

実験技術

X線領域の I_0 モニター

野村 昌治

高エネルギー物理学研究所放射光実験施設

1. はじめに

1970年代には、多くの解説に「放射光は安定な光源で、強度、波長分布、角度分布を正確に計算できる」と紹介されていました。もし本当に放射光がその様な光ならば I_0 モニターは不要な様にも思えますが、どうして放射光を利用した実験には I_0 モニターが必要なのでしょうか。これは仮に光源が非常に安定であっても、光学素子の熱変形等によるX線の強度変動は避けられず、更に実際には光源である(陽)電子ビームの位置、方向やビームの断面形状も変化しているからです。また使うX線のエネルギーを変えるとモノクロメーターから出て来るX線の強度は変化します。ここから分かるように蓄積電流値を I_0 モニターの代わりに使うことはきわめて危険です。

X線領域では多くの場合、物質に入射光の一部を吸収させ、①光電離信号を測定する方法(電離箱、比例計数管等)、②イオン化した分子、原子の脱励起過程を利用する方法(蛍光X線、二次電子、オージェ電子等をモニターする方法)、③ある物質によるX線の散乱強度をモニターする方法等が使われています(図1)。本文中では図に示すように入射光強度モニターの出力を i_0 、試料から出てきた信号を i と呼びます。ここではこの内①の方法、具体的には電離箱を用いた I_0 モニターを中心に記します。

2. I_0 モニターに要求されること

I_0 モニターと一口に言っても、波長を変えな

がら吸収スペクトルを測定するような場合と特定の波長に固定して使う場合では要求される条件は多少異なってきます。ここではより厳しい条件が要求される前者の場合を中心に話を進めて行きます。

では I_0 モニターに要求される条件はどのようなのでしょうか。まず、モニターに入る以前に使用したい光だけが取り出されていることです。即ち、1) 試料に入射するのと(実験誤差内で)同じ波長分布を持った光が得られていること、2) モニターされた光は全て試料に入射することです。少し説明をつけ加えますと、高次光や散乱光が無視できないと I_0 モニターで検出した光と、 I_0 モニターを透過して試料に入射した光の波長成分は変わってしまいます。特定の波長の光を使っている場合は害が無いようにも思われますが、先に記したようにモノクロメーターへの熱流入が変化し、二結晶モノクロメーターのロッキングカーブの重なりが変化すれば I_0 モニターで検出した信号量は大して変化しなくても、試料にはいる高次光の一次光に対する割合は大きく変化してしまいます。

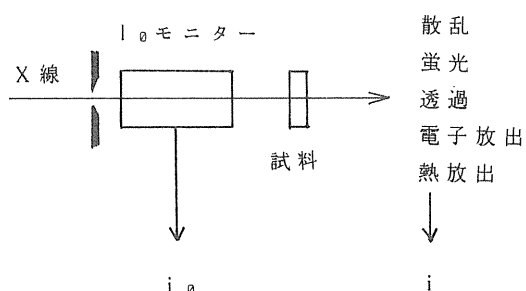


図1. I_0 モニターと試料からの信号 (i_0, i)

また、ある大きさの光は多くの場合均一の波長分布、強度分布を持つ訳ではありませんのでその一部を切りとってモニターしたり、一部だけが試料に入ってもその他の部分が同じ様に変化しているという保証は全くありません。X線束の方向が僅かに変化した場合を想像すればこの様な方法の危険性をご理解頂けるでしょう。

次に試料に入る光と試料から出て来る信号を同時に観測する事が重要です。X線強度がある周期で変動している場合サンプリング周期が適切でないと誤った規格化をする事になります。具体的には(陽)電子ビームが不安定な場合や光学素子の冷却装置や室温の変化があげられます。

二点目に電離箱のような I_0 モニターを用いた場合は、入射光子数を I 、 I_0 モニターのガスの質量吸収係数を μ 、密度を ρ 、光路長を x とすると I_0 モニターで検出される光子数は

$$i_0 = I \{1 - \exp(-\mu \rho x)\}$$

で表わされるのに対し、試料に入射する光子数は

$$i = I \exp(-\mu \rho x)$$

で表わされ、その比は

$$\frac{i}{i_0} = \frac{1 - \exp(-\mu \rho x)}{\exp(-\mu \rho x)}$$

と表わされ、質量吸収係数がエネルギーに依存するため、 i/i_0 もエネルギーの関数となってしまうことに注意する必要があります。この為吸収係数等を求めるときは補正をする必要が生じます¹⁾。

