

GENERATION OF HIGH ENERGY PARAMETRIC X-RAYS USING Si(220) CRYSTAL AS A TARGET

Yasushi Hayakawa*^{A)}, Ken Hayakawa^{A)}, Manabu Inagaki,^{A)} Takao Kuwada^{A)}, Keisuke Nakao^{A)}, Kyoko Nogami^{A)}, Toshiro Sakae^{B)}, Takeshi Sakai^{A)}, Isamu Sato^{A)}, Yumiko Takahashi^{A)}, Toshinari Tanaka^{A)}

^{A)}Laboratory for Electron Beam Research and Application (LEBRA), Nihon University, Narashinodai 7-24-1, Funabashi, 274-8501

^{B)}School of Dentistry at Matsudo, Nihon University, Matsudo, 271-8587, Japan

Abstract

Si(111) target crystals have been used to generate parametric X-ray radiation (PXR) since its commissioning in 2004 at the Laboratory for Electron Beam Research and Application (LEBRA) of Nihon University. Due to the range of the Bragg angles from 5.5 to 30 degrees which the PXR generator system covers, the fundamental energies of the available X-rays were lower than approximately 20 keV. Since a higher X-ray energy is more preferable for research on medical application, the target crystal was replaced with a Si(220) one. Thus, the maximum X-ray energy of the LEBRA PXR source was increased up to 34 keV, and the imaging experiments have actually been performed using monochromatic X-rays from 20 to 34 keV, which have advantages in investigating hard tissues such as bones.

Si(220) ターゲットによるパラメトリック X 線源の高エネルギー化

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、相対論的荷電粒子と結晶媒質との相互作用によって発生するパラメトリック X 線放射 (PXR: parametric X-ray radiation) を利用した X 線源の研究開発を進め、125 MeV 電子リニアックによって、エネルギー可変なコヒーレント X 線源を実現した^[1]。その高度応用として、エネルギー分散型 X 線吸収微細構造 (XAFS: X-ray absorption fine structure) 分析や回折強調型位相コントラストイメージング (DEI: diffraction enhanced imaging) などにも取り組んできたが、このような単色性やコヒーレンスに厳しい要求がなされる応用を実施するには、ターゲット結晶として完全性の高い単結晶を用いる必要がある^[2,3,4]。品質の良い完全結晶が手に入りやすいこともあり、日大 LEBRA ではターゲット結晶としてシリコン単結晶を採用しているが、結晶面としては理論的に PXR 強度がもっとも期待できる (111) 面を使用してきた。この場合、LEBRA-PXR システムでカバーできる PXR のエネルギー範囲は 4 ~ 20 keV となる^[5]。

100MeV 程度の電子エネルギーで実現できるエネルギー可変単色 X 線源としては高エネルギー (短波長) を実現しているといえるものの、医療への応用を考えると 30 keV 以上の X 線エネルギーの実現が望まれる。PXR の場合、そのエネルギーは入射電子には依存せず、ターゲットとなる結晶の面間隔と Bragg 角 (結晶面と電子の速度のなす角) で決まるため、結晶を面間隔の小さいものにすれば同じ Bragg 角でエネルギーの高い X 線が得られる。面間隔を小さい結晶面を得るのに格子間隔の小さなダイヤモンド単結晶を

用いることも考えられるが、LEBRA-PXR システムではターゲットと同じ結晶面をもつ第 2 結晶による回折を用いて PXR ビームの輸送を行っているため、ダイヤモンドの場合は PXR ビーム全体を反射するのに十分なサイズの単結晶の入手が問題となる。従って、これまで用いてきたのと同じシリコン単結晶においてより面間隔の小さい Si(220) 面を用い、試験することにした。LEBRA のシステムでは Si(220) ターゲットで最大 34 keV の PXR エネルギーが可能となる。これで X 線医療イメージングで造影剤によく用いられるヨウ素の K 吸収端エネルギー (33.2 keV) をカバーするようになり、血管造影などの医療応用を意識した基礎研究が可能となる。この Si(220) 面による PXR の高エネルギー化の試験結果について報告する。

