

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 5 月 17 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03590

研究課題名(和文)超高速・高感度X線イメージング・トモグラフィ法の開発とその応用

研究課題名(英文)High-speed and high-sensitive X-ray imaging and tomography with millisecond-order temporal resolution

研究代表者

矢代 航 (Yashiro, Wataru)

東北大学・多元物質科学研究所・准教授

研究者番号：10401233

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：非平衡系の内部には多くの未知の高速現象が存在すると考えられる。本研究では、我々がこれまで先駆的に開発を進めてきた高感度X線イメージング法の一つであるX線回折格子干渉法をさらに発展させて、マイクロ秒オーダーの超高速・高感度X線イメージングおよび試料高速回転によるミリ秒オーダーの時間分解能の超高速・高感度4D(空間座標+時間座標)X線トモグラフィを実現した。本研究で開発した技術は、近い将来に汎用性の高い手法に発展すると予想され、ソフトマター科学やバイオミメティクスなどの基礎・応用研究分野におけるフロンティアの開拓など、我が国が世界を牽引する多くの分野への波及効果が期待される。

研究成果の概要(英文)：There are many unknown high-speed phenomenon in non-equilibrium systems. In this research, we developed millisecond-order X-ray tomography (including four-dimensional X-ray tomography) on the basis of microsecond-order X-ray imaging using an X-ray grating interferometer, which enables us to realize high-sensitive X-ray phase-contrast imaging, and a white synchrotron X-ray beam. It is expected that this tomographic technique will be broadly used for versatile purposes in many fields including basic and application research on soft materials biomimetics.

研究分野：X線

キーワード：X線 イメージング 位相 回折格子 高速現象 トモグラフィ 放射光 非平衡系

1. 研究開始当初の背景

1895年のレントゲンによるX線の発見以来、硬X線（以下では単に「X線」と呼ぶ）は物体内部を観察するためのツールとして広く利用されてきた。現在広く社会に普及しているX線撮像装置の多くは、本質的には発見当時と同様の方法で、X線の吸収を利用したものである。しかしながら、軽元素で構成される弱吸収物体を撮像するには、感度が不十分であるという問題があった。それを解決する方法として、1990年代以降、X線が物体を透過したときに生じる位相シフトを利用するいくつかの方法が提案され、大きなブレイクスルーをもたらした[1]。X線の位相シフトの相互作用断面積は、吸収のそれに比べて数桁大きい。そのため、吸収では区別できない内部構造でも位相イメージングでは十分なコントラストが実現できる。当初はシンクロトロン放射光源など大規模な施設を利用する方法が主であったが、最近、実験室X線源（低輝度、連続X線、球面波）でも機能するX線回折格子干渉法（X線 Talbot あるいは Talbot-Lau 干渉法など[2-5, 7-9]）が世界的に注目されており、我々のグループと世界各国のグループの間で激しい開発競争が繰り広げられている。

2. 研究の目的

本研究では、我々がこれまで先駆的に開発を進めてきた高感度X線イメージング法の一つであるX線回折格子干渉法をさらに発展させて、1秒あたり1Mフレーム程度の超高速・高感度X線イメージングおよびミリ秒程度の時間分解能の超高速・高感度4D（空間座標+時間座標）X線トモグラフィの実現を目指した。前人未踏の時間分解能で非平衡系のダイナミクスをその場観察できるという特色を活かして、ソフトマター科学やバイオメティクスなどの基礎・応用研究分野において新たなフロンティアの開拓を近い将来の目標とした。本研究で実現を目指す技術は、近い将来に汎用性の高い手法に発展すると予想され、新素材開発やロボット産業など、我が国が世界を牽引する多くの分野への波及効果が期待される。

3. 研究の方法

一般に撮影時間が短くなると利用できるX線光子数が減少するため、時間分解能を向上させるには、高フラックスX線、および高感度撮像方法が不可欠である。X線回折格子干渉計は、高感度であるだけでなく、連続スペクトルの利用が可能であるという特長を有しており、高フラックスの白色放射光を利用できる。そのため高速なX線イメージングを実現することができる。我々はこれまで Photon Factory、SPring-8 の白色放射光を用いて、サブミリ秒時間分解能のX線位相イメ

