

日本大学電子線利用研究施設 (LEBRA) における パラメトリック X 線源開発

早川 恭史*

Development of X-ray Source Based on Parametric X-ray Radiation at Nihon University

Yasushi HAYAKAWA*

Abstract

A new type of X-ray source was developed at the Laboratory for Electron Beam Research and Application (LEBRA) in Nihon University. The development was the first case in the world of the X-ray source based on parametric X-ray radiation (PXR) with a dedicated beamline and a double-crystal system. The substantial design and construction was started in 2000 and the first observation of the X-ray beam from the PXR source was achieved in 2004. Since then various studies have been performed to develop the PXR application using its characteristics such as the monochromaticity and the continuous tunability. In particular, the success of dispersive X-ray absorption fine structure analysis and diffraction-based phase-contrast imaging shows good prospects of the PXR application. It is expected that a coherent X-ray source based on PXR will be introduced into medical facilities in the near future.

1. はじめに

1895年のRöntgenによる発見以来、X線は医療や非破壊検査など広く利用されており、科学研究の場においてもX線を用いた計測手法の重要性は言うに及ばない。しかしながら、X線源に目を向けると、現在普及しているものは発生原理としては制動放射及び特性X線を用いており、この点においては100年余り変化が無い。シンクロトロン放射光の登場はX線源の革新ではあるが、X線発生は制動放射によるものであり、電子の偏向が原子核のクーロン場によるものか磁石の磁場によるものかの違いはあっても、物理的にはX線管と同じ現象を用いていることになる。このような状況もあって、シンクロトロン放射光源の大型化・高性能化と並行して新たな発生メカニズムによる様々なX線源の開発が模索されてきた。本稿で紹介するX線源開発もその流れを汲んだものと言えよう。

原理的に新しいX線源、特に波長が1Å程度の領域をカバーするものは加速器を用いたものが主流であり、レーザーコンプトン散乱 (Laser Compton Scat-

tering: LCS) や、最近ではX線自由電子レーザー (Free Electron Laser: FEL) などがよく取り上げられる。これらは電子と電磁波の相互作用による放射現象であるが、一方、相対論的な速度をもつ荷電粒子と何らかの物質との間の相互作用によって引き起こされる様々な放射現象も古くからX線源の候補として研究されてきた。特に物質が周期的な構造をもつ場合は単色なX線の放射が期待できることもあり、精力的に研究されてきた¹⁾。この分野の研究は歴史的に旧ソ連邦で盛んであり、結晶のような周期構造における制動放射の可干渉性についての議論を起点として、相対論的荷電粒子によるコヒーレント放射現象の研究に発展していったようだ。このようなタイプの放射現象は、その素過程によって二つに大別できる。一つは制動放射に干渉効果が加わったもので、コヒーレント制動放射やチャネリング放射がこれに当たる。これらの放射現象も、以前より医療を中心とする応用を目指した線源実用化が模索されているが、最近ではKEKBの陽電子源に応用されたのが記憶に新しい²⁾。もう一つの放射の素過程は、物質の誘電的振舞い、すなわち原子の分極に起因する放射である。物質が一様な場合は

* 日本大学電子線利用研究施設 Laboratory for Electron Beam Research and Application (LEBRA), Nihon University (E-mail: yahayak@lebra.nihon-u.ac.jp)

Cherenkov 放射が、薄膜状物質の場合は遷移放射 (Transition Radiation: TR) がこの分極放射に相当する。どちらも加速器分野の研究者には馴染み深い放射現象であるが、X 線源としては薄膜スタックや人工多層膜・超格子を用いた共鳴遷移放射がその候補として研究されている。共鳴遷移放射の特殊ケースとして、物質として X 線の波長と同じ周期長の構造をもつ結晶を用いた場合に発生する X 線放射現象がパラメトリック X 線放射 (Parametric X-ray Radiation: PXR) である³⁾。この PXR という現象は、単色でエネルギー (波長) 連続可変という特徴を持ち、X 線源としては魅力的なものであるが、理論的予言や実験的な検証が旧ソ連邦諸国で行われてきたこともあり、意外に広く知られてはこなかった。それでも、冷戦終了後の 1990 年代以降は日欧米諸国でも徐々に研究されるようになってきた。この様な背景の下、日本大学電子線利用研究施設 (Laboratory for Electron Beam Research and Application: LEBRA) では、FEL 用 125 MeV 電子リニアックの高度利用の一環として、この PXR の線源実用化に取り組むこととなった。本稿では PXR 線源開発の経緯を振り返るとともに、線源の現状について報告したい。

2. パラメトリック X 線放射 (PXR)

ここで主役である PXR という現象を紹介しよう。概観としては、PXR は図 1 のように X 線 Bragg 回折における入射 X 線を相対論的な荷電粒子に置き換えても同じような回折 X 線が得られる現象、としてよく説明される。その回折 X 線の波長 λ として、結晶面間隔 d と Bragg 角 θ で決まる Bragg の回折条件、

$$2d \sin \theta = n\lambda \quad (n=1, 2, 3, \dots) \quad (1)$$

を満たすものが得られる。この条件には離散的な制約

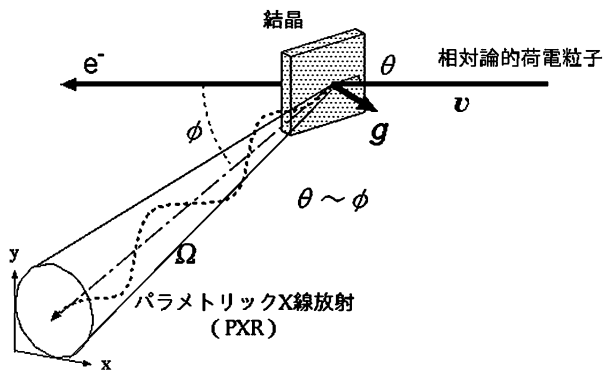


図 1 パラメトリック X 線放射 (PXR)。

は無く、従って、結晶面に対する荷電粒子の入射角度の調整 (実際上は結晶の回転) によって、発生する X 線のエネルギーを任意に選ぶことができる。このエネルギー選択性が X 線源としての PXR の大きな特徴である。また、電子の進行方向と X 線の放出方向が大きく異なるため、制動放射など前方に放射されるバックグラウンドとの分離がしやすいという利点もある。

2.1 歴史的経緯

先に述べたように、PXR は共鳴遷移放射の特殊ケースとして、1960 年代頃にアルメニアの Ter-Mikaelian によって予言されたとされる (ペラルーシの V. G. Baryshevsky の方が先という説もあるようだ)。理論的な研究は色々なされたようだが、実験的に PXR が確認されたのは 1980 年代の半ば頃で、トムスク工科大 (ロシア) のシンクロトロンを用いて、ダイヤモンド結晶に 900 MeV の電子ビームを照射することによって達成された⁴⁾。また、ほぼ同時期にウクライナのハリコフでも実験研究がなされ、シリコン結晶に電子リニアックからの 25 MeV 電子ビームを照射した実験により、PXR の特性の理解が大きく進展した⁵⁾。

