

2 結晶型パラメトリック X 線源におけるダイヤモンド単結晶の試験 TEST OF DIAMOND SINGLE CRYSTALS IN THE PARAMETRIC X-RAY SOURCE BASED ON A DOUBLE-CRYSTAL SYSTEM

早川恭史 *^{A)}、雫石崇^{B)}、石橋直也^{B)}、早川建^{A)}、稲垣学^{A)}、中尾圭佐^{A)}、野上杏子^{A)}、
境武志^{A)}、佐藤勇^{C)}、田中俊成^{A)}

Yasushi Hayakawa*^{A)}, Takashi Shizukuishi^{B)}, Naoya Ishibashi^{B)}, Ken Hayakawa^{A)}, Manabu Inagaki^{A)},
Kesuke Nakao^{A)}, Kyoko Nogami^{A)}, Takeshi Sakai^{A)}, Isamu Sato^{C)}, Toshinari Tanaka^{A)}

^{A)}Laboratory for Electron Beam Research and Application, Institute of Quantum Science, Nihon University,
Narashinodai 7-24-1, Funabashi 274-8501, Japan

^{B)}Department of Radiology, Nihon University School of Medicine, Oyaguchi Kami-cho 30-1,
Itabashi-ku, Tokyo 173-8610, Japan

^{C)}Advanced Research Institute for the Sciences and Humanities, Nihon University, Goban-cho 12-5,
Chiyoda-ku, Tokyo 102-8251, Japan

Abstract

Diamond single crystals that are commercially available were tested for a double-crystal system of the X-ray source based on parametric X-ray radiation (PXR) at the Laboratory for Electron Beam Research and Application (LEBRA), Nihon University. Since a diamond crystal has a smaller spacing of crystal planes than a silicon crystal, higher energy X-rays can be obtained from the diamond crystal as a PXR radiator at the same Bragg angle. Although the size of the diamond single crystals used in this experiment was not sufficient for the 2nd crystal of the LEBRA-PXR source, a tunable PXR beam from the diamond crystal was successfully observed and X-ray imaging was carried out using the PXR beam up to 60 keV. When the propagation distance between the sample and the detector was 4 m, the image contrast improved probably due to the propagation-based phase-contrast effect. Except the problem on the target destruction, the result suggests that diamond crystals have good properties as a radiator for high energy PXR.

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、125 MeV 電子リニアックを利用したパラメトリック X 線放射 (PXR: parametric X-ray radiation) を原理とする X 線源を開発し、運用している^[1]。これまでに、回折強調イメージングに代表される X 線位相コントラストイメージングや、分散型 X 線吸収微細構造分析といった応用において成果が得られている^[2,3]。LEBRA-PXR 線源は、電子ビームが照射されて PXR の放射源となるターゲット結晶と、発生した PXR ビームを遮蔽壁の貫通孔を通して輸送するための反射用結晶の 2 つの結晶で構成されている。効率良く反射用第 2 結晶で PXR ビームを回折するためには、2 つの結晶を完全結晶の同じ結晶面で揃える必要がある。結晶の完全性や入手可能な結晶サイズの制約もあって、これまではシリコン単結晶を用いてきた。非常に完全性の高いシリコン結晶を商業的に入手することが可能で、その使用により高い空間コヒーレンスを有する PXR ビームが得られている。

PXR の X 線源としての大きな特徴として、発生する X 線のエネルギー (波長) が電子ビームのエネルギーにほとんど依存しないことが挙げられる。入射電子のエネルギーと運動量、速度をそれぞれ $E, \mathbf{p}, \mathbf{v}$ とすると、単位ベクトル $\boldsymbol{\Omega}$ に沿った方向に放射される PXR エネル

ギー $\hbar\omega$ は、

$$\hbar\omega \approx \hbar \left(\frac{\omega}{c} \boldsymbol{\Omega} - \mathbf{g} \right) \cdot \frac{\mathbf{p} c^2}{E} = \frac{\hbar c |\mathbf{g} \cdot \mathbf{v}|}{c - \mathbf{v} \cdot \boldsymbol{\Omega}}, \quad (1)$$

