

PARAMETRIC X-RAY GENERATION USING THE BURST-MODE BEAM AT LEBRA AND THE FEASIBILITY OF THE APPLICATION

Yasushi Hayakawa* ^{A)}, Ken Hayakawa^{A)}, Manabu Inagaki^{A)}, Keisuke Nakao^{A)},
Kyoko Nogami^{A)}, Takeshi Sakai^{A)}, Isamu Sato^{B)}, Toshinari Tanaka^{A)}

^{A)}Laboratory for Electron Beam Research and Application (LEBRA), Nihon University,
Narashinodai 7-24-1, Funabashi 274-8501

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

Abstract

At the Laboratory for Electron Beam Research and Application (LEBRA), the parametric X-ray (PXR) beam produced by using the burst-mode beam from the electron linac was observed and the several application experiments were actually performed. In the case of the 64 division mode corresponding to the bunch period of 22.4 ns, the macropulse beam current was approximately one fifth of that of the conventional full bunch mode. The result of the imaging using the PXR beam agrees with the PXR yield proportional to the beam current. Analyzer-based phase-contrast imaging and dispersive X-ray absorption spectroscopy were also carried out using the burst-mode beam. As the result, no serious problem was observed with respect to the X-ray beam quality. Thus, it is expected that the time-resolved experiments with the resolution of 1 ns will be possible using the burst-mode PXR beam.

日大LEBRAバーストモードビームを用いたPXRの発生と応用の可能性

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自由電子レーザー (FEL: free electron laser) とパラメトリック X 線放射 (PXR: parametric X-ray radiation) による 2 種類の放射光源を開発し、運用している [1]。FEL 光源、PXR 線源共にユーザ利用実験にビームを供給しており、様々な成果が得られている。

これまで、各光源の性能向上のために冷却水温度制御の高精度化などに取り組んできたが、更なるリニアックの改良として電子銃への高速グリッドパルサーの導入によるバーストモードの追加を実施し、ビームバンチを間引いた運転が可能となった [2]。バンチ当たりの電荷量を増やし、FEL の発振を容易にするのがこの改良の主な動機であるが、結果としてバンチ間隔が長くなり、ピコ秒～ナノ秒領域の時間依存測定が可能となる。応用研究の観点においても重要な更新であり、今後ポンプ-プローブ測定などへ応用が広がっていくことが期待される。FEL ビームラインにおいては、既に新しい電子銃によるバーストモードでの FEL 発振に成功しており、実際にユーザ利用実験にビームを供給するに至っている [3]。

PXR の場合は FEL のようにピーク電流の増大に伴う利点は顕著ではないが、バンチ間隔が広がり時間依存測定自由度が増すことのメリットは大きい。これまでの LEBRA で実施された PXR の主要な利用実験としては、位相コントラストイメージングや X 線吸収端微細構造 (XAFS: X-ray absorption fine structure) 測定が挙げられるが、共にシンクロトロン放射光源を用いた研究が

主流であるので、リニアックベースの PXR 線源を用いた時間依存測定が可能となれば、従来とは相補的な実験研究を担うことが期待できる [4, 5]。まずは試験的に PXR ビームラインをバーストモードで運転し、従来と同様に現実的なマシンタイムで利用実験が可能かどうかの検証を行った。

2. バーストモード運転

従来のビームバンチを間引かない運転モード (フルバンチモード) での典型的なパラメータを表 1 に示す。PXR の場合、その波長を調整するために電子ビームのエネルギーを変える必要が無いので、放射線施設の申請上の最大エネルギーである 100 MeV に固定して運用している。また、FEL のように 90° 偏向部を利用して強くバンチ圧縮を掛ける必要が無いため、通常は電子ビームのエネルギー広がりが小さくなるように調整してリニアックを運転している。結果として偏向部のスリットで失われる電子ビームが少なくなり、偏向後のビームラインにおけるマクロパルス電流は FEL の場合に比べて 1.5~2 倍程度となっている。PXR を生成する機構において、放射源であるシリコン単結晶ウェハーに直接電子ビームを照射することになるため、ターゲットとなる結晶の損傷が問題となる [6]。実際、LEBRA-PXR 線源では幅が 10 μ s 以上のマクロパルスの照射で損傷が発生している。パルス幅を 5 μ s 程度に制限すれば損傷の発生が防げることが経験的にわかってきたため、マクロパルス幅 4.5~5 μ s というのが現在の典型的なパラメータとなっている。パルス幅を狭める代わりにパルスの繰り返し周期を 5 pps に増やしているため、平均ビーム電流としては FEL の場合と概ね同じになっている。