1990 年代になると、旧ソ連の崩壊もあって日欧米との研究交流が進み、PXR という物理現象も広く知られるようになった。加速器を用いた実験研究については、欧米ではドイツが比較的熱心であったが、我が国においても東大核研シンクロトロンでの実験を皮切りに⁶⁾、東北大核理研、京大原子炉、京大化研⁷⁾、北大⁸⁾といったリニアック施設において、主に物理的な特性研究が実施された。1996 年頃には、広島大に電子周回リング (REFER) が建設され、特に PXR に関する基礎研究が精力的に行われている⁹⁾。こうしてみると、日本は旧ソ連以外では最も PXR の実験研究が盛んな国であったといえる。旧ソ連の研究者が資金難で思うように加速器実験ができなくなり、日本との共同研究に活路を見出そうとしたことも大きな要因であろう。

入射粒子は荷電粒子ならば原理的には何でもよく、実際 70 GeV および 5 GeV の陽子による実験が行われた例があるが¹⁰⁾、相対論的な効果が重要な役割を果たすため、実際上はほとんどの実験が電子を用いて行われている。本稿ではこれ以後、入射粒子としては電子を考えることにする。

ここで、「パラメトリック X 線」という言葉について触れておくことにしよう。レーザーの普及に伴い、光学分野ではパラメトリック変換という用語が主に光

の波長変換技術に関連してよく使われている。近年では X 線領域におけるパラメトリック変換の研究もなされているが、PXR は結晶を用いることは共通するものの、物理現象としては別物である。パラメトリック X 線というネーミングの経緯は定かではないものの、かなり早い段階から用いられてきた名称のようだ。しかし光学領域における用語との混乱を避けるという意図もあってか、以前よりこの名称に対しては異論が出されており、その放射過程の類似性から、quasi-Cherenkov 放射という名称が用いられ、最近では Coherent Polarized Radiation (CPR) という名称が提唱されたりしている。しかしながら、多くの論文、特に実験系の論文においてはパラメトリック X 線放射が名称として用いられており、PXR という略称も定着してしまった感がある。本稿においても、これに従って PXR を名称として用いていくことにする。

2.2 分極放射としての PXR

PXR は原子の分極に伴う放射と説明したが、これについてももう少し詳しく見ることにしよう。図 2 は PXR が発生する状況を模式的に描いた図であるが、ここで重要なところは入射電子の電場が相対論的な効果により進行方向に圧縮されるという点である。この圧縮された電場により、媒質である結晶を構成する原子は相対論的にほぼ同時に分極され、脱分極に伴って電磁波を放射する。個々の原子の放射は極弱いものであるが、結晶の場合は原子が周期的に整列しているため、干渉効果により特定の方向・波長領域に限定された形で観測可能な放射となる。これが PXR である。入射電子の電場を起源としていることから、量子論的には入射電子に伴う仮想光子が結晶により Bragg 回

折される現象とみなすことができる。

PXR の波面については、Cherenkov 放射の場合に似た方法で考察できる。ただし X 線領域では媒質内の光速は真空中とほぼ同じであり、電子の速さの方が遅くなるため、可視光領域とは異なり均一媒質による Cherenkov 放射は禁制となる。しかし媒質が周期構造をもつ場合、電子の進行に伴って図 2 のような波面が形成されるため、放射が可能となる。この放射が共鳴遷移放射や PXR に相当するが、図 2 を見ればわかるように、その波面においてはドップラー効果により放射の放出方向に応じて連続的に波長が変化する。これは球面波とも平面波とも異なるが、空間的に位相の相関を保持しており、空間コヒーレントな放射現象となっている。こうして見ると、PXR は古くから馴染みのある Cherenkov 放射とドップラー効果に、Bragg 条件に相当する選択則が加わった現象といってもよいかもしれない。

2.3 PXR の運動学的理論

運動学的には、PXR という現象においては次のようなエネルギー・運動量保存則が成り立つ。

$$E = E' + \hbar\omega$$

$$\mathbf{p} + \hbar\mathbf{g} = \mathbf{p}' + \frac{\hbar\omega}{c}\boldsymbol{\Omega} \quad (2)$$

ここで、 E, E' および \mathbf{p}, \mathbf{p}' はそれぞれ散乱前後の電子のエネルギーと運動量であり、 $\hbar\omega$ は放出される PXR のエネルギーである。 \mathbf{g} と $\boldsymbol{\Omega}$ は図 1 のように、それぞれ結晶の逆格子ベクトルと PXR 放出方向の単位ベクトルである。PXR の場合、結晶中の光の速さとして真空中の速さ c を用いても問題ない。PXR のエネルギーは、 $\hbar\omega/c \ll |\mathbf{p}|$ となる場合には近似的に、

$$\hbar\omega \approx \hbar \left(\frac{\omega}{c} \boldsymbol{\Omega} - \mathbf{g} \right) \cdot \frac{\mathbf{p}c^2}{E} = \frac{\hbar c |\mathbf{g} \cdot \mathbf{v}|}{c - \mathbf{v} \cdot \boldsymbol{\Omega}} \quad (3)$$

と求めることができる。 \mathbf{v} は入射電子の速度であるが、十分に相対論的な領域ならば光速で近似できるので、観測のジオメトリを決めれば、PXR のエネルギーは結晶のパラメータのみに依存する。電子のエネルギーに依存しないことは、制動放射起源の現象との大きな相違点である。

放射の空間分布については、摂動近似で求められ、方向 $\boldsymbol{\Omega}$ に PXR が放出される微分断面積は¹¹⁾、

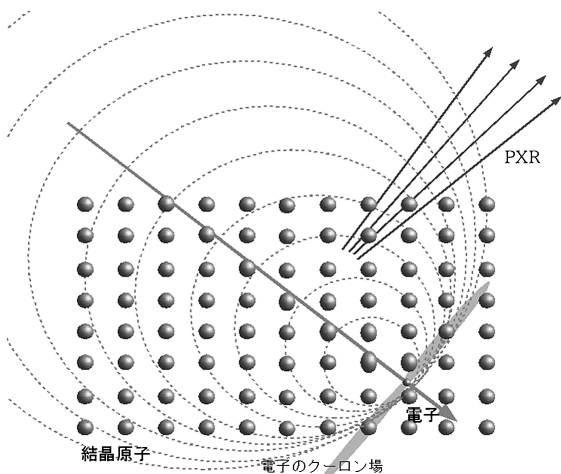


図 2 ローレンツ収縮した入射電子電場による分極放射と PXR の波面形成。

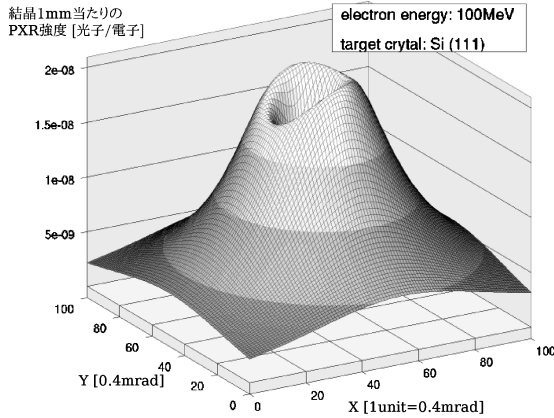


図3 ターゲット結晶としてSi(111)を用いた場合のPXR空間分布 (Bragg角 $\theta=8.4222^\circ$).

