特集 —— コヒーレント放射光を利用した新しい高圧研究へ向けて ——

回折格子を利用した高感度 X 線結像顕微鏡

High-Sensitive X-Ray Imaging Microscopes with Transmission Gratings

矢代 航*

Wataru YASHIRO*

百生 敦

Atsushi MOMOSE

X-ray microscopy is one of promising candidates to non-destructively visualize internal structures in samples under extreme environments. We have developed a high-sensitive X-ray imaging microscope consisting of an objective lens and a transmission grating. The microscope is based on the Talbot effect of the grating and works simply by appending the grating to an X-ray imaging microscope. Our approach has several advantages over the Zernike X-ray phase-contrast microscopy that has been widely used, and can provide a powerful way of quantitative visualization with a high spatial resolution and a high sensitivity even for relatively thick samples.

[X-ray imaging, X-ray microscopy, grating, interferometry, Talbot effect]

1. はじめに

高圧をはじめとする極限環境下においては、多くの場合、試料の周囲の障害物によって試料の直接観察が妨げられる。特に、可視光の波長よりも小さいスケールの実空間分布を観察するのは容易ではない。硬 X 線顕微鏡は、不透明な厚い物体の内部を非破壊で観察できるという特長を有しており、最近の X 線集光・結像素子の性能向上により、すでに数十ナノメートルの空間分解能も実現されている（回折顕微法も含めれば数ナノメートル）。極限環境下の試料の内部を詳細に観察するツールとしては最適であろう。

硬 X 線顕微鏡に限らず、一般に X 線イメージングによって物体の内部を観察する場合、観察したい対象とその目的によって、適切な実験方法および実験配置を選択する必要がある。例えば、視野の大きさ、定量性の有無、空間分解能、密度分解能、時間分解能、さらには二次元の投影画像で十分か（三次元情報が必要か）などといったことが実験計画を立てるときの検討項目となる。X 線イメージングにおいては、さらに X 線のエネルギー、被写体へのダメージ、元素選択性の有無などについても考慮す

る必要がある。

高圧力下の試料への応用を考えた場合、冒頭で述べたように、硬 X 線のエネルギー領域の X 線の利用が通常は不可欠である。視野については、医療診断のときのような大視野は必要なく、数ミリメートル以下で十分な場合が多いが、空間分解能、密度分解能、さらにはダイナミクスの研究への応用を考えると、時間分解能が高いほど、特色あるものとなる。これらの三つの分解能の間には、一般にトレードオフの関係があり、例えば空間分解能を上げるためには、長時間の測定が必要といった問題が生じる。そこで、いかに感度を上げるかが重要になってくる。すなわち、感度が上がれば、例えば空間分解能をそのままにして、密度分解能、時間分解能のいずれか、あるいはその両方を同時に高めることができる。

感度の問題に着目すると、レントゲン写真でよく知られているように、従来から広く使われている硬 X 線イメージングにおいては、試料による X 線の吸収がコントラスト形成に利用されてきた。しかしながら、1990 年代半ばになって、試料による X 線の位相のシフトを利用することで感度を飛躍的に向上する、いわゆる X 線位相イメージングと呼ばれる方法が大きなブレイクスルーをもたらした[1-3]。

〒980-8577 仙台市青葉区片平 2-1-1 東北大学 多元物質科学研究所

Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials (IMRAM), Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai 980-8577

* Electronic address: wyashiro@tagen.tohoku.ac.jp

硬 X 線領域においては、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（軽元素に対しては三桁）大きいことが知られている。したがって X 線の位相シフトを計測すれば、原理的に数桁の感度の向上が実現できる。当初は第三世代の高輝度シンクロトロン放射光源を用いた実験が主流であったが、2000 年代に入って、回折格子を用いた新しいタイプの干渉計が世界的に注目されるようになった[4–13]。この方法では、連続 X 線および球面波が利用できるため、実験室 X 線源を利用した医療診断機器の研究・開発が世界各国で進められている。その一方で、白色放射光を利用した高速 X 線位相イメージング[14,15]や、あるいは、X 線レンズを利用した結像型 X 線顕微鏡[16–20]への応用も展開されている。

本稿では、我々が現在開発を進めている、回折格子を利用した新しいタイプの結像型 X 線位相顕微鏡について紹介する[17–20]。この方法は、一枚の位相型回折格子を光学系に加えるだけで、視野や空間分解能に影響することなく、感度を飛躍的に向上させることができる。また同様に高感度の X 線顕微鏡として知られている Zernike 型 X 線位相差顕微鏡と比べても、位相シフトが $\pi/2$ を超えるような位相物体に対しても定量測定が可能、ハローのような Zernike 型特有のアーティファクトが生じないなど、これまで提案されてきた方法にはない多くの特長を有しており、将来有望な方法の一つである。

