

## CHARACTERISTICS OF PARAMETRIC X-RAY RADIATIONS FROM DIFFERENT SILICON CRYSTAL PLANES

Manabu Inagaki<sup>1, A)</sup>, Kyoko Nogami<sup>A)</sup>, Yasushi Hayakawa<sup>A)</sup>, Ken Hayakawa<sup>A)</sup>,  
Toshinari Tanaka<sup>A)</sup>, Keisuke Nakao<sup>A)</sup>, Isamu Sato<sup>B)</sup>

<sup>A)</sup> Laboratory for Electron Beam Research and Application (LEBRA), Nihon University  
7-24-1 Narashinodai, Funabashi-shi, Chiba 274-8501, Japan

<sup>B)</sup> Advanced Research Institute for the Sciences and Humanities (ARISH), Nihon University  
12-5 Goban-cho, chiyoda-ku, Tokyo 102-8251, Japan

### Abstract

The parametric X-ray radiation (PXR) generator at the Laboratory for Electron Beam Research and Application (LEBRA) in Nihon University is composed of a double-crystal system to keep an identical direction of the X-ray output independent of energy range. Since the X-ray beam from the PXR generator system has a good spatial coherence and linear energy dispersion with narrow line width, wavelength dispersive X-ray absorption fine structure (DXAFS) measurement and phase-contrast imaging are expected as promising applications of PXR. The monochromatic X-ray beam in the energy region from 5 to 20 keV has been provided to users' experiments by using a Si(111) crystal as the PXR target. Recently the X-rays with energies up to 33 keV were obtained by using a Si(220) crystal. With a larger energy dispersion of the PXR beam from the Si(220) crystal as compared with the case of Si(111), a higher spectral resolution has been obtained in the X-ray absorption near edge structure (XANES) spectra measurement.

### Si結晶面の違いによるパラメトリックX線放射の特性

#### 1. はじめに

日本大学電子線利用研究施設(LEBRA)にあるパラメトリックX線放射(PXR)発生装置は、真空チェンバー内に設置された二台のゴニオステージで構成されており、各々にシリコン(Si)完全結晶が備え付けられた二結晶型のシステムである<sup>[1]</sup>。表1にLEBRA-PXRシステムの性能を示した。このX線ビームは、コヒーレンスが良く、水平方向に一次関数的なエネルギー分散がある。さらに、X線取り出しポートの直径( $\phi$ : 100 mm)に由来する広範な照射野を持つことなどの特徴を利用し、現在では、波長分散型X線

吸収微細構造(DXAFS)測定や回折強調型位相コントラストイメージング(DEI)などの研究に応用されている<sup>[2,3]</sup>。

速度 $v$ の電子ビームがBragg角 $\theta$ で逆格子ベクトル $g$ を持つターゲット結晶に入射した際に発生するPXRエネルギー $\hbar\omega$ は、

$$\hbar\omega = \frac{\hbar c^* |g| \sin \theta}{1 - \beta \cos \phi} \quad (1)$$

と表される<sup>[1]</sup>。ここで $\beta = |v|/c^*$ 、 $c^*$ は結晶媒質中の光速度、 $\phi$ は電子の速度に対するX線の放出方向の角度である。ここで中心軸に沿ってターゲット結晶からの距離を $L$ 、中心軸からの水平方向の変位を $x$ とすると、PXRのエネルギー分散は以下となる。

$$\hbar\omega' \approx \hbar\omega \left( 1 - \frac{x}{L \tan \theta} \right) \quad (2)$$

(2)式で示したエネルギー分散の特性を考慮すると、ターゲット結晶上の電子ビームサイズと電子ビーム軌道における揺らぎは、エネルギー分散の分解能を制限する。幾何学的な考慮から、ターゲット結晶上における水平方向の電子ビームの直径を $\Delta d$ とするとそのエネルギー拡がり $\Delta E_d$ は、

$$\Delta E_d \approx \hbar\omega \frac{\Delta d}{L \tan \theta} \quad (3)$$

と概算される<sup>[4]</sup>。したがって高分解能を得るには、電子ビームの良いフォーカスと安定性、距離 $L$ の十分な確保、Bragg角 $\theta$ の増大が考えられる。そこで、