$$\frac{dN}{d\Omega} = \sum_{|g| \neq 0} \frac{e^2 \omega L |\chi(\omega)|^2}{2\pi \hbar \epsilon^3 v (c - \mathbf{v} \cdot \boldsymbol{\Omega})} \times \frac{\left| \frac{\omega}{c} \boldsymbol{\Omega} \times \left(\frac{\omega}{c^2} \mathbf{v} + \mathbf{g} \right) \right|^2}{\left\{ \left| \frac{\omega}{c} \boldsymbol{\Omega}_\perp - \mathbf{g}_\perp \right|^2 - \left(\frac{\omega}{v} \right)^2 \left[\gamma^{-2} + \left(\frac{v}{c} \right)^2 (1 - \epsilon) \right] \right\}^2} \quad (4)$$

となる. ここで e は電子の電荷量, $v=|\mathbf{v}|$, $\gamma=E/m_0c^2$ (m_0 : 電子の静止質量)であり, L は結晶の厚さ, $\boldsymbol{\Omega}_\perp$, \mathbf{g}_\perp はそれぞれ $\boldsymbol{\Omega}$, \mathbf{g} の \mathbf{v} に対する垂直成分である. $\chi(\omega)$ は電気感受率のフーリエ成分であり, 結晶の構造因子に依存する量である. また, 誘電率 ϵ はX線領域の場合は1に近い値になる. 式(4)をプロットすると図3のようになり, 相対論的な電子が関わる多くの放射現象と同様に $1/\gamma$ の指向性をもつ放射分布となる. 分布の中心では, 式(3)で決まるPXRエネルギーは入射電子に平行なX線がBragg回折されるエネルギーと一致し, 運動量保存則として,

$$\frac{\hbar\omega}{c} \frac{\mathbf{v}}{v} + \hbar\mathbf{g} = \frac{\hbar\omega}{c} \boldsymbol{\Omega} \quad (5)$$

が成り立つ. この場合, 相対論的な領域では式(4)の分子にあるベクトル積は近似的にゼロとなるため, 図3のように中心部には放射がない窪んだ分布となる. この分布の形状はPXRの特徴の一つではあるが, 実際には結晶内で入射電子が受ける多重散乱の影響により, 窪みが埋まって比較的フラットな分布が得られる. ここで示した理論式は, 周期的な古典電磁ポテンシャルとの相互作用による荷電粒子の状態遷移を量子電磁気学で扱うことにより導かれるが¹¹⁾, 運動学的な見地が重要な役割を果たすことからPXRの運動学

的理論と呼ばれる.

ここで強調しておきたいのは, 図3の分布は1個の原子による散乱で得られるものではなく, 周期的に並んだ非常に多数の原子の寄与によって生じるものであるという点である. フリンジや周期パターンが現れないため直感的にはわかりにくいところはあるが, この分布は結晶によって作られる干渉像であり, 空間的に位相の相関を保持した空間コヒーレントな状態となっている. このコヒーレンスは電子が照射される部分の結晶の完全性に強く依存することになる.

3. PXR線源開発計画

日本大学LEBRAでは1994年より125 MeV電子リニアックを用いたFELの開発を進めていた¹²⁾, リニアック高度利用次期計画の候補としてPXRによる新型X線源開発が浮上し, 1998年頃からその可能性について検討することとなった.

3.1 2結晶システムによるPXRの輸送

PXRはその研究の当初より, 将来のX線源としての期待がかけられてはいたが, 発生したX線の応用を目的とした線源開発研究の動きは1990年代後半まで具体的には現れなかった. 加速器が必須デバイスであるため, 資金的な面が大きい, 技術的には以下が要因として挙げられる.

1. 結晶ターゲットにビームを照射してしまうため, 加速器としては周回型よりもビーム使い捨てのリニアックが適している.
2. 十分なX線強度を得るには大電流リニアックが必要となり, 従ってビームダンプなどで発生する高エネルギー制動放射や中性子線といったバックグラウンド放射線も増加する.
3. 計測上および安全上の理由により, 十分な遮蔽壁を用意する必要がある.
4. PXRの特長である連続エネルギー可変性には, X線放出方向の変化が伴うため, 遮蔽の設置が難しくなる.

基礎研究の段階においても, リニアック施設ではシンクロトロン施設に比べ, 放射線遮蔽の必要性が実験を難しくする要因となっていたが, 大電流リニアックによるPXR線源実現となると, X線エネルギー可変性と放射線遮蔽の両立が重要な課題となる. 日大LEBRAでは, この解決策として, 図4のような(+, -)平行配置の2結晶型システムが提案された. 2枚目の結晶によってPXRビームを反射し, X線のエネルギーが変わっても同じポートからX線ビームを取り出すことができるようにしたもので, 基本的に

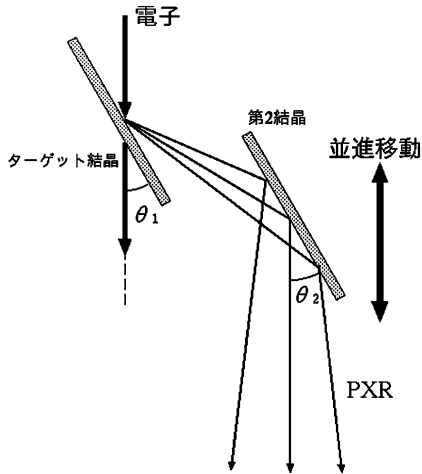


図4 (+, -) 平行配置2結晶システムによるPXRの発生と輸送.

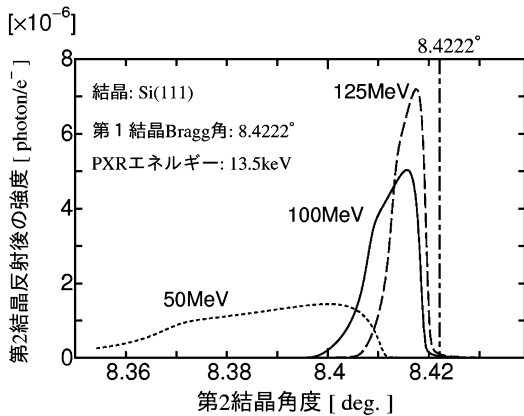


図5 2結晶システム (Si(111)平行配置)における第2結晶回折曲線。(ターゲット結晶はBragg角8.4222°で固定.)

