hayakawa, I. Sato, K. Hayakawa, T. Tanaka, Nucl. Instrum. and Meth. B **227** (2005) 32; doi:10.1016/j.nimb.2004.06.028
- [6] Y. Hayakawa *et al.*, Nucl. Instrum. and Meth. B **309** (2013) 230; doi:10.1016/j.nimb.2013.01.025
- [7] MRICroGL; <https://www.nitrc.org/plugins/mwiki/index.php/mricrogl:MainPage>
- [8] Y. Hayakawa *et al.*, Proceedings of the 15th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, August 7-10, 2018, Nagaoka, Japan; https://www.pasj.jp/web_publish/pasj2018/proceedings/PDF/THOL/THOL06.pdf
- [9] Y. Hayakawa *et al.*, Nucl. Instrum. and Meth. B **266** (2008) 3758; doi:10.1016/j.nimb.2008.02.042
- [10] R. Fitzgerald, Phys. Today **53** (2000) 23; doi:10.1063/1.1292471
- [11] Y. Takahashi *et al.*, X-Ray Spectrom. **41** (2012) 210; doi:10.1002/xrs.2403
- [12] Y. Hayakawa *et al.*, J. Phys.: Conf. Ser. **517** (2014) 012017; doi:10.1088/1742-6596/517/1/012017
- [13] W. Yashiro, S. Harasse, K. Kawabata, H. Kuwabara, T. Yamazaki and A. Momose, Phys. Rev. B **84** (2011) 094106; doi:10.1103/PhysRevB.84.094106
- [14] O. Glatter and O. Kratky (eds), *Small angle X-ray scattering* (Academic Press, London, 1982).
- [15] A. Sarnelli, A. Taibi, P. Baldelli, M. Gambaccini, and A. Bravin, Phys. Med. Biol. **52** (2007) 3015; doi:10.1088/0031-9155/52/11/006
- [16] Y. Hayakawa *et al.*, Nucl. Instrum. and Meth. B **402** (2017) 228; doi:10.1016/j.nimb.2017.03.014
- [17] Y. Hayakawa *et al.*, Phys. Rev. Accel. Beams **22** (2019) 024701; doi:10.1103/PhysRevAccelBeams.22.024701