

# X線結像光学ニューズレター

No.27 2008年3月発行

## 直接変換型X線 HARP-FEA 検出器のX線位相イメージングへの応用

高エネルギー加速器研究機構 放射光科学第二研究系 平野馨一

X線二次元検出器は、X線イメージング研究においてまさに「目」の役割を果たす重要な機器であり、その高性能化のためにこれまで多大な努力が注がれてきた。高エネルギー加速器研究機構 (KEK) の Photon Factory (PF) においても、X線二次元検出器は様々な場面で活躍しているため、その高性能化はスタッフのみならず多くのユーザーが切望するところである。そこで現在、PF の構造生物学研究センター (センター長 若槻壮市教授) では NHK 放送技術研究所 (谷岡健吉所長) 等と協力して、次世代X線二次元検出器—X線 HARP 検出器—の開発に取り組んでいる。このプロジェクトの主眼はX線 HARP 検出器をタンパク質の構造解析に利用することであるが、他にも有益な利用法は多岐にわたって考えられる。その中でも特に有望と思われるのがX線イメージングである。

X線イメージング研究は放射光の登場により長足の進歩を遂げたが、1990年代後半以降、X線の位相情報を利用して像を得るX線位相イメージング研究が世界的に活況を呈している[1]。PFは、X線干渉計による位相イメージング技術の発祥地としてこの流れを創出する一翼を担っただけでなく[2]、その後も回折強調撮像法 (Diffraction Enhanced Imaging) を利用したトモグラフィの開発などによりこの分野をリードしてきた[3-5]。X線位相イメージングの最大の特徴は吸収型イメージングより感度が高いことであり、そのおかげで従来は見えなかった試料でも観察することができ、試料への照射線量を減らすことができる。しかし、さらなる感度の向上を目指すには、高感度なX線二次元検出器の開発が必要不可欠である。そこで今回、さらなる感度の向上を目指して、X線 HARP 検出器を位相イメージングに応用することを試みた。

X線 HARP 検出器の開発は、可視光用の HARP

カメラ[6]を改造することによって行った。主な改造点は(i)X線の吸収を抑えるために受光面のガラス面板をベリリウム面板に変えたこと、(ii)電子源を熱陰極から電界放出を利用する冷陰極アレイ (Field Emission Array, FEA) に変更したことの二点である。開発したX線 HARP-FEA 検出器の構成を図1に示す。ベリリウム面板を透過したX線は、厚さ  $15\mu\text{m}$  のアモルファスセレン (a-Se) 光電膜に入射して電子-ホール対を生成する。このとき a-Se 光電膜におよそ  $80\text{V}/\mu\text{m}$  以上の高電界を印可すると、アバランシェ効果により電荷が増幅される。X線 HARP 検出器では、この電荷増倍を利用することにより感度を向上させることができる。ちなみに HARP という言葉は NHK 放送技術研究所の谷岡所長の命名によるものであり、High-gain Avalanche Rushing amorphous Photoconductor の略である。a-Se 光電膜 (HARP 膜) 内ではホールの移動度の方が電子よりも高いため、映像信号にはホール電荷を利用する。HARP 膜の陰極側に蓄積されたホール電荷を、FEA から放出された電子ビームで走査することにより、映像信号を得ることができる。X線 HARP-FEA 検出器の仕様を表1に示す。映像信号の増幅率  $G$  を測定したところ、印可電圧  $V$  が  $1150\text{V}$  のときを1とすると、 $V=1300\text{V}$  では  $G=2$ 、 $V=1400\text{V}$  では  $G=4$ 、 $V=1500\text{V}$  では  $G=12$ 、 $V=1550\text{V}$  では  $G=20$  であった。

X線 HARP 検出器のX線位相イメージングへの応用としては、X線干渉計による位相マップ計測[7]や回折強調撮像法 (Diffraction Enhanced Imaging, DEI) による屈折像の取得実験などを行った。ここでは後者について報告する。PF の BL-14B で行った実験配置を図2に示す。X線はビームライン分光器で  $14\text{keV}$  に単色化された後、実

験ステーションに入射する。この単色X線は、非対称 Si(220)結晶 ( $\alpha=10^\circ$ ) で拡大され、試料に入射する。試料によるX線の屈折は近似的に次式で与えられる。

$$\alpha_x(x, y) \approx \frac{1}{k} \frac{\partial \phi(x, y)}{\partial x}, \quad \alpha_y(x, y) \approx \frac{1}{k} \frac{\partial \phi(x, y)}{\partial y}$$