2. 20 keV 以上の領域での PXR 実験

基礎実験としては、20 keV 以上の PXR の観測は様々な加速器機関で実施されてきた。PXR はその実験研究の当初より、そのエネルギー選択可能な単色性という特性から、将来的に可能な応用として医療応用が挙げられてきたこともあり、血管造影に有用な 33 keV 周辺の PXR の発生を試みる実験がしばしばなされてはいた。しかしながら、主に行われたのは半導体検出器のようなもので光子カウンティング測定を行い、エネルギースペクトルや放射強度の角度分布を取得する実験であった^[6]。しかも実際に観測された PXR で、エネルギーの高いものは高次反射によって発生した場合が多く、基本波で 30 keV 以上となった例は比較的少ない。これには高エネルギーの基本波を得るためには Bragg 角を 50 mrad 程度にする必要があるため、特に電子エネルギーが数 10 MeV 以下の場合は前方に放射される制動放射がバックグラウンドとして被って分離が難しくなるという事情

* E-mail: yahayak@lebra.nihon-u.ac.jp

もある。

また、PXRを用いたイメージング実験は、LEBRA以外ではレンセラー工科大(米国)やマインツ大(ドイツ)で実施されているが、X線エネルギー領域は15 keV 周辺である^[7,8]。レンセラー工科大の場合、ターゲット結晶に回折幅が比較的広いLiF(220)面を用いていたため、16.6 keVの基本波に加えて(440)面による33.2 keVのPXRが含まれてはいたが、イメージへの寄与は基本波が主であった。従って、20 keV以上の領域でのPXRイメージング実験は実質的にはまだ実施されていない状況であった。

3. Si(220)面で得られるPXRの特性

シリコン単結晶の場合、禁制則を考慮すると(111)面の次に低次の結晶面は(220)面である。LEBRA-PXRシステムで対応可能なBragg角の最小値はおよそ5.5°であるので、(220)面で発生可能なPXRの最大エネルギーは約34keVとなる。表1に、LEBRA-PXRシステムの仕様と、Si(111)およびSi(220)をターゲットに用いた場合のPXRエネルギー範囲を示す。

一般に、ターゲットとして同じ結晶物質を用いる場合、高次の結晶面を利用すると発生するPXRのエネルギーが高くなる反面、光子フラックスは低下することになる。これは主に原子散乱因子が小さくなることに起因するが、温度因子の影響も相対的に強まり、原子の熱振動による強度の低下も生じる。また、LEBRA-PXRでは第2結晶での回折によりPXRビームを輸送しているため、X線エネルギーが高くなると第2結晶における回折幅が狭くなり、PXRビームの輸送効率が悪化する可能性がある。これらを含め、完全結晶2結晶システムにより得られるPXR強度の理論計算を行った。図1はターゲット結晶のBragg角が5.5°の場合のPXR強度を第2結晶回折曲線として表したものである。Si(220)による33 keVのPXR強度は、同じBragg角で得られるSi(111)による20 keVの強度に比べ一桁近く弱くなる。しかしながら、同じPXRエネルギーで比較した場合、図2に示すようにSi(220)の強度はSi(111)での強度の半分程度になる。LEBRA-PXRでは設計仕様上、Bragg角を5.5°より小さくすることはできないという事情もあるが、Bragg角が小さくなるとバックグラウンドとなる制動放射と完全に分離することが難しくなるという点も考えると、シリコン単結晶で30 keV領域のPXR

表 1: LEBRA-PXR システムの仕様

電子エネルギー	100 MeV
マクロパルスビーム電流	< 120 mA
マクロパルス幅	5 μ s
繰り返し	2~5 Hz
平均電流	1~5 μ A
Bragg 角	5.5 ~ 30°
PXR エネルギー	
Si(111)	4~20 keV
Si(220)	6.5~34 keV

