

日大 LEBRA-PXR 線源の現状と高度化の検討 CURRENT STATUS OF THE LEBRA-PXR SOURCE AT NIHON UNIVERSITY AND THE PLAN OF THE EVOLUTION

早川恭史*, 早川建, 野上杏子, 境武志, 住友洋介, 高橋由美子, 田中俊成,
Yasushi Hayakawa*, Ken Hayakawa, Kyoko Nogami, Takeshi Sakai, Yoske Sumitomo,
Yumiko Takahashi, Toshinari Tanaka

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

Abstract

A X-ray source based on parametric X-ray radiation (PXR) has been operated as a users facility at the Laboratory for Electron Beam Research and Application (LEBRA), Nihon University. A monochromatic and energy-selective X-ray beam can be produced with a double-crystal-type PXR source using a 100-MeV electron beam. X-ray imaging has been main application of the LEBRA-PXR source, including advanced imaging techniques such as diffraction-enhanced imaging (DEI). A new project to utilize higher-order crystal planes as a PXR radiator is in consideration to boost up the PXR-energy range. A specific bent-crystal system is also proposed for focusing a PXR beam.

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、現在は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 種類の光源を利用研究に提供している。特に、PXR を利用した常設 X 線源は世界で唯一のものであり、当施設を特徴づける光源となっている [1]。

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 X 線放射現象である。その X 線エネルギーは電子速度と結晶面のなす角、すなわち通常の X 線 Bragg 回折における Bragg 角に相当するもので決まり、電子エネルギーへの依存性が非常に低い。電子ビームのエネルギーが一定であっても、放射源となるターゲット結晶を回転させて Bragg 角を調整することにより、X 線エネルギーを連続的に選択可能である。結晶としてシリコン単結晶のような完全性の高い結晶を用いた場合、単色性の良い X 線が得られるだけでなく、波面の揃った空間コヒーレントな X 線が得られる [2]。

LEBRA では放射線施設としての申請上、最大電子エネルギーを 100 MeV としているが、このエネルギーでエネルギー選択可能な単色 X 線源を実現するのに、PXR は現実的な選択肢の 1 つである。また、PXR の放射円錐の広がり制動放射に比べ 2~3 倍大きいことから、比較的短い距離で面積の大きな X 線ビームプロファイルが得られ、大面積の照射野が必要な X 線イメージングには有利である [3]。そのため、LEBRA-PXR 線源の応用は X 線イメージングが主流となっている [4]。

2. LEBRA-PXR 線源の現状

LEBRA には Fig. 1 に示すように電子リニアックの下流に 90° 偏向部を介した 2 本のビームラインが接続され、それぞれ FEL ビームラインと PXR ビームラインとなっている。LEBRA-PXR 線源は世界で唯一の専用ビームラインを持つ PXR を原理とする常設 X 線源であり、共同利用光源として単色 X 線ビームを 2005 年から供給している [5]。LEBRA-PXR 線源は、電子ビームが照射され PXR 放射源となるターゲット結晶と、発生した X 線ビームを反射して実験室まで輸送するための第 2 結晶からなる 2 結晶型の発生装置であり、その仕様を Table 1 に示す。電子エネルギーを 100 MeV で固定して運用し、放射源には欠陥の無い高品質の結晶が得られるシリコン (Si) 単結晶を用いているが、使用する結晶面で対応可能な X 線エネルギー範囲が決まる。これまで Si(111) 面と Si(220) 面を使って運用した実績があるが、X 線

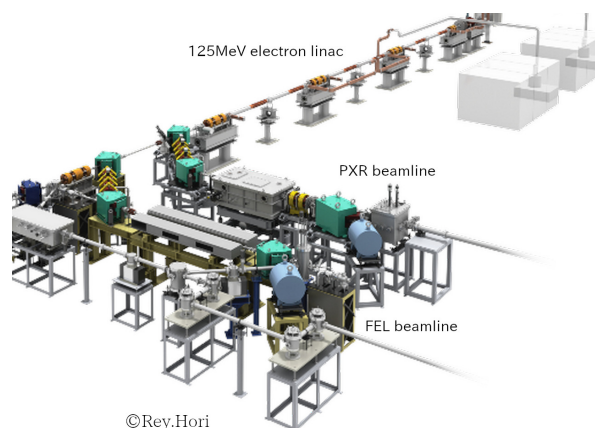


Figure 1: A bird-eye view of the LEBRA linac equipped with two beamlines.