ここで  $\phi(x, y)$  は試料による位相シフト、 $k$  は波数である。なお座標軸はX線の進行方向が Z 軸方向となるよう設定した。通常、屈折角は数秒以下の大きさであり、これを対称 Si(220)アナライザー結晶で分析した。試料像の観察にはX線 HARP-FEA 検出器を用い、膜電圧を  $V=1100V$  と  $V=1430V$  とした二通りの条件下で試料像を撮影した。なお、 $V=1430V$  のときの感度は  $V=1100V$  のときの約 40 倍である。試料としてラットの肝臓を観察した結果を図3に示す。 $V=1100V$  のときは不鮮明だった血管像が、 $V=1430V$  として感度を 40 倍にすることにより、鮮明に見えるようになった。さらに、 $V=1100V$  の条件下では見えていなかった微小血管が、 $V=1430V$  のときには見えるようになっている。この結果から、X線 HARP 検出器で感度を上げることにより、実際に画質が大幅に改善されることが実証された。

今回紹介したX線 HARP 検出器はテレビ出力を前提としているため、露光時間は 33msec/frame に固定されている。また、露光や画像の取り込み等を自動化するソフトがまだ開発されていないため、測定はすべて手動で行った。しかし使い勝手を向上させるには、露光時間の可変性、自動化ソフトの開

発等が必要である。X線 HARP 検出器の今後のさらなる改良・発展に期待したい。

本研究は PF・若槻壮市教授のプロジェクト「X線 HARP を用いた生体超高分子構造機能解析装置」(JST 先端計測分析技術・機器開発事業) の一環として行われた。また共同研究者として以下の方々の御協力をいただいた(敬称略)：三好敏喜 (PF)、五十嵐教之 (PF)、武田徹 (筑波大)、呉勤 (筑波大)、Thet-Thet-Lwin (筑波大)、谷岡健吉 (NHK 技研)、江上典文 (NHK 技研)、久保田節 (NHK 技研)、河合輝男 (NHK エンジニアリングサービス)。この場を借りて改めて御礼申し上げます。

- [1] R. Fitzgerald: Physics Today **53** (2000) 23.
- [2] A. Momose et al.: Nature Medicine **2** (1996) 473.
- [3] I. Koyama et al.: AIP Conf. Proc. **705** (2004) 1283.
- [4] A. Maksimenko et al.: Appl. Phys. Lett. **86** (2005) 124105.
- [5] 平野馨一: 映像情報メディカル **38** (2006) 1271.
- [6] 谷岡健吉、平井忠明: 応用物理 **71** (2002) 1376.
- [7] K. Hirano et al.: Phys. Med. Biol. **52** (2007) 2545.

