

日大 LEBRA-PXR 線源による 40keV 単色 X 線の生成とその特性

CHARACTERISTICS OF MONOCHROMATIC 40-keV X-RAYS PRODUCED BY THE LEBRA-PXR SOURCE AT NIHON UNIVERSITY

早川恭史 ^{*,A)}, 早川建 ^{A)}, 野上杏子 ^{A)}, 境武志 ^{A)}, 高橋由美子 ^{A)}, 田中俊成 ^{A)},
胡桃聡 ^{B)}, 住友洋介 ^{B)}, 吉川将洋 ^{B)}

Yasushi Hayakawa ^{*,A)}, Ken Hayakawa ^{A)}, Kyoko Nogami ^{A)}, Takeshi Sakai ^{A)}, Yumiko Takahashi ^{A)},
Toshinari Tanaka ^{A)}, Satoshi Kurumi ^{B)}, Yoske Sumitomo ^{B)}, Masahiro Yoshikawa ^{B)}

^{A)} Laboratory for Electron Beam Research and Application, Institute of Quantum Science, Nihon University

^{B)} College of Science and Technology, Nihon University

Abstract

The energy range of the parametric X-ray (PXR) source at the Laboratory for Electron Beam Research and Application (LEBRA) of Nihon University has been extended to cover 40-keV region. The purpose of the energy-up effort is to non-destructively observe fuel battery cells containing heavy elements such as cerium. To achieve the production of monochromatic X-rays higher than 40 keV, Si(400) crystal planes were adopted for the PXR radiator. The observation of the X-ray beam from the Si(400) crystal system has been performed and the characteristics of the X-rays obtained strongly suggest that the high-energy X-rays are caused by 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) は 125 MeV 電子リニアックを用いた光源利用施設であり、近赤外自由電子レーザー (FEL: free electron laser)、パラメトリック X 線放射 (PXR: parametric X-ray radiation)、テラヘルツ (THz) 領域コヒーレント放射という 3 種類の光源を共同利用研究に供している [1]。その中でも PXR 線源は世界的にユニークなものであり、連続エネルギー選択性を有し、空間コヒーレンスが要求される応用にも適用可能な X 線源である [2-5]。PXR は周期構造を持つ結晶性媒質と相対論的荷電粒子の相互作用で生じる放射現象であり、発生する X 線のエネルギーは電子速度と結晶面のなす角度 (Bragg 角に相当) で決まり、電子エネルギーへの依存性が非常に低く、結晶を回転させることで連続的に調整可能である。LEBRA には PXR 用のビームラインが設けられており、電子ビームのパラメータは Table 1 のようになっている。放射源の結晶には電子照射に対する耐久性等を考慮し、シリコン (Si) 単結晶を用いている。

LEBRA-PXR 線源では、これまでに Si(111) 面あるいは Si(220) 面の結晶を放射源として用い、それぞれ 4-20.5 keV, 6.4-33.5 keV の範囲の単色 X 線を供給してきた [6]。今回、利用研究者の提案が NEDO プロジェクト「可逆動作型プロトン伝導セラミック燃料電池の新規な健全性評価・解析技術の開発」(吉川将洋) として採択され、その中で燃料電池セルの非破壊測定に取り組む予定であることから、PXR 線源でより高エネルギーの X 線の発生を目指すことになった [7]。40 keV 以上の X 線の発生が可能となるよう検討した結果、放射源として Si(400) 面を採用すること

Table 1: Specification of the LEBRA Linac in the PXR Operation Mode

Acceleration frequency	2856 MHz
Electron energy	100 MeV
Electron spread	$\leq 1\%$
Average beam current	$\sim 2.5 \mu\text{A}$
Macropulse duration	5 μs
Macropulse current	$\sim 100 \text{ mA}$
Macropulse repetition rate	5 pps