表1 LEBRA-PXRシステムの性能

電子エネルギー	100 MeV
加速周波数	2856 MHz
パルス幅	5 - 10 $\mu$ s
繰り返し数	2 - 5 Hz
第一結晶(ターゲット)	200 $\mu$ m厚の Si(111)およびSi(220)
第二結晶(反射用)	5 mm厚の Si(111)およびSi(220)
X線エネルギー	
Si(111)	5.0 - 20 keV
Si(220)	6.0 - 33 keV
X線取り出しポート (カプトン窓)	直径100 mm 125 $\mu$ m厚

<sup>1</sup> E-mail: inagaki@lebra.nihon-u.ac.jp

これまでのSi(111)結晶を使用し、電子ビーム条件とスペクトル分解能の相関を調べた結果、エネルギー拡がり小さい場合にはスペクトル分解能が向上することがわかった<sup>[5]</sup>。

2009年4月、さらにPXRの高エネルギー化のために、ターゲット結晶をSi(220)結晶に変更した。(3)式を用いて、ターゲット結晶からの距離 $L$ が7.54 m、PXRの中心エネルギーが9.0 keVにおける理論的なエネルギー分布を図1に示した。この図からわかるように、発生するPXRの中心エネルギーがSi(111)結晶と同じ場合、Si(220)結晶はBragg角 $\theta$ が大きいので、エネルギー拡がり小さくなる。そこで、X線吸収端近傍構造(XANES)スペクトルを測定して、実際にスペクトル分解能が向上するかを調べた。

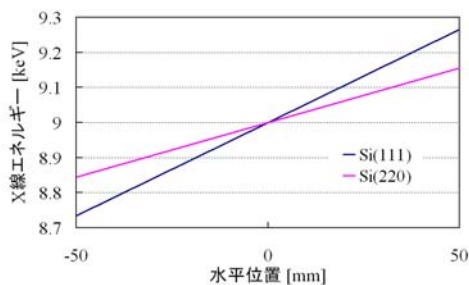


図1 中心エネルギー9.0 keVの理論的なエネルギー分布

## 2. 実験方法

図2のような実験セットアップで、Si(220)ターゲット結晶から発生したPXRを試料に照射した。試

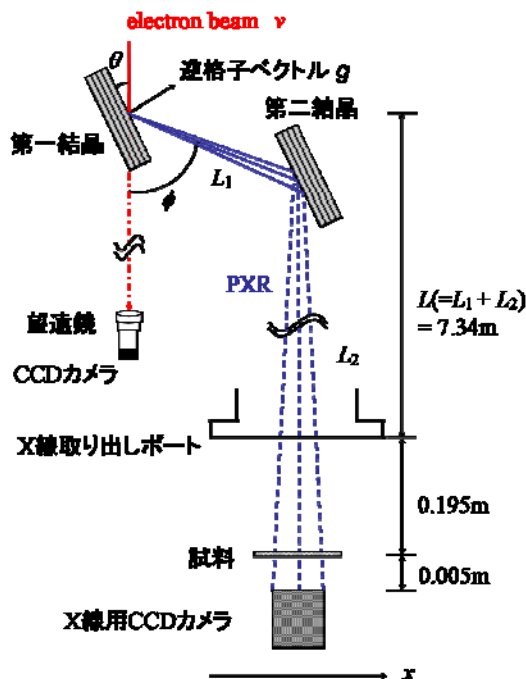


図2 ターゲット結晶上の電子ビームサイズおよびXANESスペクトルの測定のためのセットアップ概略図

料はターゲット結晶からの距離が7.535 mの位置に設置し、検出器には受光面が $12 \times 12 \text{ mm}^2$  ( $512 \times 512$  pixels)のX線用CCDカメラを用い、それを試料から5 mm後方に設置した。試料は、5  $\mu\text{m}$ 厚のCu箔および約6  $\mu\text{m}$ 厚のCuOシートを用いた。