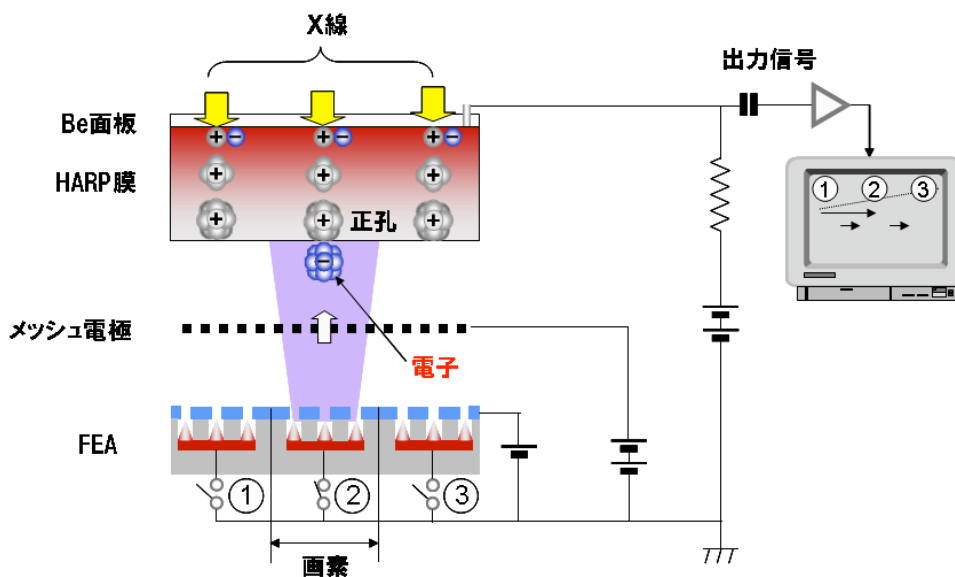


図1 X線 HARP-FAE 検出器の構成図

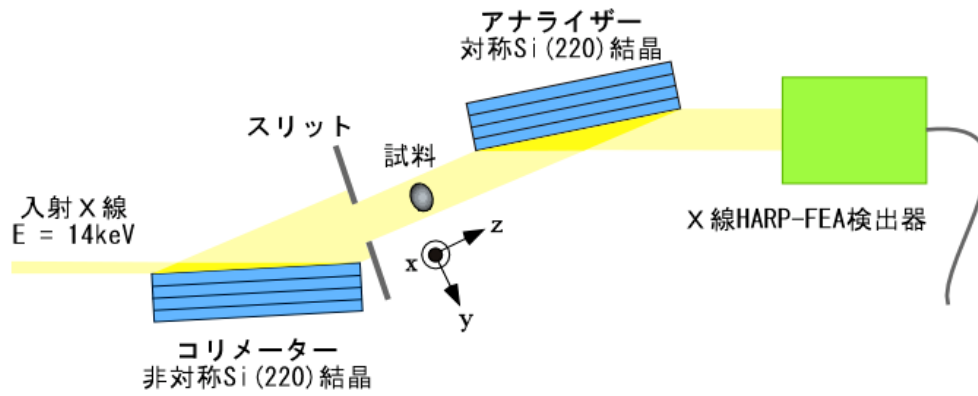


図2 X線 HARP-FEA 検出器による回折強調撮像法実験の配置図

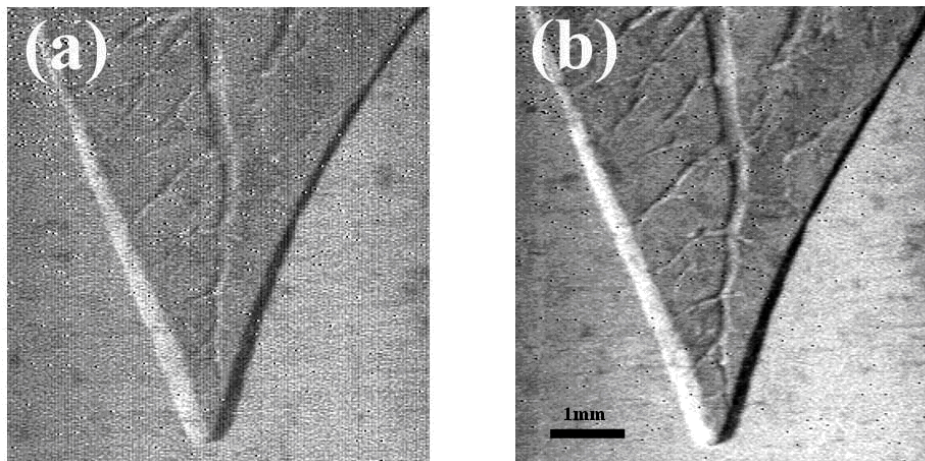


図3 ラット肝臓の屈折像  
(a)  $V=1100V$  (b)  $V=1430V$

	X線 HARP-FEA 検出器
ピクセルサイズ	$20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$
ピクセル数	$640 \times 480$
フレームレート	30 frame/sec
HARP 膜厚	$15\mu\text{m}$
なだれ電圧	最大 1600V (感度 200 倍)
有効面積	$12.8 \text{ mm} \times 9.6 \text{ mm}$
データ形式	16bit TIF
読み出し方法	FEA
出力	VGA

