

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 5 月 18 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2016

課題番号：26630477

研究課題名(和文) マイクロビームとキャピラリーレンズを用いた3次元元素分析法の開発

研究課題名(英文) Development of 3-dimensional elemental imaging system using microbeam and capillary lens

研究代表者

松山 成男 (Shigeo, Matsuyama)

東北大学・工学研究科・教授

研究者番号：70219525

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、走査型マイクロビーム装置と、ウエーブガイド付きのX線検出器を組み合わせた3次元元素分析装置を開発した。ウエーブガイドにより、ウエーブガイドと平行な面内から発生したX線のみが検出されるため、ウエーブガイドと垂直な面内のビームの位置が深さ方向の情報を持つ。そのため得られた二次元元素分布は、深さ情報も含んでおり、試料の移動を組み合わせることにより、簡単に3次元元素分布を導出する事が可能となる。深さ分解能はおよそ60um程度であり、X線の吸収により、後面からのX線収量は半分程度に減少してしまうため、空間構造をもち、自己吸収の影響が少ない試料の分析には有効であると考えられる。

研究成果の概要(英文)：We developed 3D imaging system by combining micro-PIXE and a X-ray detector with a wave guide. Because only the X-rays which are generated from the plane that is parallel to a wave guide are detected by the system, the beam position has the information of the depth. Therefore three dimensional elemental distribution could be obtained by combining the sample movement. The depth resolution is estimated around 60um. Since the X-rays from deep position of the sample are absorbed, this method could not apply thick sample. This method will be effective for the analysis of the sample that has gaps and holes.

研究分野：加速器応用

キーワード：マイクロPIXE ウエーブガイド 3次元元素分析

### 1. 研究開始当初の背景

細胞のメタボリズムや有害金属との相互作用のメカニズムの解明には細胞レベルでの3次元的な元素分布の取得が必要不可欠である。元素のミクロン領域でのイメージング手法としては、マイクロイオンビームとPIXE分析法を組み合わせたマイクロPIXEや、マイクロ放射光と蛍光X線分析を組み合わせたマイクロ放射光分析があり、医学・生物の分野で広く応用が進められている。しかしながら、どちらの場合も厚み方向に対して積分された2次元分布である。このことを踏まえ、申請者の所属するグループでは、マイクロビームにより金属ターゲットを照射し、ミクロンX線源として透過画像を取得する3次元ミクロンCTを開発し、細胞内の3次元の形態画像の取得を実現し、医学分野への応用を進めてきた。さらにマイクロPIXE分析とCT技による術を組み合わせたPIXE-CTの開発が進めてきたが、これは一つの試料の分析に回転を伴う必要があるため、長時間を有するだけでなく、空間分解能の問題、エネルギー損失による断面積の変化の影響、X線収量の少なさからくる長い測定時間が問題となるため、これらに変わる簡便な手法の開発が必要である。

### 2. 研究の目的

本研究では、細胞試料をミクロンの分解能で3次元全元素分析するために、マイクロPIXE分析システムによる2次元マッピングシステムと、検出するX線の視野を制限することによって得たスライス情報から2次元のスライスマップを取得し、深度毎の2次元スライスマップからマップから3次元マップを導出する簡便な手法を開発することを目的とする。

### 3. 研究の方法

3次元の元素イメージング法としては、背

景で述べた手法の他に、2次元情報を取得できるマイクロPIXE分析法と1)照射するイオンのエネルギーやイオン種の違いによるX線発生断面積と飛程の差異を利用する手法(エネルギー/粒子差分法)とを組み合わせることや、2)X線検出器の視野を制限し、ある点またはスライスから発生したX線のみを集光する手法(視野制限/スライス法)を組み合わせることにより実現できるが、エネルギー/粒子差分法では、深さ方向の位置分解能が十分でないことと、エネルギーを下げることによる断面積の低下で重金属の感度が十分でないため、視野制限/スライス法に基づいた3次元画像取得システムの開発を行うことにした。

