

JAXAキュレーション施設における大気非暴露X線CT分析システムの導入

金丸 礼¹, 矢田 達¹, 田原 瑠衣¹, 中山 悠², 深井 稜汰¹, 畠田 健太郎³, 石崎 拓也¹, 榎戸 祐馬¹, 小野寺 圭祐⁴, 保田 慶直⁵, 西村 征洋¹, 坂本 佳奈子¹, 人見 勇矢³, 副島 広道³, 熊谷 和也³, 小嶋 智子¹, 安部 正真¹, 岡田 達明¹, 臼井 寛裕¹.

(要旨) 本稿では、2023年にJAXAキュレーション施設に導入した大気非暴露X線CT分析システムを紹介する。このシステムは、卓上型3D X線顕微鏡とガス置換グローブボックスから構成されており、通常の大気中でのX線CT分析に加えて純窒素環境での分析も可能である。地球大気は、試料によっては汚染や変質の原因となる。そのため、小惑星から持ち帰られた帰還試料などの体積や内部構造に関するデータを大気非暴露で得られる点は、試料の記載と保存に役立ち、さらにその後の複合的な詳細研究と比較することで得られる科学的成果を最大化することができる。このX線CT分析システムは、大学共同研究機器として幅広く研究者に提供されており、今後様々な研究や技術開発に活用されることが期待される。

1. はじめに

惑星物質科学は1969年の人類初の月面着陸、南極隕石の発見、およびAllende隕石、Murchison隕石の落下という重要な出来事によって大きく発展した。そして、この進歩は小惑星から直接持ち帰られた試料によって再び歴史的なターニングポイントを迎えている。2010年に小惑星探査機はやぶさがS型小惑星イトカワから、2020年に小惑星探査機はやぶさ2がC型小惑星リュウグウから、そして2023年にはNASAの小惑星探査機オシリス・レックスがB型小惑星ベンヌからのサンプルリターンを達成した。これら小惑星からのサンプルリターンは、従来の地球上で回収された隕石や宇宙塵から得られた知見に依存していた惑星物質科学を大きく発展させ、太陽系の起源や進化、さらに地球上の生命の起源の謎

を解き明かすための重要なステップとなる。

1.1 惑星帰還試料とJAXAキュレーション活動

はやぶさ・はやぶさ2探査機によって回収された試料は、JAXA相模原キャンパスの地球外試料キュレーションセンター(以下、JAXAキュレーション施設)に輸送され、クリーンチャンバ内でのハンドリングの後、初期分析研究や国際公募研究のため試料が配分されている。JAXAキュレーション活動の成果は、Hayabusa Sample catalog [1], Hayabusa2 Sample catalog [2]として出版されており、また、リュウグウ粒子についてはHayabusa sample database (<https://darts.isas.jaxa.jp/curation/hayabusa2/>) [3], イトカワ粒子についてはHayabusa sample library (<https://curation.isas.jaxa.jp/curation/hayabusa/>)としてデータベースが整備されている。サンプルリターンの意義や具体的なキュレーション活動については、他の記事によって詳細に解説されているが[4-6], JAXAキュレーション活動の大きな特徴の一つは、試料が試料収納容器に密封される形で地球に帰還し、その後、地球大気に触れることなくクリーンチャンバに運ばれ、純窒素環境下でハンドリング・

1.JAXA宇宙科学研究所

2.ブルカー・ジャパン(株)

3.(株)マリン・ワーク・ジャパン

4.東京大学地震研究所

5.関西学院大学

kanemaru.rei@jaxa.jp

表1: JAXAキュレーション施設所有の分析機器(一部紹介).

装置	型式, メーカー	設置環境	付属検出器等	大気非暴露分析
卓上型3D X線顕微鏡 (XCT)	SKYSCAN 1272 CMOS Edition, Bruker	クリーンルーム		可
電界放出型走査電子顕微鏡 (FE-SEM)	SU6600, 日立ハイテク	クリーンルーム	EDS, EBSD	可
赤外顕微鏡 + フーリエ変換赤外分光光度計 (μ -FTIR)	IRT-5000 + FT/IR 6100, 日本分光	クリーンルーム		可
ウルトラミクロトーム	EM UC7, Leica	クリーンルーム		可
X線回折分析装置 (μ -XRD)	RINT Rapid 191R, リガク	クリーンルーム	ガンドルフィ装置	不可
レーザーラマン分光光度計 (μ -Raman)	NRS-5100, 日本分光	クリーンルーム		不可
電界放出型電子走査マイクロアナライザー (FE-EPMA)	JXA-iHP200F, 日本電子	実験室	WDS(5ch), EDS, SXES	可
集束イオンビーム/走査型電子顕微鏡複合装置, トリプルビーム装置(FIB-SEM)	NX2000, 日立ハイテク	実験室	EDS	不可