2. X 線 Talbot 干渉計

まず、回折格子を用いた X 線位相イメージングについて理解していただくために、X 線 Talbot 干渉計について紹介しよう。X 線 Talbot 干渉計は、可視光のために開発された Talbot 干渉計の原理に基づいている[21,22]。光学系はシンプルで、光源、二枚の透過型回折格子、画像検出器から構成される (Fig. 1)。Talbot 干渉計では Talbot 効果[23,24]を利用する。Talbot 効果は 1836 年にイギリスの H.F. Talbot によって発見された現象で、空間的にコヒーレントな光が回折格子のような周期的な物体を透過すると、その下流の特定の距離に、その物体の像が生じる現象である。この像は自己像と呼ばれている。自己像は周期的な物体による Fresnel 回折の結果生じる。すなわち、入射光の波長を λ 、物体の周期を d_1 として、 $d_1 \gg \lambda$ と仮定すると、低次の回

Fig. 1. (Color online) Setup of X-ray Talbot interferometer.

折波はほぼ前方方向に生じるが、これらが干渉し合うことによって、物体の自己像が形成される。実際には、周期的な物体の下流には、複雑な回折強度パターン (Fresnel イメージ[25]と呼ばれている) が連続的に生じる。

自己像が生じる距離 Z は、Talbot 次数 p というパラメータを用いて表すと便利である。平面波の場合には、 p は次式により与えられる。

$$Z = p \frac{d_1^2}{\lambda} \quad (1)$$

例えば周期 d_1 の一次元回折格子の場合には、距離 Z が $2d_1^2/\lambda$ の整数倍、すなわち、 p は正の偶数のときに、回折格子透過直後の強度と全く同じ強度パターンが生じる。その半分の p が正の奇数の距離には、半周期分だけずれた強度パターンも生じる。距離 $2d_1^2/\lambda$ は Talbot 距離と呼ばれている。球面波の場合には、 p は次式から求められる。

$$\frac{1}{\frac{1}{R_1} + \frac{1}{Z}} = p \frac{d_1^2}{\lambda} \quad (2)$$

ここで R_1 は光源から回折格子までの距離である。 $R_1 \rightarrow \infty$ の極限 (すなわち平面波とみなせる場合) には $Z = p(d_1^2/\lambda)$ となり、式(1)と一致する。球面波の場合には、自己像が拡大される。自己像の周期 d_2 は

$$d_2 = \frac{R_2}{R_1} d_1 \quad (3)$$

($R_2 \equiv R_1 + Z$) で与えられる。式(2)、(3)から R_1 を消去すると

$$Z = p \frac{d_1 d_2}{\lambda} \quad (4)$$

という便利な式も得られる。

位相型回折格子の場合にも同様に位相格子の像が出現することが知られていて、例えば $\pi/2$ 位相シフトを生じる Ronchi 格子（開口比率が 0.5 の矩形格子）の場合には、 p が $(1/2) + m$ (m は整数) の距離に回折格子と同じ形の矩形強度パターンが生じる (m が偶数のときの像は、奇数のときの像に対して半周期分だけシフトする) [26]。 p が整数でない距離にこのような自己像が生じる現象は分数 Talbot 効果と呼ばれている。

さて、Fig. 1 の X 線 Talbot 干渉計を考えよう。X 線の波長 λ が 0.1 nm オーダー、回折格子 G1 の周期 d_1 が μm オーダーならば、 $d_1 \gg \lambda$ であるため、Talbot 効果によって G1 の自己像が生じる。今、G1 の直前に試料をおくと、試料による位相シフト $\Phi(x, y)$ の変化が緩やかであるとして、回折格子の下流 Z における電場 E は、近似的に

$$E(x, y, z) \propto \sum_n a'_n \exp \left[2\pi i \frac{n}{d_2} (x - Z\varphi_{x_s}(x_s, y_s)) \right] \quad (5)$$

と与えられる。ここで $a'_n \equiv a_n \exp[\pi i p n^2]$ 、 a_n は回折格子の振幅透過率の n 次の Fourier 係数、 φ_{x_s} は試料透過後の x 方向の屈折角分布で

$$\varphi_{x_s}(x_s, y_s) \equiv \frac{\lambda}{2\pi} \frac{\partial \Phi(x_s, y_s)}{\partial x_s} \quad (6)$$