はシンクロトロン放射光実験で用いられているダブルモノクロメータと同じ構造である。しかしながら、PXRが線源である場合の2枚の完全結晶による輸送については、研究の前例が無かった。そのため、線源の実現性についての検討を、PXRの運動学的理論とX線動力学回折理論を組み合わせた光線追跡シミュレーションによって行った¹³⁾。用いる結晶に原理的な制約はなく、物性的にはダイヤモンド単結晶などが好ましいところがあるが、現実的な入手性を考慮してシリコンの単結晶を用いることを前提とした。図5は2枚の結晶に同じSi(111)を用い、ターゲット結晶のBragg角を8.4222°(PXRエネルギー13.5 keVに相当)に固定した場合の、2番目の結晶における回折曲線の例であるが、図のように電子エネルギーが100 MeV程度あれば比較的狭いピークが得られることが

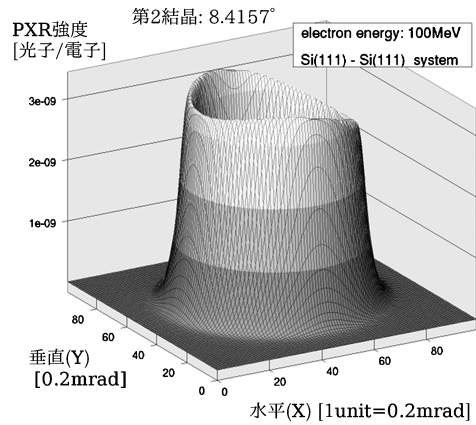


図6 第2結晶による反射後のPXRビームプロファイル.

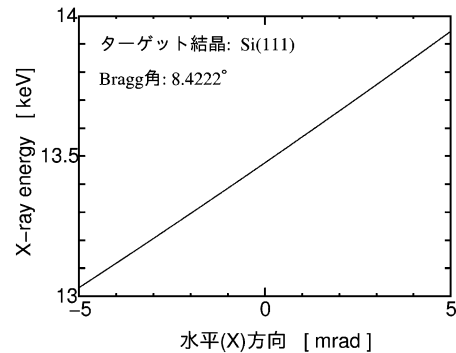


図7 2結晶システムで得られるPXRビームがもつエネルギー分散.

わかった。ここで重要なのは、電子の速さが光速よりわずかに遅いことが影響して、第2結晶のピーク角度がターゲットのBragg角から少しずれるという点である。このずれは電子エネルギー100 MeVの場合で0.006°程度であるが、完全結晶の回折幅よりも大きいので、放射光の分光でよく用いられるチャンネルカット型の2結晶システムでは輸送できない。1 GeVを超えるような電子ビームを用いない限り、エネルギー可変性を確保した上でPXRを効率良く輸送するには、第2結晶の回転と並進移動を独立に行う分離型の2結晶システムが必要となることがわかった。図に示したのはBragg角8.4222°の場合のみだが、特に離散的な効果は現れず、連続エネルギー可変が実現できることも確認された。

また、この2結晶システムによって輸送されるPXRのビームは $1/\gamma$ の広がり角を維持しており、そのプロファイルは図6のようになる。発生したPXRに対して反射率100%とまではいかないが、元々のPXRビームの特性を保持したまま輸送される。例え

ば、図7は輸送されるPXRビームが有する水平方向(結晶の回転軸を鉛直にとる)のエネルギー分散である。分散関係それ自体は白色点光源を分光した場合と類似であるが、PXRの場合は図2で論じたPXRの波面形状を反映したものである。このことから、完全結晶光学系ではPXRの波面を維持したままの輸送が可能であることがわかる。わずかな角度補正を加えることによって完全結晶で効率良く輸送できるという特性が見出されたことは、PXR線源開発を推進する上で大きな転機となった。

3.2 学術フロンティア推進事業

シミュレーション研究によって2結晶型PXR線源の可能性が示されたのは1999年のことであったが、その当時、日本大学では文科省私立大学学術研究高度化推進事業の拠点形成プログラムである学術フロンティア推進事業に申請する準備が進められていた。当初は近赤外FELの共同利用研究を進めるための施設整備と応用研究支援体制の充実を図ることを主眼としていたが、学内利用者からは予想以上にX線領域の光源を望む声が強かった。当然、125 MeVの電子リニアックではアンジュレータ放射光によるX線領域のカバーは困難である。プログラムの趣旨を鑑みると、単なるX線管の導入では拠点の形成・発展は望めないという考えの下、PXR線源開発を前倒して盛り込み、世界初の専用ビームラインでの線源実用化に取り組むことになった。光源整備に割り当てられた1.5億円の中で、赤外FEL輸送ビームラインの整備と合せて実施するという予算的には厳しい計画となった。他に前例が無いこともあり思い切った挑戦であったが、この決断は当時のプロジェクトリーダーであった佐藤勇先生によるところが大きい。

プロジェクトは5年間の学術フロンティア推進事業「波長可変高輝度単色光源の高度利用に関する研究」として選定され、2000年4月に正式に発足した。これに伴い、専用ビームラインを含めたPXR線源の設計・製作もスタートすることになった。LEBRAにおけるプロジェクトの推移を表1に示す。

3.3 PXRビームラインの概要

日大LEBRAでは既に90°偏向ビームラインがFEL用として設置されており、配置の関係で隣に新たなビームラインを追加する余地があった。また、幸いなことに、加速器本体室とその隣の実験室の間のコンクリート遮蔽壁に貫通孔が設けられていた。これを有効利用し、X線ビームのみをコンクリート遮蔽壁を通して実験室まで輸送し、そこで利用実験を行うことを構想した。図8に加速器本体室と各ビームライン

表1 日大LEBRAおよびPXR開発の沿革

1994年1月	電子リニアックによるFEL計画発足
1995年4月	125 MeV リニアック建設開始
1998年1月	電子ビーム加速成功
2000年4月	学術フロンティア推進事業発足 (H.12-16)
2001年3月	PXRビームライン竣工
2001年5月	波長1.5 μm FEL発振に成功
2003年10月	FEL共同利用開始
2004年4月	PXRビーム取り出しに成功
2004年7月	PXR共同利用開始
2005年4月	学術フロンティア推進事業(継続)に選定 (H.17-19)
2005年12月	PXRによる回折強調型位相コントラストイメージング成功
2007年4月	冷却系更新によるリニアックの超安定化