と表される。ここで、 \mathbf{g} は放射源となる結晶の逆格子ベクトルである。入射電子が十分に相対論的であれば、 \mathbf{g} を選ぶことにより PXR のエネルギーを制御することができる。通常の X 線回折における Bragg 角に相当する、結晶面と電子の速度が成す角を変えることにより、非常に広いエネルギー範囲の X 線を発生させることが原理的にはできる。しかしながら、LEBRA-PXR 線源の場合、2 結晶システムの装置上の制約のために Bragg 角の範囲が $5.5^\circ \sim 30^\circ$ に制限されており、これが発生可能な PXR のエネルギー範囲を制約している^[4]。当初は結晶面として Si(111) のみを用いていたため、発生可能な PXR の範囲は $4 \sim 20$ keV に限られていたが、より高次の結晶面である Si(220) 面を用いることにより、34 keV までの X 線の発生が可能となった^[5]。

式 (1) にあるように、結晶面間隔が狭い方が大きな Bragg 角で高いエネルギーの X 線を発生させることができる。つまり、格子定数の小さな結晶の方が、X 線エネルギーの高エネルギー化には有利である。ダイヤモンド結晶とシリコン結晶は結晶構造は同じダイヤモンド構造となっているが、格子定数はダイヤモンドが 3.56 \AA 、シリコンが 5.42 \AA であるため、同じ幾何条件ならばダイヤモンドで発生する PXR のエネルギーはシリコンによるものの約 1.5 倍となる。加えて、ダイヤモンド結晶は制動放射による放射損失が少なく、熱的にも融点が高く

* yahayak@lebra.nihon-u.ac.jp

熱伝導率も非常に良いという、ターゲット材質として有利な特性を備えている。歴史的にも世界で初めて PXR の観測に成功した実験ではダイヤモンド結晶が用いられており、古くから PXR 放射源に適した物質であると認識されてはいた^[6]。しかしながら、LEBRA-PXR 線源の 2 結晶システムには反射輸送用に大きなサイズの完全結晶が必要なため、ダイヤモンドを PXR 放射源に採用するのは困難であった。

2. ダイヤモンド単結晶

プラズマ CVD 法で製作される多結晶のダイヤモンド結晶板は比較的大きなものが入手可能となったが、単結晶の人工ダイヤモンドは超高压法での合成が必要で、大きなサイズの結晶の入手は技術面でも、経済面でも困難であった。しかしながら近年、1 cm 四方程度の大きさの単結晶が旋盤のバイトなどの用途を想定して商品化されるようになり、比較的安価に入手可能となった。今回、試験的に住友電工製の人工ダイヤモンド単結晶 (商品名: スミクリスタル) を導入し、PXR 線源として試験することにした。不純物として窒素が比較的多く入っているため、黄色い色をしている。今回使用したダイヤモンド結晶の特性を Table 1 に示す。

Table 1: Characteristics of synthetic diamond single crystal

Diamond type	type Ib
Lattice constant	3.567 Å (25°C)
Density	3.515 g/cm ³ (25°C)
Impurity (Nitrogen)	1 ~ 10 ² ppm
Electric resistivity	10 ¹⁴ Ω·m
Thermal conductivity	< 2000 W/m·K
Crystal dimension	
Target crystal:	5 mm × 5 mm × 1 mm
2nd crystal:	(6~7 mm) ² × 2 mm
Main crystal face direction	(100)

ここで問題となるのが、反射用第 2 結晶のサイズである。LEBRA-PXR 線源では PXR の輸送ラインが電子ビームラインから 200 mm 離れて平行に設置されており、Bragg 角が θ_B のときのターゲット結晶-第 2 結晶間の距離 L は $L = 200 / \sin 2\theta_B$ [mm] となる。PXR も他の相対論的な電子による放射と同様に、 $1/\gamma = m_e c^2 / E$ (m_e : 電子質量) に比例した角度広がりを持った円錐状の放射となるため、Bragg 角が小さくなると第 2 結晶のところで PXR ビームサイズが大きくなり、実際に反射して輸送できる X 線量が結晶のサイズに強く依存してしまう。現在のシリコン単結晶を使用する系では、第 2 結晶として 120 mm × 37 mm × 5 mm のサイズのものを用いている。ダイヤモンド結晶も第 2 結晶としては標準品のラインナップにある最大のものを選んだが、それでもシリコン結晶の 1/100 強の面積にしかならない。このため、Bragg 角が大きくてもエネルギーの高い PXR が発生するように次数の高い結晶面を選んで用いることにし、標準品での入手性を考慮して (400) 面を採用した。この面の場合、40 keV, 50 keV, 60 keV に対応する Bragg 角はそれぞれ 9.9°, 7.9°, 6.6° となる。次数の高い