にし、PXR 線源に導入して試験運転を開始した [8]。

2. LEBRA-PXR 線源の仕様と特性

LEBRA-PXR 線源は 2 結晶構成となっており、第 1 結晶が電子ビームが照射されるターゲットとなり、PXR の放射源となる。第 2 結晶はターゲットとなる結晶から放射された PXR を回折により反射し、固定ポートを介して人が立ち入れる実験室に輸送する役目を担う。PXR は連続的なエネルギー選択性を有するが、エネルギーの変化とともに放出方向も変わるため、実用的な X 線源として機能するためには第 2 結晶の働きが重要である。PXR ビーム全体を効率良く回折するのにターゲットと同じ結晶面を用いる必要があるが、その回折角はターゲットの Bragg 角より僅かに小さくする必要があるのであるため、対称なチャンネルカット型の 2 結晶系ではなく分離型の 2 結晶分光器と同様の構成となっている [9]。

PXR の場合、他の放射現象と異なり X 線エネルギーは結晶の面間隔とターゲット結晶の Bragg 角で決まる。LEBRA-PXR 線源の場合、第 2 結晶の駆動範囲に限界があるため、Bragg 角 θ_B の範囲は $5.5\sim 30^\circ$ に制限される。そのため、Bragg 角を小さくすることで高エネルギー化を実現することは困難であり、

* hayakawa.yasushi@nihon-u.ac.jp

Table 2: Energy Range of the LEBRA-PXR Source

Bragg angle θ_B :	30 – 5.5°
Si(111) target:	4.0 – 20 keV
Si(220) target:	6.5 – 33.5 keV
Si(311) target:	7.6 – 39.3 keV
Si(400) target:	9.1 – 47.4 keV

面間隔の狭い結晶の利用が現実的である。Si 単結晶の場合、(111) や (220) より高次な面としては (311) や (400) がある。特に Si(400) 面は低次が禁制反射となり最低次の面間隔が格子定数の 1/4 となる。これは Si のようなダイヤモンド型の結晶構造の特徴である。

PXR のエネルギー $\hbar\omega$ は、放射源となる結晶の逆格子ベクトルを \mathbf{g} , 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、

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

と表される [10]。ここで c は光速, $\boldsymbol{\Omega}$ は X 線が放出される方向の単位ベクトルである。電子エネルギーには依らず、結晶と電子ビーム軸が作る幾何学条件で X 線エネルギーが決まるため、対応可能なエネルギーをより高エネルギー側にシフトするのに電子エネルギーを高くする必要は無く、より面間隔の狭い結晶を放射源に採用すればよい。Table 2 は使用する結晶面と LEBRA-PXR 線源で発生可能な X 線エネルギー範囲を示す。

また、Eq. (1) は \mathbf{g} が固定されていても X 線の放出方向 $\boldsymbol{\Omega}$ に応じて変化することも示している。PXR も他の放射現象と同様に $1/\gamma = m_e c^2/E$ (m_e : 電子の静止質量) に依存して円錐状に広がっており、その分布中にほぼ線形なエネルギー分散 (空間チャープ) を持っている。このエネルギー分散が円錐ビームのまま効率良く単結晶を用いて反射できる理由となっている [11]。第 2 結晶で反射された PXR ビームはターゲット結晶から 7.3 m 離れた X 線窓から取り出されるが、そこでは既に 100 mm に広がっている。Figure 1 は Bragg 角が 5.5° の時に、Si(220), Si(311), Si(400) 面を用いた 2 結晶系から得られる PXR 収量を第 2 結晶の回折曲線として計算したものである。Si(400) は Si(220) と比べると 1 桁程度収量が低下するが、Si(311) と比べるとほとんど差がない。40 keV 以上の領域の X 線が欲しいことを考慮すると、Si(400) の採用が適切である。

3. 電子多重散乱の影響とシリコン (400) 面から得られる PXR の特性

高エネルギー化のため、PXR 線源に導入する Si(400) 結晶を用意したが、従来の結晶を踏襲し、不純物が少なく結晶としての完全性が高い FZ-Si の結晶板を歪の少ない無擾乱研磨したものにした。放射源となるターゲット結晶は大きさが W25 mm ×