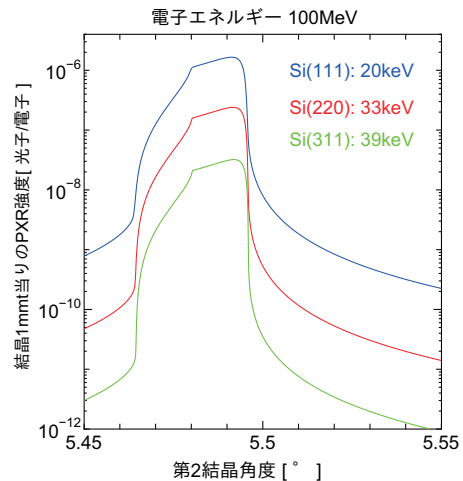


図 1: ターゲット結晶 Bragg 角 5.5° の場合の、第 2 結晶での回折曲線。

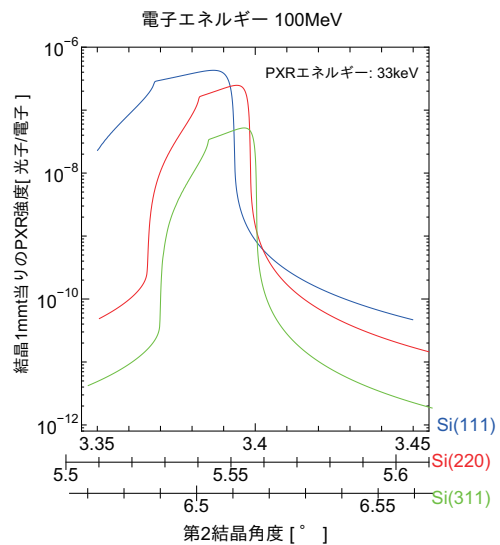


図 2: PXR エネルギーが 33 keV の場合の、第 2 結晶での回折曲線。

の基本波エネルギーを実現するには、強度や必要な Bragg 角のバランスを考慮すると(220)面を利用するのが現実的であるといえる。

4. Si(220) ターゲットを用いた実験

実際に、Si(220)面をターゲットおよびPXRビーム輸送用第2結晶に用いた実験を開始した。結晶としては、(220)面に関してカット面が対称(方位精度 $\pm 1^\circ$)となっている直径76 mmのFZ-Siウェハを用いた。ウェハの厚さは、ターゲット結晶が0.2 mm、第2結晶が5 mmである。結晶面以外は、2004年にLEBRA-PXRの運用を開始してから2006年まで使用したSi(111)結晶と同じ仕様である。LEBRAでは非対称カットを施した(111)面を使用してPXR強度の増強を実施したが、今回の(220)面の実験は試験的な意味合いが強いこともあり、まずは対称結晶による実験を実施することにした^[9]。

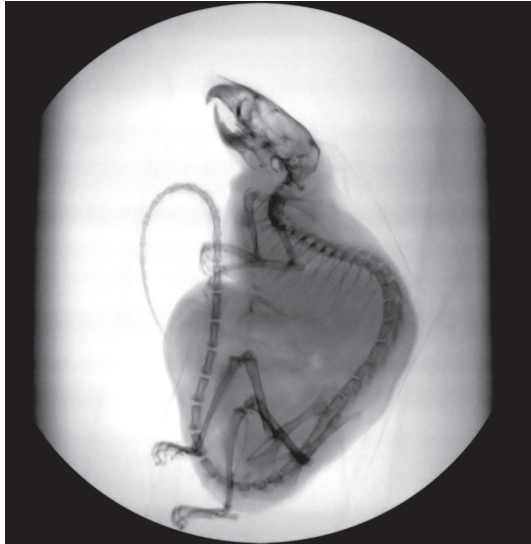


図 3: イメージングプレートを用いた、25.5 keV でのマウスの X 線吸収像。(電子ビーム平均電流: 1 μ A, 撮像時間: 15 分)

ここで問題となったのが、PXR のエネルギー較正の方法である。(111) 面の場合はポラロイドフィルムで PXR ビームを撮像し、乳剤に含まれる臭素の K 吸収端 (13.5 keV) を基準として較正を行っていたが、今回の (220) 面の実験の目的は 20 keV 以上の領域での応用の実施にあるので、25 keV 周辺で較正するのが望ましい^[10]。銀の K 吸収端が 25.5 keV であるので、当初は同様にポラロイドフィルムの乳剤を用いることを試みたが、検出効率が悪く所要時間が現実的では無かった。結局、銀の薄膜をイメージングプレート (IP) で撮像し、そこに現れる吸収端を基準として較正することにした。

このようにして、実際に PXR エネルギー 20~34 keV の領域での実験を開始し、主に X 線吸収イメージングを行った。図 3 はその典型的な例で、エネルギー 25.5 keV でのマウスの X 線像である。このエネルギーは管電圧 50 kV の X 線管で発生する X 線の実効エネルギーにほぼ等しく、小動物の骨格を観測するのに十分な透過力が得られていることがわかる。強度に関しては、必要な撮像時間は 5~15 分程度で、Si(111) 対称結晶を用いた場合に比べて 1/2 から同程度であると思われる。