ージング、サブ秒時間分解能のX線位相トモグラフィに成功している[5]

しかしながら、白色スペクトルのうち実際にイメージングに寄与している成分は1割程度であり、X線光子を必ずしも有効に利用できているわけではない。また、撮影速度の限界は高速カメラの性能によって決まっていた。本研究では、これらの問題を解決するため、白色放射光と高フレームレートの画像検出器を利用し、かつ光学系をさらに高度化して、従来の1000倍の高速化を目指した。

X線回折格子干渉計の別の特長として、定量的なイメージング法であることも挙げられる。米国の放射光施設である Advanced Photon Source (APS) ではすでにシングルバンチ運転モードで0.1 MHz程度のフレームレートのX線位相コントラストイメージングが実現されている[6]。このことは、SPring-8のマルチバンチ運転モードを利用すれば、本申請の超高速イメージングは原理的に実現可能であることを示しているが、APSでの実験は伝播ベース法に基づいているため、定量的な解析が行われていない。特にトモグラフィを実現させるためには、定量的なイメージングが不可欠である。本研究では、定量的な超高速X線イメージングによって超高速X線トモグラフィの実現を目指した。

さらに、マルチモーダルなイメージング法であることも大きな特長の一つである。すなわち一回の撮影で、吸収像、微分位相像、極小角X線散乱コントラスト像という三枚の画像が得られる。三番目の画像については、最近の我々の研究により、解像できないサイズ（数100 nm～数 μ mサイズ）の微小な構造の情報が定量的に引き出せることが明らかとなり[7]、例えばソフトマテリアルの破断メカニズムの解明などに有効である。本研究ではこのような過去の研究成果を必要に応じて駆使して、非平衡系に関する新規知見を得ることを目指した。

4. 研究成果

(1) サブ10 ms 時間分解能X線トモグラフィ

まず超高速X線位相イメージングを実現した方法について説明する。図1に実験配置を示す。実験には、SPring-8の白色放射光ビームラインであるBL28B2を利用した。高感度X線位相イメージングには、X線回折格子干渉計を用いた。X線回折格子干渉計のイメージング効率は、X線のエネルギーに対して比較的鈍感で、SPring-8のBL40XUのアンジュレータからの準単色光程度のバンド幅（ $\Delta E/E \sim 0.02$ ）であれば、ほぼフルにイメージングに利用できる。じつは、過去の他グループの光学系との比較から、BL40XUを用いれば、計算上は本申請の数値目標は十分に達成できると見積もられる。しかし、BL40XUで

はビームサイズが小さく、撮像視野が大きくとれない(1 mm 幅前後)という問題があった。BL28B2 の場合には、ビームサイズが大きい(50 mm×10 mm)という利点があるが、バンド幅が大きいため、イメージングに寄与しないエネルギー成分によるイメージング効率のロスが大きい。しかしながら、空間分解能を 100 μm 程度として、光学系をさらに高度化すれば、イメージングに適した視野で本研究の目標数値の達成は十分に可能であると考えられた。

X線検出器としては、シンチレータと可視光用の高フレームレート高速カメラを組み合わせたレンズカップリング型の間接撮像型の画像検出器を用いた。シンチレータには、近年東北大学のグループにより発見された、残光時間が短く、感度が高い GAGG (40 μm 厚)を用いた。可視光用の高速カメラとしては、当初は、10 Mfps のカメラを用いることを計画したが、予算額の範囲内に収めるため、0.1 Mfps 程度の CMOS カメラに変更した。

画像の取得には、時間分解能向上のため、X線回折格子干渉計で取得される1枚のモアレ画像から3枚の独立な画像が取得できる Fourier 変換法を用いた。この方法では、取得できる画像の空間分解能がモアレ縞の周期で決まるため、モアレ縞の周期を非常に小さくして、撮影を行う必要がある。そのため、画像検出器の有限な点広がり関数の幅により、モアレ縞のビジビリティが低下し、S/N が下がることが欠点となるが、試料を半回転する時間でトモグラムが再構成できるため、高い時間分解能が実現できる。