で与えられる。ただし (x_s, y_s) は試料位置で定義される座標系で、 $(x_s, y_s) \equiv ((x/M_{G2-G1}), (y/M_{G2-G1}))$ ($M_{G2-G1} \equiv (R_2/R_1)$) である。強度 I_{self} は式 (4), (5), (6) から、さらに空間コヒーレンス長が有限な場合も考慮に入れて

$$I_{\text{self}}(x, y, z) \propto \sum_n \mu_n b_n \exp \left[2\pi i n \frac{x}{d_2} - i n p d_1 \frac{\partial \Phi(x_s, y_s)}{\partial x_s} \right] \quad (7)$$

と書ける。ここで $b_n \equiv \sum_m a'_{n+m} a'_m^*$ 、 $\mu_n \equiv \mu(n p d_1)$ は G1 上の $n p d_1$ だけ離れた二点間で定義される複素コヒーレンス因子 [27] で、鮮明度の高い自己像が生じるためには空間コヒーレンス長が $p d_1$ より大きくなければならない。なお時間コヒーレンス長については、回折がほとんど前方に生じることから、ほと

んど必要ない。このことは、Wiener-Khinchin の定理により、エネルギーバンド幅の広い連続 X 線でも Talbot 効果が生じることを示している。

式 (7) は、試料による位相シフトの微分 $\partial \Phi(x_s, y_s)/\partial x_s$ によって自己像が変形（像の位相がシフト）することを示している。したがって、自己像の変形を測定してやれば、微分位相像を求めることができる。X 線 Talbot 干渉計では、自己像と同じ周期の吸収格子 G2 を重ねることによってモアレ縞を生成し、その変形を調べることによって、 $\partial \Phi(x_s, y_s)/\partial x_s$ を求める。G1, G2 をそれぞれ光軸 (Fig. 1 の z 軸) のまわりに $-(\theta/2)$ 、 $\theta/2$ だけ回転させたときのモアレ縞の強度は

$$I(x, y) \approx \frac{I_0(x_s, y_s)}{M_{G2-G1}^2} \sum_n \mu_n b_{-n} c_n \exp \left[2\pi i n \frac{x}{d_2} (y\theta + \chi) + i n p d_1 \frac{\partial \Phi(x_s, y_s)}{\partial x_s} \right] \quad (8)$$

で与えられる。ここで $I_0(x_s, y_s)$ は試料透過直後の X 線の強度、 c_n は G2 の強度透過率の n 次の Fourier 係数、 χ は G2 の自己像に対する x 方向の相対位置である。

$\partial \Phi(x_s, y_s)/\partial x_s$ を定量的に求めるには縞走査法という方法がよく使われる [28–30]。もっとも一般的な等間隔ステップの縞走査法においては、二枚の回折格子のうち一枚を、周期の $1/M$ (M は 3 以上の整数) ずつ動かして、複数の画像を取得する。これら M 枚の画像から、次式によりモアレ縞の位相を求める。すなわち

$$I_k(x, y) \approx \frac{I_0(x_s, y_s)}{M_{G2-G1}^2} \sum_n \mu_n b_{-n} c_n \exp \left[2\pi i n \frac{x}{d_2} (y\theta + \chi_k) + i n p d_1 \frac{\partial \Phi(x_s, y_s)}{\partial x_s} \right] \quad (9)$$

ただし $\chi_k \equiv k(d/M)$ ($k=0, \dots, M-1$) とすると

$$p d_1 \frac{\partial \Phi(x_s, y_s)}{\partial x_s} = \arg \left[\sum_k I_k(x, y) \exp \left(-2\pi i \frac{k}{M} \right) \right] \quad (10)$$

により求まる。この式では、厳密には高次の成分による系統誤差が生じるが、 k を適当に選べば、高次成分の寄与を無視できるほど小さくすることができる [31]。このようにして求めたモアレ縞の位相から微分位相像 $\partial \Phi(x_s, y_s)/\partial x_s$ を求めることができる。

Fig. 2. (Color online) Setup of the X-ray imaging microscope combined with X-ray Talbot interferometer (Reprinted figure with permission from [16]. Copyright 2008 by the Japan Society of Applied Physics). The distance Z is defined by $R_2 - R_1$, where R_1 and R_2 are distances of G1 and G2 from the back-focal point (O) of the Fresnel zone plate.