三点目に波長を変化させる場合、 I_0 モニターのX線に対する検出効率が目的とする波長域で極端な構造を持たない事です。塩素のEXAFS(吸収端2.8keV)を測定するのにアルゴンガス(吸収端3.2keV)を使えばどういう事が起こるかは自明

でしょうがベリリウム等の金属箔中の鉄やケイ素等の不純物は見落とし易いので注意が必要でです。

最後に当り前の事ですが検出器、信号処理系が十分な直線性を有している事です。検出器や増幅器が飽和していることに気付かずにモニターしては何の役にも立ちません。また、検出器の特性を劣化させないように日頃から取扱いに注意することも必要でしょう。

3. 電離箱

気体にX線が入射するとX線は吸収され気体をイオン化します。このイオン化によって生じた電荷を測定することによって入射した(検出された)X線強度を求めようというのが電離箱です。信号自体は入射光子に対応してパルスで出ますが、通常のX線領域ではそのパルス高は小さくて観測できませんので直流測定が行われています。その信号強度は次の式で表わされます²⁾。

$$i = n \epsilon E e / W$$

ここで n は(単位時間に)入射する光子数、 ϵ は検出効率、 E はX線光子のエネルギー、 e は単位電荷、 W は一対のイオン・電子を作るのに要する平均エネルギーです。気体の電離過程は複雑ですが電離を起こす粒子の種類や動作条件によらず W は気体分子固有の値になることが知られています。 $n=10^9$ photons/s, $\epsilon=0.2$, $E=8000$ eV, $W=30$ eV とすると $i=8.5 \times 10^{-9}$ A となります。またこの式から分かる様に二次光は一次光よりも検出効率は小さいものの一つの光子が吸収されると二倍の信号を作り出すことに気をつけて下さい。

電離箱は種々の構造の物がありますが、PFでは図2の様な構造の物を用いています。平行平板型を用いている理由は①電極間の電場が均一である、②製作しやすい、③使い勝手が良い等のためです。電極の大きさは検出効率とビームサイズから決められます。疑似接地側電極の両側にある電

極は保護電極とも呼ばれ電極端での電場の乱れを防いでいます。この様に接地側と高圧側では電極構造が異なっているので注意が必要です。

電極間に電場をかけていますがこれはイオンと電子の再結合を防ぐためです。従って、入射光子数や検出効率によって印加すべき電圧も変わってきます。図3は電極間(1 cm)に印加する電圧を変えた時の出力信号量の変化を示しています。ここでは同じエネルギーのX線(約9 keV),同じ電離箱(電極長28cm),同じ検出用ガス(Ar (0.5) + N₂ (0.5))を用い、入射X線の強度を二結晶

モノクロメーターの結晶をdetuneする事によって変化させた時の印加電圧依存性の変化も示しています。ここから 5×10^8 photon/s の時は1000 Vも印加すれば十分ですが 5×10^9 photon/sでは200V以上印加する必要があることが分かります。収束光学系を用いたビームラインでは100V以上印加する必要があることもあります。これらの数字は検出に用いるガスの種類や圧力にも依存しますので、測定開始前に一度この図のような曲線を測定してみるべきでしょう。必要以上に電場をかけると放電やリークのため雑音が増えることがあります。

検出効率はあまり大きくすると試料に入射する光子数が減りますし、逆にあまり小さくするとS/N比が悪くなります。通常は10%位を目処として良いでしょう。検出効率を変えるためには①ガスの圧力を変える, ②検出器の長さを変える, ③ガスの種類を変える等の方法があえます。①の方法が最も自由度が大きく外国では良く利用されていますが、洩れが無いことが条件です。私は②と③の方法を組み合わせて使っています。