表1 X線 HARP-FEA 検出器の仕様

# X線屈折コントラスト法によるチタン水素化物の直接観察

島根大学総合理工学部, 金沢大学医学部\*

水野 薫, 岡本博之\*

近年のX線屈折コントラスト法の急速な発達により、医学・生物学利用を中心に多くの研究成果が報告されている。この方法の特徴のひとつである軽元素を検出できることは材料科学においても有益である。例えば金属学では母材と水素や水素化物との相互作用が主要な研究テーマのひとつであり、古くは水素脆化による鋼鉄の破断の問題から近年は水素吸蔵合金の開発を目指した研究まで多数の研究が行われている。しかし、金属中の水素または水素化物の直接観察の手段は皆無に等しかった。すなわち、従来のX線吸収コントラスト法はもとより、電子顕微鏡を用いても特殊な場合を除き、観察することは不可能であった。そこで、構造材料、機能材料の両方面において高度の利用が期待されているチタンを用いて、X線屈折コントラスト法で水素化物( $TiH_2$ )の直接観察を行い、さらに定量的な取り扱いの可能性を検証する例として水素の拡散係数を決定する試みを行った。

定量的な解析を行うため、屈折成分だけを取り出すことが容易な方法として、アナライザーによる屈折波選別を用いる方法で観察を行った。この手法ではアナライザーからの回折線のロッキングカーブの低角側と高角側の半値の場所で2枚の写真を撮影する。その強度の差が屈折成分として取り出せる。アナライザーを用いる方法によるX線屈折写真の撮影はKEK-PFのBL-14Bで行った。垂直ウイグラーからの白色X線をモノクロメータで10keVの単色X線にしたのち、1mm厚のアルミニウム板で基本波を吸収し、3倍高調波の30keV X線を得た。金属の場合、X線の吸収が大きいので、生物試料に比べ高いエネルギーのX線を必要としている。その後、シリコン結晶(Si, 440, 10°off)でビームサイズを拡大したX線を試料に照射した。試料を透過したX線をアナライザー結晶(Si, 440)で回折した後にX線フィルムで撮影した。撮影時間は3分程度であった。

高純度チタン多結晶の表面に電解チャージ法により、水素を表面から拡散させ水素化物の層を形成させた。電解チャージ法とは水の電気分解時の負極に試料を取り付け、化学ポテンシャルの差で試料中に水素を導入する方法である。試料表面か

ら内部への水素化物層の形成状況を観察するため、断面を観察する必要がある。そこで試料を厚さ1mmに切り出し、断面を観察した。拡散係数と拡散の活性化エネルギーを決定するためにチャージ時間と温度を変えた試料をいくつか作製した。

図1に水素をチャージする前の試料(a), (b)と31°Cで18時間チャージした試料(c), (d), さらに31°Cで48時間チャージした試料(e), (f)の断面の屈折コントラスト写真を示す。図中のLとHはロッキングカーブの低角、高角側で撮影した写真を意味する。図1(c), (d), (e), (f)では試料の両端に白または黒の縦筋が見られる。これは表面付近に存在する水素化物によるコントラストである。そのため、チャージ時間が長い試料ほど表面からより深い場所に縦筋が観察される。もちろん水素化物が形成されていない図1(a), (b)には縦筋は見られない。チタン表面の水素化物の存在が図1に示すような縦筋となる理由を図2に示す。図1の写真の試料を上方から眺めたのが図2である。水素化物により屈折したX線がアナライザーにより最適なブラッグ条件を満たすところが黒筋になり、多少外れたところが白筋になる。このことから水素化物をX線屈折コントラスト法で可視化できることが明らかとなった [1]。

次にこのデータに定量的な解析を行った。図1(e), (f)の左側の水平な直線に沿って黒化度を測定し、その差を求め屈折X線の強度と見なした。図3の黒丸で測定した値が示されている。この図には電解チャージ時間が18時間(白丸)と6時間(三角形)の結果も示してある。次に仮定した拡散係数のもとで拡散方程式の解を用いて、水素の分布すなわち水素化物分布を求めた。チタン・水素系の場合、水素の溶解熱、チタン水素化物の形成エネルギーともに負であるため、水素は直ちにチタンと反応して水素化物になると考えられる。このようにして水素化物の分布状況から30 keV X線に対する屈折率分布を求め、さらにスネルの法則から屈折角を求め、最後にロッキングカーブからX線強度を計算した。このモデル計算の結果を写真から求めた強度分布と比較した。拡散係数の値を変えながらこの計算を行い、写真から求め