3. 結像型 X 線顕微鏡との組み合わせ

X 線 Talbot 干渉計は球面波でも機能することから、X 線レンズとの組み合わせが可能である。すなわち結像型の X 線顕微鏡を構成することができる。Fig. 2 にその配置を示す。この光学系は、光源、X 線レンズ（ここでは Fresnel ゾーンプレート）、画像検出器、さらに二枚の透過型回折格子から構成されている。二枚の回折格子がなければ、試料による吸収を利用する通常の結像型 X 線顕微鏡になる。よく知られているように、レンズから物面および像面までの距離をそれぞれ a , b とすると、試料の像の倍率 M_g は比 b/a で与えられる。 a , b はレンズの焦点距離 f と $(1/a) + (1/b) = 1/f$ の関係にある。

詳細な計算により[18]、回折格子に対しては、レンズによって生じる光源の像（平面波入射の場合には後側焦点面上の焦点、Fig. 2 の点 O）が仮想的な光源としてふるまう。すなわち、この仮想的な光源から生じる球面波によって Talbot 効果が生じる。今の場合、仮想光源と二枚目の回折格子（G2）の間の距離 R_2 は与えられているから、Talbot 次数 p と、G2 の周期 d_2 を与えることで、一枚目の回折格子（G1）の仮想光源からの距離 R_1 と周期 d_1 が求められることになる。すなわち、式(2)、(3)から得られる式

$$\frac{R_1}{R_2} = \frac{R_2}{R_2 + p \frac{d_2^2}{\lambda}} \quad (11)$$

により R_1 が決まり、式(3)から d_1 が決まる。

モアレ縞の強度は式(8)と同様に

Fig. 3. (a) A differential phase image of polystyrene (PS) spheres and (b) the corresponding absorption contrast image. (c) Line profile along the A-A' line in (a) (Reprinted figure with permission from [16]. Copyright 2008 by the Japan Society of Applied Physics).

Fig. 4. Three-dimensional rendering view of a piece of PS/PMMA polymer blend (Reprinted figure with permission from [16]. Copyright 2008 by the Japan Society of Applied Physics).

$$I(x, y) \approx \frac{I'_0(x'_s, y'_s)}{M_g^2} \sum_n \mu_n b_{-n} c_n \exp \left[2\pi i \frac{n}{d_2} (y\theta + \chi) + i n p \frac{d_2}{M_g} \frac{\partial \Phi(x'_s, y'_s)}{\partial x'_s} \right] \quad (12)$$

と書ける。ここで $I'_0(x'_s, y'_s)$ は物面の試料透過直後の X 線の強度、 (x'_s, y'_s) は物面上の座標で、 $(x'_s, y'_s) \equiv (-x/M_g, -y/M_g)$ である。したがって縞走査法を適用すれば、通常の X 線 Talbot 干渉計と同様に、試料の微分位相像を求めることができ

る。ただし、今の場合には試料の微分位相像が M_g 倍に拡大されることになる。

Fig. 3a にこの顕微鏡で得られた微分位相像の例を示す。試料は直径 $25\ \mu\text{m}$ のポリスチレン球である。Fig. 3b は二枚の回折格子なしで撮影した同じ領域の吸収像であるが、感度が不十分でほとんど何もみえていない。また Fig. 3a の微分位相像は定量的に説明できることが確認された (Fig. 3c)。Fig. 4 はトモグラフィを行った例で、無染色の PS/PMMA ポリマーブレンド試料の屈折率の 1 からのずれの三次元分布を可視化したものである。PS リッチの領域と PMMA リッチの領域がはっきり区別できているのが分かる。このように軽元素を成分とする弱吸収物体に対しても高感度なイメージングが可能であることが示された。

4. 一枚の位相格子を用いた X 線位相差分顕微鏡

X 線 Talbot 干渉計と結像型 X 線顕微鏡を組み合わせた光学系はうまく機能したものの、じつは X 線 Talbot 干渉計では、そもそも回折格子が解像できないことを前提としている。逆に、回折格子の周期が画像検出器の空間分解能と同程度か、それより大きい場合には、得られた画像の解像が困難になってしまうという問題がある。Fig. 5 は解像度テストチャートを撮影したものであるが、吸収像では解像できているパターンが、微分位相像では解像できて

いないのはこのためである。また、X 線 Talbot 干渉計では微分位相像、すなわち波面の傾きの情報が求まるが、拡大率を上げるほど、その傾きは小さくなるため、感度が劣化してしまうという問題もある。

そこで我々は、一枚の位相型回折格子による新しいタイプの結像型 X 線位相顕微鏡を考案した[17–19]。この方法も、X 線 Talbot 干渉計と同様に Talbot 効果を利用したものであるが、空間分解能は原理的に結像レンズの性能のみで決まり、また本質的に位相像（正確には位相差分像）が得られるため、拡大率を上げて X 線 Talbot 干渉計のような感度のロスがない、といった優れた特長がある。また、Zernike 型 X 線位相差顕微鏡が苦手とするような、位相シフトの大きい試料に対しても定量的な位相イメージングが可能であり、特殊な光学素子が不要で、さらにはセットアップが簡便（通常の結像型顕微鏡に一枚の位相格子を加えるだけで実現可能）であるといった多くの長所を合わせもっている。