保管される点である。ごく一部のリュウグウ試料について高真空環境下での試料採取および保管も実施されている。さらに、初期分析研究や国際公募研究に配分される試料は、Phase2高知チーム[5]が開発した試料輸送容器FFTC (Facility to facility transfer container [7])を用いて純窒素環境を保持したまま、世界中の研究者に送り届けられている。このように大気非暴露での帰還試料の取り扱い、試料が本来持つ性質を地球大気によって変質させることなく、小惑星の物理・化学的特徴をより正確に理解するための重要な手段となる。この理念を踏まえて、JAXAキュレーション施設では、大気非暴露での帰還試料の保管・配分だけでなく様々な分析装置を備えており、大学共同研究機器としてこれらの利用機会をJAXA内外の研究者へ提供している(表1)。これら機器の中には、オプションとして大気非暴露で分析可能なものも多く含まれている。今回、JAXAキュレーション施設では、地球外物質キュレーションの技術向上および大学共同研究の促進を目的として、2023年に卓上型3D X線顕微鏡(SKYSCAN 1272 CMOS Edition, Bruker社、以下SKYSCAN 1272)を新たに導入した。本装置はガス置換グローブボックス内に設置され、グローブボックス内を高純度窒素で満たすことにより大気非暴露での分析が可能である(図1)。また、グローブボックス前面は取り外し可能な構造となっており、大

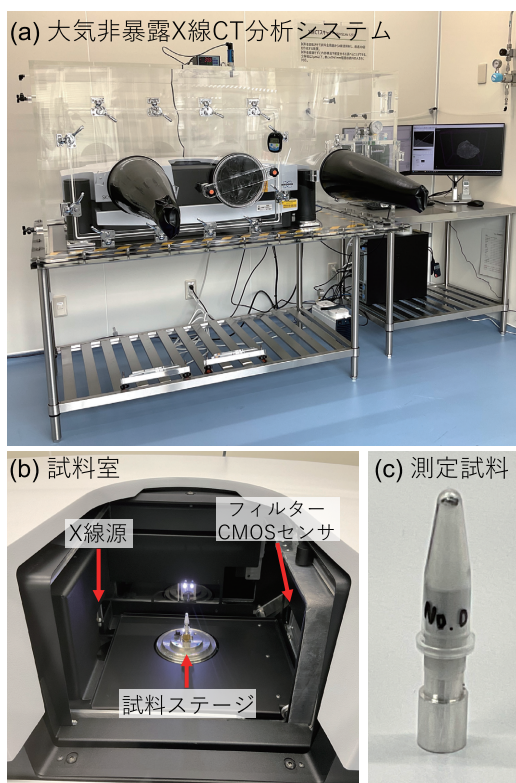


図1: (a) JAXAキュレーション施設に導入された大気非暴露XCTシステム。卓上型3D X線顕微鏡(SKYSCAN 1272)と純窒素ガスで満たしたアクリル製ガス置換グローブボックスから構成される。(b) SKYSCAN 1272の試料室。X線は、試料、フィルターを通してCMOSセンサに導入される。(c) 測定試料。試料を脱脂綿などで固定し、専用の用具を用いて試料ステージに設置する。

表2: SKYSCAN 1272の基本仕様.