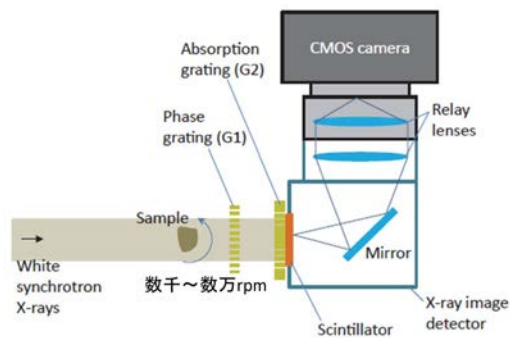


図1 高速X線トモグラフィの実験配置。

図2 (a) は、図1の実験配置で取得したモアレ画像(露光時間: 6.54 μs 、有効画素サイズ: 10 μm)。 (b)、(c) はそれぞれ、Fourier 変換法により取得した透過率像、微分位相像を示す。試料としては、直径 3/16 インチのポリエチレン球を用いた。図2 (d)、(e) はそれぞれ、(b)、(c) の破線に沿ったラインプロファイルであり(黒丸: 実験データ)、白色放射光のスペクトル、レンズカップリング型画像検出器の検出効率のエネルギー依存性などを考慮したシミュレーション結果とよく一致した。解析計算および数値計算の

結果から、モアレ縞の位相シフトが $\pm\pi/2 \times E_{\text{eff}}/\Delta E$ の範囲内であれば、試料による位相シフトの微分とモアレ縞の位相の間の線形性が保たれることが明らかになった。ここで E_{eff} は白色放射光スペクトルの有効エネルギー、 ΔE はそのエネルギーバンド幅である。したがって、この範囲内に収まる試料に対しては、定量的な微分位相像の取得が可能であり、定量的なX線トモグラフィも実現できることが分かった。

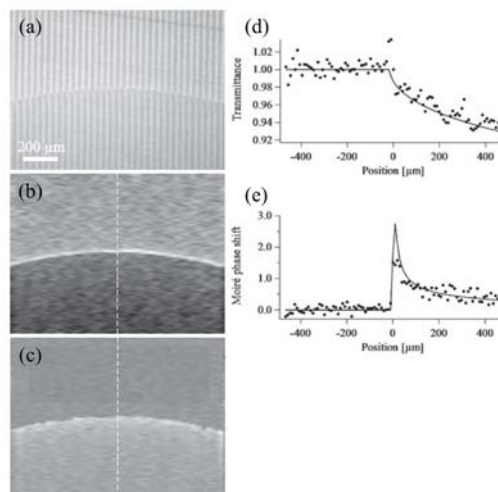


図2 (a) 図1の実験配置で取得したモアレ画像(露光時間: 6.54 μs)。 (b)、(c) : 直径 3/16 インチポリエチレン球の透過率像、微分位相像。 (d)、(e) : (b)、(c) の破線に沿ったラインプロファイル(黒丸: 実験データ、実線: シミュレーション結果) [8]。

図3 (a)、(b) は、図2 (b)、(c) のような透過率像、微分位相像から求めたトモグラムの例である(試料: 楊枝の先端)。これらのトモグラムは、試料を 3371 rpm で回転しながら、100,000 fps のフレームレート(シャッター時間は 6.54 μs)で投影像を撮影し、試料半回転あたり 890 枚の投影像を取得して再構成したものである。すなわち、トモグラム取得のための露光時間は、890/100,000 s = 8.9 ms である。透過率像から求めたトモグラムでは、伝播ベース法でみられるエッチ強調の効果が支配的であり、定量的なトモグラムにはなっていないが、構造の境界を識別するのに有効である。一方で、図3 (b) の位相トモグラムにおいては、X線に対する屈折率(の1からのずれ)が定量的に画像化されている。

時間分解能は数倍悪くなるが、空間分解能において勝っている縞走査法の適用も試みた。この方法では、試料を数回転する間に格子を1周期分動かして、複数枚の投影像から3枚の独立な画像が取得可能である。空間分解能は、基本的に画像検出器の空間分解能で決まり、またモアレ縞の周期を小さくしなく

てよいことから、ビジビリティの低下によるS/Nの劣化もない。図4に3ステップ縞走査法で求めた(a)透過率像、および(b)微分位相像を示す(試料:楊枝の先端)。空間分解能がFourier変換法の場合に比べて圧倒的に改善されているのが分かる。図4(c)、(d)に、(a)、(b)からそれぞれ再構成されたトモグラムを示す(時間分解能:5.3 ms)。