面の使用は発生する PXR の量や第 2 結晶における反射率については不利な条件である。例えば (220) 面と比べてると、(400) 面を使って LEBRA-PXR 線源から取り出せる強度は、同じ X 線エネルギーに対して 1/3 ~ 1/4 程度になると予想される。しかしながら、ダイヤモンド単結晶の場合は結晶サイズの制約が大きいため、試験研究としては X 線量については妥協して実施することにした。

3. 実験結果

今回のダイヤモンドを用いた実験は、シリコン単結晶を用いて利用実験に X 線ビームを供給する場合と同じ電子ビーム条件で行われた。具体的には、電子エネルギー 100 MeV、マクロパルス電流 130 mA、マクロパルス幅 5 μs、パルス繰返し 5 pps である。電子ビーム平均電流は、およそ 3 μA と見積られる。

3.1 イメージング実験

今回が LEBRA-PXR 線源でダイヤモンド結晶を放射源として使用する最初の実験であったため、ゴニオメータの角度オフセットや第 2 結晶用ゴニオメータ並進移動軸の位置パラメータなどについての前例が無く、広くパラメータスキャンを行って第 2 結晶での回折曲線のピークを見つける必要があった。30–40 keV 付近で探索したところ、第 2 結晶の回折曲線と思われるピークを発見したため、結晶の仰角などを調整し、Si(220) の場合と同様に Ag の K 殻吸収端を使ってエネルギー較正を行い、イメージング実験を開始した。Figure 1 に 40 keV の PXR ビームを用い、放射源のターゲット結晶から 7.3 m 下流の X 線取り出し窓直後で撮像した結果を示す。図からわかるように、第 2 結晶のサイズの制約のために X 線ビームサイズは直径 100 mm の X 線窓より小さく、40 keV の場合で 35 mm × 85 mm 程度の大きさであった。またダイレクトビーム自体に強度ムラがあり、結晶の均一性に関してはシリコン結晶に比べて劣ることが示唆される。ターゲット結晶、第 2 結晶ともに小さいため、結晶の側面から放出されたり、逆に側面から入射する X 線の割合がかなり多いことも影響している可能性もある。ビームの右上に交点を持つ複数の線状の模様が見えるが、これはシリコン結晶の場合にも見られるもので、結晶の欠陥によるトポグラフと考えられる。また、

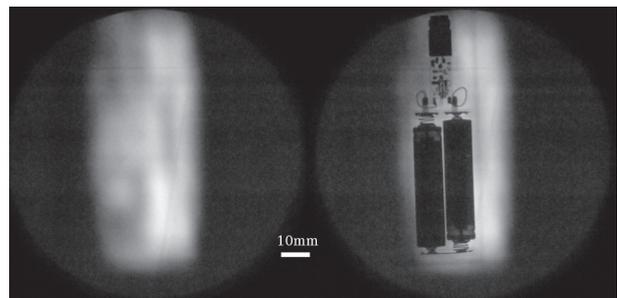


Figure 1: The results of X-ray imaging for the direct beam (left) and a laser pointer (right) using the 40-keV PXR beam. Each exposure time was 5 min using an imaging plate (IP).