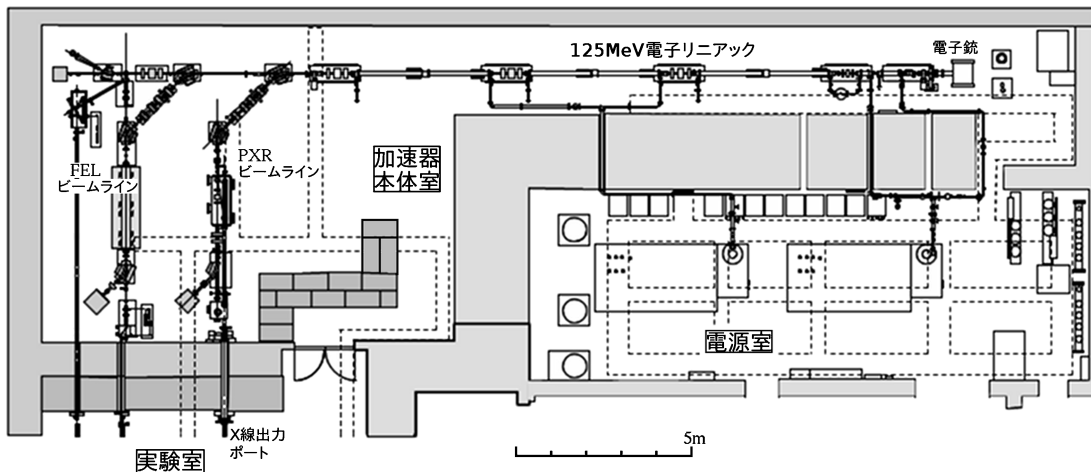


図8 日大LEBRA加速器本体室におけるビームラインの配置。

を示す。

PXR ビームラインの基本的な構造は FEL ビームラインと光源部分を除いて概ね同じであり、偏向電磁石によって電子ビームの供給先を切り替えるようにした。2つの45°偏向電磁石と4極電磁石から成るアクロマートなアナライザー系は FEL ビームラインの設計をそのまま踏襲している。ビームライン上には2結晶型 PXR 発生装置の他、汎用実験用の真空槽が設置されている。X線は遮蔽壁を貫通する真空ダクトを通して隣室に運ばれ、電子ビームは加速器本体室内のビームダンプに捨てられる。ターゲット結晶通過後の電子ビームの発散が大きくなることを考慮して、ビームダンプまでのダクトは FEL ビームラインよりも径を大きくしてあり、4極電磁石や偏向電磁石もそれに対応したものになっている。

3.4 2結晶型 PXR 発生装置の設計・製作

前述のように、2結晶システムで PXR の輸送を実現するには、2つの結晶を分離独立して制御可能にしなければならない。また、ターゲット結晶照射前に電子ビームが余計な散乱を受けるのを避けるには、リニアックに直結した真空下において照射する必要がある。X線の輸送時における減衰を抑制する上でもビームラインを真空化することは望ましい。ターゲット結晶および反射用第2結晶ともに高精度の配位制御が必要であるため、高真空仕様の高性能ゴニオメータを用意する必要がある。ゴニオメータの動力については真空槽外部から導入する方法も検討されたが、第2結晶が長い並進移動機構を備える必要があるため、一部を除き真空槽内部にモータを持ち込むことにした。幸い、高真空仕様のステッピングモータの信頼性が向上しつつあった時期であったため、これは特に深刻な問題とはならなかった。結晶の制御に関しては、第1、第2ゴニオとも駆動軸として Bragg 角を制御する鉛直な回転軸 (θ_z) と、結晶のあおりや面内回転を調整する傾斜2軸 (θ_x, θ_y) が設けられた。また、第2ゴニオには PXR の放出方向の変化に追随するための並進移動軸 (Y) が、第1ゴニオには電子ビームラインから退避するための移動軸がそれぞれ加えられることになった。以上のような方針の下、設計・製作された2結晶型 PXR 発生装置の写真を図9に示す。写真のように直方体の大型真空槽に機構を収納する形となったが、これは予算上の理由で、大型化しても真空槽の形状を単純にした方が総合的には低コストと見積られたためである。PXR エネルギー可変性の範囲と、合理的な真空槽のサイズを考慮した結果、電子ビームラインと第2結晶反射後の PXR ビームラインの間隔を

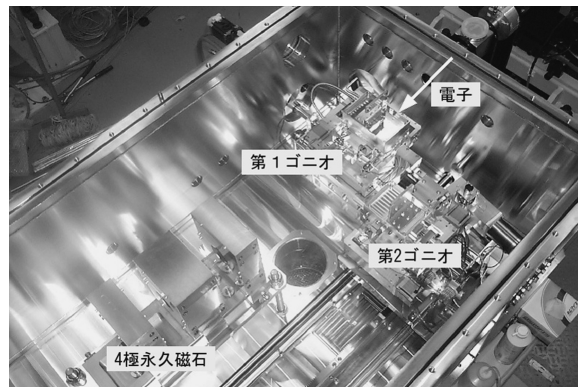


図9 PXR 発生装置の内部。

表2 PXR 発生装置の主な仕様

第1, 第2ゴニオ共通	
θ_x 駆動範囲	$\pm 10^\circ$
θ_y 駆動範囲	$\pm 10^\circ$
θ_z 駆動範囲	0~35°
θ_z ステップ分解能	0.000667°
第2ゴニオ並進駆動範囲	-10~+1030 mm
PXR エネルギー範囲	
Si(111)使用時	3.5~20.5 keV
Si(220)使用時	5.7~33.5 keV
ターゲット結晶厚	0.2 mm (typ.)
第2結晶厚	5 mm (typ.)

200 mm に決め、ビームラインと発生装置の設計における基準となった。この PXR 発生装置の大まかな仕様を表2に示す。反射用の結晶にはある程度の面積が必要であることから、高品質で大型の完全結晶が入手可能なシリコンを用いることを基本とした。

PXR のターゲット結晶の配置として、我々は Bragg ケースを選択したが、この場合、厚さ 0.2 mm のターゲット結晶を用いても、入射電子が通過するパス長は 1 mm 程度になる。電子ビームはターゲット結晶内部で多重散乱を受けてビームの発散が増大する。電子エネルギー 100 MeV の場合、実効厚 1 mm のシリコン結晶を通過すると、10 mrad 程度ビーム発散角が増大してしまう。ビームダンプ到達までのビームロスを抑え、発生するバックグラウンド放射線を低減するには、ターゲット下流のビーム集束系が重要となる。しかしながら、大型直方体真空槽を採用したため、ターゲット結晶直後に4極電磁石を設置することが困難となった。そこで、真空槽内部にトリプレット4極永久磁石を設置することにし、その磁場勾配(最大約 1.7 kG/cm)は電子エネルギー 100 MeV を

前提として設計された。PXR の場合、発生する X 線のエネルギーを調整するのに電子のエネルギーを変える必要がないため、このような措置が可能であった。永久磁石の材質としては、保磁力より耐放射線性能を重視してアルニコを採用した。

真空槽が大型化したため、排気系も容量が必要となり、常時排気系として 500 l/s の IP を、粗引き排気系として 300 l/s の TMP ユニットの設置した。

3.5 結晶冷却系

ターゲット結晶においては、電子ビームが通過する際のエネルギー損失により平均電流 1 μA あたり 1~2 W 程度の熱負荷が生じる。そのため、銅製のターゲット結晶ホルダーを水冷することにしたが、当初の構成では冷却水が振動源となり PXR のパルス-パルス不安定性を引き起こしてしまったため、後に低圧の水冷回路に更新することになった。

第 2 結晶に関しては、シンクロトロン放射光におけるモノクロメータと異なり、強い白色光に曝されることがないため、水冷系は導入しなかった。

3.6 真空槽内電気回路系

PXR 発生装置は結晶をゴニオメータで精度良く制御する必要がある。しかし、PXR 発生装置の真空槽内は高放射線環境であるため、光センサータイプのリミットスイッチやエンコーダはすぐに故障してしまう。そのため、原点の機械接点リミットスイッチを基準としてステッピングモータのパルス座標で結晶方位の管理を行うことにした。Bragg 角を決める回転軸 θ_z と第 2 結晶並進移動軸 Y については、高い位置再現性が求められるため、位置精度 1 μm の高性能機械式リミットスイッチを導入した。これらの軸には磁気式ロータリーエンコーダを設置したが、放射線耐久性は低く、試験運転開始まもなく故障した。また、故障等のモニタリング用として、ポテンシオメータも設置してある。