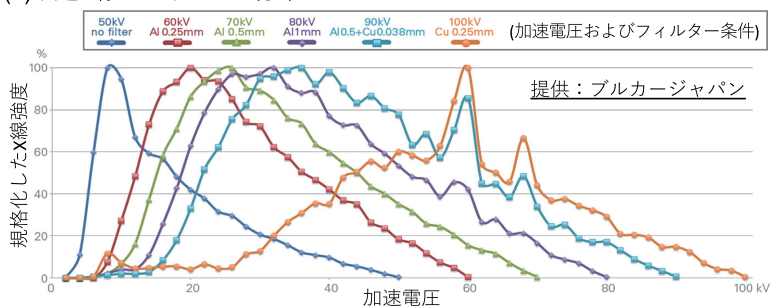
フィラメント・ターゲット素材	タングステン (封入型X線源)
X線フィルター	無し、アルミ、銅 (試料によって調整)
検出器	CMOSセンサ (4096x4096ピクセル)
分解能	~0.45 μm (最小)
試料回転ステップ幅	0.1-0.3° (推奨値)
導入可能試料サイズ	直径7.5cm x 高さ10cmの円筒 (最大)
生データ	16 bit Tiff画像
装置重量	150 kg
電源	100-240V AC, 50-60Hz, 最大3A (標準電源で稼働)

気暴露状態でも分析できる。以下では、今回導入したSKYSCAN 1272でのX線CT分析の紹介と本格利用に先立ち実施した本装置における体積測定精度および素材ごとの測定可能試料厚みの検証、加えて実試料としてリュウグウ粒子およびMurchison隕石を分析した結果を本稿にまとめる。

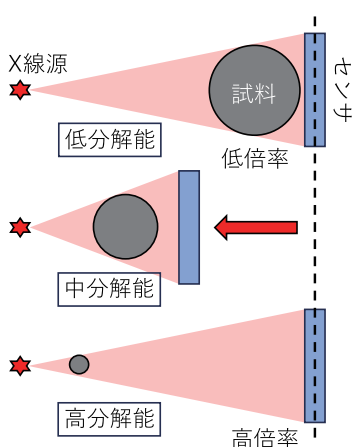
2. X線CT分析

X線コンピュータトモグラフィ分析(X-ray Computed Tomography: X線CT)は、X線を試料に照射し、その透過像から内部構造を構成元素や密度の違いに基づいて可視化する技術である。そのため、X線CT分析は非破壊で試料の内部構造や構成鉱物種の推

(a) 白色X線のエネルギー分布



(b) 可変ジオメトリシステム



(c) 石英ガラス球 (直径2.00mm)の透過像

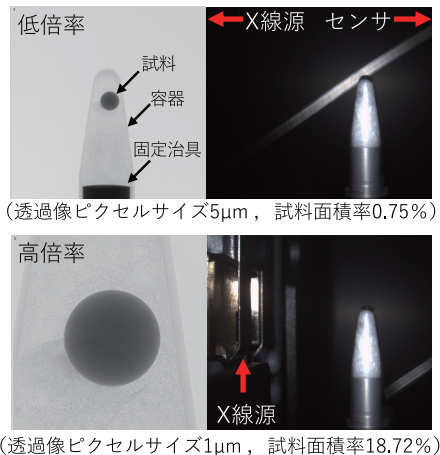


図2: (a) 加速電圧に紐づけられたフィルター選択とX線エネルギー分布。X線吸収量を最適化することでノイズの軽減、密度コントラストの明瞭化が可能である。(b) 可変ジオメトリによる画像分解能とX線源-試料-センサ間の位置関係。低分解能(低倍率)と高分解能(高倍率)時に最もセンサの距離が遠くなる。中分解能時はセンサが近づき、X線強度が増加することにより測定時間の短縮が可能である。(c) 直径2mmの石英ガラス球の透過像とX線源-試料の位置関係。低倍率時に試料とX線源との距離が遠くなり、高倍率時に試料とX線源との距離が近くなる。

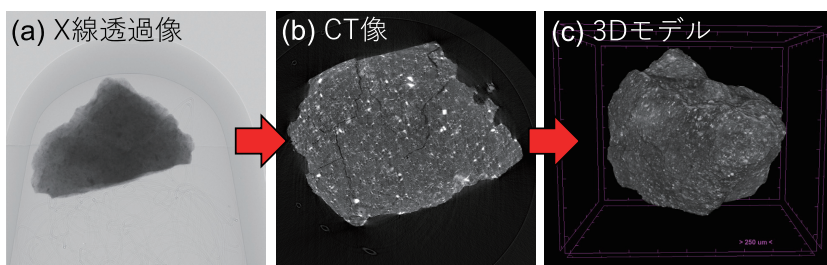


図3:SKYSCAN 1272によって得られたリュウグウ粒子(A0172)の(a) X線透過像, (b) CT像および(c) 3Dモデル. CT像は, 特定の位置における試料の断面像を示している.