5. ヨウ素 K 吸収端付近でのイメージング

単色 X 線の医療応用の可能性として、吸収端を利用してコントラストを向上させる血管造影がよく取り上げられる。レーザーコンプトン散乱による X 線源開発などでも、このような応用を目標の一つとして掲げていることが多い^[11]。PXR の研究においても将来的な応用の可能性として、血管造影が候補に挙げられてはいたが、実際に造影剤によく用いられるヨウ素の K 吸収端を利用したイメージングは行われてこなかった。そこで実際に中心エネルギーをヨウ素 K 吸収端 33.2 keV に調節して、造影剤として実

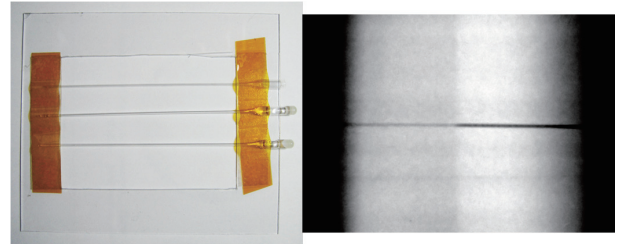


図 4: 中心エネルギー 33.2 keV での撮像。サンプルはガラスキャピラリーに入れられ、上から空気、KI 水溶液、水である。

際によく用いられているヨウ化カリウム (KI) 水溶液の撮像を行った。その結果を図 4 に示す。サンプルはガラスキャピラリーに封入され、比較のために空気と水が入ったものと同時に測定した。X 線イメージセンサーとしては、このエネルギー領域である程度の検出効率を持つ、蛍光体層の厚い低解像度タイプの IP を用いた。PXR ビームには水平方向に線形なエネルギー分散があるため、ビームの中心でヨウ素の K 吸収端エネルギーを跨ぐことになる。この特性を利用して、KI 水溶液のヨウ素吸収端前後での X 線吸収の変化を観測した。ここで、IP の蛍光体にもヨウ素が使われているため、図 4 の右図でわかるように、K 吸収端のところで IP 自体の検出効率が変化してしまうという問題がある。これは KI 水溶液の吸収の変化を相殺する効果があるが、幸いそれほど強いものではなく、明確に造影剤の X 線吸収がヨウ素 K 吸収端で変化し、コントラストが強調されるのを確認することができた。今後は実際の生体組織で造影剤を注入して固定したものなどをサンプルとして試していく予定である。

6. 回折強調イメージング (DEI)

PXR の大きな特徴として、空間コヒーレントな X 線源であり位相コントラストイメージングに適していることが挙げられる^[12, 13]。伝搬法によるエッジ強調も可能であるが、X 線エネルギーが高くなると透過力が増す反面、屈折角が小さくなり、コントラストの強調効果を得るのに必要な伝搬距離が長くなる。そのため実際の測定においてはスペースの問題が生じるようになる。それに対し、図 5 に示すように、X 線の屈折を検出するアナライザーとして 3 番目の結晶を用いる回折強調型の位相コントラストイメージング (diffraction-enhanced imaging: DEI) では、X 線エネルギーが高くなっても伝搬距離を長くする必要は無く、アナライザーでの回折幅が狭くなるため、より小さな屈折を敏感に検出することができる^[14]。

これまでの LEBRA における DEI 実験では、用いた X 線エネルギーの最大は 18 keV であった。今回の Si(220) ターゲットの試験に際し、20 keV 以上の領域での DEI 測定を試みた。図 6 は、PXR エネルギー 21 keV での DEI 実験の結果の例である。吸収されにくく被曝線量が少ない高エネルギー X 線を用いて、軽元素からなる軟組織のイメージを取得するのは、DEI を含む位相コントラストイメージングの主要な動機

