



## 新しい2次元X線検出器 —イメージングプレート—

甲斐 泰\*

泰\*

物質の持つ物理的・化学的性質はその物質の構造に基づいており、前者を真に理解するためには、後者の深い知識が不可欠であることは言うまでもない。ここで一口に構造と言ってもその意味する所には極めて奥深いが、化学者の理解になじんでいるという意味で、物質の構成単位を原子あるいは電子と考えると、物質の原子配列及び電荷分布という事が出来る。この様な立場から物質の構造を明らかにするために種々の測定法が知られているが、単結晶X線回折法は、物質の電子密度分布、つまり原子配列や電荷分布を3次元的に明らかに出来るという特長を持つことから、今後増々その精密化を深めて行くと考えられる物質工学の分野で、その必要性を増大して行くものと予想される。特に最近では、単結晶X線回折法が低分子単結晶のみならず、分子量が数万から数十万にもなる生体高分子単結晶にも盛んに適用される様になり、単結晶X線回折法における検出器の持つ意味が変化して来た。本稿では、X線回折法の分野でもその応用が期待されている新しい2次元X線検出器、イメージングプレート、について簡単に紹介したい。

放射線計測における理想的な検出器の備えるべき条件として次のものが考えられる<sup>1)</sup>。(1)検出すべき放射線に対して一定の効率を示し、他の放射線に対しては効率ゼロであること、(2)出力パルスがノイズや干渉パルスに比べて大きいこと、(3)装置が安定していること、つまり、効率や出力パルスの振幅や波形が時間や温度あるいは計数速度によって変動しないこと、(4)分解時間が短かく、強い入射線に対しても数え落しが少ないと、(5)広くまた感度が一定の有効面を持つこと、及び(6)重さや大きさが出来るだけ

小さいこと、である。これらの諸条件は、どの1つをとってもそれを完全に満すことは困難であり、すべての条件を充足する様な検出器を作ることは不可能であるから、計測する放射線の線質や測定の目的に応じて種々の検出器が考案されている。

X線フィルムは、X線による写真作用（あるいは化学作用）を利用して回折現象を検出・記録するもので、広い有効面を持つことから回折点の位置と強度の分布に関する情報が一見して得られるため、現在でも結晶の良否の判定や空間群等の結晶学的基礎データの決定のために欠かすことができない。約20年位前までは、回折強度の測定にもX線フィルムが用いられていたが、フィルム上に記録された回折点の評価は主として目測で行われていた（写真法）。これは、測定に用いられた結晶のある回折点を選び、露出時間を段階的に変えた標準スケールを作つておいて、ライトボックス上の回折写真の各点毎に標準スケールと対比していくという、極めて原始的かつ労力の必要な作業を要求される。この様にして得られたデータの精度に限界が生じるのは当然のことであるが、フィルム上の回折点の積分強度を正しく見積るためにには、性能の良いフォトメータを含めた相当複雑で高度なデータ処理システムが必要であるため、当時の結晶学者の努力はあまりこの方面に向けられず、もっぱら単結晶自動回折計の開発に向けられた。

単結晶4軸自動回折計は、結晶の任意の面からの回折強度の測定を可能にする4つの軸( $2\theta$ ,  $\omega$ ,  $\chi$ ,  $\phi$ 軸)を持ったゴニオメータを電子計算機で制御するもので、一般には1次元検出器が用いられる。一度、装置と結晶の座標系の対応をつけておけば、無人連続運転が可能であるため、現在はもっぱらこの方法により回折強度

\*甲斐 泰 (Yasushi KAI), 大阪大学, 工学部, 応用精密化学科, 助教授, 工学博士, 結晶構造化学

測定が行われている。検出器としては通常シンチレーションカウンターが用いられるが、これはX線の蛍光作用を利用したもので、例えばTlで活性化したNaIの単結晶等が光電子増倍管と組み合せて用いられる（カウンター法）。

通常の低分子結晶では、測定すべき回折反射の数は多くても10,000反射程度である。回折強度はカウンター法の場合1反射毎に走査して積分されるが、相当ていねいに走査しても1日に1000反射は測定可能であるから、1試料の回折強度測定は他に問題が生じなければ長くとも10日間で終了する。結晶試料が安定でさえあれば、この測定時間を短縮するため特に努力する必要があるとは思われない。しかし、試料結晶が生体高分子等の場合には事情が全く異ってくる。