Fig. 6 に我々が提案した硬 X 線位相顕微鏡の配置を示す。この光学系は一種のシアリング干渉計で、結像レンズ (FZP) の下流に配置された回折格子 (G1) による Talbot 効果が利用される。式 (2), (3) から

$$\frac{R_2}{R_1} = \frac{R_1}{R_1 - p \frac{d_1^2}{\lambda}} \quad (13)$$

である。これを R_1 について解くと

$$R_1 = \frac{R_2}{2} \left(1 \pm \sqrt{1 - \frac{4pd_1^2}{\lambda R_2}} \right) \quad (14)$$

となる。 $(4pd_1^2/\lambda R_2) \ll 1$ のときには、二つの解は近似的に

Fig. 5. Images of a 500 nm-thick Ta test chart: (a) differential phase image and (b) absorption image (Reprinted figure with permission from [16]. Copyright 2008 by the Japan Society of Applied Physics).

Fig. 6. (Color online) Setup of the X-ray phase-difference microscope with a phase grating [17,18].

$$R_1 \approx R_2 - \frac{pd_1^2}{\lambda} \quad (15)$$

$$R_1 \approx \frac{pd_1^2}{\lambda} \quad (16)$$

と与えられる。式(15)の解は、G1が仮想光源（レンズによる光源の像）から十分に離れた位置にあり、G1に入射する波が平面波と近似できる場合に相当する（式(1)に対応）。したがって、このときは $d_2 \approx d_1$ となる。一方で、式(16)の解は、G1が仮想光源のすぐ下流にある場合に相当していて、このとき自己像は大きく拡大される（ $R_2 \gg R_1$ ）。すなわち $d_2 \gg d_1$ となり、この配置にすれば、画像検出器で自己像を直接解像できる。

以下では、この自己像が大きく拡大される解のみに注目する。像面に生じる強度は

$$I(x, y) \approx \frac{I'_0(x'_s, y'_s)}{M_g^2} \sum_{n, m} \mu_n a'_{n+m} a_m^* \exp \times \left[2\pi i \frac{n}{d_2} x \right] E_{0, n+m} E_{0, m}^* \quad (17)$$

で与えられる。ここで

$$E_{0, n} \equiv E_0 \left(x'_s - \frac{npd_2}{M_g}, y'_s \right) \quad (18)$$

で、 $E_0(x'_s, y'_s)$ ($(x'_s, y'_s) \equiv (-x/M_g, -y/M_g)$) は物面上の試料透過直後の電場である（点広がり関数も考慮に入れた詳細な計算については文献[18]を参照）。この式は式(7)よりも厳密で、試料による位相シフト $\Phi(x'_s, y'_s)$ の変化が緩やかであるという仮定は用いられていない。実際、 $\Phi(x'_s, y'_s)$ の変化が npd_2/M_g に比べて緩やかな場合には、式(18)は Taylor 展開できて、式(6)と同様の式になる。すなわち、X線 Talbot 干渉計においては、位相の差分を微分と近似していたことになる。

G1を開口比が0.5である矩形の $\pi/2$ 位相格子として、式(17)で与えられる強度に縞走査法を適用すると

$$\frac{\Phi(x'_s + pd_2/M_g, y'_s) - \Phi(x'_s - pd_2/M_g, y'_s)}{2} \quad (19)$$

が求まる。すなわち式(19)は、位相差分像 $\Phi(x'_s + pd_2/M_g, y'_s) - \Phi(x'_s - pd_2/M_g, y'_s)$ 、つまり物面上の $\Phi(x'_s, y'_s)$ が像面上で M_g 倍に拡大されて、位相の符号が逆転した二つの像が $2pd_2$ だけ離れて

Fig. 7. Self-images obtained with polystyrene (PS) spheres on a glass plate as the sample (left); corresponding phase-difference images obtained by the fringe scanning technique (right; gray scale, $-0.5\pi \sim 0.5\pi$). (a) $d_1 = 4.3 \mu\text{m}$, $p = 0.5$; (b) $d_1 = 6.0 \mu\text{m}$, $p = 0.5$; (c) $d_1 = 8.0 \mu\text{m}$, $p = 0.5$; (d) $d_1 = 6.0 \mu\text{m}$, $p = 1.5$ [18].