得られたX線吸収画像は、水平方向の位置がX線のエネルギーに対応するため、一点でもX線エネルギーが判断できれば式(2)を用いることによって、X線エネルギーの較正ができる。さらに、透過X線強度は濃度として画像に現れるので、水平方向の位置(X線エネルギー)における濃度分布を調べるといった簡単な画像分析を施すことによって、容易に試料透過後のX線強度を得ることができる。したがって、各々測定した入射X線強度と透過X線強度から吸光度を求め、XANESスペクトルが得られる。これらのXANESスペクトルをSi(111)の場合と比較し、ターゲット結晶面によるスペクトル分解能の違いを調べた。

## 3. 実験結果

### 3.1 PXRビームのエネルギー拡がり

結晶面によるエネルギー拡がりの違いを比較するために、エネルギー拡がりに影響する水平方向の電子ビームサイズ $\Delta d$ は、Si(111)結晶で測定した場合とほぼ同じ大きさに調整した。ここで、電子ビームサイズは、ターゲット結晶に電子ビームが照射した際に発せられる遷移放射光(OTR)から推定した<sup>[5]</sup>。図3に各ターゲット結晶上におけるOTRプロファイルを示し、表2に推定した電子ビームサイズを示した。このとき、式(3)を用いてターゲット結晶からの距離 $L$ が7.54 mの場合に推定されるエネルギー拡がりは、(a)Si(111)結晶のとき6.2 eV、(b)Si(220)結晶のとき3.2 eVであった。

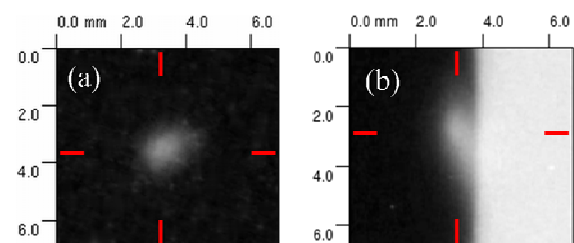


図3 ターゲット結晶上のOTRプロファイル。(a)Si(111)結晶、(b)Si(220)結晶である。

表2 OTR画像から得られた電子ビームサイズとPXRビームのエネルギー拡がり

OTRプロファイル		(a)	(b)
ビームサイズ (FWHM) [mm]	水平	1.16	1.03
	垂直	1.10	2.14
エネルギー拡がり [eV]		6.2	3.2

### 3.2 XANESスペクトル

中心エネルギー8.99 keVのPXRを60分間(照射積分時間：マクロパルス換算で約36 ms)照射して測定した。この結果、得られたXANESスペクトルを図4に示し、Si(111)結晶で得られたスペクトルおよび他施設で得られたデータ<sup>[6,7]</sup>とも比較した。

図4から、CuのXANESスペクトルについて、ターゲット結晶にSi(111)結晶を用いた場合は、吸収端の中点付近に隆起がある特徴的なピーク(図4a中の矢印)が明確ではなかったが、Si(220)結晶の場合には明瞭に確認できた。また、吸収端直後の二つの振動成分についても、Si(111)結晶では吸収度にあまり差が生じなかったが、Si(220)結晶では正確に振動成分が分離されている。さらに、Si(220)結晶で得られたXANESスペクトルは、他施設のデータと比較するときほど差異のない結果が得られたと判断できる。

CuOのXANESスペクトルについて、Si(220)結晶では吸収端の中点付近にある特徴的なピーク(図4b中の矢印)が明確に現れた。これと比較して、Si(111)結晶および他施設では構造が確認できる程度で明瞭ではない。ここで、LEBRAで得られたXANESスペクトル全体からは細かい構造が見えるが、これは照射時間が短かったことによりS/N比が小さい、あるいは粉末試料をシート状に調製するときに生じた試料厚のムラによるものと考えられる。したがって、この特徴的なピーク(図4b中の矢印)は、実際の構造なのか、あるいは前述の要因に由来する構造なのか判断できない。