経時変化する試料の4D(3D+時間)トモグラフィも試みた。図5に整髪料(フォーム)のある瞬間のトモグラムの例を示す(時間分解能:19.7 ms)。

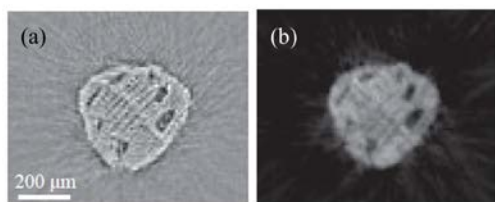


図3 Fourier変換法により求めた透過率像、微分位相像から再構成されたトモグラム((a)吸収トモグラム、(b)位相トモグラム)[8]。

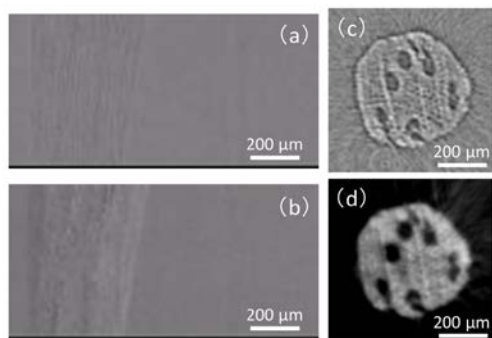


図4 縞走査法により求められた(a)透過率像、(b)微分位相像、(c)吸収トモグラム、(d)位相トモグラムの例(試料:楊枝の先端、時間分解能:5.3 ms)。

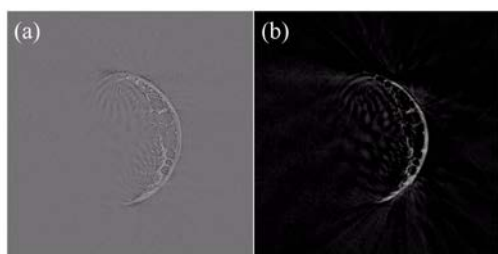


図5 整髪料(フォーム)のトモグラム(時間分解能:19.7 ms)。(a)吸収トモグラム、(b)位相トモグラム。

(2) 圧縮センシングを用いたミリ秒時間分解能X線トモグラフィ

上記では、時間分解能5 ms程度のX線トモグラフィの実現例を示したが、さらに時間分解能を向上させるためには、さらなるハイフラックス、カメラのフレームレートおよび試料回転数の増加が必要である。しかしながら、入射ビームのフラックスは限られており、またカメラのフレームレートも性能の上限に近い場合、さらなる時間分解能の向上は困難であるように思われた。

しかしながら、近年世界的に注目されている圧縮センシングを利用したスパースビューCT再構成の技術を用いることにより、この限界を超えることに成功した。この方法では、少ない投影数からでもCT再構成が可能である。すなわち、フレームレートを上げることなく、試料をさらに高速に回転することにより、より高速にCTデータの取得が可能である。一般に、カメラの素子のスペックとして、フレームレートを上げると、カメラの視野が小さくなるという問題があるが、スパースビューCT再構成は、低いフレームレートで大視野のトモグラフィを行うのにも好都合である。

図6に、筑波大学の工藤博幸教授らが開発したスパースビューCT再構成アルゴリズムにより求めた直径3/32インチのポリプロピレン球のトモグラムの例を示す(時間分解能:2 ms)。圧縮センシングの技術を用いれば、さらに高フレームレートのカメラを用いて、かつ試料をさらに高速に回転することにより、将来的にサブミリ秒時間分解能のX線トモグラフィも実現可能であることが明らかになった。

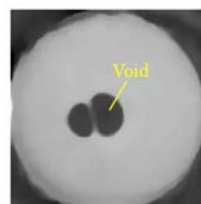


図6 圧縮センシング(スパースビューCT再構成)の技術を用いて再構成したポリプロピレン球のトモグラム(時間分解能:2 ms)[9]。

(3) 今後の課題

本研究により、X線の位相を利用したイメージング法であるX線回折格子干渉法を用い、さらに、試料を高速回転して、5 ms程度の時間分解能、さらに圧縮センシングの技術を用いて、1 msオーダーの時間分解能のX線トモグラフィが実現できることが示された。しかしながら、試料を高速回転しなければならないという制約から、試料まわりの環境を変化させたり、液体など流体に適用したりできないなどの問題がある。試料を回転せずに、同様の時間分解能を実現する技術の開発が、