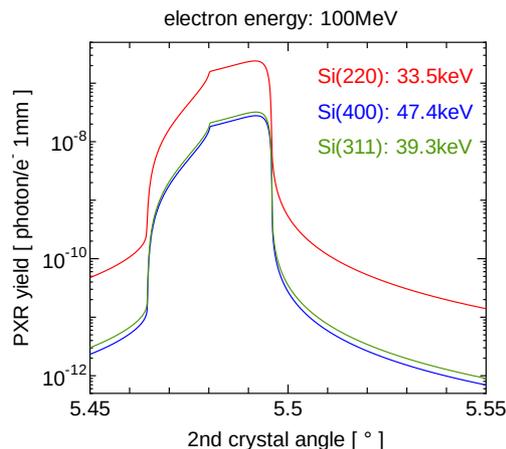


Figure 1: Rocking curves at the 2nd crystal of the LEBRA-PXR source for three different Si crystal planes when the Bragg angle of the target crystal is 5.5°.

H70 mm、厚さが 0.2 mm でエッジの部分に 3° の楔形加工を施している。楔加工は、表面と側面から射出される X 線の方向が屈折効果により僅かに異なり、イメージングなどで空間コヒーレンスの悪化の原因となるのを防ぐための処置である [12–14]。X 線ビームの輸送を担う第 2 結晶は、大きさが W120 mm × H37 mm、厚さが 5 mm であり、押さえ金具による歪を避けるため自立するよう L 字型にしてある。

ターゲット結晶は厚さ 0.2 mm であるが、電子ビームが通過する厚さは $0.2/\sin\theta_B$ [mm] となる。通常、1~2 mm 通過することになるため、電子ビームのエミッタンスは結晶内の電子多重散乱により大きく悪化する。原子番号 Z , 原子数密度 N の媒質を厚さ Δz 通過すると、電子の発散角 ψ の分散は

$$\Delta\overline{\psi^2} \cong 16\pi\alpha^2(\hbar c)^2 Z(Z+1)N \ln(183Z^{-\frac{1}{3}}) \frac{\Delta z}{E^2}, \quad (2)$$

だけ増加する [15]。ここで α は微細構造定数である。

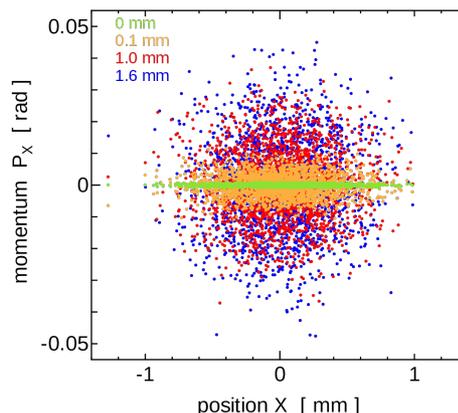


Figure 2: The result of Monte-calro simulation for the emittance growth of 100-MeV electron beam due to electron multiple-scattering in silicon medium, where the parameter is the thickness of the medium.

この効果をモンテカルロ法で取り入れ、100 MeVの電子ビームに対し、Si 媒質中のエミッタンスの変化を計算した結果を Fig. 2 に示す。ここで入射時の規格化エミッタンスを 20π mm-mrad、rms 半径を 0.3 mm としている。結晶通過後は電子ビームサイズはほとんど変化しないが、発散は急速に増大し、厚さ 1 mm 通過後には規格化エミッタンスは 660π mm-mrad 程度になる。

結晶内の電子ビーム発散増大の影響は、PXR の空間分布に現れる。Figure 3 に規格化エミッタンスが 20π mm-mrad の場合と 660π mm-mrad の場合について、Si(400) 面を用いた 2 結晶系から得られる PXR ビームプロファイル計算したものを示す。電子ビームの発散が少ない場合は中心部のが凹んだリング状のプロファイルとなるが、発散が大きくなるにつれて中心の凹みが埋まっていき、それらの重ね合わせにより実際に得られる PXR プロファイルは平坦化する。実はこの電子ビーム発散による平坦化はイメージング等の応用にとっては大きな利点となっている。Equation (1) に基づく計算をすると、電子速度 v の方向が少し異なっても、X 線の放出方向 Ω が同じであれば X 線エネルギーは同じになる [16]。これは波面を保ったまま強度分布が平坦化することを意味し、空間コヒーレンスの高い円錐状の X 線ビームとなる。実際、LEBRA-PXR 線源を用いて高い空