定に利用でき, その後の詳細分析に向けた研究計画立案に非常に重要である. また, 試料体積を精度よく求めることができるため, 物質の物性分析時に重要な密度情報を得ることができる. 従来, 帰還試料のような微小試料の分析時にはSPring-8などの放射光施設において高輝度単色X線を使用し, 非常に高い解像度での観察が行われてきた[例えば, 8]. しかし, このような大型のシンクロトロンベースのX線装置は, 日本でも数が限られており, 装置の利用にはマシタイムの確保や研究プロポーザルの提出など実際の分析に至るまでに多くのハードルが存在する. 一方で, 近年, ラボスケールで扱えるコンパクトなX線CT装置の開発が進められ, これにより多くの研究機関においても手軽にX線CT分析が可能になりつつある. これらは, X線輝度や画像解像度においてシンクロトロンベースのX線装置に比べると劣るものの, 装置によってはサブミクロンレベルの分解能を有するものもあり, 日常的な実験において十分な性能を提供し, 研究開発のスピードアップやコスト削減に貢献する.

今回, 導入したSKYSCAN 1272の基本仕様を表2に示す. 本装置は, タングステンフィラメントの加熱により発生した熱電子を管電圧40-100 kVで加速させ, タングステンターゲットへ衝突させた際に生じた白色X線を線源として利用している(図2a). このX線は試料にコーンビーム状に照射され, 試料を透過したX線はアルミや銅のフィルターを通してCMOSセンサによってX線透過像として撮像される(図2b, c). さらに, 試料を180°または360°回転させ一定間隔で透過像を撮影することにより, 試料全体の3次元データを得ることができる. 実際には, 各角度で撮影されたX線透過像に対して, 熱によるX線の焦

点位置の補正や測定中の振動など外部影響を補正するためのXYアライメント, 偏心補正, 検出器感度補正, 線硬化補正をSKYSCAN純正ソフトウェアであるNRECONで処理しCT像へ再構成される(図3). これらCT像は, 同純正の解析ソフトウェア(CTVOXやCTAN)もしくは, 汎用的な画像処理ソフトであるImageJなどで解析可能である.

本装置は, 可変ジオメトリシステムを採用しており, X線源-試料-CMOSセンサ間の距離を変えることによって, 得られるCT像の倍率および空間分解能を変えている(図2b). そのため, 試料をX線源に近づけるほど高倍率・高分解能なCT像を得ることができ, また, センサを近づけることで測定時間を短縮する. ここで, 透過像から得られる最高倍率での画像ピクセルサイズは $\sim 0.45 \mu\text{m}/\text{ピクセル}$ であり, 最低倍率での画像ピクセルサイズは $\sim 6 \mu\text{m}/\text{ピクセル}$ である. 本装置では, サブミリメートルサイズの粒子から最大で直径7.5 cm×高さ10 cmの円柱形状の試料まで分析可能である. そのため, 地球外物質試料の分析では帰還試料から隕石まで様々な試料に対して分析を行うことができるが, 試料同士のクロスコンタミネーションを避けるため, 各試料はボクセル容器やテフロンシート等に封入して測定する運用を実施している(図1c).

3. 大気非暴露X線CT分析システム

導入した大気非暴露X線CT分析システムはアクリル製ガス置換グローブボックス(サンプラテック社)とSKYSCAN 1272から構成される(図1). SKYSCAN 1272は分析装置本体とオペレーションPCからなり, 装置本体がガス置換グローブボックス

内に設置されている。装置本体の試料室扉の開閉、試料ステージの位置調整、試料測定の一連の作業は、オペレーションPCの操作により行う。アクリル製グローブボックスは、内寸が幅150 cm、高さ70 cm、奥行き80 cmであり、前面に3つのグローブポートを設けている。側面には試料交換用のパスボックスが設置され、ここを通してグローブボックス内との試料・物品の搬入出を行う。この際、グローブボックス内への大気の侵入を防ぐため、通常、搬入物をパスボックス内に設置し10分程度の窒素導入による雰囲気置換を行った後、内扉を開いてグローブボックス内へ持ち込む。真空中に耐えられるのであれば、パスボックス内を-0.08 MPa程度まで真空引きしてから窒素を導入して搬入することもできる。本グローブボックスには、その他にも内部環境モニタ用の露点計挿入ポート、電源ケーブル類をグローブボックス外へ取出すためのフィードスルーが備わっている。グローブボックスおよびパスボックスに導入する窒素ガスは、JAXAキュレーション施設に併設された液体窒素コールドエバポレーター内で気化された高純度窒素ガスを純化機を通してさらに精製されたものである。グローブボックス内部の露点温度は、窒素ガスを5リットル毎分で導入すると-43 °Cdpの下限値を示し、その露点温度で安定した。