Fig. 1 の右図は試料として小型のレーザポインタを撮像したものであり、単 4 乾電池が入っているのがわかる。これらの画像は検出器としてイメージングプレート (IP) を用い、撮像時間 5 分で得られたものである。

撮像時間を 15 分に伸ばして X 線透過像の取得を試みた結果を Fig. 2 に示す。この測定は検出器である IP を PXR 出力窓直後に置いて行ったため、ダクトストリーミングで運ばれた低エネルギー散乱 X 線の影響を受けている。また、PXR のエネルギーを 50 keV に上げて取得した結果も同様に Fig. 3 に示す。エネルギーが高くなって透過力が増した半面、第 2 結晶のサイズ不足が顕著となって回折で輸送できる割合が小さくなったことが分かる。なお、X 線のエネルギーについては 40 keV は Ce の K 殻吸収端 (40.444 keV) を、50 keV は Gd の K 殻吸収端 (50.239 keV) を用いて確認した。

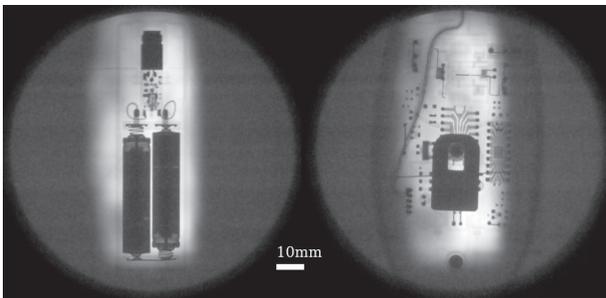


Figure 2: The results of X-ray imaging for a laser pointer (left) and a mouse device (right) using the 40-keV PXR beam. Each exposure time was 15 min using an IP.

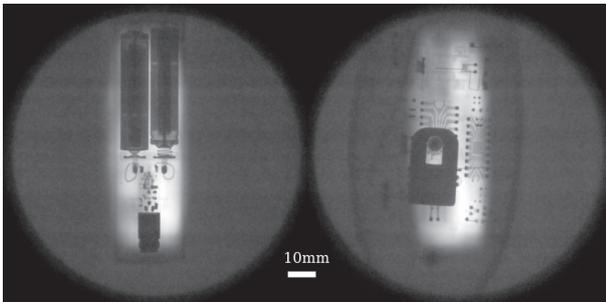


Figure 3: The results of X-ray imaging for a laser pointer (left) and a mouse device (right) using the 50-keV PXR beam. Each exposure time was 15 min using an IP.

3.2 結晶損傷と X 線の不安定性

エネルギー選択単色 X 線イメージングの実験には成功したが、ターゲット結晶の破損に起因すると思われる X 線の不安定性に遭遇した。Figure 4(a) は PXR エネルギー 34 keV の時に記録された、不連続的で不可逆的な PXR 強度の変化である。この瞬間的な変化以外は目立った強度変動は見られなかったが、その前後の第 2 結晶による回折曲線を比較すると、Fig. 4(b) にあるように明かに曲線の形が変わっていた。これとは別に、本来はシングルピークであるはずの回折曲線が、きれいなダブルピークとなっているケースもあった。これらの状況から、電子ビームの照射によってターゲット結晶が突発的

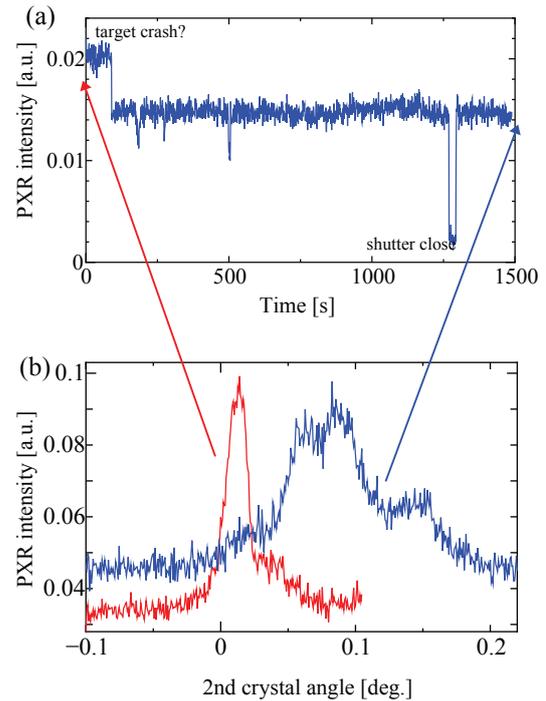


Figure 4: (a) Discontinuous and irreversible trip of the PXR intensity recorded at 34 keV. (b) Comparison between the rocking curves at the 2nd crystal before and after the intensity trip.