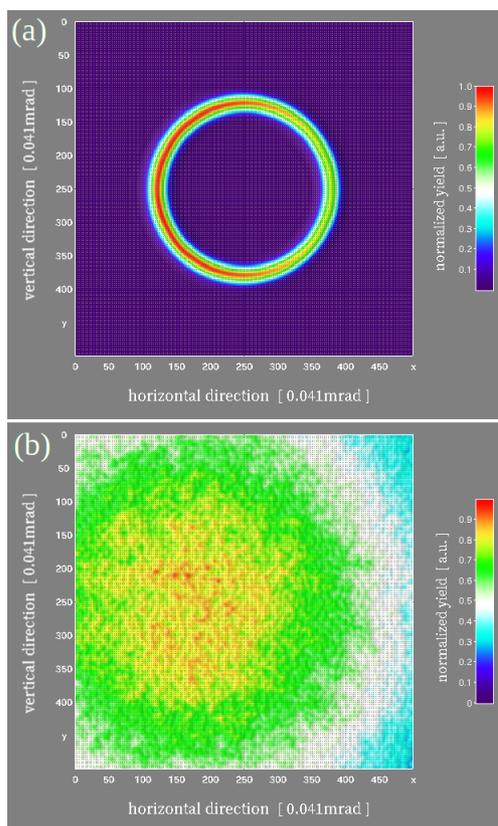


Figure 3: The calculated profiles of the PXR beam from a Si(400) double-crystal system when the electron beam emittance is (a) 20π and (b) 660π mm-mrad.

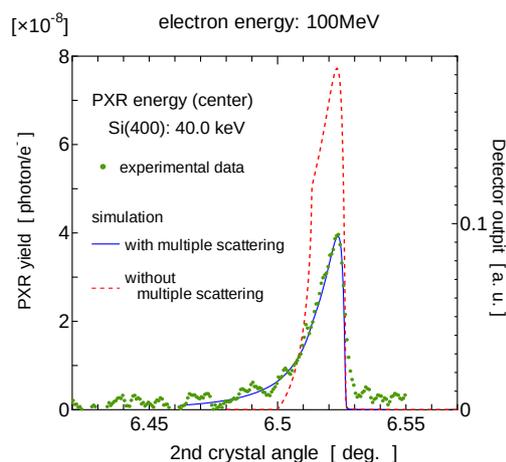


Figure 4: The rocking curve for PXR from the Si(400) target crystal at the 2nd crystal of the PXR source in comparison with theoretical calculations.

間コヒーレンスが要求される回折強調イメージングを実施しており、位相コントラスト像や超小角散乱像が得られている [17, 18]。

Si(400) 結晶を PXR 線源に導入し、40 keV が得られる Bragg 角において PXR の発生と観測を試みた。ガス電離箱を用いて測定した第 2 結晶回折曲線が、Fig. 4 に示すように電子多重散乱の効果を含んだ理論計算と極めて良い一致を示した。この結果から、PXR に起因する X 線が得られたものと考えている。また、電子多重散乱を含んだ理論曲線のピーク高は多重散乱の影響が無い場合に比べて半分程度になっている。完全性の高い Si(400) 単結晶の 40 keV-X 線に対する回折幅は 0.0002° 程度であり、結晶内での電子ビーム発散の増大により第 2 結晶での回折効率が低下し、X 線収量を制約する一因となっていることが示唆される。