4. 測定可能な試料最大厚さ

X線CT分析において、X線透過率が極端に低い場合、X線が試料を透過できず3Dモデルのデータ欠損や撮像時にビームハードニング、スター・アーチファクトなどを引き起こすことがある。本装置において、良質な3Dモデル作成およびCT像取得のため、X線透過率を少なくとも10%程度は確保することが推奨されている。そこで、異なる材質の試料を準備し、本装置における最大出力(100 kV)でのX線透過率を測定することで素材ごとの測定可能な最大の厚さを調べた(図4)。X線の透過率は、X線エネルギー、試料の厚さに加え、密度および含まれている元素の原子番号に依存する質量吸収係数によって決定づけられる。ここでは、金属試料であるアルミ、SUS304、銅および岩石である玄武岩(玄武洞、兵庫県)を検証のための材料として選定し、類似する物

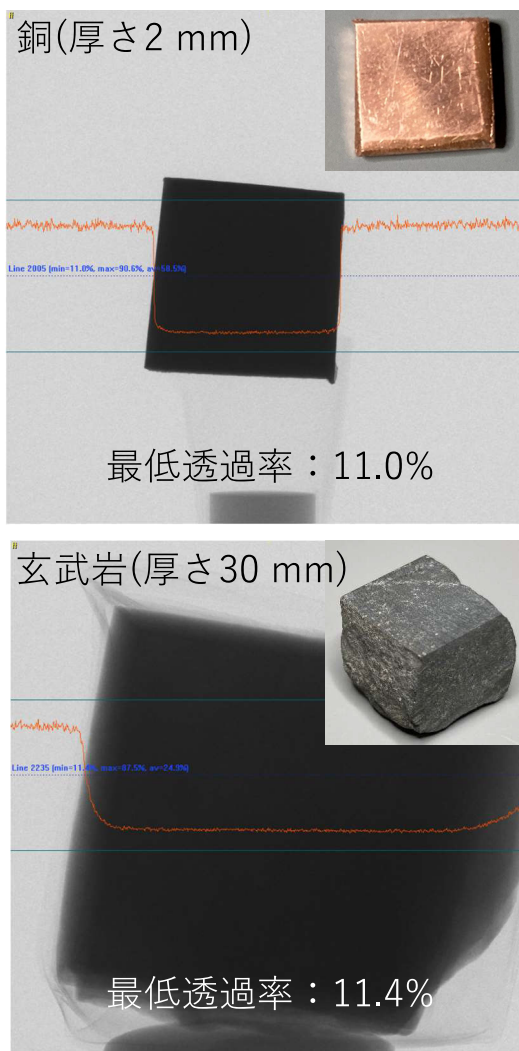


図4: 銅と玄武岩のX線透過像とX線透過率。銅で~2 mmの厚さ、玄武岩で~30 mmまでの厚さにおいて最低X線透過率10%以上が得られる。

質の測定可能な最大厚さの目安を知ることを目指した。測定においては、試料とセンサ間でのX線減衰の影響を避けるため、すべての測定は同じ位置で実施された。

ここでの測定では、高原子番号の元素を主成分とした銅では~2 mm、SUS304では~4 mmまでの厚さにおいてX線透過率10%以上得られた。一方で、主に軽い元素から構成されるアルミでは~25 mm、玄武岩では~30 mmの厚さでX線透過率10%以上を得ることができた。これら結果から、地球外物質

表3: 石英ガラス球の体積測定.