今、生体高分子の結晶構造解折に必要な回折反射数を100,000反射としよう。これを先と同様1000反射/日で測定すると100日間を要する。当然、測定方法や装置面に努力が払われ5000反射/日で測定可能になったとする、20日間で測定できることになる。1次元検出器を用いた自動回折計による測定速度としては、この辺りが限界の様に思われる。ところが、生体高分子の結晶は一般にX線照射により損傷を受ける。極端な場合には一昼夜のX線照射で新しい結晶と取り換えなければならないことにもなる。結晶を取り換え方位を決定し測定を再開するために手間と時間を費やし、また異なる結晶試料間のスケール合せのために多くの反射を重ねて測定することが必要となる。更に、連続測定は深夜も関係なく進められるが、人間が関与する作業を昼夜の別なく行うことは大変な負担になる。その様な理由で、X線照射により損傷を受ける試料で実際に必要となる測定期間は、単純な計算によるものの何倍かにはなるであろう。その上、生体高分子結晶の構造を解析するためには、一通りのデータセットでは不十分であり、重原子同形置換体結晶を用いた、あるいは異常分散効果を考慮した最低2組のデータセットが更に必要である。多くの結晶を測定に用いれば、異なる結晶間の同形性、スケール合せに基づく誤差も拡大する。生体高分子結晶によるX線回折データを出来るだけ迅速に測定することが強く

望まれるのは、この理由からである。

さて、結晶試料にX線が照射されると、あらゆる結晶面からの回折X線がまわりに放射される。4軸自動回折計は1度に1つの結晶面からの回折X線しか測定しないから、他の方向に放射される回折X線は、その間に試料結晶のX線損傷が進行しているにもかかわらず、測定上は全く無駄なものとなってしまう。また分子量の大きい試料では結晶格子が大きくなり、回折点の間隔が密になるため、カウンター法では隣接反射を分離できないという問題も生じてくる。更に、近年高エネルギー加速器から発生する放射光（SR光）をX線回折のための超強力線源として使用する事が可能となり、線源を限られた時間の間に最も効率良く使用することが重要となってきた。当然、2次元検出器の使用が検討されることになる。

X線フィルムが改めて2次元検出器として評価されている。低分子結晶のためのX線カメラとは全く異なる新しいカメラが生体高分子結晶用に考案され、そのための優れたフィルムデータ処理システムが開発された<sup>2)</sup>。図1は、我々の研究室で最近撮影したリプロース2リン酸カルボキシラーゼ（RuBisCO）の振動写真である。この酵素は光合成細菌 *Chromatium vinosum* から抽出・精製されたが、RuBisCOは光合成におけるペントースリン酸サイクルのCO<sub>2</sub>固定化

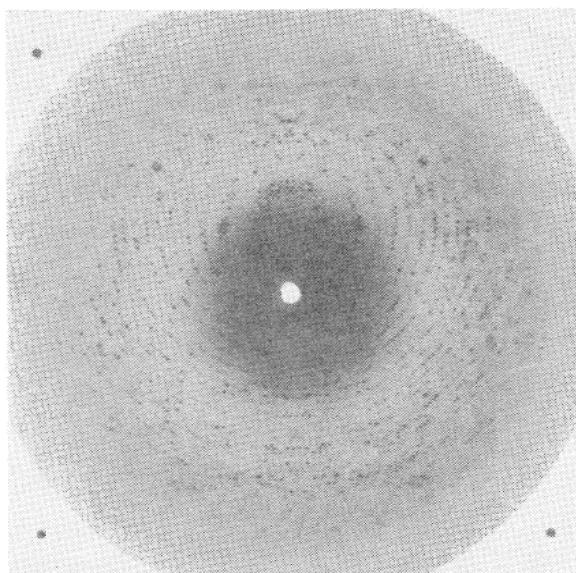


図1. *C. vinosum* のリプロース2リン酸カルボキシラーゼの振動写真法によるX線回折像

反応を触媒する極めて重要な酵素で、分子生物学を遺伝子工学と組み合せる事により、光エネルギーの有効利用と食糧増産を直接結びつける鍵となりうる酵素である。一般に、RuBisCOは8個の大きなサブユニット（L：分子量約55,000）と8個の小さなサブユニット（S：分子量約15,000）からなる分子量約560,000のオリゴマー（L<sub>8</sub>S<sub>8</sub>）として存在する。C. *vinosum* の RuBisCO の場合 L<sub>8</sub>S<sub>8</sub> 分子が結晶学的な222又は4対称を持つため、L<sub>8</sub>S<sub>8</sub> が独立な単位であるが、それでも分子量140,000であり、カウンター法で回折強度を測定することは困難である。この結晶はX線照射による寿命がやや短かく、更に良質の結晶を得る努力が必要であるが、条件の良いものでは1枚の写真に約5000反射を回転対陰極型X線源を用い2～3時間で記録できるであろう。1セットの写真撮影に要する時間を途中作業を考慮して6時間としても、単純に計算して1日に20,000反射の測定が可能となる。100,000個の反射を測定するのに約1週間を要する。入射線源としてSR光を用いると、露光時間そのものは更に数分の1に短縮されるであろう。しかしX線フィルムを使用する限り、膨大な数のフィルムの現像処理等を手作業で行わなければならない。

