〔実験室〕

X線散乱ラジオグラフィ

九州工業大学・工学部 近 浦 吉 則

1. はじめに

材料工学の立場から、X線回折トポグラフィの実験をしていて実感することの一つは、試料に要求される結晶完全性の条件が極めて厳しいということである。シリコンに代表される半導体材料等の分野を除けば、実用材料のほとんどがトポグラフィの観察対象になりえない。同じく画像をとる光学顕微鏡や電子顕微鏡の対象の広がりと比較すれば、トポグラフィの狭さはきわ立った特徴といえてよい。

しかし、X線で“物”を見る方法には、トポグラフィのほかに、いわゆる吸収ラジオグラフィがある。トポグラフィは完全に近い結晶の二次構造分布を検出するのに対し、吸収ラジオグラフィは一般の物質の組織分布を明らかにし、工業材料の非破壊検査や臨床医学検査に広く利用されている。この方法の試料に対する制限は、その厚さ(X線の透過率)に関する以外は、ほとんどない。しかし、これでは材料の結晶構造分布を観察することは出来ない。

そこで、著者らは吸収ラジオグラフィ程度に広範な実用材料を観察対象として、物質の結晶構造分布も観察出来る方法を提案した。散乱X線(回折を含む)を利用するので、散乱ラジオグラフィと称した。開発はなお中途ではあるが、散乱ラジオグラフィはこの方向に沿うものと思っている。

以下、その原理および装置の概要を述べ観察例を紹介する。

2. 原理および装置

本法の原理は、物質(試料または被検体)から

Yoshinori CHIKURA: X-Ray Scattering Radiography.

出る散乱(回折を含む)X線を利用して、物質の一点と画像上の一点との対応をつけ、散乱強度分布像を得ることに集約される³⁾。この1:1の対応をつける方法として、いくつか考えられる。実際に試作と観察を行った方法のみを記すと、クロス・ソーラ・スリット法³⁾、ダイヤフラム法⁴⁾、の平行ソーラ・スリット法⁵⁾、結晶コリメータ・スリット法⁶⁾、ソーラ・スリット振動法⁷⁾、X-Y走査法^{8,9)}、二結晶二次元コリメータ法¹⁰⁾、がある。このうち、第1図のダイヤフラム法は、著者らの研究とは独立に、ミュンヘン大学のBorn教授らが提案した方法で、彼らはこれをテクスチュア・トポグラフィ(texture topography)と呼んでいる。この方法は、利用する散乱線の角度幅が大きくなること、広い視野を観察するには試料と乾板は互いに逆向きの走査機構が必要である、等の難点はあるが、狭い視野の散乱ラジオグラフィであれば簡単にとれる特徴がある。

他の方法も一長一短があるが、回折線(回折角および方位角)の角度分解能の高いソー

第1図 ダイヤフラム法。DP:ピンホール, SX:点状X線源。実線および点線の矢印は試料SPフィルムFの互いに逆向きの二次元走査を行う。

第4図 工業用アルミニウム圧延板の円孔欠から発生した塑性歪のX線散乱ラジオグラフ、スケール：2mm

第6図 竹材中のセルロースⅠ結晶の分布を示す散乱ラジオグラフ。像は、竹材の軸に垂直に切断した薄板を観察したものである。スケール：2mm

第2図 コンピュータ制御 X-Y 走査法。C₁ および C₂：ペンシルビーム X 線をつくるピンホール，S₁ および S₂：円錐スリット，DT：検出器，AM：増幅器，PHA：波高分析器，CC：パルス計数器，A/D：計数率アナログ出力のデジタル・コンバータ，I/O：インターフェイス，DU：パルスモータ駆動装置，FDU：フロッピー・ディスク

第3図 二結晶二次元コリメータ法。SX：シンクロトロン放射光，M：モノクロメータ，C₁ および C₂：二次元コリメータ，BS：ビーム・ストッパー

ラ・スリット振動法と第2図の X-Y 走査法は利用性が高い。特に後者の方法では、コンピュータによる制御および画像のコンピュータ処理が可能である点で優れている。同装置のコンピュータ・システムの概要については、原論文⁷⁾にゆづり、ここでは割愛する。第3図の二結晶二次元コリメータ法はシンクロトロン放射光の様に、大きな空