直径 (mm)	画像ピクセルサイズ (μm)	*試料面積率 (%)	回転ステップ ($^{\circ}$)	実測体積 (mm^3)	理論体積 (mm^3)	体積誤差 (%)
1.00	0.75	8.32	0.2	0.5253	0.5236	+0.32
1.00	1.50	2.08	0.2	0.5251	0.5236	+0.30
1.00	1.50	2.08	0.3	0.5267	0.5236	+0.60
1.00	2.00	1.20	0.2	0.5280	0.5236	+0.84
1.00	3.00	0.52	0.2	0.5450	0.5236	+4.08
2.00	1.00	18.72	0.2	4.2022	4.1888	+0.32
2.00	2.00	4.68	0.2	4.2170	4.1888	+0.67
2.00	3.00	2.08	0.2	4.2236	4.1888	+0.83
2.00	5.00	0.75	0.2	4.3554	4.1888	+3.98
4.00	1.50	33.27	0.1	33.5591	33.5103	+0.15
4.00	4.00	4.68	0.2	33.6097	33.5103	+0.30
4.00	5.00	2.99	0.2	33.8110	33.5103	+0.90

*透過像中の石英ガラス球面積/センサ受光面積 $\times 100$

における測定可能な最大厚さを考えると、石質隕石は玄武岩と密度や構成元素が比較的類似しており、その測定可能な最大厚さも最大30 mm程度であると予想できる。ただし、メタルを多く含むHコンドライトでは、その測定可能な最大厚さはより小さくなり、また、空隙を多く含む炭素質コンドライトなどでは測定可能な最大厚さがより大きくなると考えられる。

5. 体積測定精度

帰還試料や隕石などの地球外物質は、一般に複雑な不定形状であり、体積の正確な測定が困難な場合が多い。例えばカメラで撮影した画像を用いた体積測定には大きな誤差が含まれる場合がある[9, 10]。また、アルキメデスの原理に基づく液浸法やガスピクノメーターを用いた方法では、試料汚染の可能性およびmmサイズ以下の微小試料の体積測定には適さないなど問題点があり、地球外物質の分析に適用できない場合が多い。X線CT分析は、X線透過像からの3D形状モデル構成により、試料の精密な体積の測定が可能である。そこで、本装置における体積測定精度・精度の検証のため、石英ガラス球(日本検査機器工業会)を用いてX線CT分析での実測体積と既知の直径から計算される理論体積との比較を行った(表3)。また、測定条件に由来する影響

も評価するためにCMOSセンサの受光面積(=4096 \times 4096ピクセル)に対する試料の面積(画像ピクセルサイズと石英ガラス球の直径から計算)を試料面積率(試料面積/センサ受光面積 $\times 100$)として示している。本装置において、この試料面積率が大きい時に画像ピクセルサイズが小さく試料を高倍率で測定したことを示し、また、試料面積率が小さい時は、画像ピクセルサイズが大きく試料を低倍率で測定していることを意味している(図2c)。今回の測定において、X線CT分析から得られた石英ガラス球の実測体積は、試料面積率が小さくなるにつれて体積を過剰に計測する傾向を示したが、石英ガラス球の試料面積率が1%以上の場合、理論体積との誤差が1%以下であった。一方、試料面積率が $\sim 1\%$ 以下の条件で測定した場合、理論体積との誤差が急激に増加した。このことから、試料の設置位置(X線源からの距離)を考える上では、面積率1%以上になるよう位置調整することで、おおよそ正確(理論値からの誤差1%以内)な試料体積を得られることが分かった。