次にCuのXANESスペクトルについて、詳細に考える。図4(a)の吸収端の立ち上がりから吸収端の中

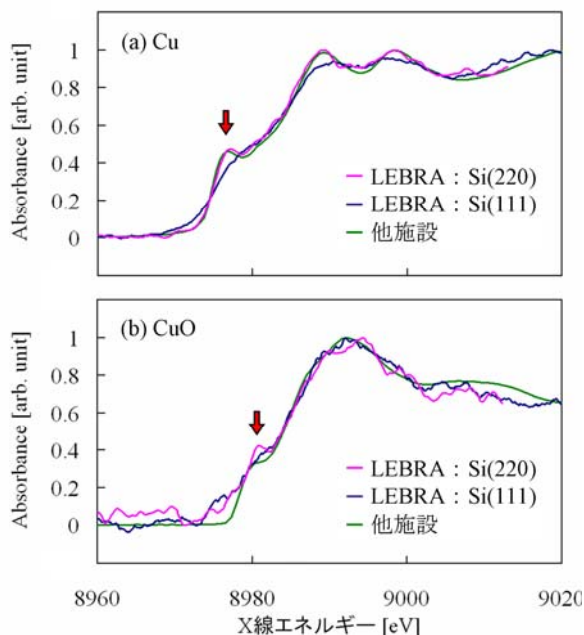


図4 Si(111)およびSi(220)結晶を用いて得られた5 μm厚のCu箔(a)と約6 μm厚のCuOシート(b)のXANESスペクトル。

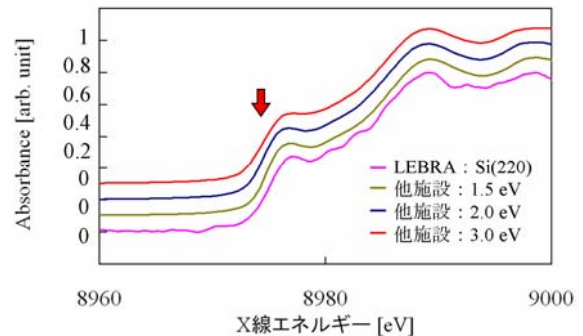


図5 Si(220)を用いて得られた5 μm厚のCu箔のXANESスペクトルと他施設のデータに移動平均を施したXANESスペクトルとの比較

点付近にある特徴的なピークまでの傾きに着目し、他施設と比較することにした。他施設のデータにどの程度の移動平均を施せば同等の勾配になるかを調べた。他施設のデータに各々1.5、2.0、3.0 eVの移動平均を施したXANESスペクトルの結果を図5に示した。その結果、LEBRAの傾き(図5中矢印)は0.12であり、他施設は移動平均1.5 eVのとき0.14、2 eVのとき0.13、3 eVのとき0.11であった。すなわち、他施設のデータに2 eV程度の移動平均を施したとき、LEBRAの傾きとほぼ同じになることがわかった。したがって、表2で示した3.2 eVのエネルギー拡がり、それより小さく2 eV程度であると考えられる。

以上の結果、理論から予測された通りSi(111)結晶よりもSi(220)結晶から発生したPXRの方が高スペクトル分解能であることが実証された。

### 4. まとめ

ターゲット結晶をSi(220)結晶に変えて、CuとCuOのXANESスペクトルを得た。この結果をSi(111)結晶と他施設と比較したところ、スペクトル分解能が向上していた。6.0–20 keVにおいて高スペクトル分解能が要求されるXANES測定の場合、Si(111)結晶よりSi(220)結晶の方が有効であると示唆される。

### 参考文献

- [1] Y.Hayakawa et al., Nucl. Instr. and Meth. B 227 (2005) 32-40.
- [2] Y.Hayakawa et al., Nucl. Instr. and Meth. B 266 (2008) 3758-3769.
- [3] Y.Hayakawa et al., in these proceedings (2009).
- [4] Y.Hayakawa et al., Proceedings of SPIE 6634 (2007) 663411-1 – 663411-10.
- [5] M.Inagaki et al., Jpn. J. Appl. Phys. 47 (2008) 8081-8086.
- [6] M.Newville et al., J. Synchrotron Radiat. 6 (1999) 276-277.
- [7] <http://cars9.uchicago.edu>