検出器に入射する特性X線の範囲を制限し、X線の発生点を特定するには、ポリキャピラリーレンズ、ウエーブガイドの使用が考えられる。ポリキャピラリーレンズを用いた場合では、1点から出た特性X線を検出し、その点の元素分布を知ることが可能となるが、3次元元素分析を行うためには、ポリキャピラリーレンズの焦点を3次元的に動かす必要が出てくるため、本研究のようにマイクロビームと組み合わせる場合には有効でない。そこで、マイクロの幅で発生するX線を平行に発生するウエーブガイド方式を採用することとした。概念を図1に示す。

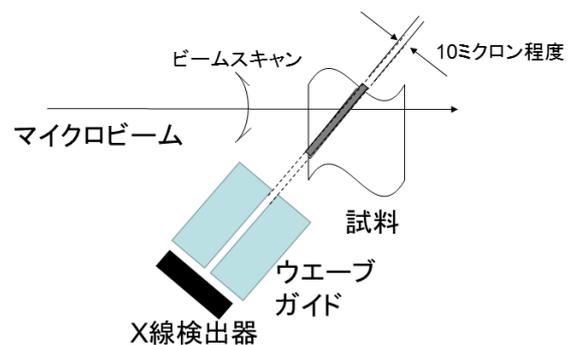


図1 概念図

ウエーブガイドにより、ウエーブガイドと平行な面内から発生したX線のみが検出されるため、ビームの位置が深さ方向の情報を持つ2次元スライスマップが得られる。試料を

移動し、各位置での 2 次元スライスマップを取得することにより、簡単に 3 次元マップを導出する事が可能となる。

#### 4 . 研究成果

本研究では、ウェーブガイドの開発が必要となる。これまでに、マイクロ PIXE による 2 次元元素画像の分解能は 1 ミクロンメートルを達成しており、深さ分解能も 1 ミクロンメートル程度を目指す。深さ方向でのビームの広がりや X 線の収量を考慮して、10 ミクロンメートル程度の分解能を目指し、シリコンウエハを用いたウェーブガイドを設計した。Si の臨界角は、5keV の X 線に対し、 $0.36^\circ$ 、10keV の X 線に対して  $0.18^\circ$  であるため、ウェーブガイドから 12mm 離れた点での視野範囲は 5keV の X 線に対し  $140\mu\text{m}$ 、10keV の X 線に対して  $65\mu\text{m}$  となる。開発したウェーブガイドを図 2 に示す。

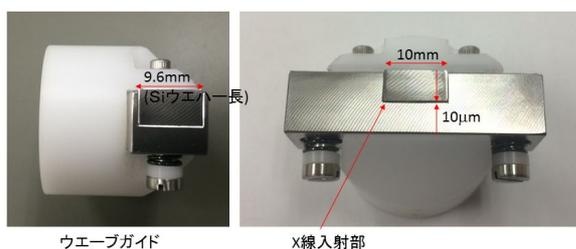


図 2 ウェーブガイド

ウェーブガイドは、Si ウエハ製で  $10\mu\text{m} \times 10\text{mm} \times 12\text{mm}$  (アワズテック) である。

まず、ウェーブガイドを用いて、視野範囲の確認を行った。実験は東北大学ダイナミトロン実験室のマイクロビーム分析システムにて行った。検出器は Si(Li)検出器で、ビームラインに対して  $135^\circ$  方向に取り付け、その前面にウェーブガイドを取り付けた。

亜鉛板の上部に  $10\mu\text{m}$  厚の銅製のメッシュと  $5\mu\text{m}$  厚の Ti 薄膜を重ねた試料に対して、ウェーブガイドを取り付けた場合と取り付けない場合において、二次元元素分布画像を取得した。図 3 に試料の写真と Ti, Cu, Zn の