6. リュウグウ粒子と隕石のX線CT分析

本装置を用いた地球外物質の分析事例を示す。対象試料は、リュウグウ粒子であるA0172 (2.06

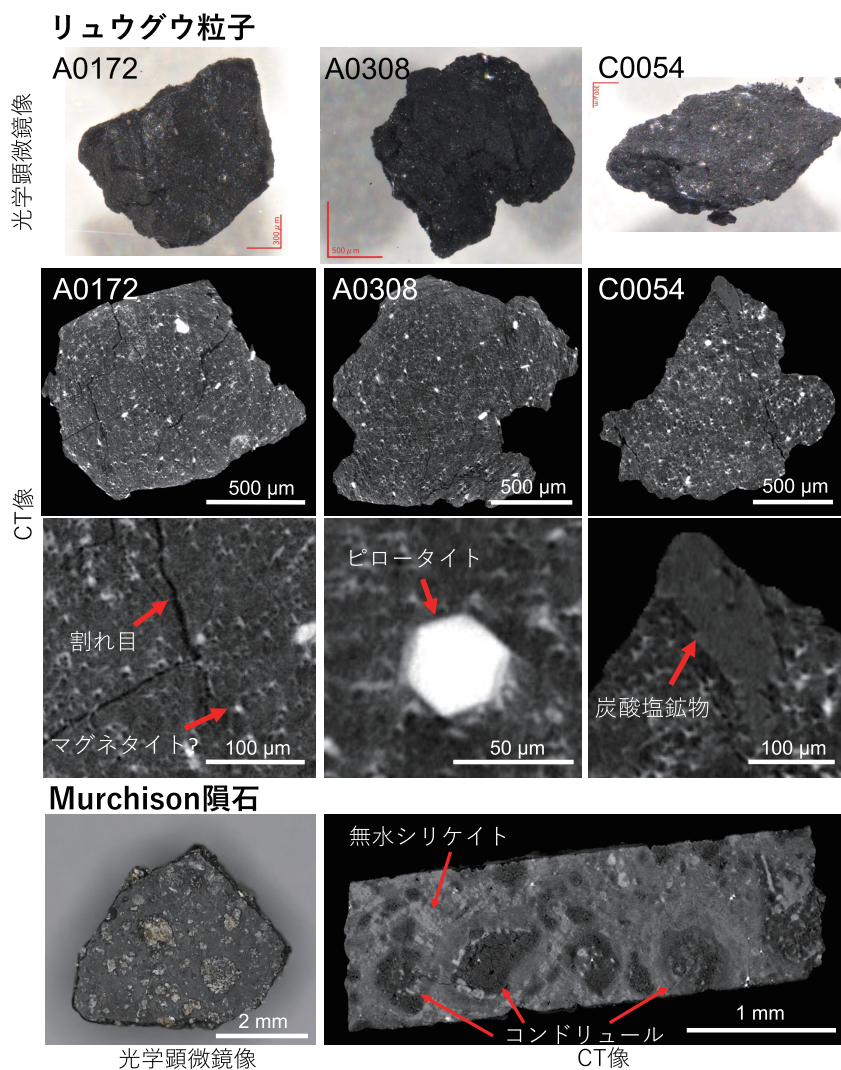


図5: Ryugu粒子(A0172, A0308およびC0054)とMurchison隕石のX線CT分析。X線透過率の高い部分がより暗くなり、透過率が低い部分がより白く示される。そのため、割れ目など試料が無い部分で最も暗く、一方で、ピロータイトやマグネタイトなど鉄を主成分とした高密度な部分が最も明るく表現されている。

mg), A0308 (2.10 mg), C0054 (2.94 mg)およびMurchison隕石である。この3つのリュウグウ粒子は、広報活動用に選定された試料であり、各機関への展示貸し出しにあたり、試料説明に利用できる基礎物性や鉄物組成データなどを非破壊分析により取得した。その一環として、X線CT分析による3Dモデル作成およびバルク密度測定も行った。

リュウグウ粒子のCT像観察では、試料の大部分を占める暗いマトリックス中に明るい細粒な鉄物

($\sim 50 \mu\text{m}$)が散在する組織が観察される(図5)。先行研究の記載と比較すると、それぞれフィロシリケート(サーペンティン, サポナイト)およびピロータイトやマグネタイトなどの鉄に富む鉄物に一致すると考えられる[例えば, 11]。特に、明るく見える粒子の一部には、六角形の外形を示すものもあり、これらはピロータイトとよく一致する産状である。またC0054のマトリックス中に板状の外形を示す粒子($100 \times 300 \mu\text{m}$)を発見した。リュウグウ粒子におけるこのような

産状は、炭酸塩鉱物の産状とよく一致する。一方で、Murchison隕石のCT像には、リュウグウ粒子には観察されなかったコンドリユールや炭酸塩鉱物・無水ケイ酸塩鉱物の破片の様なものが多く見られた。これら岩石組織の違いは、それぞれの試料の研磨片を電子顕微鏡観察した際に見られる特徴とよく一致している。本装置での観察において、空間分解能ではもちろん電子顕微鏡には及ばないが、それでも試料を非破壊のまま特定の鉱物の探索やコンドリユールの組織観察には十分な性能を発揮することが確認できた。

