

令和 6 年 6 月 24 日現在

機関番号：32678

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2023

課題番号：20K05385

研究課題名（和文）WDS-PIXEのエネルギー分解能を飛躍的に向上させるための画像処理手法の開発

研究課題名（英文）Development of image processing method to significantly improve the energy resolution of WDS-PIXE

研究代表者

羽倉 尚人（Hagura, Naoto）

東京都市大学・理工学部・准教授

研究者番号：00710419

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,800,000円

研究成果の概要（和文）：原子力発電の利用により発生する使用済燃料の再処理技術開発において、分離することが求められる錯体の化学結合状態を把握することを目的として、波長分散型荷電粒子線励起X線分光（WDS-PIXE）法に着目し、開発を行った。従来のWDS-PIXE法では装置を大型化することでエネルギー分解能の向上を図っていた。本研究では中性子ラジオグラフィの研究開発により培われた画像処理技法（輝点重心処理、超解像処理、画素ずらし）を組み合わせることで装置を小型化しつつ、同程度のエネルギー分解能を達成することを狙い、原理実証と分析装置の設計・製作を行い、性能評価を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

小型加速器を用いたMeV級のイオンビームを利用した非破壊分析手法は、必要とする試料量が少なく、よいことや放射化等による二次廃棄物の発生が生じないといった利点があるために現在改めて注目されている。分析のための前処理が基本的に不要である点も重要である。これらの利点を生かして、様々な分野でPIXE法による分析が実施されているが、化学結合状態に関する情報が得られる波長分散型PIXE分析法は、十分に普及しているとは言えない状況である。本研究により、中性子ラジオグラフィに関する研究開発で培われた画像処理を組み合わせた手法による小型化の実現可能性が示されたことは今後の普及に大きな貢献を果たすと考えられる。

研究成果の概要（英文）：We focused on wavelength dispersive spectroscopic particle induced X-ray emission (WDS-PIXE) to understand the chemical bonding state of complexes that must be separated in the development of reprocessing technology for spent nuclear fuel generated from the use of nuclear power generation. In the conventional WDS-PIXE method, the energy resolution was improved by increasing the size of the apparatus. In this study, we aimed to achieve the same level of energy resolution by combining image processing techniques (center-of-gravity processing, super-resolution processing, and pixel displacement) developed through research and development of neutron radiography, while reducing the size of the device.

研究分野：原子力工学

キーワード：画素ずらし 超解像処理 輝点重心処理 波長分散型分光システム PIXE

1. 研究開始当初の背景

イオンビームを試料に照射して原子の内殻電離を起こさせ、発生する特性 X 線を検出し、そのエネルギーと強度から元素を同定・定量することによって微量元素の分析を行う手法は PIXE (Particle Induced X-Ray Emission) と呼ばれ、極めて微量の試料にも適用できるので多くの応用がなされている。X 線のエネルギーを分光結晶により詳細に測定する手法は WDS (Wavelength Dispersive Spectrometry) と呼ばれ、エネルギー分解能が 1 eV 以下と優れているため、測定対象元素の化学結合状態の推定に利用されている。最近の WDS 用測定系では、X 線の集光効率を上げるために湾曲した HAMOS 型分光結晶と高検出効率で位置分解能も良い X 線検出用冷却型 CCD カメラとが組み合わされ、0.3 eV 程度のエネルギー分解能が達成されている。そして、生体や環境の物質中で重要である第 3 周期の元素 Na、Si、P、および S などのケミカルシフトの測定、環境モニタリングにおける毒性をもつ重金属 As、Cd、Pb、および Hg などの化学状態の測定、土壌中の粘土に付着した放射性 Cs の化学状態の分布など、様々な分野で利用されている。この WDS のエネルギー分解能は、入射ビーム幅と分光結晶に起因する要素、幾何学的配置に起因する要素、および使用する CCD の空間分解能などに依存している。

X 線検出器は検出効率の高い背面照射型 CCD とし、また、エネルギー分解能を良くするためには、空間分解能に優れている画素サイズの小さい CCD を試料より遠ざけて設置すると良い。しかし、現実的には実験環境による距離の制約もあり、エネルギー分解能を更に向上させる研究はなされていない。また、X 線集光効率はこれらに相反する関係にあるため、距離を遠ざけると測定時間が長くなる欠点がある。

上記の学術的背景から、以下の学術的「問い」が發せられる。「WDS 法でさらにエネルギー分解能を飛躍的に向上されることはできないか?」「エネルギー分解能を劣化させないで集光効率を向上させることはできないか?」

国内で WDS-PIXE 用として CCD を X 線検出器に使用したのは、1995 年に持木が指導した修士論文の研究が初めてであり、その後 8 人の修士により研究開発が継続され、2004 年に PIXE シンポジウムで発表されている。他のグループでは、1998 年に理研の前田グループが位置敏感比例計数管、また 2007 年には東工大の小栗グループが CCD、2014 年には東北大学の石井グループが CCD とポリキャピラリーをそれぞれ用いて WDS 用 X 線検出システムを開発している。また、PIXE 用ではなく、EPMA 用の日本電子 (株) 製の X 線分光器でも CCD が使用されている。しかし、本申請で提案する更なる高分解能化のための手法は採用されていない。国外でも背面照射型 CCD と分光結晶の組み合わせで使用されているが、本申請で提案した更なる高分解能化のための手法は採用されていない。