回折曲線のピーク付近で取得された PXR のビームプロファイルが Fig. 5 である。放射源の結晶から

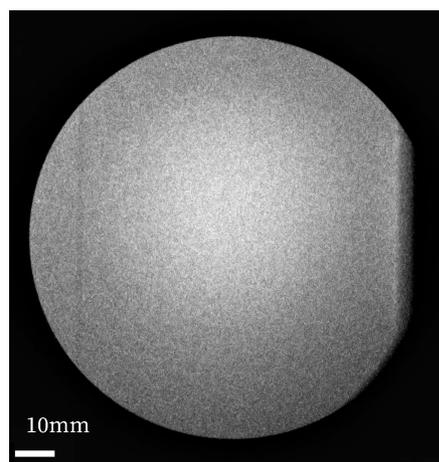


Figure 5: The 40-keV PXR profile from Si(400) observed at the X-ray exit window.

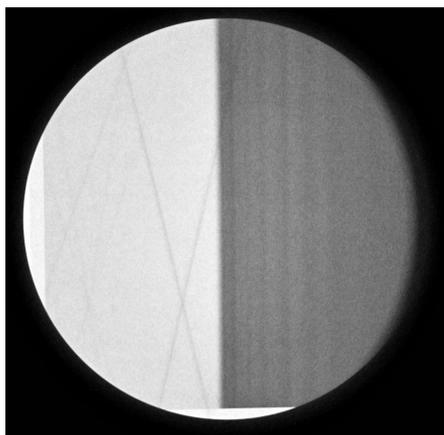


Figure 6: The X-ray image of a molybdenum thin foil at the PXR center energy of 20 keV.

7.3 m 離れた直径 100 mm の X 線窓でイメージングプレート (IP) を用いて撮像したもので、撮像時間は 600 s である。この時は、電子ビーム照射による結晶の損傷を警戒し、電子ビームのマクロパルス幅を $2.6 \mu\text{s}$ に狭めており、平均ビーム電流 $1.3 \mu\text{A}$ は通常の PXR 運転時の半分程度であった。未だ第 2 結晶の位置調整が十分ではなく、端が切れた状態ではあるが、中央部がやや強い釣り鐘状の分布となる傾向が見られた。Si(111) や Si(220) の場合と比べると、平坦性が劣る可能性があるため、今後詳しく調べる必要がある。

Figure 6 は、Bragg 角を 20 keV 相当に設定して Mo 薄膜の吸収像を測定したものである。PXR ビーム内には水平方向に線形なエネルギー分散があるため、Mo の K 殻吸収端 (20.0 keV) で不連続的に X 線吸収が強くなっているのが観測されている。従来と同様、薄膜状の試料を入手しやすい元素の K 殻吸収端を観測することで、PXR エネルギーの較正と確認を行う。また、Mo による吸収の強い高エネルギー側の領域には縞状の濃淡が見られるが、これは Mo の拡張 X 線吸収微細構造 (EXAFS: extended X-ray absorption fine structure) によるものであり、これが明確に観測されることから局所的な X 線エネルギー幅が数 eV 程度かそれ以下であることがわかる [19]。また、吸収の少ない低エネルギー側には \times 印のような模様が見えるが、これは用いている結晶の欠陥に起因するトポグラフと思われる、得られた X 線が高い空間コヒーレンスを持つことを示唆している [20,21]。

4. 40 keV-PXR ビームによる撮像例

X 線収量の問題はあるが、エネルギーに関しては予定通り 40 keV 領域の X 線ビームが得られていると考えられるため、その透過力を確かめるため日常的な機器の透過撮像を行った。Figure 7 は電卓とレーザーポインターを 40 keV の PXR ビームを用いて撮像した例である。撮像時間は共に 1200 s であったが、プロファイル撮像と同様、電子ビーム電流は通常の PXR 運転時の半分程度に制限した状態であった。X