真空槽内で用いる信号ケーブルも、放射線の影響を考慮して、ポリイミド被覆のものに統一した。

3.7 制御系

PXR 発生装置は計 8 軸のモータ駆動軸をもつ。作業効率を考えると、アライメント作業時にはローカルで、実際の運用はリモートで制御可能なシステムが望ましい。折しも、PC やイーサネットネットワーク機器が急速に安価になった時期であったこともあり、PC に市販のモータコントロールボードを取り付けてモータコントローラーサーバとして運用することにした。クライアント PC から TCP/IP を介してのリモート制御・モニタリングを可能なシステムを開発し、制御端

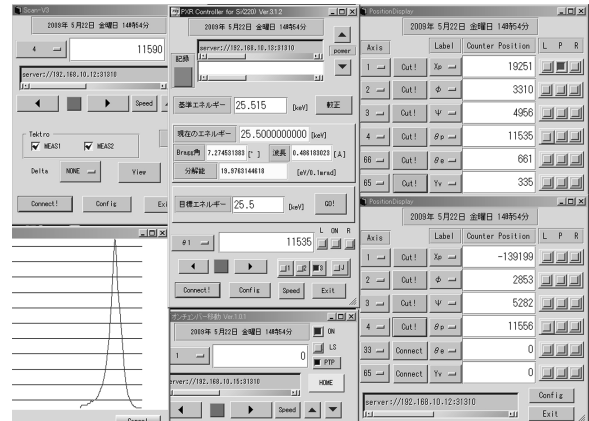


図10 PXR 発生装置制御ソフトウェア。

末の可搬性を実現した。複雑な制御は各クライアントソフトに実装すればよいので、開発が容易になる。図 10 はクライアント PC で PXR 発生装置の制御ソフトが動作している様子である。

3.8 X 線出力ポート

第 2 結晶で反射された PXR は厚さ 2 m の遮蔽壁を通して実験室に運ばれ、出力ポートから大気中に取り出されて用いられる。線源から出力ポートまで約 7.2 m の距離があるため、PXR ビームの直径は $1/\gamma$ に起因する広がりによってダクト内径 98 mm とほぼ同じになる。これをすべて取り出すには大面積の真空窓が必要となるが、均一性と強度を考慮して厚さ 0.125 mm のポリイミドフィルムを採用した。また、X 線シャッターとして、エアー駆動の鉛シャッター (40 mm 厚) が設置された。

4. PXR 線源の立上げ

PXR 発生装置の製作とビームラインの建設自体は 2001 年 3 月に完了した¹⁴⁾。しかしながら、ビームラインの運用を開始するには、放射線使用施設管理区域常時立ち入る場所の変更に伴う施設検査、および PXR ビームライン追加の変更申請とそれに伴う施設検査を経る必要があった。これに時間を要し、2004 年 3 月に PXR ビームラインの試験運転が開始され、施設検査合格となった。表 3 は許可を受けた PXR ビームラインでの電子ビーム条件と、実際の典型的な運転パラメータである。

4.1 PXR 観測の成功

施設検査合格後、本格的に PXR ビームラインの運用を開始し、PXR ビームを観測すべく探索を続けた。ここで問題となったのが、X 線強度の測定法である。発生装置より取り出される PXR 強度は第 2 結

表3 PXR ビームライン電子ビームパラメータ

最大電子エネルギー	100 MeV
最大平均電流	5 μ A
マクロパルス電流	<120 mA
マクロパルス幅	5~20 μ s
パルス繰り返し	2~5 Hz
ミクロパルス周波数	2856 MHz
電子パンチ長	3~10 ps
規格化エミッタンス	~15 π mm mrad
電子エネルギー広がり	1%

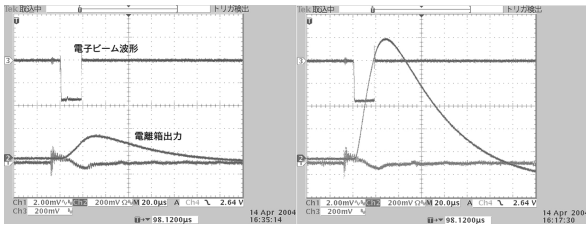


図11 電離箱出力：(左) バックグラウンド；(右) PXR とと思われる信号。

晶の角度に強く依存するため、PXRを検知するにはパルス毎のX線強度をモニターしながら角度走査する必要がある。検出器としてはガス電離箱を用いることにしたが、リニアックの典型的なパルス繰り返しは2 Hzであるので、連続的な線源のように電流で測定することが困難である。試行錯誤したが、比例計数管のように電荷感応型の前置増幅器を用い、パルス高としてパルス毎のX線量を測定することにした。

以上のような方法でPXRビームの探索を行っていたが、2004年4月14日に第2結晶の角度に依存する信号を捉えた(図11)。この時の電子ビーム条件は、エネルギーが100 MeV、マクロパルス電流と幅はそれぞれ90 mA、20 μ s、繰り返しは2 Hzであった。ターゲットにはSi(111)を用いており、Bragg角は12°で予想されるPXRエネルギーは約9.5 keVであった。図12はこのPXRと思われるビームを照射してポラロイドフィルムで撮像した、ICチップなどの像である¹⁵⁾。実際に得られるPXRのビームは図6のような中心が抜けた分布ではなく、直径98 mmの照射野においてほぼ一樣な分布が得られた。これはターゲット結晶内の電子多重散乱の効果と考えられる。

4.2 エネルギー可変性と線形なエネルギー分散

最初のX線ビーム観測成功の後、第2結晶における回折の様子やエネルギー可変の特性を調べ、得られるX線がPXRであると判断したが^{15,16)}、特に決定的

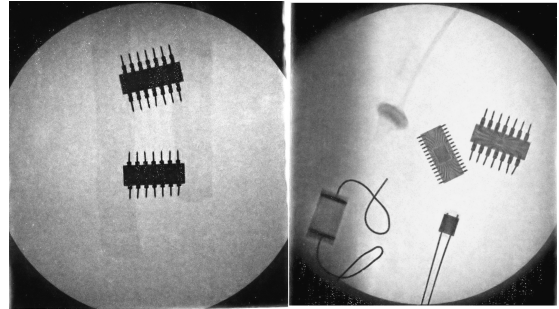


図12 初期にポラロイド(タイプ57)で撮像されたX線イメージ；(左) 9.5 keV, (右) 18 keV.