高速グリッドパルサーの導入により、幅 0.6~1 ns のパルスのバースト状態として電子ビームを電子銃からバ

*E-mail: yahayak@lebra.nihon-u.ac.jp

表 1: LEBRA-リニアックのフルバンチモードでの典型的な運転パラメータ。

Beamline	PXR	FEL
Accelerating frequency	2856 MHz	
Electron energy	100 MeV	55–100 MeV
Macropulse		
Beam current	120–135 mA	60–100 mA
Duration	4–5 μ s	20 μ s
Repetition rate	5 pps	2 pps
Average beam current	2.5–3.3 μ A	2.5–4.0 μ A

ンチャー・加速管へ供給することが可能となった。これにより、LEBRA リニアックの運転モードとして、従来と同様バンチを間引かないモード(フルバンチモード)、間引かれたバンチを加速するモード(バーストモード)、従来のマクロパルスにバーストパルスを重ね合わせたモード(重畳モード)の3種類が可能になった^[7]。PXRの場合は、FELのように発振条件を探索する必要が無い場合、重畳モードが必要なケースは非常に限定されると思われる。高速グリッドパルスは加速器のマスター発信器からのRFを分周して生成しており、64, 128分周の間引き運転が可能である。

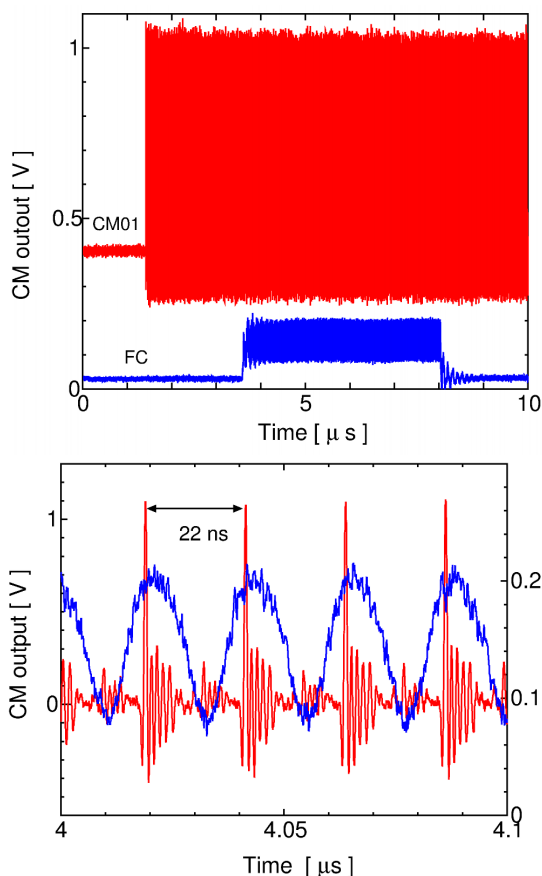


図 1: 64 分周バーストモード運転時の電子ビームマクロパルス波形(上)およびそれを拡大した波形(下)。ここで、赤線: 電子銃直後の電流モニタ (CM01) 出力; 青線: PXR ビームライン終端のファラデーカップ (FC) 出力。