元素分布画像を示す。

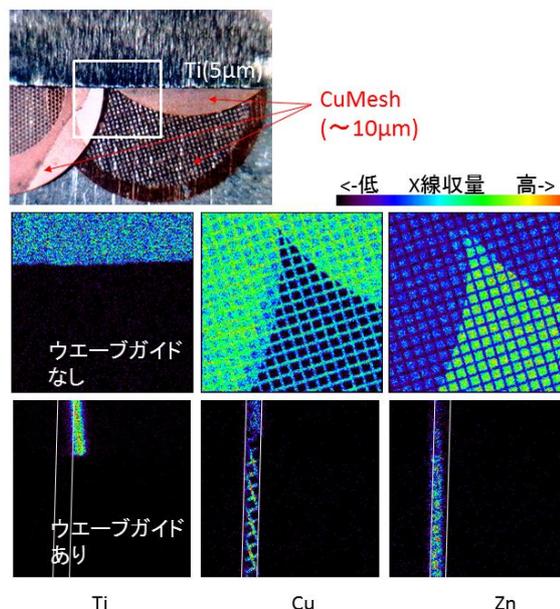


図 3 試料の写真とウェーブガイドの有無による元素分布画像の違い

ウェーブガイドを取り付けずに測定した場合は、スキャン範囲全体に対し、場所に依って特性 X を検出していることが分かる。また、Ti 薄膜の裏側にある Cu や Zn も検出されており、層構造が分からない。ウェーブガイドを取り付けた場合には、視野外からの X 線は全く検出されていない。また、再上面にある Ti に対して、Cu、Zn が左側に検出されており、層構造に対応していることが分かり、本手法が原理通りの働きをしていることが分かった。

次に、厚さ  $5\mu\text{m}$  の Ti 薄膜からウェーブガイドまでの距離を 12mm として、視野範囲の測定を行った。図 4 に実験体系と結果を示す。通常のコリメータを用いた場合と、ウェーブガイドの場合に想定されるプロファイルと測定結果を示す。コリメータで予想されるよりも広い範囲で検出されているが、ウェーブガイドで示される幅よりも狭いことが分かる。これは、全反射の反射率が 100 でないことに起因すると考えられる。

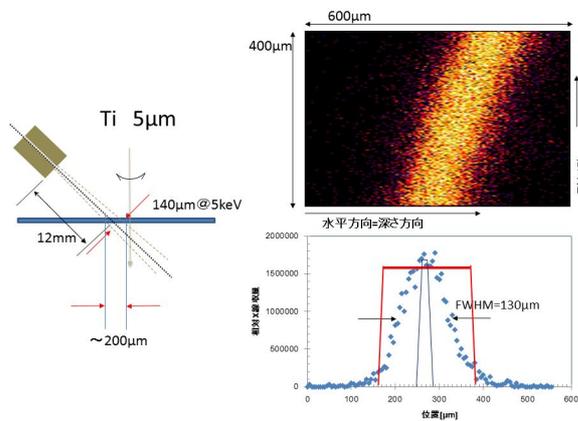


図 4 実験体系と測定結果

ウェーブガイドと試料の距離を変化させて取得した半値幅を図 5 に示す。

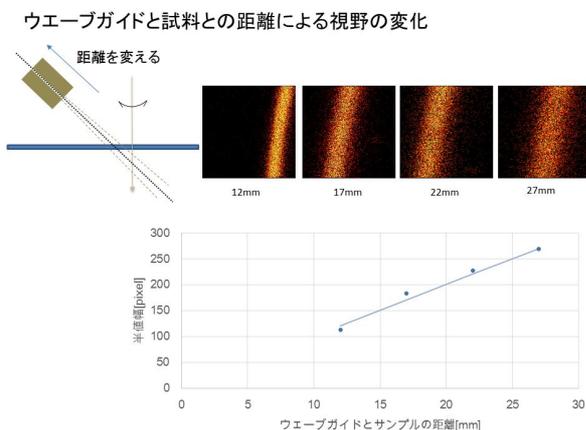


図 5 ウェーブガイドと試料間距離を変化させた場合の半値幅の変化

ウェーブガイドと試料間距離を遠ざけるにつれ、幅が広がって行くことが分かる。深さ分解能を向上させるためには、ウェーブガイドと試料間距離を可能な限り縮めることが重要である。