間束をもつ平行ビームの X 線を用いるものである。

3. 観察例

この節で示す観察例は、X-Y 走査法による散乱ラジオグラフで、コンピュータによる16段階の濃淡出力像である。用いた X 線は MoK α 特性線、40KV/20mA (Zr フィルター) である。一枚の画像を撮影するに要する所要時間は約3時間である。

3.1 塑性歪の不均一分布⁹⁾

塑性歪が不均一に分布する場合の一つが、切欠を有する材料に応力を加えた場合である。切欠部の応力集中により切欠周辺には不均一な塑性歪が発生する。

工業用アルミニウム圧延板に 4mm の円孔をつくり、圧延方向に 0.1% の塑性歪を与えた。第4図はデバイ・シェラー回折線の 111 反射による散乱ラジオグラフである。円孔切欠から延びた塑性歪の分布が検出されている。このような塑性歪分布は通常の吸収ラジオグラフィでは、ほとんど観察できない。

3.2 竹材中のセルロースの分布¹⁰⁾

竹材の回折曲線は、第5図のように、セルロース I の結晶によるピークが生じる。101 と 10 $\bar{1}$ 反射の分離は明確ではない。(002) 反射による散乱

第5図 竹材のセルロースによる回折強度曲線。2θ が 7.3° にある第一のピークはセルロースⅠの(101)と(10 $\bar{1}$)反射によるものである。両者はほとんど分離されない。第二のピーク(2θ:10.5°)は(002)反射による

ラジオグラフを第6図に示す。セルロースⅠ結晶が、軸に平行な繊維状に形成されていることがわかる。この散乱ラジオグラフは、竹材中の結晶化領域の分布と結晶化度を明らかにした。

4. 考察——散乱ラジオグラフィ、回折トポグラフィおよび吸収ラジオグラフィの比較

吸収ラジオグラフィでは、X線の試料各部における全吸収の相対分布を二次元投影する。この全吸収の程度は、質量吸収係数 $\frac{\mu}{\rho}$ (μ :線吸収係数, ρ :密度)よって決まり、これは

$$\frac{\mu}{\rho} = \left(\frac{\tau}{\rho} \right)_{\text{incoh}} + \left(\frac{\sigma}{\rho} \right)_{\text{coh}} \quad (1)$$

$\left(\frac{\tau}{\rho} \right)_{\text{incoh}}$: 真の質量吸収係数で、非干渉性のコンプトン散乱および光電効果による。

$\left(\frac{\sigma}{\rho} \right)_{\text{coh}}$: 回折、散漫散乱等の干渉性散乱による質量吸収係数

と表される。第一項は光電効果とコンプトン効果による吸収であり、第二項は干渉性散乱によるみかけの吸収をさす。したがって、吸収ラジオグラフィ像のもつ意味は、基本的には、複雑である。第二項 $\frac{\sigma}{\rho}$ が無視でき、かつ単色X線を用い元素の吸収端を利用する場合に限り、その像は当該元素の相対的密度分布を近似的に表すことができる。第二項は、試料中の結晶構造や分子構造を反映する因子であるが、一般に吸収ラジオグラフィ像の読影を難しくする望ましくない因子となっている。

また、この第二項が、第一項を圧倒的に凌駕することは一般的にはありえないので、この方法では物質中の結晶構造分布の情報を得ることは期待できない。

回折トポグラフィは、式(1)との関連でいえば、第二項の干渉性散乱による像であるが、このとき試料からの回折線は高度に平行であることを前提としている。この前提のもとに、ラング法、ボルマン法、二結晶法等、各種の回折トポグラフィの技術が考案されてきた、といっていよい。用いる試料は、転位密度の低い単結晶でなければならず、利用できる散乱X線は、その様な試料に平行X線束を入射させたときのブラッグ回折線しかありえない。他の散乱線によるトポグラフは、空間分解能の一様性の観点から、ほとんど画像としての意味を失なう。