た屈折X線の強度分布と一致するような値を決定した。図3に記入してある曲線は測定値と一致したモデル計算による強度分布である。このようにして31°Cでの水素の拡散係数を決定した。また異なる温度で水素をチャージした試料についても同様な実験、モデル計算を行い、拡散係数を決定した。これらの結果をアレニウスプロットにしたグラフを図4に示す。この図からチタン水素化物中の水素の拡散係数として、

$$D(T) = 2 \times 10^{-7} \exp\left(\frac{0.55 \pm 0.07 \text{ eV}}{kT}\right) \text{ m}^2/\text{s}$$

が得られた。図4には従来報告されている純チタンと  $\text{TiH}_{1.66}$  中の水素の拡散係数を表す直線も示してある。これらの値と比較しても、今回の結果は良い一致を示している [2]。

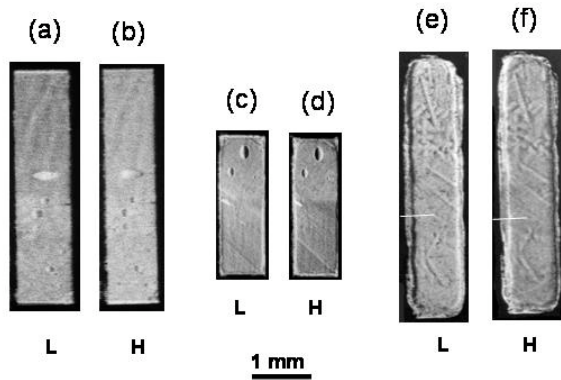


図1. 屈折コントラスト写真

以上の結果からチタン中の水素化物はX線屈折コントラスト法で可視化が可能であり、その結果は拡散係数を決定するような定量的な解析に耐える精度を有していることが確かめられた。従って水素に限らず軽元素の関係する材料研究においてもX線屈折コントラスト法が有用な研究手段であることが期待される。

[1] K. Mizuno, T. Kobayashi, F. Fujiki, H. Okamoto, Y. Furuya and K. Hirano, *J. Alloys & Compounds* **402** (2005) 109.

[2] K. Mizuno, Y. Furuya, K. Hirano and H. Okamoto, *Phys. Stat. Sol. (a)* **204** (2007) 2734.