に割れ、部分的に多結晶的になって第 2 結晶の回折条件を満たさなくなる割合が増えた結果と推測される。

結晶の破損が原因と考えて、加速器のステアリングやゴニオメータを調整して電子ビームが当たる箇所をずらすことにより、PXR 強度はある程度は回復した。しかしながら、一度亀裂の入ったダイヤモンド結晶は割れやすくなるようで短時間で同様の事象が発生し、同じような対処を繰り返すこととなった。一方、突発的ではなく徐々に PXR 強度が減少していくような現象は特に観測されなかった。

3.3 伝搬型位相コントラストイメージング

シリコン単結晶を用いた PXR 線源では結晶の回折を利用した位相コントラストイメージングで大きな成果が得られているが、これにはターゲットおよび第 2 結晶と同じ結晶面をもつ大面積の分光結晶が必要となるため、ダイヤモンド結晶を線源とする場合には実施困難である。しかしながら、試料-検出器間の伝搬距離を長くとるにより X 線の干渉効果で試料の境界が強調される、伝搬型位相コントラスト法なら実験可能である [7]。

実験は、X 線出力窓から 4 m 下流に検出器である IP を設置し、試料を IP の直前に置いた場合 (伝搬距離 0 m) と X 線窓直後に置いた場合 (伝搬距離 4 m) で比較した。線源であるターゲット結晶から X 線窓までは 7.3 m、IP までは 11.3 m となるため、伝搬距離 4 m の像は伝搬距離 0 m の像の約 1.5 倍の拡大像となる。Figure 5 は PXR エネルギー 40 keV での実験結果で、上が伝搬距離 0 m の像で下が伝搬距離 4 m の像であり、それぞれ部分的に拡大した像を右側に添付している。伝搬距離 4 m の

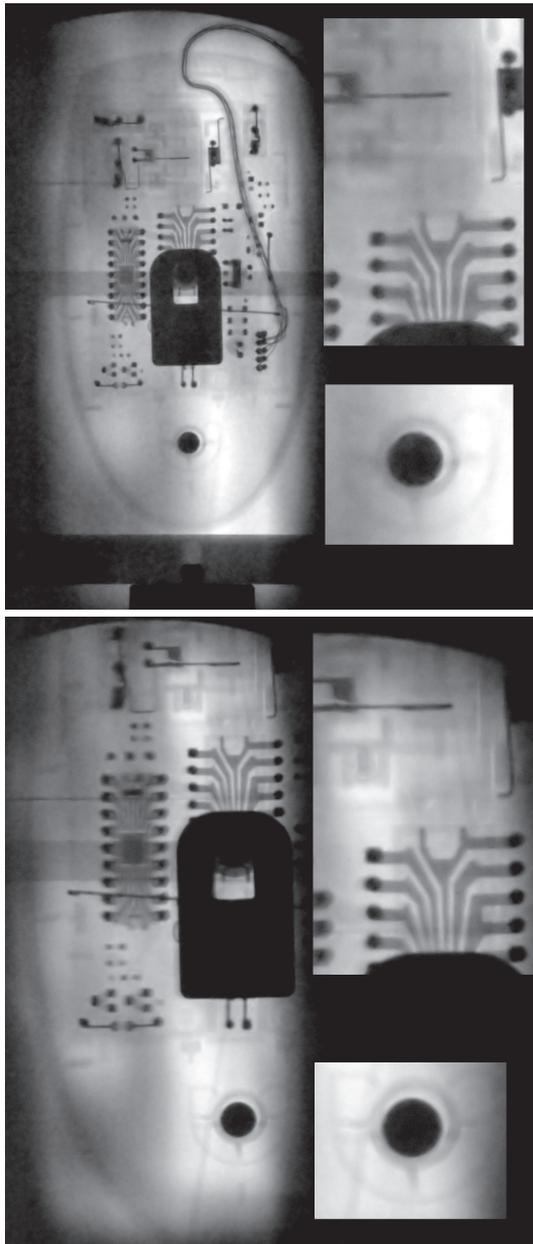


Figure 5: The result of the propagation-based phase-contrast imaging using the 40-keV PXR beam; upper: 0-m propagation, lower: 4-m propagation. Each exposure time was 30 min using an IP.