図 1 は、PXR ビームラインで 64 分周のバーストモードで運転した時の電子ビームを電子銃直後の電流モニタ (CM01) および偏向後の PXR ビームライン終端のビームダンプに設置されたファラデーカップ (FC) で測定した波形である。この時、電子銃グリッドバイアス電圧 53 V に対し、35 V のグリッドパルスと 160 V の高速グリッドパルスを印加した。PXR ビームラインの FC にはまだ高周波特性の悪いケーブルやコネクタ類が用いられているために波形がなまっているが、S バンドの加速周波数 2856 MHz の 64 分周に相当する 22.4 ns 周期の構造が実際に確認できている。また、この条件ではマイクロパルス間に発生するサテライトパルスもある程度抑制できていることがわかる。FC の出力を換算すると、PXR ビームラインにおけるマクロパルス内平均電流はおよそ 20~25 mA であり、フルバンチモード時の 1/5 程度であった。幅 1 ns の高速パルス 1 つにつき平均 2 バンチずつ引き出されていると考えられるので、バンチ当たりの電荷量としてはフルバンチモードの 6 倍程度になっていると推定される。

3. バーストモードでのイメージング実験

64 分周で間引かれた電子ビームで生成した PXR を用いて実際に X 線イメージングの実験を行った。図 2 は Si(111) 結晶をターゲットに用いて生成した 17.5 keV の PXR ビームを用いて撮像した電卓の X 線吸収コントラスト像である。検出器にはイメージングプレート (IP) を用い、撮像時間として 20 s および 100 s かけて取得した像 (b,c) をフルバンチモード 20 s で取得した像 (a) と比較している。フルバンチモード 20 s と 64 分周モード 100 s でほぼ同程度の画質の画像が得られており、FC で測定したビーム電流が 1/5 となっていることと概ね整合する。また、バンチ当たりの電荷量が増えることによりターゲットの損傷のような深刻な問題が起きないことも確認された。

PXR の主要な応用の一つである回折強調型位相コントラストイメージング (DEI: diffraction-enhanced imaging) についても、バーストモードのビームを用いた試験的な実験を実施した^[8,9]。図 1 の波形となる 64 分周のバーストモードの電子ビームを用い、放射源のターゲット結晶としては Si(220) を使用した。図 3 にエネルギー 18 keV の PXR ビームを用いて得られた実験結果を示す。予備的な実験ということもあり、測定中の線源や測定系の変動で X 線の屈折を検出する分光結晶の回折曲線にピークシフトが生じた可能性がある^[10]。そのために回折曲線の両側の半値で得られた像 (b,c) の対称性はあまり良くなかったが、図 4 に示すように、DEI の特徴である画像の加算・減算処理による吸収コントラストと位相 (屈折) コントラストの分離には大きな支障はなかった^[11,12]。少なくとも、電子ビームを間引くことで PXR ビームの空間コヒーレンスが顕著に悪化するような不安定性やエミッタンスの増大は生じなかったと考えられる。

4. DXAFS 測定

PXR のエネルギー分散 (空間チャープ) を利用した分散型 XAFS (DXAFS) 測定は PXR の重要な応用の一つであるが、時間依存測定の実用が広範囲に及ぶという点で特

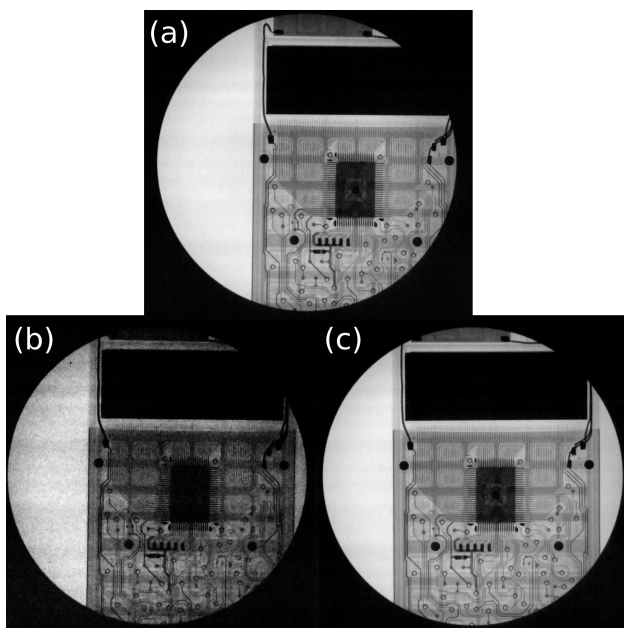


図 2: 17.5 keV の PXR と IP を用いて撮像した電卓の X 線像: (a) フルバッチモード 20 s, (b) 64 分周バーストモード 20 s, (c) 64 分周バーストモード 100 s。