重ね合わされた像が求まることを示している。

上記の理論計算の結果は実験によっても確かめられた[17,18]。実験はSPRING-8のBL20XUで行った。X線のエネルギーは9 keVとした。Fresnelゾーンプレート(FZP)には、NTT-ATN製の市販品(ATN/FZP-SiC86/416, 最外輪帯幅86.6 nm, 直径416 μm)を用いた。このエネルギーでは焦点距離は261 mmとなる。画像検出器には浜松ホトニクス社製のビームモニター(有効ピクセルサイズ4.34 μm , シンチレータ: 10 μm 厚 P43)を用いた。拡大率をできるだけ大きくするため、画像検出器を実験ハッチのいちばん下流に配置した。FZPから物面、および像面までの距離はそれぞれ272 mm, 6461 mmで、試料の像の拡大率は23.7、物面上での実効的なピクセルサイズは183 nmである。

回折格子には、金の $\pi/2$ 位相格子(榎豊和産業製, 矩形, 開口比0.5)を用いた。Fig. 7は実験で得られた自己像(左図)と縞走査法によって求められた位相差分像(右図)である(試料は直径6 μm のポリスチレン球)。上から周期 d_1 (Talbot 次数 p) がそれぞれ4.3 μm (0.5), 6.0 μm (0.5), 8.0 μm

Fig. 8. (Color online) (a) Enlarged phase-difference image of the PS spheres in the square on the right-hand side of figure of Fig. 7 (a) (gray scale, $-0.3\pi \sim 0.3\pi$). (b) Absorption image of the same area as (a) obtained by simply removing the grating. (c) Section profile along the dashed line in (a) [18].

(0.5), $6.0 \mu\text{m}$ (1.5) の場合に対応している。

式(3), (16)から, 自己像の周期 d_2 は

$$d_2 \approx \frac{R_2 \lambda}{p d_1} \quad (20)$$

で与えられる。実験で得られた自己像の周期は式(20)と一致した。また Fig. 7 右図の位相差分像においては, 理論から予想された通り, 白黒反転した試料の位相像が距離 $2pd_2$ だけ離れて生じることが確認された。

試料のサイズが $2pd_2/M_g$ よりも小さい場合には, ツイン像のそれぞれが試料の位相像である。Fig. 8a は, Fig. 7a 右図中の四角で囲まれた領域の拡大像である。Fig. 8c のプロットは Fig. 8a 中の破線に沿ったラインプロファイルで, 図中の理論曲線(直径 $5.8 \mu\text{m}$ のポリスチレン球による位相シフトの計算値)とよく一致している。すなわち位相シフトが定量的に求まることが示された。また Fig. 8b は回折格子がない場合の同じ領域の吸収像であり, 試料の像がほとんどみえていない。ノイズレベルの評価から, 本実験配置では回折格子がない場合に比べて数桁高い S/N が実現できることが確認された。

試料が $2pd_2$ よりも大きい場合にも, 位相差分像から位相像を回復することができる。Fig. 9a は $1 \mu\text{m}$ 厚 Ta の Siemens スターチャートの位相差分像である。Fig. 9b はフォトンカウンターの統計誤差を考慮したデコンボリューションによって位相像を求めた結果である。このような位相像の回復には, 境界条件を与える必要がある。すなわち, 試料

Fig. 9. (a) The differential phase image of a $1\text{-}\mu\text{m}$ -thick tantalum Siemens star chart and (b) its phase image retrieved from (a) [18].

Fig. 10. (Color online) Edge profiles of phase-difference (open circles) and absorption (solid circles) images of a $1\text{-}\mu\text{m}$ -thick tantalum pattern. Open circles are the edge profile of the phase-difference image and solid circles are that of the absorption image [18].

のまわり (Fig. 9a の画像の左右端付近の領域) に何も無い, あるいは試料のまわりの領域の電子密度が既知の場合に可能である。この条件が満たされていれば, 様々な物体に囲まれた高圧環境下の試料に対しても適用可能であり, 将来の計算技術の進歩によって, 仮に境界条件が未知であっても, 位相像の推定が可能になると期待している。

従来からよく用いられている Zernike 型位相コントラスト X 線顕微鏡が苦手とするような位相シフトの大きい試料に対しても定量的な位相測定が可能であることが確認された。Fig. 10 は Fig. 9 の Siemens スターチャートの左端のエッジのラインプロファイルである。この試料は位相シフトが $\pi/2$ に近いが, 定量的なイメージングができていたことが確認された。さらに空間分解能についてはチャートのエッジ (Fig. 10 の白丸) から求めることができる。求められた空間分解能は 450 nm で, これは回折格子なしの場合 (Fig. 10 の黒丸) の空間分解能と比較して同程度であった。

試料を回転して複数の投影像を撮影すれば位相トモグラフィも実現できる [19]。Fig. 11d はそのよう

Fig. 11. (a) Phase-difference image and (b) phase image of a 55 μm -diameter polystyrene sphere. (c) Section profile along line A and (d) tomogram along line B in (b) (Reprinted figure with permission from [19]. Copyright 2008 by the American Institute of Physics).