2. 研究の目的

学術的「問い」に解答を与えるべく、「輝点重心処理」「超解像処理」と「画素ずらし」の 3 つの技法を適用することでエネルギー分解能を飛躍的に向上させることができるかを実験的に実証する。また、エネルギー分解能が向上されれば、それに応じて距離を短くしても、元の性能が劣化せずに集光効率が向上することを実験的に実証するために、専用のチャンバを設計・製作し、ビーム試験を行う。WDS-PIXE を実施可能なビームの供給ができることを確認する。

3. 研究の方法

本研究の独自性は、当申請者が所属する研究室にて中性子ラジオグラフィのために独自に開発された、次の 3 つの手法を X 線検出と WDS のエネルギー分解能の向上に初めて適用することであり、また創造性は飛躍的に向上したエネルギー分解能を実証して、他の応用分野への素地を開くことである。これらの手法について詳述する。

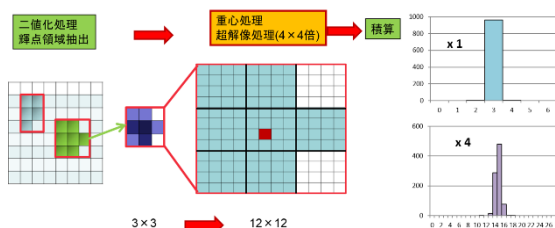


図1 輝点重心法の原理 (左) と処理後のラインプロファイル (右)

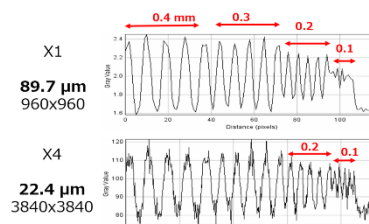


図2 元画像 (上) と超解像処理画像 (下) のスリット部のラインプロファイル

「輝点重心処理」と「超解像処理」は、放射線を CCD カメラで輝点として検出し、個々の輝点の重心を画像処理により算出し、CCD カメラ固有の空間分解能よりも優れた位置分解能を達成する技法である。3 画素 × 3 画素にわたって記録された X 線の輝点情報の重心を計算し、重

心位置座標を2進数小数点の2桁まで残して処理すると、縦横の画素数が4倍に拡大され、結果としてCCDの画素サイズが1/4に縮小し、X線の検出位置の精度が向上する。この画像処理を超解像処理と呼ぶ。図1の右上のプロファイルは、原画像ではほぼ1画素に集中しているが、4倍の超解像処理を行うと、さらに詳しい分布が浮かび上がり、この例では図右下のように空間分解能がほぼ半分まで改善された。また、図2は960 × 960画素のCCDで得られた輝点重心画像を単純に積算した原画像(上)と、4倍の超解像処理により3840 × 3840画素での重心位置の頻度分布(下)のラインプロファイルである。スリット幅0.1 mmの部分で、超解像処理により大幅に改善されているのが確認できる。

「画素ずらし」はパルス中性子透過分光法で、図3に示す1画素が3 mm × 3 mmで、16 × 16画素の2次元検出器で取得した画像(左図)に適用された。この検出器を縦横0.15 mmステップで縦横10 × 10シフトさせて100枚の画像を取得する。その際、各々の画像は2倍の重心超解像処理を行い、1画素が1.5 mm × 1.5 mmで32 × 32画素の画像となっている。これらの画像を規則正しく位置をずらしながら合成すると、1画素が0.15 mm × 0.15 mmで画素数320 × 320画素の1枚の高精細画像データ(右図)が得られる。その結果、3 mm角の検出器を用いて、画素サイズが1/20となる0.15 mm角画像が得られ、直径が0.4 mmの金属片を検出することができ、大幅に空間解像度が改善された。これらの手法をWDSに適用する。

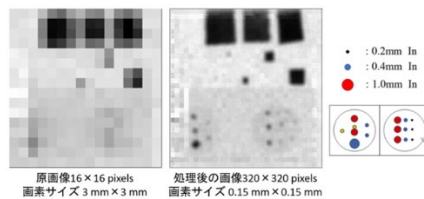


図3 原画像(左)と画素ずらし処理後の画像(右)