像を見ると、拡大率に関しては測定の幾何条件に整合しているが、左半分領域だけ2重にダブったような感じで像の品質が悪化しているのがわかる。右側にはそのような現象は見られないので、線源サイズに起因する像のボケではないと思われる。ターゲット結晶の側面の寄与により像が2重にブレる現象はシリコン結晶の場合でも経験しており、これもターゲット結晶あるいは第2結晶の形状に起因する問題である可能性が高い^[8,9]。

結晶に起因する問題はあるものの、状態の良い像の右側で比べると、X線の吸収が弱いプラスチックなどの軽元素で構成されている部分の視認性が向上しているのがわかる。吸収の強い部分では目立った違いがない

ことも考慮すると、この視認性の向上は伝搬型位相コントラストの効果によるものと思われる。この結果は、品質の良いダイヤモンド単結晶を用意することができれば、40 keV以上のX線エネルギー領域においても空間コヒーレントなX線ビームが比較的容易に得られる、ということを示唆している。

3.4 60 keV-X線発生テスト

一連のダイヤモンド結晶を用いた実験の最後として、60 keVのX線の発生を試みた。既にターゲット結晶の劣化が相当進んだ状態での実験であり、また現有の検出器の感度が非常に低くなるエネルギー領域であるため、まともにX線のモニタリング計測ができない状態での測定であった。PXR発生装置のゴニオメータのパルス座標の精度を信用し、PXRエネルギー61 keVに相当するBragg角6.5°に角度を合わせただけで、モニターしながらの調整をしないままIPを使った撮像を試みた。また、第2結晶のサイズ不足がより顕著になり、輸送可能なビームサイズがさらに小さくなるため、PXRビームサイズが1.5倍に拡大されるX線出力窓から4 m下流において撮像を行った。Figure 6がその結果であり、試料はレーザーポインタおよびコンパクト・デジタルカメラである。悪条件が重なった測定であり、撮像時間も30分掛かっているが、それでも60 keVの単色X線の発生とそれを用いたX線像の取得に成功したことは、ダイヤモンド結晶のX線源としての可能性を示すという点で大きな意義があったといえる。

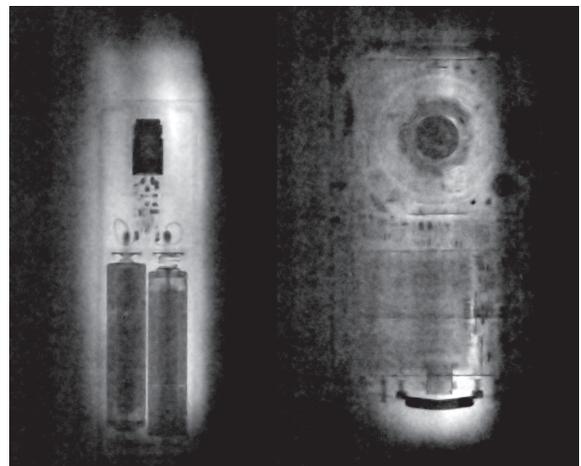


Figure 6: The results of X-ray imaging for a laser pointer (left) and a digital camera (right) using the 61-keV PXR beam. Each exposure time was 30 min using an IP.

4. 結晶の損傷の様子

ダイヤモンド単結晶をPXR線源として試験する実験を終えた後、ダイヤモンド結晶を取り出して、通常のシリコン単結晶のセットに戻した。取り出されたダイヤモンド結晶を確認したところ、反射用第2結晶には特に使用前から変わったところは見られなかったが、ターゲット結晶は黒く変色していた。実験後のターゲット結晶の写真をFig. 7に示すが、予想通り無数のひび割れが生じていた。亀裂の方向は比較的揃っており、やはり壁開面



Figure 7: Photographs of the target crystal after the experiment, in which the crystal was irradiated with the 100-MeV electron beam from the linac.