さらに、厚み 5 $\mu\text{m}$  の Ti 箔を 100 $\mu\text{m}$  の間隔をあけて設置したものを用意し分析を行った。図 6 にその結果を示す。

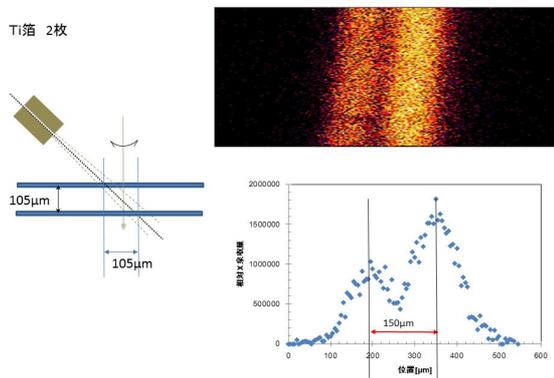


図 6 2 枚の Ti 箔からの X 線のプロフィール

前面と後面の Ti 箔からの X 線がウェーブガイドと平行に、別の位置に検出され、深さ方向の情報を得ることができた。深さ分解能はおよそ 60 $\mu\text{m}$  程度であり、X 線の吸収により、後面からの X 線収量は半分程度に減少してしまうため、空間構造をもち、自己吸収の影響が少ない試料の分析には有効であると考えられる。

## 5 . 主な発表論文等

( 研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線 )

[ 雑誌論文 ] ( 計 7 件 )

A micro-pattern gaseous detector for beam monitoring in ion-therapy, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 365 (2015), 606–610, A. Terakawa, K. Ishii, S. Matsuyama, Y. Kikuchi, T. Togashi, J. Arikawa, W. Yamashita, Y. Takahashi , F. Fujishiro, H. Yamazaki, Y. Sakemi, 査読あり

The Determination of Soil-Plant Transfer Coefficients of Cesium-137 and Other Elements by  $\gamma$ -Ray Measurement and PIXE Analysis, For Use in the Remediation of Fukushima, Physics Procedia, 66 (2015), 278 – 286, K.Ishii, A. Fujita, S. Toyama, A.Terakawa, S.Matsuyama, H.Arai, N.Osada, S. Takyu, T.Matsuyama, S. Koshio, K. Watanabe, S. Ito,

and K.Kasahara, 査読あり

*In vivo* 3D PIXE-micron-CT imaging of *Drosophila melanogaster* using a contrast agent, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 348 (2015), 123-126, Shigeo Matsuyama, Naoki Hamada, Keizo Ishii, Yuichiro Nozawa, Satoru Ohkura, Atsuki Terakawa, Yoshinobu Hatori, Kota Fujiki, Mitsuhiro Fujiwara, Sho Toyama, 査読あり

The microbeam system at Tohoku University, International Journal of PIXE, 25, (3 & 4) (2015) 153-185, S. Matsuyama, 査読あり

Application of micron X-ray CT based on micro-PIXE to investigate the distribution of Cs in silt, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 371 (2016), 387-391, Keizo Ishii, Taisuke Hatakeyama, Shin Itoh, Daichi Sata, Tohru Ohnuma, Toshiro Yamaguchi, Hiromu Arai, Hirotugu Arai, Shigeo Matsuyama, Atsuki Terakawa, Seong-Yun Kim, 査読あり

Elemental analysis on the particle cross-section of the radioactive cesium contaminated soil by PIXE, International Journal of PIXE, 26 (1&2), (2016) 1-6, Tohru Ohnuma, Keizo Ishii, Shigeo Matsuyama, Toshiro Yamaguchi, Hiromu Arai, Atsuki Terakawa, Hirotugu Arai, Soudai Takyuu, Daichi Sata, Daiki Seki, Kouta Imaizumi, Syuuhei Suzuki and Taisuke Hatakeyama, 査読あり