にして撮影した直径 55 μm のポリスチレン球の位相トモグラムである。この場合には、試料による位相シフトが π を大きく超えており、位相差分像 (Fig. 11a) にはこの方法特有のラッピング (2π の整数倍の位相の差が物理的に区別できないことによって生じる位相の不連続なジャンプ) が生じている。画質については改善の余地があるが、このように位相シフトの大きい試料についても、定量的な位相イメージング (Fig. 11b, c) とトモグラフィが可能であることが示された。

5. まとめと今後の展望

本稿では透過型回折格子の Talbot 効果を利用した高感度 X 線結像顕微鏡について紹介した。特に一枚の位相格子を用いる方法 (自己像を大きく拡大して解像する方法) は、本質的に試料による位相シフトを計測する方法であり、微分位相 (波面の傾き) を画像化する X 線 Talbot 干渉計タイプに比べて高感度のイメージングが可能である。両者の違いは試料の像の拡大率が上がるほど顕著になる。また、空間分解能についても、X 線 Talbot 干渉計タイプでは、回折格子に影響されて劣化してしまったが (Fig. 5), 自己像を解像する方法では、回折格子がない場合の結像顕微鏡の空間分解能と同程度であった。すなわち、空間分解能は主に結像レンズの性能

によって決まり、より高性能の結像レンズを用いることによって、数十ナノメートル、将来はナノメートルオーダーの高い空間分解能が実現できるであろう。

詳細は述べなかったが、他の利点も挙げられる。従来からよく用いられてきた Zernike 型 X 線位相差顕微鏡では、弱位相物体にのみ定量性があり、またハローなどのアーティファクトが生じてしまうことが知られている。本稿で紹介した方法では、位相シフトが $\pi/2$ に近い場合 (Fig. 10), あるいは $\pi/2$ を大きく超えるような場合 (Fig. 11) にも定量測定が可能であり、Zernike 型でみられたようなハローのようなアーティファクトも原理的に生じない。第 4 節で述べた一枚の位相格子を用いる方法では、吸収格子を用いる X 線 Talbot 干渉計タイプと比べて、単純に使用できる光子数が二倍になるという利点や、回折格子のジッターの補正が直接行えるなどの利点もある。さらには、実験室の通常フォーカス X 線源の前にマルチスリット (空間コヒーレンスフィルター) を配置して微小光源の列とすることによって、実験室の低輝度 X 線源でも本顕微鏡法でイメージングを行うことができる [20]。

本稿では結像型 X 線顕微鏡の高感度化について述べた。X 線顕微鏡には他に走査型 X 線顕微鏡と、回折顕微鏡 (コヒーレント回折イメージング) がある。後者は今世紀に入って盛んに研究されるように

なった。光学系が大きく異なるため、単純な比較はできないが、結像型の利点の一つは、試料の投影像を画像検出器により二次元画像として得ることができることであろう。医療現場でポイントあるいはライン走査型のCTが使用されなくなって久しいことから分かるように、走査型は迅速な測定には不向きである。また回折顕微法のように微弱な回折強度を長時間かけて測定する必要もない。したがって、結像型顕微法はダイナミクスの研究に最も適した方法として将来注目されると予想される。ERLなどの新光源からの高輝度単色X線が利用できるようになれば、ミリ秒オーダーの高時間分解能の顕微イメージングを、試料への照射ダメージを最小にして、効率よく行うことができるであろう。本稿で述べた方法は、結像型顕微鏡に一枚の位相型回折格子を加えるだけで簡単に高感度の位相イメージングが実現できる方法であり、将来の新光源と合わせて広く用いられると期待している。

謝 辞

本研究は文部科学省の科学研究費補助金（基盤研究（B））およびコニカミノルタ科学技術振興財団の助成金のもとで行われた。本研究のシンクロトン放射光を用いた実験はSPring-8で行われた。実験ではJASRIの鈴木芳生氏、竹内晃久氏、東大総括プロの水谷治央氏（現ハーバード大）、東大院新領域百生研究室スタッフの武田佳彦氏（現RIGAKU）、その他学生諸氏のご協力をいただいた。またデータ解析では百生研究室のSébastien Harasse氏（現フランス民間企業）にご協力をいただいた。この場を借りて深く御礼申し上げる。