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

Table 1: Specification of the LEBRA-PXR Source

Electron energy	100 MeV
Linac average current	$\sim 2.5 \mu\text{A}$
Macropulse duration	5 μs
Macropulse repetition rate	5 pps
PXR energy range	
Si(111) target:	4.0 – 20 keV
Si(220) target:	6.5 – 34 keV
Total X-ray photon rate	$\sim 10^7 / \text{s}$ @17.5 keV
Irradiation-field size	100 mm in diameter

強度の面では Si(111) 面が有利であるものの、より高いエネルギーまでカバーできる Si(220) 面の方が応用面での需要が高く、最近 6 年ほどは Si(220) 面での運用が続いている。例えば、ヨウ素の K 殻吸収端 33.2 keV 周辺のエネルギーの PXR ビームを利用実験に供給した実績などがある [6]。

PXR ビームはビームプロファイル内で局所的には単色性が高く、数 eV 程度の線幅の X 線が得られるが、プロファイルの水平方向に沿ったエネルギー分散を持っている。このエネルギー分散は規則的なもので放射角度に対してほぼ線形なエネルギー変化であり、空間チャープと表現し得る特性である。これは、PXR ビームが円錐状に広がる性質との組み合わせにより、下流に置かれた 3 番目以降の結晶によって平面波的に回折することを可能とする重要な特性である。

PXR ビームは加速器室から放射線遮蔽壁を通し、常時立ち入り可能な実験室にある X 線窓から取り出される。窓は線源から 7.3 m 離れているが、PXR ビームは円錐広がりのため直径 100 mm の窓サイズに広がった比較的平坦な強度分布になっている。一般的な放射現象のようなビームの中心軸に強度のピークがあるガウス分布的な空間分布とは異なり、フラットトップに近いイメージングに使いやすい強度分布となっていることも PXR 線源の大きな特徴である。また、平面波とも球面波とも異なるが、波面の揃った空間コヒーレンスの高い X 線ビームが得られることも、他とは異なる応用を可能にする要因となっている [7]。

3. LEBRA-PXR 線源の応用

PXR 線源からの X 線ビームは直径 100 mm で一様性が高いことから、イメージングが応用の主流となっている。単なるエネルギー選択可能な単色イメージングに留まらず、空間チャープや空間コヒーレンスを利用した応用に実績がある。

3.1 単色 X 線イメージング

通常の X 線吸収を利用する単色イメージングは、検出器の性能向上もあって 3 次元コンピュータ断層撮像 (CT: computed tomography) が可能となっている [8, 9]。密度の低い軽元素物質の試料に限られる

が、直径 100 mm の照射野を生かした比較的大きな試料の測定が可能である。

3.2 X 線吸収分光

PXR ビームは水平方向には線形なエネルギー分散を持つが、垂直方向にはエネルギー変化がなく数 eV 程度の単色性を維持しているため、均一な薄膜試料の X 線吸収像を取得し、その画像を垂直方向に沿って積分することで X 線吸収スペクトルの測定となる。数 100 eV～数 keV のエネルギー範囲で数 eV の分解能のスペクトルが得られることから、X 線吸収端微細構造 (XAFS: X-ray absorption fine structure) 分析への応用が可能である [10]。分散型 XAFS と呼ばれる手法の一種であるが、大学附置のリニアック施設で可能であるのは稀有であるといえる。