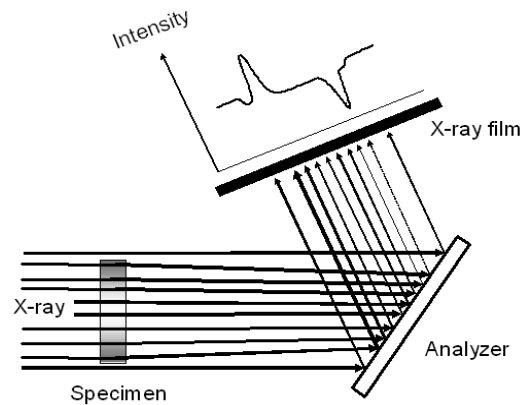


図2. 白黒の縦線の生じる原理

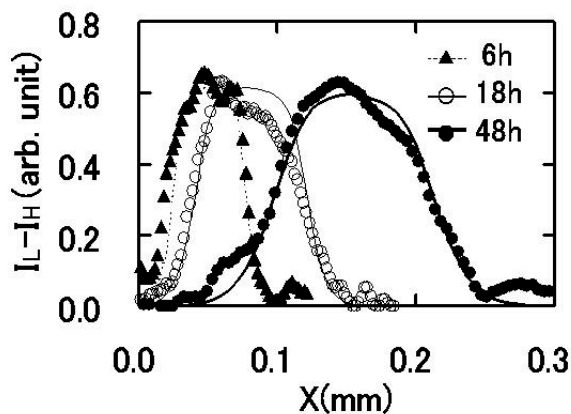


図3. 屈折X線の強度分布

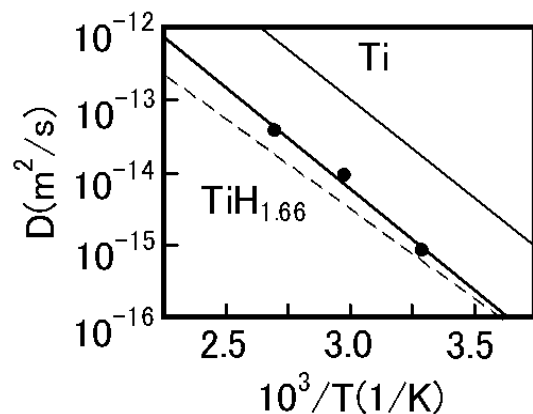


図4. 拡散係数のアレニウスプロット

## 二機の衛星による編隊飛行を使った硬X線広天走査観測計画

常深 博 (阪大理)、小型衛星FFASTワーキンググループ

X線天文学の観測エネルギー範囲は多層膜を利用したスーパーミラーの出現で図1左に示すように、数十 keV にまで延びることになり、NeXT や Nu-star などの今後の衛星の主テーマとなる勢いだ。衛星に進む前に気球実験というわけで、日米協力で InFOC  $\mu$ S 実験が行われている。これとは別に、我々は名大で用意するスーパーミラーと阪大で用意する SDCCD とを組み合わせる気球実験 SUMIT を実行した。実験は 2006 年秋にブラジルで行い、飛翔、観測等ほぼ予定通りに進んだものの、最終段階の回収ができずに、データは取得できないまま終了した。SUMIT はスーパーミラーの焦点距離が 8m あり、長いトラスの両端に検出器を備えたものであった。

これまでの集光系を備えた X 線衛星の進化を振り返ると、あすかの 3.5m をかわきりに、すざくの 4.5m、ニュートンの 7.5m、チャンドラの 10m などとなっている。これらの衛星は全反射鏡なので有効エネルギー範囲はせいぜい 10keV 程度以下であった。スーパーミラーはこれを 80keV まで延ばすとは言うものの、焦点距離は長いほど有利と言う側面もある。NeXT 衛星では焦点距離 12m となることも理解できる。さらに長くなると、望遠

鏡と検出器とを一体で作ることが難しくなる。特に低高度地球周回衛星となると、潮汐力が効いて来るので、姿勢維持が難しい。そこで考えられるのが、望遠鏡と検出器とを別の衛星にして、より長い焦点距離を実現しようというアイデアである。その考えに立つのが、ヨーロッパの CV の L プロジェクトに名乗りを上げているゼウス計画である。現状では、焦点距離 35m で、二衛星は太陽と地球で決まる L2 点に設置される。

観測対象が広がり、精密観測が主流になると、serendipity を期待しにくくなる面がある。初期の X 線天文衛星には、大きな主観測装置の他に必ずといっていいほどスキャン型の小型装置があり、広い空間を見張っていた。その後、観測が進みだいたいの様子が見えると、各種天体の精密観測に変わって行った。従って、スーパーミラーによって初めて 10 ~ 80keV の領域の集光鏡による観測が可能になるわけだから、そのエネルギー領域の広い領域を見張る装置が必要であろう。この条件を満たすために 2004 年に考案したのがここで報告する FFAST (Formation Flight All Sky Telescope) である。

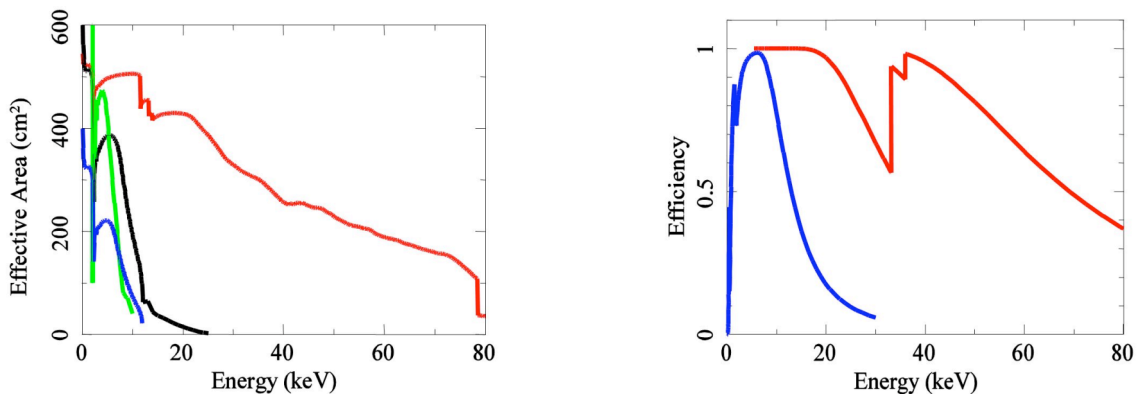


図1. (左)スーパーミラー(赤)と従来型のミラー(黒、緑、青)の有効面積をエネルギーの関数として示したもの。(右)SDCCD(赤)と従来型 CCD(青)の検出効率をエネルギーの関数として示したもの。