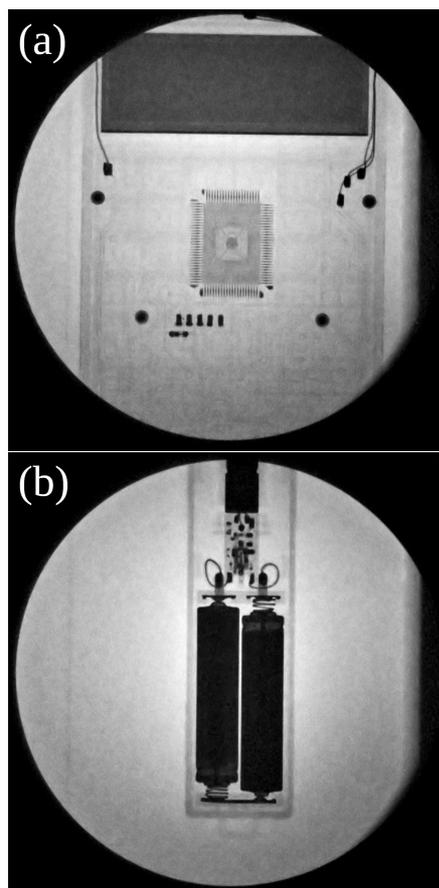


Figure 7: The X-ray absorption images for (a) a calculator and (b) a laser pointer using a 40-keV PXR beam.

線量の制約に加え、IP の感度が下がることも時間を要する原因の一つである。

得られた画像からは、Si(220) を用いた場合よりも透過力の高い X 線が得られていることが窺える。レーザーポインターの画像では、乾電池の内部構造が透視できているが、試験的にダイヤモンド単結晶 (400) 面を用いて 40~60 keV 領域の X 線発生を試みた時に得られた X 線像と同様である [22]。

5. まとめと今後の課題

重元素を含んだ燃料電池セルの非破壊観測を目的として、LEBRA-PXR 線源の高エネルギー化を実施した。PXR 放射源として Si(400) 結晶を採用し、実際に 40 keV の PXR と推定できる X 線ビームが得られ、撮像された X 線像からも透過力が高いことが確認できた。従来と同様、Si(400) を用いて 40 keV 領域をカバーできるエネルギー可変単色 X 線源として運用できることがわかったため、今後は本来の目的である燃料電池セルの非破壊観測に関する研究を実施していく。Si(400) の場合、Si(220) を用いた場合のように回折型の位相コントラストイメージングを行うのは現時点では困難であるが、試料と検出器の距離を離して測定する伝搬型の位相コントラスト法なら可能であるため、クラックなどの観測を試みていく

予定である。また、燃料電池を構成する重元素の1つであるCeのK殻吸収端(40.44 keV)がエネルギー調整範囲に入ることから、吸収端を利用したCeの濃度マップ測定なども試みることになる。

X線量が低く測定に時間を要するという問題があるが、PXR放射量自体の増大は加速器の抜本的なアップグレードや大サイズのダイヤモンド単結晶の使用などが必要となり、容易に実施することはできない。理論シミュレーションの結果から、結晶内の電子多重散乱による電子ビーム発散増大が第2結晶における回折効率を低くしていることが示唆されている。第2結晶にモザイク処理を施して回折条件を緩めることにより、第2結晶での輸送効率を改善することを今後検討したい[23]。

謝辞

この成果は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の委託業務(JPNP20003)の結果得られたものです。