にバーストモードの恩恵を受けることが予想される^[13]。試料物質の X 線吸収スペクトルにおいて、XANES(X-ray absorption near edge structure) と呼ばれる吸収端近傍の構造は物質を構成する分子の化学状態が反映される。典型的なポンプ-プローブ実験としては、光や外場を用いて状態変化を誘起しながら XANES の測定を行うことが考えられる。バーストモードの PXR ビームを用いれば、周期的な誘起・励起が可能な可逆過程に限定されるが、緩和時間が数ナノ秒程度となる現象の測定が現実的なものになる。

実際にポンプ-プローブ実験を実施するには、周期的に可逆変化を誘起可能な試料、および加速器と同期可能なポンピングシステムの準備が必要となるが、まずは試験的な実験としてバーストモードで生成された PXR を用いた XAFS スペクトルの測定が可能かどうかを確認することにした。測定系の準備の都合もあり、DEI の実験セットアップをそのまま用いてモリブデンの K 殻吸収端 (20.00 keV) 付近のスペクトル取得を試みた^[14]。また、電子ビームの平均電流を増やすためにマクロパルス幅を 9.5 μs に広げて実験を行った。フルバッチモードではターゲット結晶の破壊を防ぐために 4.5-5.0 μs に制約して運用しているが、64 分周バーストモードでマクロパルス幅 9.5 μs という条件は、マクロパルスの総電荷量の比較ではフルバッチモード時の 40%程度に相当する。したがって、ターゲット結晶に対する熱的な負荷としてはまだ余裕があるものと考えられる。

DEI の測定系において、分光結晶の回折曲線のピークで厚さ 10 μm のモリブデン箔の X 線像を取得した。その像のプロファイルとして得られたスペクトルと合わせて図 5 に示す。DEI の手法で取得された像であるため、そのコントラストには吸収(複素屈折率虚部)と屈折(複素屈折率実部)の寄与が混在しているが、回折

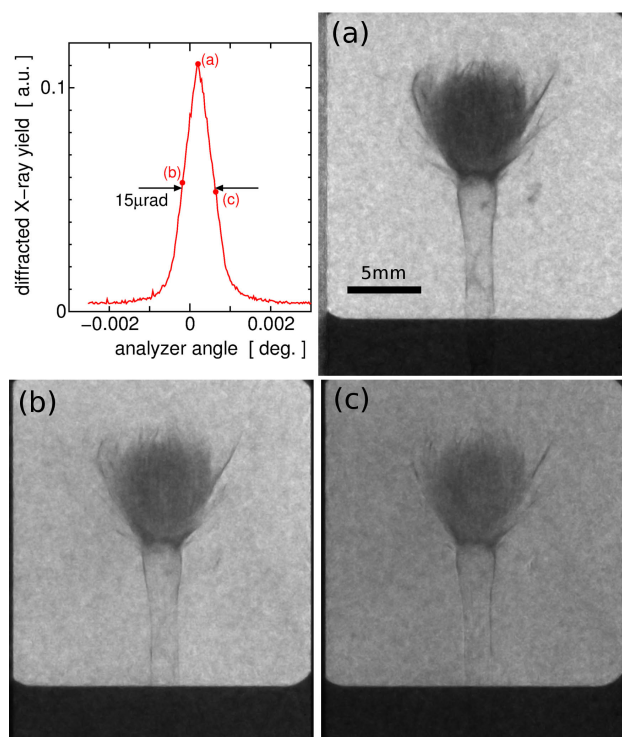


図 3: 64 分周バーストモードにおいて、18 keV の PXR を用いて取得した花の蕾の DEI 像: (a),(b),(c) はそれぞれ分光結晶の回折曲線のピークおよび半値で測定されたもの。撮像時間は各 15 分。