3.3 回折強調イメージング

LEBRA-PXR 線源からの X 線ビームが高い空間コヒーレンスを有していることを利用した、回折強調イメージング (DEI: diffraction-enhanced imaging) が最も重要な応用の一つとなっている。これは X 線が試料物質を透過する際に受ける屈折や散乱を、試料後方に設置された分光結晶を用いて検出する測定法で、画像の画素毎に回折曲線を測定する事に相当する [11]。X 線吸収は回折曲線の面積の減少として、屈折は回折曲線のピークシフトとして、X 線小角散乱は回折曲線の幅の広がりとして観測される。DEI で得られた幾つかの画像を演算することで、吸収像、屈折 (位相コントラスト) 像、小角散乱像に分離して試料の情報を得ることができる。生体試料のような X 線吸収の少ない軽元素物質の測定に適した手法であるが、 μrad オーダーの屈折や散乱が検知できるほど空間コヒーレン스에優れた X 線源が必要なことから、通常はシンクロトロン放射光源以外では困難とされている。

LEBRA-PXR 線源では、線源を構成する 2 結晶と合わせて (+, -, +) 配置と呼ばれるジオメトリで分光結晶を用いた場合、水平方向のエネルギー分散と円錐広がりとの角度が Bragg 回折条件において補償しあい平面波的な回折となる。この性質を利用して DEI を実現しているが、10 mrad オーダーで広がる円錐ビームで DEI を実施している施設は他になく、PXR 線源を特徴づける応用となっている [12, 13]。

3.4 K 端差分法による元素イメージング

X 線の吸収は元素固有の K 殻吸収端エネルギーの前後で不連続的に変化し、吸収端より高エネルギーの X 線に対する吸収が極めて大きくなる。これを利用し、特定の元素の K 殻吸収端前後のエネルギーの X 線で撮像した 2 枚の画像の差分を取ることで、その元素の 2 次元マップが得られる。典型的な元素イメージングの一種であり、K 端差分法 (KES: K-edge subtraction) と呼ばれている [14]。高品質な KES 測定を実施するためには少なくとも数 10～数 100 eV 程度の精度のエネルギー選択性が必要であり、放射光源以外の X 線源では困難な実験であった。LEBRA-PXR 線源は放射光源以外で広い範囲に渡って KES

イメージングが可能な数少ない施設である。

KES イメージングは、典型的には吸収端前後の画像を X 線エネルギーを変えて個別に撮像するため、2 枚の画像は時間的には同時に取得されたものではない。LEBRA-PXR 線源の場合、DEI の測定系を流用して X 線ビームプロファイルの低エネルギー側のみ回折することができる。PXR ビームの中心エネルギーを対象となる吸収端エネルギーちょうどに合わせることで、吸収端を跨いだ 2 色交差ビームを形成することが可能となり、交差点に試料を置くことで KES に必要な 2 種類の X 線エネルギーの画像を同時に取得できる。この同時 KES イメージングで 3 次元 CT 撮像をすると 3 次元元素マップが取得できるが、ストロンチウム元素 (K 殻吸収端: 16.1 keV) を対象とした試験的な実証実験には成功している [15,16]。

4. LEBRA-PXR 線源の高度化の検討

4.1 PXR エネルギーの高エネルギー化

LEBRA-PXR 線源は電子リニアックの安定化と高度化の努力の結果、リニアックを基盤とする X 線源としては極めて安定で高度な応用を実施することができている。しかしながら、X 線のエネルギーの上限を 34 keV までに制約して運用しており、重元素を含み X 線が透過しにくい試料の測定を望むユーザーの要望に十分には応えられていない。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 [17]。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。

試験的にはダイヤモンド結晶 C(400) 面を PXR 放射源に使い、60 keV 付近の X 線の発生と観測に成功しているが、安価なダイヤモンド単結晶は欠陥が多く、反射用第 2 結晶に必要な 100 mm 程度の大きさの結晶も入手困難であり、共同利用光源として運用するのは未だ難しい [18]。したがって、Si 単結晶

Table 2: Energy Range of the LEBRA-PXR Source

Bragg angle range	5.5° – 30°
Crystal plane	PXR energy range
Si(220)	6.5 keV – 33.5 keV
Si(311)	7.6 keV – 39.3 keV
Si(400)	9.1 keV – 47.4 keV