参考文献

- [1] 境武志, 放射光 34 (2021) 153;
<http://www.jssrr.jp/journal/pdf/34/p153.pdf>
- [2] 早川恭史, 加速器 6 (2009) 166;
<https://www.pasj.jp/kaishi/cgi-bin/kasokuki.cgi?articles%2F6%2Fp166.pdf>
- [3] Y. Hayakawa *et al.*, J. of Instrumentation 8 (2013) C08001, doi:10.1088/1748-0221/8/08/C08001
- [4] Y. Hayakawa *et al.*, Phys. Rev. Accel. Beams 22 (2019) 024701, doi:10.1103/PhysRevAccelBeams.22.024701
- [5] 早川恭史, 高橋由美子, 放射光 33 (2020) 87;
<http://www.jssrr.jp/journal/pdf/33/p087.pdf>
- [6] Y. Hayakawa *et al.*, “Si(220)ターゲットによるパラメトリックX線源の高エネルギー化”, Proceedings of Particle Accelerator Society Meeting 2009, JAEA, Tokai, Naka-gun, Ibaraki, Japan, pp. 748-751;
https://www.pasj.jp/web_publish/pasj6/papers/toapa01.pdf
- [7] NEDO 2021年度「燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた共通課題解決型産学官連携研究開発事業」;
https://www.nedo.go.jp/koubo/HY3_00048.html
- [8] Y. Hayakawa *et al.*, “日大LEBRA-PXR線源の現状と高度化の検討”, Proceedings of the 18th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, August 9-12, 2021, QST-Takasaki Online, Japan, pp. 790-794;
https://www.pasj.jp/web_publish/pasj2021/proceedings/PDF/THP0/THP002.pdf
- [9] Y. Hayakawa, I. Sato, K. Hayakawa, T. Tanaka, Nucl. Instrum. and Meth. B 227 (2005) 32, doi:10.1016/j.nimb.2004.06.028
- [10] H. Nitta, Phys. Lett. A 158 (1991) 270, doi:10.1016/0375-9601(91)91013-4
- [11] Y. Hayakawa *et al.*, Nucl. Instrum. and Meth. B 266 (2008) 3758, doi:10.1016/j.nimb.2008.02.042
- [12] Y. Hayakawa *et al.*, Int. J. Mod. Phys. A 25 Suppl. 1 (2010) 174, doi:10.1142/S0217751X10050020
- [13] Y. Hayakawa *et al.*, IL NUOVO CIMENTO 34 C (2011) 253, doi:10.1393/ncc/i2011-10910-2
- [14] Y. Hayakawa *et al.*, “楔型ターゲット結晶によるPXR線源の性能改善”, Proceedings of the 7th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, August 4-6, 2010, Himeji, Japan, pp. 788-791;
https://www.pasj.jp/web_publish/pasj7/proceedings/P_5PM/P_EH_5PM/THPS009.pdf
- [15] Y. Hayakawa, M. Seto, Y. Maeda, T. Shirai, A. Noda, J. Phys. Soc. Jpn. 67 (1998) 1044, (1991) 270, doi:10.1143/JPSJ.67.1044
- [16] Y. Hayakawa *et al.*, Nucl. Instrum. and Meth. B 252 (2006) 102, doi:10.1016/j.nimb.2006.07.010
- [17] Y. Takahashi *et al.*, X-Ray Spectrom. 41 (2012) 210, doi:10.1002/xrs.2403
- [18] Y. Hayakawa *et al.*, J. Phys.: Conf. Ser. 517 (2014) 012017, doi:10.1088/1742-6596/517/1/012017
- [19] M. Inagaki *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. 47 (2008) 8081, doi:10.1143/JJAP.47.8081
- [20] M. Inagaki *et al.*, “パラメトリックX線放射を用いた画像取得におけるX線トポグラフィの影響”, Proceedings of the 10th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, August 3-5, 2013, Nagoya, Japan, pp. 1211-1213;
https://www.pasj.jp/web_publish/pasj10/proceedings/PDF/SUP1/SUP108.pdf
- [21] M. Inagaki *et al.*, “楔形ターゲット結晶を用いたパラメトリックX線源におけるX線トポグラフィの振舞い”, Proceedings of the 12th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, August 5-7, 2015, Tsuruga, Japan, pp. 451-454;
https://www.pasj.jp/web_publish/pasj2015/proceedings/PDF/WEPO/WEPO20.pdf
- [22] Y. Hayakawa *et al.*, “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”, Proceedings of the 10th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, August 3-5, 2013, Nagoya, Japan, pp. 1221-1225;
https://www.pasj.jp/web_publish/pasj10/proceedings/PDF/SUP1/SUP111.pdf
- [23] S. Matsuba *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. 55 (2016) 112402, doi:10.7567/JJAP.55.112402