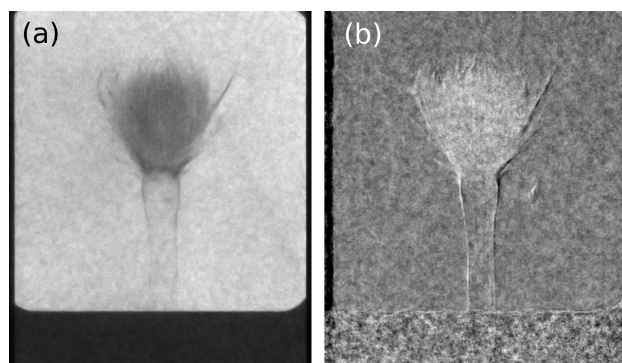


図 4: DEI 像(図 3(b)(c))に演算処理を施した結果: (a) 加算による吸収コントラスト像; (b) 減算による位相コントラスト(位相勾配)像。

曲線のピークでは吸収による寄与が主となっている。また、吸収端を越えた領域では吸収によるコントラストが支配的であることも考慮すると、単純なプロファイルのプロットによって金属モリブデンの吸収スペクトルが概ね得られると考えられる。スペクトルのエネルギー分解能は 100 eV の範囲で得られた構造から推定すると 5-10 eV 程度であり、バーストモードに起因する分解能の悪化は特に生じなかったと思われる。今回は PXR のターゲットとして Si(220)を用いたため、Si(111)の場合に比べて X 線の収量が半分程度となり、このスペクトルの測定にも実時間で 30 分を要した。しかしながら、マクロパルス幅を更に 2 倍広げる余地があること、使

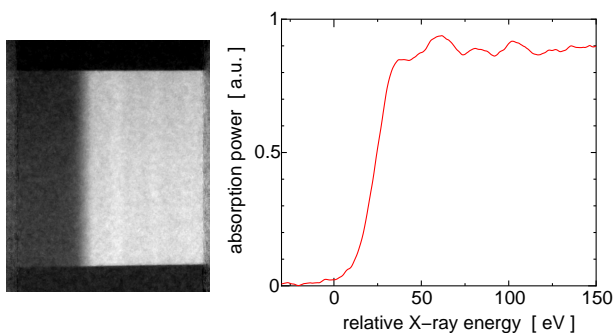


図 5: DEI の測定系を用いて取得された Mo 箔 (10 μm t) の吸収像 (撮像時間: 30 分) と、そのプロファイルとして得られた K 吸収端の XAFS スペクトル。

用した X 線 CCD の量子効率が 20 keV の X 線に対しては 20 % 弱しかないとを考慮すると、測定効率を数倍向上させることは十分に可能であると思われる。

5. 結論と今後の課題

LEBRA-PXR 線源において電子ビームのバンチ間隔が 22.4 ns となる 64 分周バーストモードで動作試験を実施し、それによって得られた PXR ビームでイメージングや XAFS 測定が問題なく行えることを確認した。64 分周の場合、マクロパルスビーム電流はフルバンチモードの約 1/5 であり、発生する X 線の強度もそれに比例していることが示唆された。バンチ当たりの電荷量が多くなっても特に問題は生じなかったことから、マクロパルスの総電荷量がフルバンチモードの場合と同程度になるまでマクロパルス幅を広げてもターゲット結晶の破壊は生じないと予想される。実際、幅 9.5 μs での運転で PXR 線源の運用の障害となるような事象は発生しなかった。今後、慎重に様子を見ながらマクロパルス幅の拡張を試みていくが、FEL の場合と同様に 20 μs まで広げることができれば、平均ビーム電流としては従来のフルバンチモードの 80 % 程度を見込むことができる。バーストモードの特徴を生かした時間依存測定を実施したとしても、64 分周の場合は必要となる測定時間は現状に比べて過大にはならないと思われる。