チャレンジングであるが、今後のテーマであると考えられる。

<引用文献>

- [1] A. Momose, Jpn. J. Appl. Phys. 44 (2005) 6355-6367.
- [2] A. Momose et al., Jpn. J. Appl. Phys. 42 (2003) L866-L868.
- [3] A. Momose, W. Yashiro et al., Jpn. J. Appl. Phys. 45 (2006) 5254-5262.
- [4] W. Yashiro et al., Phys. Rev. A 82 (2010) 043822; W. Yashiro et al., Phys. Rev. Lett. 103 (2009) 180801.
- [5] A. Momose, W. Yashiro et al., Opt. Exp. 19 (2011) 8423-8432; A. Momose, W. Yashiro et al., Opt. Exp. 17 (2009) 12540-12545.
- [6] J. S. Lee et al., Nat. Commun. 2:367 doi: 10.1038/ncomms1369 (2011).
- [7] W. Yashiro et al., Opt. Exp. 18 (2010) 16890-16901.
- [8] W. Yashiro et al., Appl. Phys. Express 10 (2017) 052501.
- [9] W. Yashiro et al., Jpn. J. Appl. Phys. 56 (2017) 112503.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 4 件)

- ① W. Yashiro, D. Noda, and K. Kajiwara, "Effect of insufficient temporal coherence on visibility contrast in X-ray grating interferometry", Opt. Express, 査読有, Vol. 26, 2018, 1012-1027. DOI: 10.1364/OE.26.001012
- ② W. Yashiro, R. Ueda, K. Kajiwara, D. Noda, and H. Kudo, "Millisecond-Order X-ray Phase Tomography by using Compressed Sensing", Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, Vol. 56, 2017, 112503. DOI: 10.7567/JJAP.56.112503
- ③ W. Yashiro, D. Noda, and K. Kajiwara, "Sub-10-ms X-ray tomography using a grating interferometer", Appl. Phys. Express, 査読有, Vol. 10, 2017, 052501 (Spotlights 論文に選出). DOI: 10.7567/APEX.10.052501
- ④ W. Yashiro, P. Vagovič, and A. Momose, "Effect of beam hardening on a visibility-contrast image obtained by X-ray grating interferometry", Opt. Express, 査読有, Vol. 23, 2015, 23462-23471. DOI: 10.1364/OE.23.023462

[学会発表] (計 24 件 (うち招待講演 21 件))

- ① W. Yashiro, "Recent advance and

future potential in X-ray imaging with gratings" (招待講演), International Conference on X-ray optics and applications 2018 (XOPT' 18), 2018 年.

- ② 矢代航, 「X線による表面・界面構造解析の新たな展開: X線の位相を利用したイメージング法との融合」(招待講演)、第64回応用物理学春季学術講演会、2017年.
- ③ 矢代航, 「放射光を利用したイメージング技術のフロンティアの開拓」(特別講演)、フロンティアソフトマター開発専用ビームライン産学連合体第6回研究発表会、2017年.
- ④ 矢代航, 「硬X線の位相を利用したイメージング技術のフロンティア」(招待講演)、現物融合型エンジニアリング専門委員会 第66回委員会、2016年.
- ⑤ 矢代航, 「X線回折格子干渉計の高分子構造科学研究への展開可能性」(招待講演)、第一回高分子構造科学研究会・小角散乱研究会合同研究会、2016年.
- ⑥ 矢代航, 「X線によるイメージング — 回折格子干渉計の原理と応用 —」(招待講演)、平成27年度ソフトマター中性子散乱研究、2016年.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

矢代 航 (YASHIRO Wataru)
東北大学・多元物質科学研究所・准教授
研究者番号: 10401233

(2) 研究分担者

竹中 幹人 (TAKENAKA Mikihiro)
京都大学・工学研究科・教授
研究者番号: 30222102