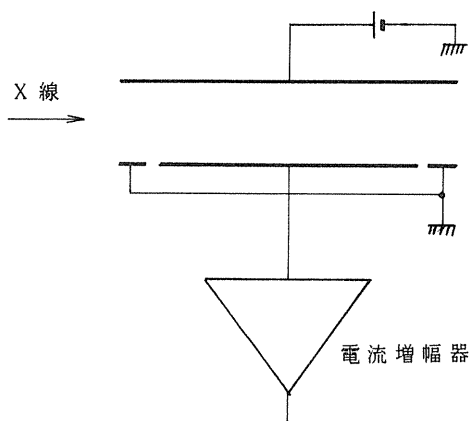


図2. 電離箱の構造

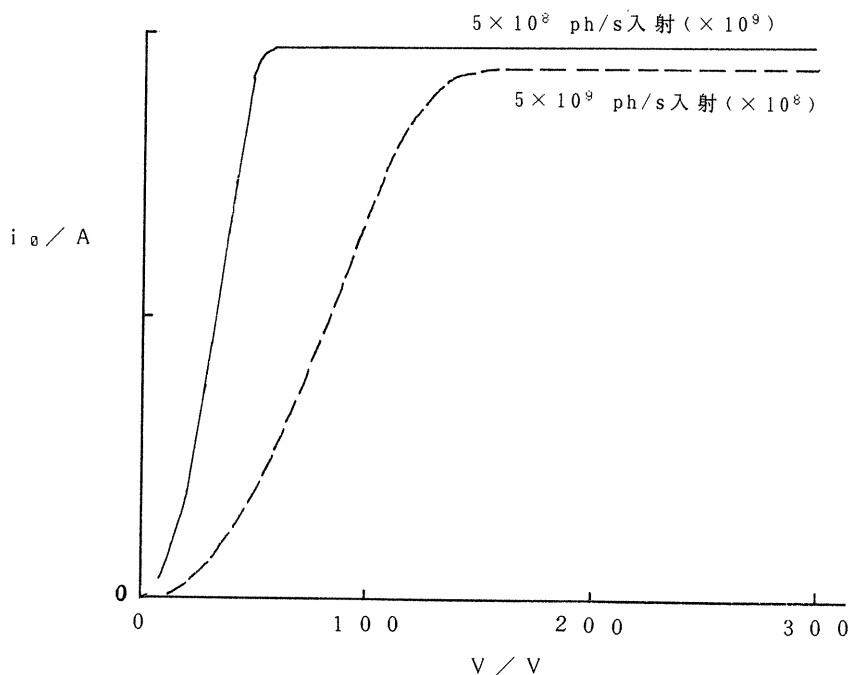


図3. 電離箱の出力電流の印加電圧依存性。入射光子数(密度)によっても変化する

4. 電離箱の利用に関する注意

(a)

検出系の簡単で敏感なチェック法を紹介しましょう。この実験はナンシー大学のDr.J.Goulonに教えられたものです(残念ながら彼はこの現象から誤った結論を導いていましたが)。用いたX線はシリコン(311)二結晶モノクロメーターで単色化し、二枚のBK7製のミラーで高次光を除いています。通常の透過型のEXAFS測定の場合とほぼ同じ配置ですが、図4 aに示した様に試料を入射スリットの前に置きます。理想的な条件の下では、試料の吸収端近傍で入射X線のエネルギーを変えてもこの二つの検出器から得られた信号の比(またはその対数)は吸収端に相当する構造を示さないはずですが、ところが電流増幅器やV/F変換器のゼロ点がずれていると図4 bに示す様に吸収端の構造が現われてしまいます³⁾。また、検出器や信号処理系が非線形であったり、高次光や蛍光、散乱光が無視できないと吸収端の構造が観測されます。(通常と逆方向に変化することもあります)。

ここでもう一つ忘れてはならないことは一般に電流増幅器は双極性(+にも-にも応答する)ですが、V/F変換器は単極性であることです。X線を入れない時のスケーラーのカウント数が0だと喜んでいたら本当は回路系のオフセットの為に-10カウントという事もありますのでX線を入れない状態である程度のカウント数がある様にオフセットを調整し、後で差し引いた方が安全でしょう。ここでI用の検出器は電離箱である必要はありませんし、試料の厚さを変えれば広い強度範囲での応答特性を測定することもできます。

次に回路系の特性が問題となります。電流増幅器の直線性は十分高いものの測定精度についてはパーセントのオーダーしかありませんのでご注意ください。V/F変換器については私の経験した範囲では入力が1 mVから11 V程度の範囲では実用上十分な直線性を有しています。ただ、電源を入れた直後のドリフトはかなり有り、少なくとも1~2