次に、リュウグウ粒子のX線CT分析から得られたバルク体積と別途に電子天秤で秤量した重量から計算されるバルク密度は、それぞれ1.51 g/cm³ (A0172), 1.69 g/cm³ (A0308), 1.70 g/cm³ (C0054)であった。これらバルク密度は、はやぶさ2初期分析石の物質分析チームが放射光X線CTを用いて測定した16個のリュウグウ粒子の平均バルク密度1.79±0.08 g/cm³ [12]に近い値である。ここで、A0172は、他の2粒子よりも低いバルク密度を示している。これは、粒子の内部構造の違いに起因するものと考えられ、実際にA0172のCT像には顕著に発達した割れ目が多く観察できる。粒子内部の割れ目は、バルク密度を低下させる原因であり、A0172が低いバルク密度を持つことと調和的である。つまり、X線CT分析では、正確なバルク体積が測定できることに加えCT像観察から試料ごとのバルク密度の違いを説明するための情報を提供する。ただし、実際にはそれぞれのリュウグウ粒子に含まれる鉱物の種類と量比(モード組成)の不均一性もバルク密度に影響を与えていることに注意が必要である。

7. まとめ

本稿では、JAXAキュレーション施設に2023年に導入された大気非暴露測定が可能なX線CT分析システムの紹介とともに、その性能評価を行った。SKYSCAN 1272での石英ガラス球の測定では体積を誤差1%以下の確度・精度で分析することが可能であり、物性分析に重要であるバルク密度のより正確な計算が可能であることがわかった。また、リュウグウ粒子とMurchison隕石のCT像から割れ目量

やコンドリユールの存在など内部構造の違いを観察ができた。これら帰還試料を含む地球外物質の詳細な試料記載は、研究計画に最適な試料の選定やその後の分析のために重要な知見が得られる。特にX線CT分析は、基本的に非破壊分析であり、多くの場合、分析フローの初期に位置付けられることが多い。そのため、大気非暴露X線CT分析システムは、地球大気による試料の汚染や変質、破壊の影響を最低限に抑えつつ内部構造観察や体積測定が可能であり、帰還試料などの大気暴露できない試料の分析に最適である。実際に、本システムは2024年度にJAXAキュレーション施設に配分されるベンス試料のキュレーション活動において、光学写真から測定されるバルク密度の確度・精度検証にも利用される予定である。そのため、現在、試料の有機的な汚染を排除できる専用試料ホルダーも開発中である。最後に、このX線CT分析システムは大学共同研究機器として幅広い分野の研究者への提供されている。今後も様々な外部ユーザーによる本システムの利用および我々JAXAキュレーションチームとの共同研究を通じて研究の発展や技術開発へと活用されることを期待している。

謝辞

ブルカージャパン(株)には、大気非暴露X線CT分析システム導入のためのご協力、本稿作成にあたりX線エネルギー分布等の情報提供およびその他有益なコメントをいただきました。心より感謝申し上げます。

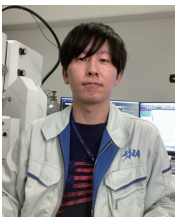
参考文献

- [1] Kanemaru, R. et al., 2023, JAXA Special Publication 22, 005E.
- [2] Yada, T. et al., 2023, JAXA Special Publication 22, 004E.
- [3] Nishimura, M. et al., 2023, Earth, Planets and Space 75, 131.
- [4] 矢田達ほか, 2007, 遊星人 16, 170.
- [5] 安部正真ほか, 2020, 遊星人 29, 28.
- [6] 安部正真, 坂本尚義, 2018, 遊星人 27, 92.

- [7] Ito, M. et al., 2020, Earth, Planets and Space 72, 133.
- [8] Ito, M. et al., 2023, Nature Astronomy 6, 1163.
- [9] Yada, T. et al., 2022, Nature Astronomy 6, 214.
- [10] Miyazaki, A. et al., 2023, Earth, Planets and Space 75, 171.
- [11] Nakato, A. et al., 2023, Earth, Planets and Space 75, 45.
- [12] Nakamura, T. et al., 2022, Science 379, 6634.

著者紹介

金丸 礼



JAXA宇宙科学研究所 研究開発員. 総合研究大学院大学 複合科学研究科 極域科学専攻 5年一貫制博士課程修了. 博士(理学). 専門は分化隕石の記載岩石学・鉱物学. 日本惑星科学会, 日本

鉱物科学会.