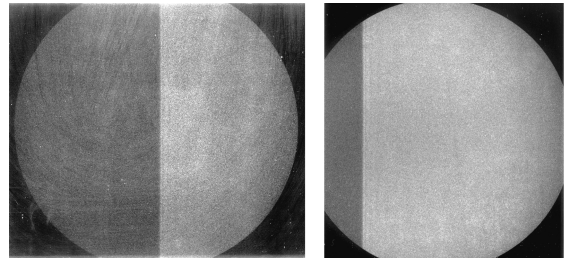


図13 ポラロイドフィルムで観測された臭素(Br)のK吸収端。結晶の角度に応じて吸収端の位置が移動する。

であったのは、ポラロイドフィルムの乳剤に含まれるBrのK吸収端(13.47 keV)の検出である(図13)。これは、図7に示される水平方向のエネルギー分散を反映したものである。ソーラースリットを用いなくとも垂直方向の単色性が確保できていることから、白色の制動放射の影響は少ないと思われた。

このBr吸収端の近傍には、X線吸収微細構造(XAFS)を反映したと思われる縞模様が観測された。これにより、PXRをエネルギー分散型のXAFS測定に応用することが期待されるようになった。また、ポラロイドによるBr吸収端測定は、PXR発生装置のエネルギー較正の基準として有用であった。

5. PXR 応用の高度化

PXR線源共同利用開始後、検出器としてイメージングプレート(IP)やX線CCDが導入され、X線エネルギー可変性を利用した吸収像測定が主な応用となった¹⁶⁾。LEBRAはPXRによるX線イメージングを実施した施設としては世界で2番目であったが¹⁷⁾、恒常的に応用実験を行うのは世界初であった。図14に線源のデモンストレーションや初期の利用研究で撮像されたX線吸収像の例を示す¹⁸⁾。2005年頃からは、吸収像測定に加え、PXRの特性を生かした、

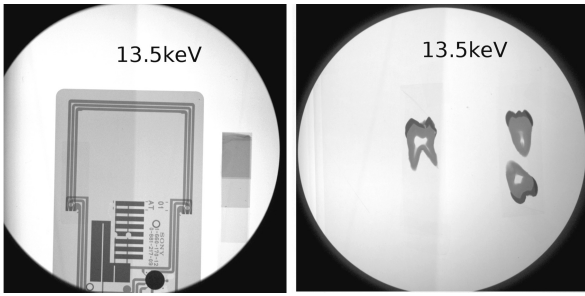


図14 PXRによるX線吸収像；(左)：ICカード，(右)：人の歯のスライスサンプル。

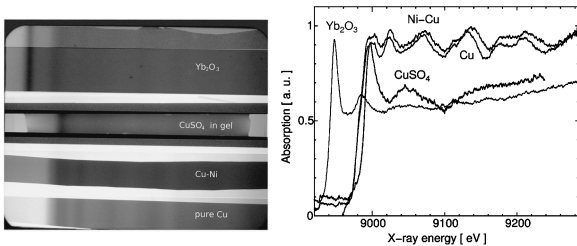


図15 (左) 9 keV 付近に吸収端をもつ試料 (Cu, Cu-Ni, CuSO₄, Yb₂O₃) の X 線吸収像；(右) 吸収像から得られた XAFS スペクトル。

より高度な応用が模索されるようになった。

5.1 エネルギー分散型 XAFS 測定

図13が良い例であるが、図7に示されるような水平方向に線形なエネルギー分散を利用すれば、X線吸収イメージから吸収スペクトルが取得できる¹⁹⁾。中心エネルギーにもよるが、PXRビームの照射野内で200 eV～1 keV程度のエネルギー範囲をカバーすることができるため、XAFS測定への応用が現実的となる。スペクトルの規格化などを考えると、広い面積にわたって均一あるいは厚さの補正が可能な試料が必要となるが、垂直方向の単色性を利用することにより、複数サンプルの同時測定が可能となる。図15には典型的な例として、銅など9 keV周辺に吸収端をもつ物質のX線像と、それより得られたXAFSスペクトルを示す^{20,21)}。

5.2 位相コントラストイメージング

PXRは波面が揃ったコヒーレントな光であるので、物質を透過する際のX線の位相変化を測る位相コントラストイメージングに適していると考えられる²²⁾。PXRの場合、そのビームプロファイル自体がターゲット結晶によって作られる干渉像であるので、PXRに適した位相変化の検出方法があれば、PXRビーム全体を用いた位相コントラストイメージングが可能となる。

ここで、2結晶型PXR発生装置の第2結晶によるPXRの回折についてもう一度考えてみることにしよう。PXRは線源点を頂点として円錐状に広がるビームとなっているため、ビームの中心軸から離れるに従って第2結晶の結晶面に入射する角度が変化することになる。しかしながら、2つの結晶が(+, -)対称配置に置かれた場合、この角度変化は図7で示される線形なエネルギーシフトと補償しあう関係となり、中心軸から離れてもBraggの回折条件(式(1))が成り立つことになる(ただし§3.1で述べたように、第2結晶Bragg角の値は入射電子の速さが光速より遅いことを反映した補正がなされたものとなる)。これはPXRビーム全体で回折条件が満たされて効率良く輸送されることを意味するが、このような関係は同じ結晶を(+, -)対称配置にする限り3枚目以降の結晶においても成立する。つまり、PXRは図2で説明したような波面となっているが、発生に用いたのと同じ結晶面による回折においては平面波であるかのように振舞う。この擬似平面波性は位相変化の検出には非常に有用であり、位相コントラストイメージングの一種である回折強調型イメージング(Diffraction-Enhanced Imaging: DEI)への応用が期待できる²¹⁾。

X線位相コントラストイメージングとして良く行われるのは、点光源球面波でも可能な伝搬法であるが、これについてはLEBRA-PXRでも比較的早い段階でエッジ強調効果の観測に成功している¹⁶⁾。一方、DEIはX線が試料を透過する際の位相変化により生じる屈折をアナライザー結晶で測定する方法である。平面波的なX線が必要なので、シンクロトロン放射光施設の長尺ビームラインなどで行われるのが一般的であるが、線源として本質的に空間コヒーレントで擬似平面波性をもつPXRを用いれば、図16のような比較的コンパクトな実験セットアップで大照射野DEIの実現が期待できる。多少の試行錯誤はあったものの、2005年12月にPXRによるDEIに成功した。この結果を図17に示す。この成功以後、DEI実験はLEBRA-PXRの主要な応用の一つとなり、精力的に研究がおこなわれている^{23,24)}。

5.3 PXR線源の高度化

DEIに代表されるPXRの応用が高度化したため、リニアックの安定性に対する要求が厳しくなった。特に冷却水温度の変動とPXR強度の間の相関が確認されたことから、加速器の冷却系を更新し、精密温調水温の変動幅が±0.01℃以下になるまで安定化した。同時にターゲット結晶冷却系の低圧化も行い、冷却水による温度変動と振動の影響が抑制された。これらの

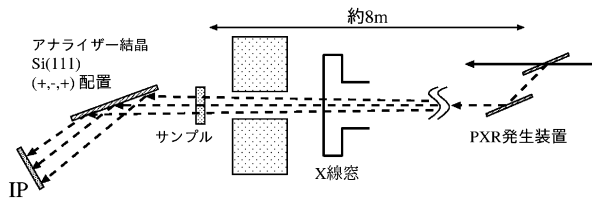


図16 PXR を用いた DEI 実験セットアップ.

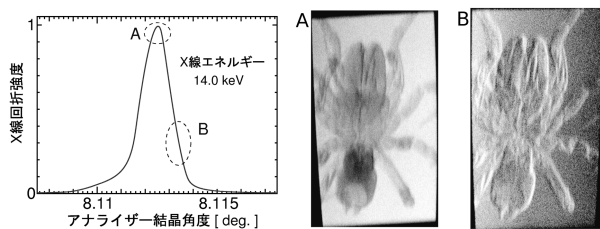


図17 エネルギー 14 keV でのジグモの DEI 像. アナライザの調整により明暗が変化することが確認された.