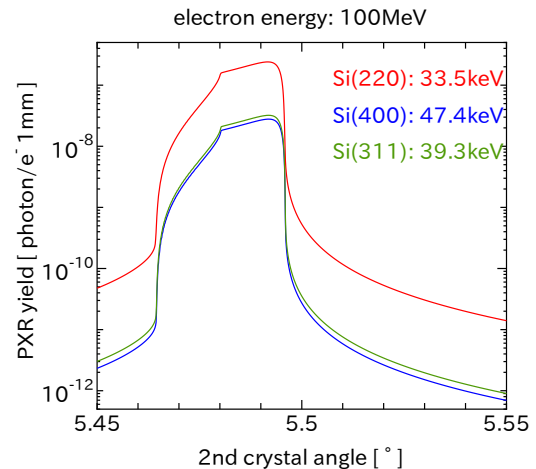


Figure 2: Rocking curves at the 2nd crystal of the LEBRA-PXR source for three different Si crystal planes when the Bragg angle of the target crystal is 5.5°.

の高次面を用いるのが現実的であり、現在用いている Si(220) より高次の Si(311) 面と Si(400) 面が候補となる。LEBRA-PXR 線源が設計上対応可能な Bragg 角の範囲は 5.5° – 30° であり、この角度範囲で各結晶面を用いて発生させることができる PXR のエネルギーを Table 2 に示す。

高次の結晶面を用いることで X 線エネルギー範囲を高くシフトさせることができる半面、発生する X 線光子数は少なくなる。Figure 2 は、2 結晶型 PXR 線源で最大の X 線エネルギーとなる Bragg 角 5.5° での PXR 強度を第 2 結晶の回折曲線として表し、各結晶面について比較したものである。Si(311) 面、Si(400) 面ともに X 線エネルギーについては現在使用中の

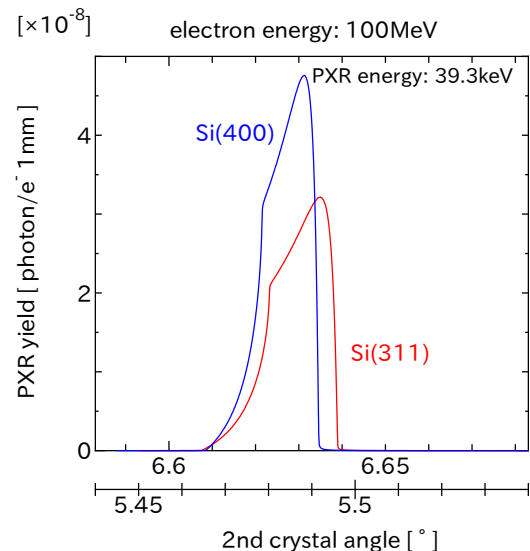


Figure 3: Comparison of rocking curves between Si(311) and Si(400) planes at the PXR energy of approximately 40 keV.

Si(220) 面より高くなるものの、光子収量は 1 桁近く少なくなることが分かる。得られるエネルギーがともに 40 keV 周辺となる条件で Si(311) 面と Si(400) 面を比較したのが Fig. 3 である。Si(400) 面を用いた方が同じ X 線エネルギーで 1.5 倍程度の強度が得られ、しかもより高いエネルギー範囲までカバーすることができることから、高エネルギー用の結晶面としては最も有力な候補といえる。

LEBRA-PXR 線源の X 線強度は電子リニアックの平均ビーム電流に制約され、パルスのピーク強度は強いものの平均強度としては放射光源などと比べて何桁も弱い。高次結晶面の利用で X 線の高エネルギー化は達成できるが、強度の弱さを測定時間を長くすることで補う必要がある。幸い、近年 X 線画像検出器の性能改善が進んでおり、量子効率が高く S/N 比優れた検出器を導入することで、重元素の KES イメージングなどの有意義な測定が可能になると考えている。

4.2 湾曲結晶を用いた PXR の集光

LEBRA-PXR 線源から取り出される X 線ビームは窓の時点で既に直径 100 mm に広がっており、広い照射野が必要なイメージングには向いているものの、光子密度が低いため微小な試料を効率良く測定することができないという問題がある。そのため、何らかの方法で PXR ビームを集光可能にするのが望ましいが、屈折光学系や全反射ミラー系のような既存技術で直径 100 mm に広がった X 線ビームに対応するのは困難である。X 線源としての強度を考慮すると、