著者が提案している散乱ラジオグラフィでは、散乱X線を利用して、試料と画像との間に1対1の対応をつける。(1)式において、第二項を第一項から分離して画像記録する。第一項 $\frac{\tau}{\rho}$ にあたる蛍光X線のみをエネルギー分析して取り出せば、その像の濃淡は試料中の元素分布を意味する。第二項 $\frac{\sigma}{\rho}$ については、デバイ・シェラー回折線のような、干渉性散乱のみによる像であれば、その散乱ラジオグラフは取りこんだX線の散乱に寄与する結晶構造の分布を意味することになる。空間分解能は、入射X線と露出時間とのかね合いで決まるので、回折トポグラフィ程度($\sim \mu\text{m}$)の分解能は達成可能である。

5. 結 び

散乱ラジオグラフィはトモグラフィの機能をもたせることができ、それをX線散乱トモグラフィと称した¹¹⁾。これは、X線の透過能の観点から、生物の分野で興味ある対象が多い。本論文では、これについては割愛した。ここで紹介した観察例は費用の都合で濃淡画像のみであるが、散乱X線強度をカラーで表わすと、画像は細部で極めて鮮明になる。カラー画像の観察例は原著論文^{7,9)}を参照していただきたい。以下、X線による画像観察法の特徴を整理して結びにかえる。

〔吸収ラジオグラフィ〕

(試料): 生物体, 多結晶の工業材料

(特徴): 吸収率の相対的分布を観察する。臨床お

よび工業材料非破壊検査で広く利用されている。しかし、厳密には像の解釈に任意性があり、また結晶構造の分布に関する情報は得られない。

〔回折トポグラフィ〕

(試料)：低転位密度の単結晶

(特徴)：転位、微小格子歪等、結晶二次構造の分布や結晶内のX線波動場が観察される。

〔散乱ラジオグラフィ〕

(試料)：生物体、多結晶の工業材料、高転位密度の単結晶、鉱物

(特徴)：利用する干渉性散乱X線に対応する結晶構造の分布や残留応力の分布が得られる。

謝辞

散乱ラジオグラフィの開発は、10年程前に、前九州大学助教授故米田泰治先生のもとで着手したものであります。道なかばに逝去された先生のご冥福を祈り、本論文を捧げます。

文 献

- 1) Y. Chikaura and Y. Yoneda : KEK-79-34(1979) p. 85, Proceeding of the Plan Meeting on X-Ray Instrumentation for

Photon Factory, Tsukuba 1979 ; ed. by M. Ando and A. Amemiya, National Laboratory for High-Energy Physics, Japan.

- 2) Y. Chikaura, Y. Yoneda and G. Hildebrandt : J. Appl. Cryst. **15**, 48 (1982).
- 3) Y. Yoneda and Y. Chikaura : Z. Naturforsch. **37 a**, 412 (1982).
- 4) E. Born and H. Schwarzbauer : Kristall und Technik **15**, 837 (1980)
- 5) 近浦吉則, 城井英樹, 玉城 進 : 応用物理 **54**, 1101 (1985).
- 6) 近浦吉則, 浅田良治, 松下吉宏, 上松弘明 : 応用物理 **54**, 159 (1985).
- 7) 近浦吉則, 白石 裕, 小川 透, 上松弘明 : 応用物理 **55**, 983 (1986).
- 8) Y. Chikaura, H. Kii, H. Kawada and S. Spieker : Photon Factory Activity Report (1983/84) VI-157. ed. by National Laboratory for High Energy Physics, Japan
- 9) 近浦吉則 : 日本金属学会会報 **25**, 765 (1986).
- 10) 近浦吉則 : 未発表
- 11) Y. Yoneda and Y. Chikaura : Japan. J. Appl. Phys. **21**, 31 (1982).