4. 研究成果

CCDによるX線の輝点の検出結果に対して画像処理技法の内、輝点重心処理と超解像処理を適用するためには、X線の輝点が隣接する複数の画素にある程度の広がりをもって分布している必要がある。このような形での輝点の分布を取得できるかどうかをFe-55線源とCCDを用いて検証した。また、検出する際の条件についても同時に検討した。図4にFe-55線源からの輝点をCCDで取得した結果を示す。図4(a)には線源とスリットおよびCCDの概略の位置関係を、(b)には実測した輝点分布、(c)にはピクセルごとの輝点の広がりをもつ頻度分布を示す。この図では輝点と判別するための指標である σ という値を2.5としたケースを示している。この σ 値を変化させることで輝点分布の広がりをもつ頻度を決定することができるが、設定値が小さすぎると1つの輝点当たりのサイズが大きくなりすぎ、逆に設定値が大きくなりすぎると1つの輝点当たりの広がりもほぼなくなってしまう。よって最適な値を設定する必要がある。この結果から、適当なサイズの広がりを持った輝点を取得することができる見通しを得た。これにより、中性子ラジオグラフィにおいて位置分解能を向上させる手法が適用可能であることがわかり、X線の輝点分布の位置をより高精度化することが可能であることが確認できた。

専用の小型の分析チャンバを設計した。実験に使用した東京都市大学原子力研究所の1.7MVペレット・タンデム加速器のビーム高さが108cmであったことから、縦型の配置としてビーム高さと床面の間に分光結晶、CCDを配置するようにした。製作した分析チャンバを図5に示す。CCDは画素ずらしが可能のように電動駆動により位置を変更できるようにした。ビーム試験を実施し、ターゲット部で十分なビーム電流が得られることを確認した。

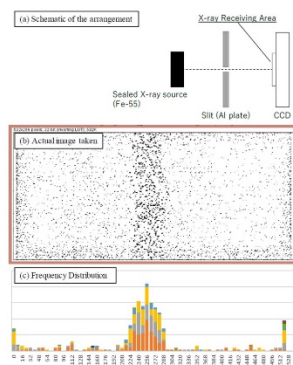


図4 線源を用いた輝点分布

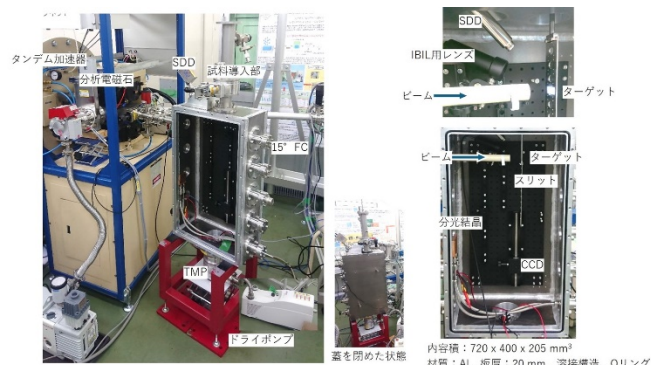


図5 WDS-PIXEチャンバ

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 羽倉尚人、渡部創
2. 発表標題 都市大タンデムの現状 ~教育利用の状況と波長分散型PIXEシステムの構築~
3. 学会等名 応用物理学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Koki Ushijima, Sou Watanabe, Jun Kawarabayashi, Naoto Hagura
2. 発表標題 Development of the compact WDS-PIXE system with image processing techniques
3. 学会等名 2022 IEEE Nuclear Science Symposium, Medical Imaging Conference and Room Temperature Semiconductor Detector Conference (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 羽倉尚人、渡部創、佐藤 真一郎
2. 発表標題 都市大タンデムの現状（2022年度）
3. 学会等名 応用物理学会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 松井隆祥、羽倉尚人、河原林順
2. 発表標題 都市大タンデムにおける大気PIXEビームラインに関する基礎研究
3. 学会等名 日本原子力学会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 羽倉尚人、渡部創
2. 発表標題 都市大タンデムの現状～WDS-PIXEとIBILの開発～
3. 学会等名 応用物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 K. Ushijima, J. Kawarabayashi, N. Hagura
2. 発表標題 Development of an ultra-high-resolution WDS-PIXE system by using image processing
3. 学会等名 2021 VIRTUAL IEEE NUCLEAR SCIENCE SYMPOSIUM AND MEDICAL IMAGING CONFERENCE 28th International Symposium on Room-Temperature Semiconductor Detectors (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 牛島康貴、羽倉尚人、渡部創
2. 発表標題 画像処理技術を用いた小型波長分散型PIXE分析装置の開発
3. 学会等名 日本原子力学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 羽倉尚人
2. 発表標題 都市大タンデムの現状(2020-2021)～WDS-PIXEチャンパの製作とビーム試験～
3. 学会等名 応用物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 羽倉 尚人、小栗慶之、渡部創
2. 発表標題 都市大タンデムの現状(2019-2020)～冷陰極PIX負イオン源の改良とWDS-PIXEの開発～
3. 学会等名 2021年第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takaaki Matsui, Koki Ushijima, Hong-Fu Liu, Jun Kawarabayashi, Sou Watanabe, Yuko Hatano and Naoto Hagura
2. 発表標題 Conceptual design of a compact WDS-PIXE system using image processing technique
3. 学会等名 International Symposium on Zero-Carbon Energy Systems (IZES) (国際学会)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	渡部 創 (Watanabe Sou) (40446399)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・核燃料・バックエンド研究開発部門 核燃料サイクル工学研究所 環境技術開発センター・研究主幹 (82110)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------