FFAST では二機の小型衛星を低高度地球周回軌道に入れる。一機が望遠鏡衛星であり、もう一機が検出器衛星である。望遠鏡衛星には焦点距離 20m のスーパーミラーを搭載、検出器衛星には図

1 右に示すように検出感度を向上させた SDCCD を搭載する。検出器衛星には小型スラスターを搭載し、望遠鏡衛星から 20m の距離を維持して編隊飛行するもので、二衛星で決まる方向が観測領域

となる。特定の天体を観測しようとする、二衛星のうちの少なくとも一方はケプラー軌道から外れるので、スラスターの燃料消費が膨大になり、実現性は低い。同じ理由で、ゼウス計画ではL2を選択している。従って、特定の天体を観測することはかなり大規模な計画になってしまう。もちろん、二衛星を長いトラスで結合すればいいわけだが、その場合には、衛星が大きくなること、潮汐力に逆らって姿勢を安定させることが難しくなるなどの問題が生じる。

特定の方向に向けることは止め、スキャン型でよいから、編隊飛行で簡単に焦点距離を維持する方法はないだろうか？一番明快なのは、二衛星を20mの間隔をあけて同じ円軌道に入れる場合である。このとき、二衛星で決まる観測方向は軌道の接線方向で、天空上では一つの大円を描く。例えば軌道傾斜角が30度の場合、軌道面は40日程度の周期で才差運動により回転する。従って、軌道傾斜角で決まる緯度以下の領域が観測可能で、全天の約半分をカバーできる。更に広い範囲をカバーするにはより大きな軌道傾斜角が必要である。スーパーミラーの欠点は視野が狭いことである。従って、広い範囲を精度よく観測するには、多数の望遠鏡と大きな軌道傾斜角が必要である。前者は、衛星が大きくなり、重くなることが問題であり、後者は、検出器バックグラウンドのせいで観測時間の制限や検出器の劣化が問題である。

一つの衛星から見たときの、もう一つの衛星の

動きは、ヒル方程式で表すことができ、昔からよく研究されている。その中で、二衛星の距離を一定に保つケプラー軌道は二つ知られている。一つは、既に紹介した同じ軌道に入れるものであり、もう一つはレコード盤軌道と呼ばれるものである。理屈は簡単ではあるが、なかなか気が付かないものである。詳細は省略するが、この軌道にすれば、望遠鏡の視野は軌道と直角方向に八の字を描く。八の字の場所は軌道上の任意の点に簡単に設定できる。この場合、全天の1/10以下の比較的狭い領域をスキャンするようにできる。バックグラウンドの低い小さな軌道傾斜角の軌道でも実用に問題はないし、狭い領域に限られるので、小さな衛星でも十分な感度を発揮できる。

FFASTはJAXAで開発中の新固体ロケットによる小型科学衛星を目指している。現状設計では、二衛星はそれぞれが250kg程度で、一機のロケットでタンDEM打上を狙う。検出器や望遠鏡などはNeXTのために開発しているものとはほぼ同等で、それ以外について、例えば編隊飛行部分については工学系主導で行うことになるし、衛星バスも共通化されている。したがって、NeXTの開発に合わせて自然に準備できることになる。これにより、NeXTでは出来ない広い領域をカバーできる。例えば、銀河中心を含む領域のスキャン観測などを検討している。なんとか、NeXTと相前後して軌道に載せ、NeXTの補完的な観測を実行したい。