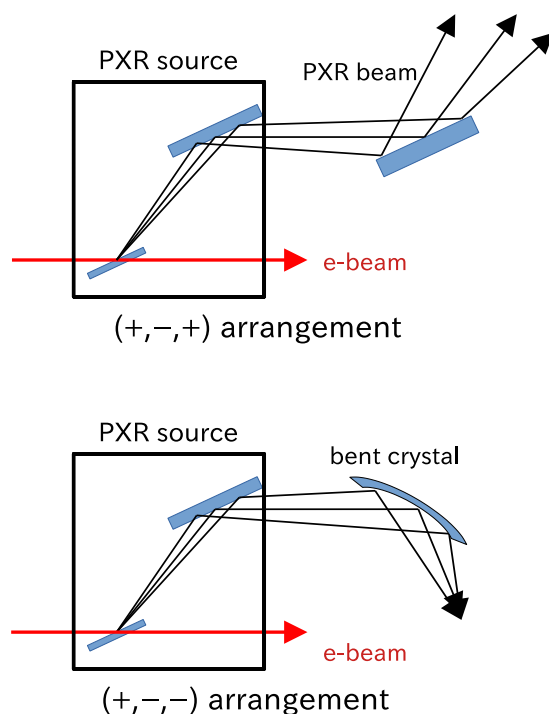


Figure 4: Comparison of the PXR beam transport at the 3rd crystal between the (+, -, +) and (+, -, -) arrangements.

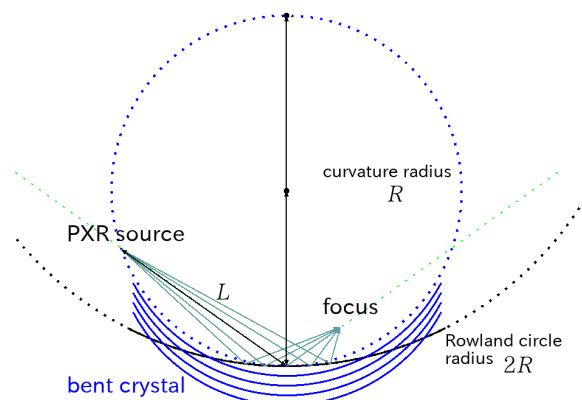


Figure 5: Schematic explanation of a bent-crystal system for PXR focusing.

高い反射率が期待できる単結晶を用いた集光光学系が有力な候補となる。

PXR ビームは垂直方向の単色性が良いため、サジタル方向の集光に関しては、放射光源でも行われているように、第 2 結晶を湾曲させることで集光可能と思われる。一方、水平方向にはエネルギー分散があるため、これを考慮する必要がある。PXR 放射源となるターゲット結晶から数えて 3 番目の結晶を (+, -, +) 配置と呼ばれる向きにすると、エネルギー分散と円錐広がり角が Bragg 回折条件で補償しあって平面は的な回折となり、それを利用して DEI を実現している。しかしながら、(+, -, -) 配置ではこの補償が成立しないため、Fig. 4 に示すように PXR ビーム全体を回折するためには結晶を湾曲する必要がある。結晶全体を高精度で湾曲させる必要があり技術的に難易度が高いが、メリディオナル (子午線) 方向の集光を実現する方法として期待できる。

Figure 5 は湾曲結晶光学系のより具体的な説明である。PXR 線源から湾曲結晶までの距離を L 、PXR ターゲット結晶の Bragg 角を θ とすると、結晶の湾曲円の半径 R は $R \approx L / \sin \theta$ となり、湾曲結晶から焦点までの距離は $L/3$ すなわち横倍率 3 倍の集光となる。収差無く集光するには湾曲結晶表面を半径 $2R$ のローランド円に沿って削る必要があるが、これは蛍光 X 線分析に使われる Johansson 型分光結晶とは湾曲半径とローランド円半径が逆になっている。

PXR ビームに対して適用する場合、僅かな角度デチューニングが必要となる可能性があり、今後 ray-tracing 計算などによって設計研究を行っていく予定である。