に沿って割れていると思われる。また、Fig. 7 右図は結晶の裏側（電子ビームが抜けて出て行く側）の写真だが、奇妙なことに、表面がザラザラになっていた。電子が入射する表側にはこの様な変化は見られず、電子の前方に発生する制動放射と関係のある現象かもしれない。

今回用いたダイヤモンド結晶は、見た目にも黄色く不純物として窒素が多く含まれるものであったため、電子の照射によってカラーセンターが生じやすく、急速に黒色化が進んだものと思われる。PXR の挙動において、漸進的に強度が弱くなる振舞いは特に観測されていないので、断定はできないが、電子照射によって黒鉛などへ結晶が構造変化してしまうというような影響は少ないように思われる。

問題はやはり結晶のひび割れである。厚さ 1 mm というターゲットとしてはかなり厚いものを用い、しかも銅製のホルダーにかなりきつく固定したことがひび割れを誘発した可能性がある。また取り出される PXR ビームの空間プロファイル不均一性も、第 2 結晶も含めて、ホルダーへの固定で生じた結晶の歪みがその一因であったかもしれない。結晶の固定については、今後検討の上、改善していく必要がある。

5. まとめ

LEBRA-PXR 線源の 2 結晶システムを用い、市販で入手可能なダイヤモンド単結晶を PXR 線源として試した。結晶の品質やサイズに関しては十分とはいえないが、(400) 面を用いることにより、従来のシリコン結晶ではまだ達成していない 34 keV 以上の PXR の発生を確認し、それを使って X 線像を取得することができた。測定上の問題はあったが、最高 X 線エネルギーとして 61 keV を達成した。

得られる PXR ビームの品質について、伝搬型位相コントラストイメージングによって確認したところ、結晶の状態の良いところでは 40 keV で位相コントラストの効果が観測できた。単結晶を用いれば、たとえ X 線のエネルギーが高くなっても、シリコン結晶と同様に空間コヒーレントな X 線ビームが得られることが、PXR の本質的な特性としてわかった。

問題点としては、電子ビーム照射によってターゲット結晶に突発的にひび割れが生じることが明らかになった。結晶の損傷については、シリコン結晶とは傾向が大きく異なる。結晶のホルダーへの固定法も原因の一つと考えられ、今後改善していく必要がある。

参考文献

- [1] 早川恭史, 加速器 **6** (2009) 166.
- [2] Y. Takahashi, Y. Hayakawa, et al., X-Ray Spectrom. **41** (2012) 210, doi: 10.1002/xrs.2403.
- [3] M. Inagaki, Y. Hayakawa, et al., Jpn. J. Appl. Phys. **47** (2008) 8081, doi: 10.1143/JJAP.47.8081.
- [4] Y. Hayakawa, I. Sato, K. Hayakawa, T. Tanaka, Nucl. Instrum. and Meth. B **227** (2005) 32, doi: 10.1016/j.nimb.2004.06.028.
- [5] Y. Hayakawa, K. Hayakawa, et al., Proceedings of the 6th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Tokai (2009) 748, http://www.pasj.jp/web_publish/pasj6/papers/toapa01.pdf
- [6] Yu. Adishchev, V. G. Baryshevsky, et al., Sov. Phys. JETP Lett. **41** (1985) 361.
- [7] Y. Hayakawa, K. Hayakawa, et al., Nucl. Instrum. and Meth. B **266** (2008) 3758, doi: 10.1016/j.nimb.2008.02.042.
- [8] Y. HAYAKAWA, K. HAYAKAWA, et al., IL NUOVO CIMENTO **34C** (2011) 253, doi: 10.1393/ncc/i2011-10910-2.
- [9] Y. Hayakawa, K. Hayakawa, et al., Proceedings of the 7th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Himeji (2010) 788, http://www.pasj.jp/web_publish/pasj7/proceedings/P_5PM/P_EH_5PM/THPS009.pdf