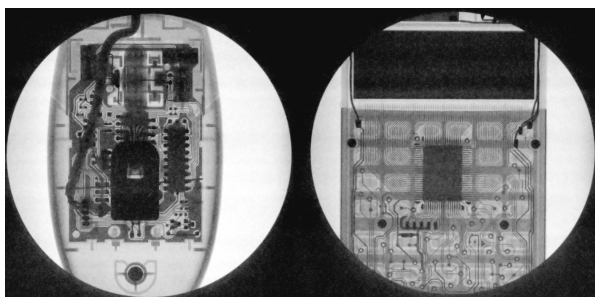


図18 非対称ターゲットの使用による撮像時間の短縮 (平均ビーム電流: 1.2 μ A, PXR エネルギー: 14 keV, 撮像時間: 20 s).

改善の結果, 実験の再現性が向上した^{25,26)}.

低繰り返しリニアックの宿命であるが, LEBRA のリニアックは平均ビーム電流が数 μ A であり, PXR の平均強度はこれに制約される. 光子フラックスとしては $10^6 \sim 10^7/s$ 程度であるため¹⁶⁾, X線エネルギーや検出器にもよるが, イメージの取得に5~30分程度の時間を要していた. 電子ビーム電流の増強以外の方法でPXRの強度増強が望まれたため, 非対称カットを施した結晶をターゲットとして試験した²⁷⁾. その結果, 実際にPXR強度の増強を確認し, 1分以下の時間でのX線像撮像に成功している(図18). PXRの医療などへの応用を推進するという面では非常に重要な知見が得られたといえるだろう.

6. おわりに

日大LEBRAにおけるPXR線源開発プロジェクトの経緯を振り返ってみた. 前例のない常設PXR線源の開発に着手したことは, 一私立大学の附置研究施設としてはかなりの冒険であった. その中でコヒーレントX線源としてのPXRの有用性を示す成果が得られたことは僥倖であったといえるだろう. PXRの研究の歴史において, その存在が実験的に実証されてから25年ほど経つが, 当初よりコヒーレントなX線放射現象としてX線源へ応用することが期待されていた. とはいふものの, 大半はエネルギー可変な単色X線源としての可能性の言及にとどまっていたように思う. DEIのようにコヒーレントX線としての特性を生かした応用を見出すことができたのはPXRの研究において大きな転機となったといえるだろう. X線源実用化研究の実施がなければ, 短期間でこのような応用の高度化まで至るのは難しかったのではないかと思う.

今後の展望としては, やはり位相コントラストイメージングのように, PXRのコヒーレントな特性を生かし実際の医療応用につながるような研究の進展を期待したい. 医療応用を目指した加速器ベースの次世代X線源開発プロジェクトは世界的に幾つか立ち上がっているが, 遮蔽を含めた加速器を小規模にするために10 MeV程度の電子エネルギーを前提とするものが多い. それに対して, PXRによる医療用X線源を実現するには, エネルギー100 MeVの領域でコンパクトな大電流電子加速器を開発することが必要となる²⁸⁾. ここでコヒーレントX線源としての将来性に期待し, 加速器技術のイノベーションによる打開を試みるのも選択肢の一つではないだろうか.

謝辞

PXR線源開発においては, 限られた予算の中で榊トヤマの方々には大変な努力をしていただきました. この場を借りてお礼申し上げます. また, PXRの応用研究がここまで進展するには, リニアックの安定化が不可欠でした. 院生を含めた日大電子線利用研究施設スタッフの方々には改めて感謝申し上げます.

参考文献

- 1) V. G. BARYSHEVSKY and I. D. FERANCHUK, *Nucl. Instr. and Meth.*, **228**, 490 (1985).
- 2) T. Suwada, et al., *Nucl. Instr. and Meth.*, **B 252**, 142

- (2006).
- 3) M.L.Ter-Mikaelian, “*High Energy Electromagnetic Processes in Condensed Media*”, Wiley, New York, 1972.
 - 4) Y. N. Adishchev, et al., *Sov. Phys. JETP*, **66** 361 (1985).
 - 5) A. V. Shchagin, V. I. Pristupa, N. A. Khizhnyak, *Phys. Lett.*, **A 148**, 485 (1990).
 - 6) S. Asano, et al., *Phys. Rev. Lett.*, **70**, 3247 (1993).
 - 7) Y. Hayakawa, et al., *J. Phys. Soc. Jpn.*, **67**, 1044 (1998).
 - 8) T. Akimoto, et al., *Nucl. Instr. and Meth.*, **A 459**, 78 (2001).
 - 9) K. Chouffani, et al., *Nucl. Instr. and Meth.*, **B 173**, 241 (2001).
 - 10) Y. N. Adishev, et al., *Nucl. Instr. and Meth.*, **B 252**, 111 (2006).
 - 11) H. Nitta, *Phys. Lett.*, **A 158**, 270 (1991).
 - 12) Y. Hayakawa, et al., *Nucl. Instr. and Meth.*, **A 483**, 29 (2002).
 - 13) Y. Hayakawa, I. Sato, K. Hayakawa, T. Tanaka, *Nucl. Instr. and Meth.*, **B 227**, 22 (2005).
 - 14) 早川恭史 他, Proceedings of the 26th Linear Accelerator Meeting in Japan, Tsukuba, 110 (2001).
 - 15) 早川恭史 他, Proceedings of the 1st Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 29th Linear Accelerator Meeting in Japan, Funabashi, 60 (2004).
 - 16) Y. Hayakawa, et al., *Nucl. Instr. and Meth.*, **B 252**, 102 (2006).
 - 17) B. Sones, Y. Danon, R. C. Block, *Nucl. Instr. and Meth.*, **A 560**, 589 (2006).
 - 18) CERN COURIER, **46**, 37 (2006), URL: <http://cerncourier.com/cws/article/cern/29531>
 - 19) M. INAGAKI, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.*, **47**, 8081 (2008).
 - 20) A. Mori, et al., AIP Conference Proceeding: SRI2006, Daegu, Korea, 1841 (2007).
 - 21) Y. Hayakawa, et al., Proceedings of SPIE 6634, International Conference on Charged and Neutral Particles Channeling Phenomena II, 663411-1 (2007).
 - 22) R. Fitzgerald, *Phys. Today*, **53**, 23 (2000).
 - 23) T. Kuwada, et al., AIP Conference Proceeding: SRI2006, Daegu, Korea, 1968 (2007).
 - 24) 高橋由美子 他, X 線分析の進歩, **40**, 269 (2009).
 - 25) 境武志, 非破壊検査第57巻, 282 (2008).
 - 26) Y. Hayakawa, et al., *Nucl. Instr. and Meth.*, **B 266**, 3758 (2008).
 - 27) Y. Hayakawa, et al., Proceedings of the 5th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 33rd Linear Accelerator Meeting in Japan, Higashihiroshima, 69 (2008).
 - 28) I. Sato, et al., Proceedings of the 5th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 33rd Linear Accelerator Meeting in Japan, Higashihiroshima, 64 (2008).