5. まとめ

日大 LEBRA-PXR 線源は電子リニアックベースの共同利用 X 線源として運用され、DEI による位相コントラストイメージングや KES を用いた元素イメージングなどの、放射光源施設以外では困難とされてきた高度な X 線イメージング実験が実施可能となっている。今後の PXR 線源の高度化として、現在よりも高いエネルギーの X 線領域まで発生可能とするた

めに高次の結晶面を放射源に用いることを検討している。Si(400)面の使用が有力候補であり、40 keVの領域をカバーできるようになると期待している。また、湾曲結晶を用いたPXRビーム集光光学系の開発についても考察を進めている。

参考文献

- [1] 早川恭史, 加速器 6 (2009) 166-177;
<https://www.pasj.jp/kaishi/cgi-bin/kasokuki.cgi?articles%2F6%2Fp166.pdf>
- [2] 早川恭史, 高橋由美子, 放射光 33 (2020) 87;
<http://www.jssrr.jp/journal/pdf/33/p087.pdf>
- [3] Y. Hayakawa *et al.*, Nucl. Instrum. and Meth. B 252 (2006) 102;
<https://www.doi.org/10.1016/j.nimb.2006.07.010>
- [4] Y. Hayakawa *et al.*, J. of Instrumentation 8 (2013) C08001;
<https://www.doi.org/10.1088/1748-0221/8/08/C08001>
- [5] Y. Hayakawa, I. Sato, K. Hayakawa, T. Tanaka, Nucl. Instrum. and Meth. B 227 (2005) 32;
<https://www.doi.org/10.1016/j.nimb.2004.06.028>
- [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, Tokai, Japan, August 5-7, pp. 748-751;
https://www.pasj.jp/web_publish/pasj6/papers/toapa01.pdf
- [7] Y. Hayakawa *et al.*, Nucl. Instrum. and Meth. B 266 (2008) 3758;
<https://www.doi.org/10.1016/j.nimb.2008.02.042>
- [8] Y. Hayakawa *et al.*, Nucl. Instrum. and Meth. B 309 (2013) 230;
<https://www.doi.org/10.1016/j.nimb.2013.01.025>
- [9] Y. Hayakawa *et al.*, “日大 LEBRA-PXR 線源を用いたコンピュータ断層撮像”, Proceedings of the 15th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Nagaoka, Japan, August 7-10, 2018, pp. 105-109;
https://www.pasj.jp/web_publish/pasj2018/proceedings/PDF/TH0L/TH0L06.pdf
- [10] M. Inagaki *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. 47 (2008) 8081;
<https://doi.org/10.1143/JJAP.47.8081>
- [11] R. Fitzgerald, Phys. Today 53 (2000) 23;
<https://www.doi.org/10.1063/1.1292471>
- [12] Y. Takahashi *et al.*, X-Ray Spectrom. 41 (2012) 210;
<https://www.doi.org/10.1002/xrs.2403>
- [13] Y. Hayakawa *et al.*, J. Phys.: Conf. Ser. 517 (2014) 012017;
<https://www.doi.org/10.1088/1742-6596/517/1/012017>
- [14] A. Sarnelli, A. Taibi, P. Baldelli, M. Gambaccini, and A. Bravin, Phys. Med. Biol. 52 (2007) 3015;
<https://www.doi.org/10.1088/0031-9155/52/11/006>
- [15] Y. Hayakawa *et al.*, Nucl. Instrum. and Meth. B 402 (2017) 228;
<https://www.doi.org/10.1016/j.nimb.2017.03.014>
- [16] Y. Hayakawa *et al.*, Phys. Rev. Accel. Beams 22 (2019) 024701;
<https://www.doi.org/10.1103/PhysRevAccelBeams.22.024701>
- [17] H. Nitta, Phys. Lett. A 158 (1991) 270;
[https://doi.org/10.1016/0375-9601\(91\)91013-4](https://doi.org/10.1016/0375-9601(91)91013-4)
- [18] 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, Nagoya, Japan, Aug. 3-5, 2013, pp. 1221-1225;
https://www.pasj.jp/web_publish/pasj10/proceedings/PDF/SUP1/SUP111.pdf