全反射蛍光 X 線分析法による干した食用可能野生キノコの戻し水のカリウム (K)測定 (The Measurement of Potassium (K) in the Soaking Water to Reconstitute the Dried Wild Mushrooms for Edible by Total Reflection X-Ray Fluorescence Analysis), X 線分析の進歩 (Adv. X-Ray.Chem. Annual.,Japan),48, (2017) 111-116 山口敏朗、石井慶造、松山成男、寺川貴樹、新井宏受、大沼透、荒井宏、田久創大、松山哲生、長谷川晃 (Toshiro YAMAGUCHI, Keizo ISHII, Shigeo MATSUYAMA, Atsuki

TERAKAWA, Hirotugu ARAI, Tohru OHNUMA, Hiromu ARAI, Soudai TAKYU, Tetsuo MATSUYAMA and Akira HASEGAWA), 査読あり

〔学会発表〕(計9件)

Development of High Current Microbeam System, 8th International Symposium on BioPIXE (BioPIXE8), S.Matsuyama, K.Ishii, S.Suzuki, A.Terakawa, M.Fujiwara, S.Koshio, S.Toyama, S.Ito, M.Fujisawa and T.Nagaya 2014年09月14日~2014年09月19日 Bled, Slovenia

ハイカレントマイクロビームシステムの開発、日本原子力学会、松山成男、石井慶造、寺川貴樹、伊藤駿、遠山翔、笠原和人、藤澤政則、佐多大地、永谷隆男、2014年09月08日~2014年09月10日、京都、京都

福島第一原子力発電所事故によって汚染された土壌の結晶分光器による元素の化学状態分析、日本原子力学会、遠山翔、石井慶造、松山成男、寺川貴樹、伊藤駿、笠原和人、2014年09月08日~2014年09月10日、京都、京都

大電流マイクロビームシステムの開発、日本原子力学会、松山成男、石井慶造、寺川貴樹、藤原充啓、遠山翔、伊藤駿、笠原和人、藤澤政則、永谷隆男、佐多大地 2015年03月20日~2015年03月22日 日立、茨城

スライスマップ法による3次元元素分布測定法の開発、第31回PIXEシンポジウム、松山成男、石井慶造、寺川貴樹、藤原充啓、鈴木脩平、佐多大地、関大輝、畠山泰輔、今泉光太、2015年10月28日~2015年10月30日、群馬、高崎、日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所

東北大学ダイナミトロン加速器用電圧制御システムの開発、第28回タンデム

加速器及びその周辺技術の研究会、松山成男、藤澤政則、三輪美沙子、永谷隆男、石井慶造  
2015 年 07 月 03 日 ~ 2015 年 07 月 04 日  
宮城、仙台、東北大学

東北大学マイクロビームシステムの現状、第 29 回タンデム加速器及びその周辺技術の研究会、松山成男、藤澤政則、永谷隆男、三輪美沙子、2016 年 06 月 30 日 ~ 2016 年 07 月 01 日、つくば市、筑波大学 大会館

スライスマップ法による 3 次元元素分布システムの開発 (II)、松山成男、石井慶造、寺川貴樹、藤原充啓、鈴木脩平、佐多大地、関大輝、畠山泰輔、今泉光太、第 32 回 PIXE シンポジウム、2016 年 11 月 09 日 ~ 2016 年 11 月 11 日、函館市、サン・リフレ函館

ウェーブガイドを用いた 3 次元元素分布測定法の開発、日本原子力学会 2017 春の年会、松山成男、植木裕、鈴木脩平、畠山泰輔、今泉光太、藤原充啓、寺川貴樹  
2017 年 03 月 27 日 ~ 2017 年 03 月 29 日、平塚市、東海大学 湘南キャンパス

## 6 . 研究組織

### (1)研究代表者

松山 成男 ( Matsuyama, Shigeo ) , 東北大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号 : 70219525

### (2)研究分担者

寺川 貴樹 ( Terakawa, Atsuki ) , 東北大学・大学院工学研究科・教授 研究者番号 :

10250854