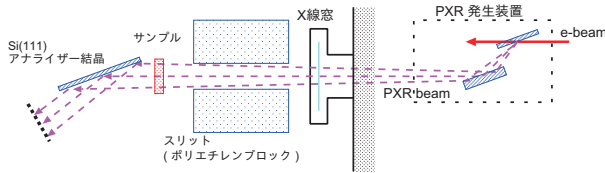


図 5: 典型的な DEI の実験セットアップ。

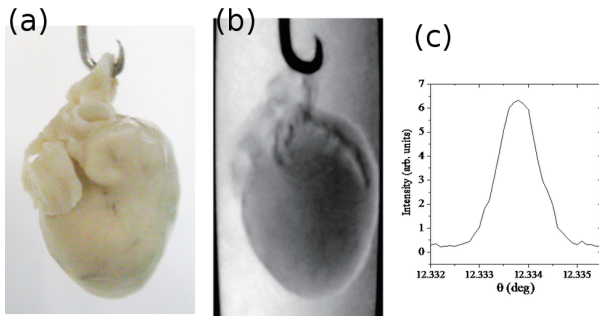


図 6: マウスの心臓 (a) をサンプルとした、21 keV での DEI 測定の例。(b): DEI の測定結果; (c): アナライザー結晶での回折曲線。

の一つであるから、20 keV 以上のエネルギー領域で PXR による DEI の実現したことは、近い将来の医療応用に明るい見通しをもたらしたといえる。しかしながら、エネルギーが高くなると DEI 測定においてアナライザー結晶での回折曲線が図 6(c) のように狭くなり、半値幅が 0.001° 以下になってくる。狭い回折幅は位相感度が良くなる反面、加速器の安定性に関しては要求が厳しくなる。今回の実験も画像の蓄積中に PXR の状態が変動しており、その影響で位相像の劣化が生じているものと思われる。高エネルギー領域で高精度の DEI 測定を行うには、今後も冷却系や電源などの信頼性を高めるなど、リニアックのさらなる安定化に努める必要がある。

7. まとめ

PXR の放射源となるターゲット結晶を Si(220) にすることで、LEBRA-PXR においてこれまで範囲外であった 20~34 keV の領域の X 線の発生が可能であることが確認できた。特に、医療応用に直接繋がる 34 keV 領域での X 線イメージングを行い、PXR では初めてヨウ素 K 吸収端でコントラストが強調された像取得に成功した。また、20 keV 以上の領域での DEI 測定にも成功した。

得られる X 線強度に関しては、撮像時間から類推すると、Si(111) 対称結晶の場合と同等かやや劣る程度と思われるが、Si(111) の場合と同様に、ターゲットに非対称カットを施した結晶を用いることにより高強度化ができる可能性がある。今後の Si(220) を用いた研究では、非対称カットによる高強度化が主要な課題の一つとなる。

Acknowledgments

本研究の一部は科研費 (課題番号: 21560055, 21686088) および日本大学学術助成金 (総 09-024) の助成を受けて行われた。

参考文献

- [1] Y. Hayakawa et al., Nucl. Instr. and Meth. B 252 (2006) 102.
- [2] Y. Hayakawa et al., Proceedings of SPIE Vol. 6634 (2007), 663411 (DOI: 10.1117/12.741898).
- [3] Y. Hayakawa et al., Nucl. Instr. and Meth. B 266 (2008) 3758, (DOI: 10.1016/j.nimb.2008.02.042).
- [4] M. INAGAKI, et al., Jpn. J. Appl. Phys. 47 (2008) 8081.
- [5] Y. Hayakawa, I. Sato, K. Hayakawa, T. Tanaka, Nucl. Instr. and Meth. B 227 (2005) 32.
- [6] S. Asano, et al., Phys. Rev. Lett. 70 (1993) 3247.
- [7] B. Sones, Y. Danon, R. C. Block, Nucl. Instr. and Meth. A 560 (2006) 589.
- [8] B. Backe, et al., Proc. Int. Symp. on Channelling - Bent Crystals - Radiation Processes (J. W. GoetheUniversity, Frankfurt am Main 2003) 41.
- [9] Y. Hayakawa et al., 第 5 回日本加速器学会年会・第 33 回リニアック技術研究会 (2008) 69.
- [10] Y. Hayakawa et al., 第 1 回日本加速器学会年会・第 29 回リニアック技術研究会 (2004) 60.
- [11] F. Carroll, J. Cellular Biochem. 90 (2003) 502.
- [12] T. Sakai, 非破壊検査第 57 号 6 号 (2008) 282.
- [13] Y. Takahashi et al., X 線分析の進歩 40 (2009) 269.
- [14] R. Fitzgerald, Phys. Today 53 (2000) 23.