今回の試験は 64 分周についてのみ実施したが、緩和時間が 10 ns 程度の現象の測定にはバンチ間隔が 44.8 ns となる 128 分周が有用であると考えられる。今後は 128 分周についても同様に試験していく予定である。特に、マクロパルスを幅 20 μs にした場合で、平均電流がどの程度見込めるか把握する必要がある。

実際にポンプ-プローブ実験のような時間依存測定を実施するには、ビームバンチと同期を取るためのトリガー信号を測定系に供給する必要がある。現状では時間分解能 1 ns、ダイナミックレンジ 20-40 ns の時間測定の実現が目標となるが、そのためにはトリガーのタイミングジッターを 1 ns 以下にする必要がある。このあたりの事情は FEL の応用と同様ではあるが、PXR の場合はプローブとして利用する可能性が高いことを考えると、ポンピング用のプレトリガーとして用意する必要があると思われる。

Acknowledgments

本研究の一部は、科研費 (課題番号: 24651105) および日本大学学術助成金 (総 12-019) の助成を受けて行われた。

参考文献

- [1] 早川恭史, 加速器 **6** (2009) 166.
- [2] T. Tanaka, K. Hayakawa, et al., Proc. of the 8th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan (Aug. 1-3, 2011, Tsukuba, Japan) 178.
- [3] K. Nakao, T. Tanaka, K. Hayakawa, Y. Hayakawa, K. Nogami, M. Inagaki, Proc. of the 8th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan (Aug. 1-3, 2011, Tsukuba, Japan) 1051.
- [4] Y. Hayakawa, I. Sato, K. Hayakawa, T. Tanaka, A. Mori, T. Kuwada, T. Sakai, K. Nogami, K. Nakao and T. Sakae, Nucl. Instrum. & Methods B **252**, (2006) 102.
- [5] Y. Hayakawa, K. Hayakawa, M. Inagaki, T. Kuwada, K. Nakao, K. Nogami, T. Sakae, T. S. I. Sato, Y. Takahashi and T. Tanaka, Nucl. Instrum. & Methods B **266** (2008) 3758.
- [6] Y. Hanakawa, I. Sato, et al., Proc. of the 1st Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 29th Linear Accelerator Meeting in Japan (Aug. 4-6, 2004, Funabashi Japan) 60.
- [7] T. Tanaka, K. Hayakawa, et al., Proc. of IPAC2011 (The 2nd International Particle Accelerator Conference, Sep. 3-9, 2011, San Sebastian, Spain) 3218.
- [8] R. Fitzgerald, Phys. Today **53** (2000) 23.
- [9] T. Sakae, Y. Takahashi, Y. Hayakawa, et al., J. Hard Tissue Biology **19** (2010) 131.
- [10] 境武志, 非破壊検査 **57** (2008) 282.
- [11] Y. Takahashi, Y. Hayakawa, T. Kuwada, T. Sakai, K. Nakao, K. Nogami, M. Inagaki, T. Tanaka, K. Hayakawa, I. Sato, AIP Conference Proceedings **1221** (2010) 119.
- [12] 高橋由美子, 早川恭史, 桑田隆生, 寒河江登志朗, 田中俊成, 早川建, 佐藤勇, 生体医工学 **48** No. 6 別冊 (2010) 566.
- [13] M. Inagaki, Y. Hayakawa, I. Sato, K. H. K. Nogami, K. Hayakawa, T. Tanaka, T. Sakai, K. Nakao and I. Sato, Jpn. J. Appl. Phys. **47** (2008) 8081.
- [14] Y. Hayakawa, K. Hayakawa, M. Inagaki, T. Kuwada, K. nakao, K. Nogami, I. Sato, Y. Takahashi, T. Tanaka, Proc. of the 7th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan (Aug. 4-6, 2010, Himeji, Japan) 788.