イメージングプレート（Imaging Plate）は、富士写真フィルム（株）宮台技術開発センター宮原諄二らによって開発されたもので、輝尽性蛍光材料をプラスチックフィルム上に高充填塗布したフレキシブルな2次元センサーである。イメージングプレートをX線像の検出とメモリーの2つの機能に用い、デジタル画像処理システムと組み合せたコンピューテッドラジオグラフィーシステムは、特に臨床医学への応用が注目されている。臓器によっては、従来の蛍光スクリーンとX線フィルムを組み合せたレントゲン写真の100分の1程度の照射線量で鮮明な写真が得られ、一般的医療だけでなく胃の集団検診をはじめとする多くの用途に応用できると報告されている<sup>3)</sup>。

輝尽現象（Photostimulated luminescence, PSL）とは、輝尽性蛍光体がX線、電子線、紫外線等の照射（1次励起）を受けて発光した後、

発光波長の光を照射（2次励起）することにより、最初に照射されたエネルギーに比例した発光が得られる現象である。輝尽性蛍光体としては、2価のユーロピウムイオンをドープしたバリウムフルオロハライド（BaF<sub>X</sub> : Eu<sup>2+</sup>, X = Cl, Br, I）が用いられ、2次励起光としてはHe-Neレーザー（λ = 633 nm）が、また400 nm付近の波長を持つ輝尽発光の計測には、300～500 nmで最も量子効率の高い光電子増倍管が用いられる（図2）。輝尽発光の応答時間はX = Cl, Br, Iについて7.4, 0.8, 0.6 μsと極めて短かく、35×35 cmのプレートを5画素/mmの高密度でレーザー光走査を行った時、画質を損うことなく60秒で読み取りが可能であったと報告されている。<sup>4)</sup>

高エネルギー物理学研究所神谷信夫によって、SR光を用いたイメージングプレートの性能評価に関する研究成果が報告されている<sup>4)</sup>。それによると、イメージングプレートは非常に微弱な入射線強度（約3 photon / (100 μm)<sup>2</sup>）から10<sup>5</sup>の範囲にわたってほぼ直線的な応答を示すのに対し、通常回折強度測定に用いられるX線フィルムでは、ダイナミックレンジは約10<sup>3</sup>でありその応答は直線的ではない。また位置分解能、像の歪み、感度の場所一様性についても調べられたが、イメージングプレートが従来のX線フィルムに比べてはるかに優れた性能を有し、生体高分子の結晶構造解析に対し有効であることが示された。坂部知平らの開発した巨大分子用ワイセンベルグカメラ<sup>5)</sup>を用いて約10,000反射の回折写真を撮影するのに、従来のX線フィルムで90分を要したものが、イメージ

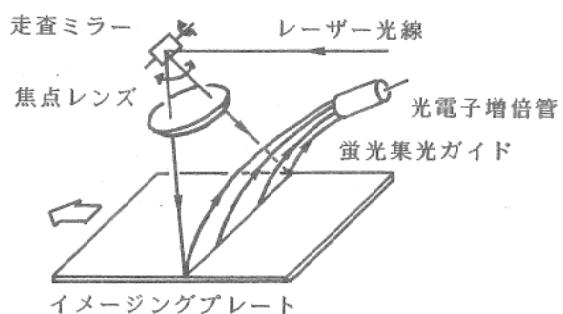


図2. イメージングプレートの画像読み取り装置の概念図

ングプレートを用いることにより約5分の露光で同様の結果を得ている。100,000個の回折強度を記録するのに数時間で十分ということであり、また画像の読み出しも極めて迅速である。今後、イメージングプレートの読み出し装置が汎用化され、SR光施設のみでなく、一般の研究室で回転対陰極型X線発生装置を用いた回折実験にも利用出来る様になれば非常に期待がもたれる。

イメージングプレートに関し貴重な資料を提供いただきました富士写真フィルム(株)長尾亀治氏及びお世話をいただいた中川肇氏に紙面をかりて感謝いたします。

本稿脱稿後、イメージングプレートの特性とそのX線回折実験への応用についての詳細な論文(神谷信夫、雨宮慶幸、宮原諄二)が専門誌

に掲載されたので、是非ご参考下さい<sup>6)</sup>。

## 文 献

- 1) U. W. Arndt, B. T. M. Willis, "Single Crystal Diffractometry," Cambridge University Press, London (1966), p. 99.
- 2) U. W. Arndt, A. J. Wonacott, "The Rotation Method in Crystallography," North-Holland Publishing Company, Amsterdam (1977).
- 3) M. Sonoda, M. Takano, J. Miyahara, H. Kato, Radiology, 148, 833 (1983); 宮原諄二, 加藤久豊, 応用物理, 53, 884 (1984); 山田達哉, 高野正雄, 加藤久豊, 宮原諄二, サイエンス, 1984, 82; 宮原諄二, 固体物理, 21, 48 (1986).
- 4) 神谷信夫, 日本結晶学会年会講演要旨集(1985年).
- 5) N. Sakabe, J. Appl. Cryst., 16, 542 (1983).
- 6) 神谷信夫, 雨宮慶幸, 宮原諄二, 日本結晶学会誌, 28, 350 (1986).