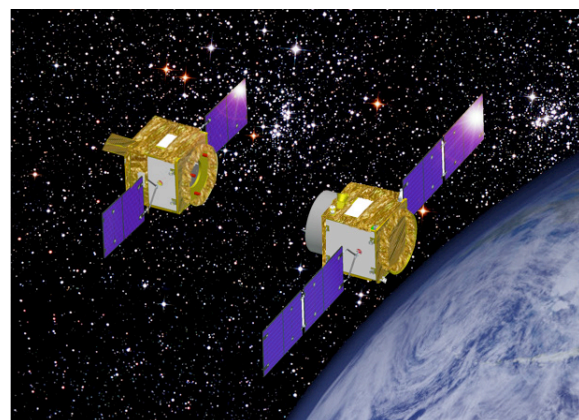
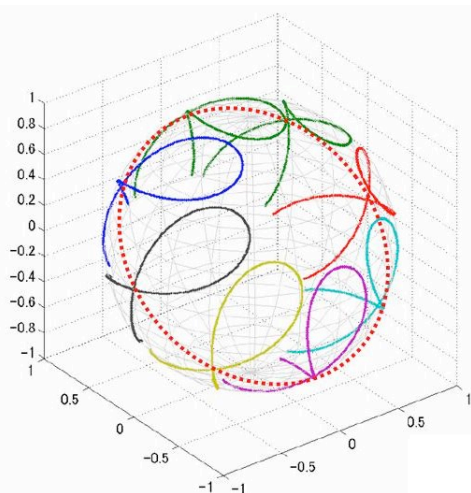


図 2. (左)レコード盤軌道を使った場合の天空上のスキャンパス(8の字を描いている)を示す。衛星の軌道面は点線で示しており、軌道面上のいろいろな点を基点に8の字を描かせることができる。8の字の一部が欠けているのは視野の地没を示す。(右)軌道上でのFFASTの想像図。二機の衛星形状は新固体ロケットによる打上を考慮したものになっている。左が望遠鏡衛星、右が検出器衛星でスラスターを備えている。二衛星共にケプラー軌道で、スラスターは大気抵抗などの外乱を補正するだけである。



## 各種報告

### 【第9回X線顕微鏡国際会議のお知らせ】

開催日時：2008年7月21日から25日まで

開催場所：スイス、チューリッヒ

ホームページ：<http://xrm2008.web.psi.ch>

問い合わせ先：筑波大学、青木貞雄 (aoki@bk.tsukuba.ac.jp)



## 編集部より

### 【「X線画像募集」のお知らせ】

X線結像光学研究会のホームページに「特選X線画像」のコーナーを設けることになりました。ここには「X線結像光学」に関わる様々な研究・開発をされている当研究会のメンバーの皆様から送っていただいたX線画像を掲載し、研究会の成果の宣伝や会員相互の新たなつながりを生み出す契機になればと考えております。

つきましてはここに掲載するX線画像を募集いたします。下記の例のように、画像データと一般向けの説明、出典などをつけて当編集部までお送りください。

#### X線画像ギャラリー

##### ウォルターミラーを用いた結像型蛍光X線顕微鏡による3次元元素マッピング

試料: アルファルファの種子

アルファルファは、種子を構成する元素組成が人間とほぼ等しいとされており、健康食品としても注目されている牧草の一種である。

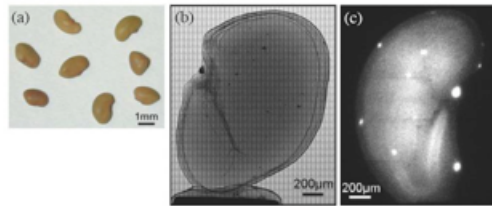


Fig.1 (a) アルファルファの種子の写真

(b) 「位相コントラスト画像」

通常のX線透過像は吸収によるコントラストを画像化している。吸収の少ない透明物体では、物体の屈折率（位相）分布をX線光学的手法によって強度分布に変換して画像化できる。

(c) 「蛍光X線画像」

ある元素の吸収端エネルギーより高いX線の照射

によってその元素特有の特性（蛍光）X線が放出する。空間的な蛍光X線分布が走査型あるいは結像型光学系によって画像化可能になった。蛍光X線3次元画像から特定元素とその量（密度等）の分布が求められる。

【出典】 1) M.Hoshino et al., RSI.78(2007) 073706 1-7

2) M.Hoshino et al., Proc. of 9th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation (2007)1357-1360

X線結像光学ニューズレター  
No.27 (2008年3月)

発行 X線結像光学研究会  
(代表 筑波大学物理工学系 青木貞雄)  
編集部 名古屋大学エトピア科学研究所 田原 謙  
(協力研究室：大学院理学研究科物理学教室U研)  
〒464-8603 名古屋市中種区不老町  
TEL/FAX : 052-789-5490  
E-mail: tawara@u.phys.nagoya-u.ac.jp