参考文献

- [1] R. Fitzgerald: Phys. Today, **53**, 23 (2000).
- [2] A. Momose: Jpn. J. Appl. Phys., **44**, 6355 (2005).
- [3] K.A. Nugent: Adv. Phys., **59**, 1 (2010).
- [4] A. Momose, S. Kawamoto, I. Koyama, Y. Hamaishi, K. Takai, Y. Suzuki: Jpn. J. Appl. Phys., **42**, L866 (2003).
- [5] T. Weitkamp, B. Nöhammer, A. Diaz, C. David: Appl. Phys. Lett., **86**, 54101 (2005).
- [6] T. Weitkamp, A. Diaz, C. David, F. Pfeiffer, M. Stampanoni, P. Cloetens, E. Ziegler: Opt. Exp., **13**, 6296 (2005).
- [7] A. Momose, S. Kawamoto: Jpn. J. Appl. Phys., **45**, 314 (2006).
- [8] A. Momose, W. Yashiro, Y. Takeda, Y. Suzuki, T. Hattori: Jpn. J. Appl. Phys., **45**, 5254 (2006).
- [9] F. Pfeiffer, T. Weitkamp, O. Bunk, C. David: Nat. Phys., **2**, 258 (2006).
- [10] F. Pfeiffer, M. Bech, O. Bunk, P. Kraft, E. F. Eikenberry, C. H. Brönnimann, C. Grünzweig, C. David: Nat. Mater., **7**, 134 (2008).
- [11] A. Momose, W. Yashiro, Y. Takeda, in *Biomedical Mathematics: Promising Directions in Imaging, Therapy Planning and Inverse Problems*, ed. by Y. Censor, M. Jiang, G. Wang (Medical Physics Publishing, Madison, 2009) Chap. 14, pp. 281–320.
- [12] W. Yashiro, Y. Terui, Y. Kawabata, A. Momose, Opt. Exp., **18**, 16890 (2010).
- [13] W. Yashiro, S. Harasse, K. Kawabata, H. Kuwabara, T. Yamazaki, A. Momose: Phys. Rev. B, **84**, 094106 (2011).
- [14] A. Momose, W. Yashiro, H. Maikusa, Y. Takeda: Opt. Exp., **17**, 12540 (2009).
- [15] A. Momose, W. Yashiro, S. Harasse, H. Kuwabara: Opt. Exp., **19**, 8423 (2011).
- [16] Y. Takeda, W. Yashiro, T. Hattori, A. Takeuchi, Y. Suzuki, A. Momose: Appl. Phys. Exp., **1**, 117002 (2008).
- [17] W. Yashiro, Y. Takeda, A. Takeuchi, Y. Suzuki, A. Momose: Phys. Rev. Lett., **103**, 180801 (2009).
- [18] W. Yashiro, S. Harasse, A. Takeuchi, Y. Suzuki, A. Momose: Phys. Rev. A, **82**, 043822 (2010).
- [19] W. Yashiro, S. Harasse, H. Kuwabara, H. Mizutani, A. Takeuchi, Y. Suzuki, A. Momose: AIP Conf. Proc., **1365**, 317 (2011).
- [20] H. Kuwabara, W. Yashiro, S. Harasse, H. Mizutani, A. Momose: Appl. Phys. Exp., **4**, 062502 (2011).
- [21] S. Yokozeki, T. Suzuki: Appl. Opt., **10**, 1575 (1971).
- [22] A.W. Lohmann, D.E. Silva: Opt. Commun., **2**, 413 (1971).
- [23] H.F. Talbot: Philos. Mag., **9**, 401 (1836).
- [24] K. Paturski: in *Progress in Optics XXVII* (Elsevier, Amsterdam, 1989) pp. 1–108.
- [25] J.T. Winthrop, C.R. Worthington: J. Opt. Soc. Am., **55**, 373 (1965).
- [26] J.P. Guigay: Opt. Acta, **18**, 677 (1971).
- [27] M. Born, E. Wolf: in *Principles of Optics* (Cambridge U. Press, 1999).
- [28] J.H. Bruning, D.R. Herriott, J.E. Gallagher, D.P. Rosenfeld, A.D. White, D.J. Brangaccio: Appl. Opt., **13**, 2693 (1974).
- [29] J.H. Bruning: in *Optical Shop Testing*, ed. D.

Malacara (Wiley-Interscience, Hoboken, 2007).

[30] E. Hack, J. Burke: Rev. Sci. Instr., **82**, 061101 (2011).

[31] K.A. Stetson, W.R. Brohinsky: Appl. Opt., **24**,

3631 (1985).

[2013 年 3 月 31 日受付, 2013 年 7 月 9 日受理]

© 2013 日本高圧力学会