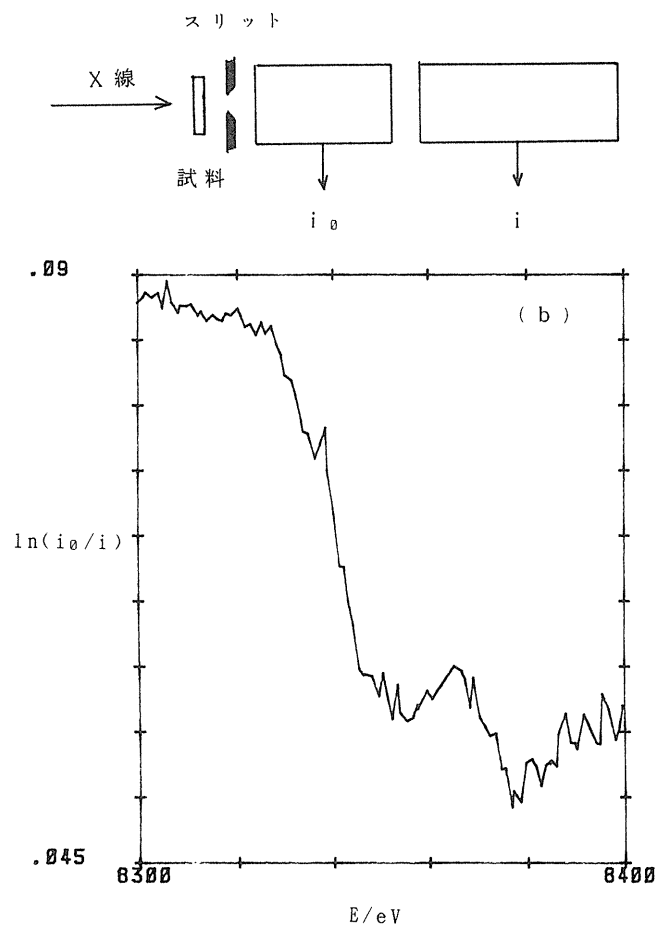


図4. 検出系のチェック用の実験配置(a)と回路系のオフセット不良によって観測されたニッケルの吸収端

時間のエイジングをした方が良いでしょう。

ビームが安定な場合は問題になりませんが、X線強度がかなりの周波数で変化している時はI₀モニターとその他の検出系の増幅回路の時定数を一致させる(またはビーム変動より十分に早いか、遅い様に設定する)必要があります。この条件を満たす事が出来ずにどうしてもS/Nがあがらなかった苦い経験があります。

5. その他のI₀モニター

軽元素箔からの散乱X線をシンチレーションカウンタで測定する方法が小沢、宇野らによってX線粉末回析計に用いられています(図5)⁴⁾。入射スリット幅を変えたときのSi(111)反射の積分強度をこのI₀モニターの信号で規格化した

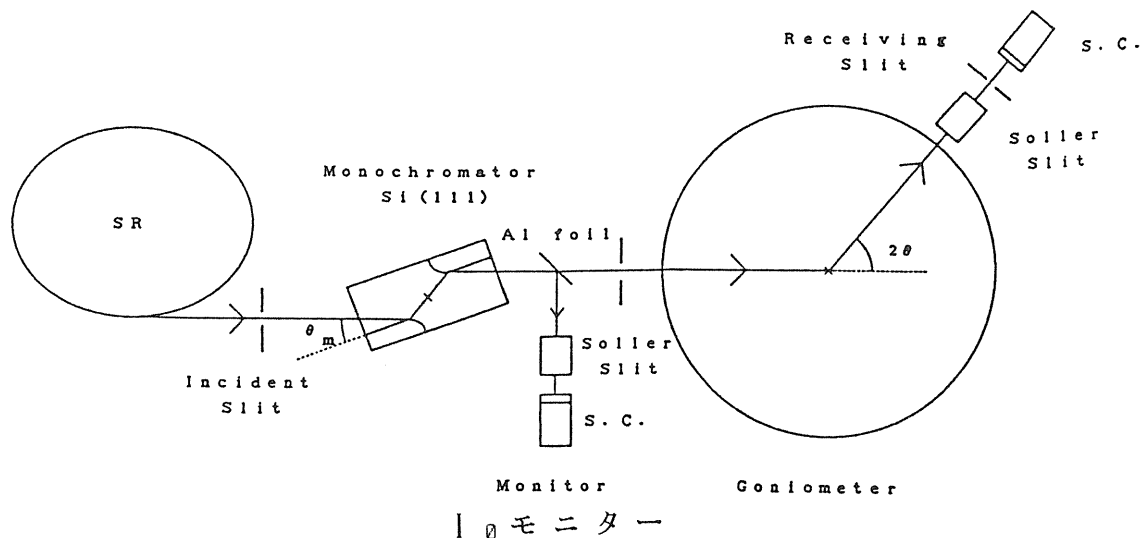


図5 X線粉末回折計とアルミニウム箔を用いた I_0 モニターの構成図

値は0.2%で一致し、 I_0 モニターが十分良い直線性を持っていることを示しています。

先に I_0 モニターに要求される条件をいくつか上げましたが、結晶構造解析のような場合はX線ビームは試料より大きくなければならぬのでこの条件を満たすことは出来ません。もし、試料上でのビームのプロファイルが変化しなければ通常の I_0 モニターも使えますので、ビームの動きを押さえれば十分モニターになると思われます。そこで四分割型の(フォトダイオード等の)モニターを I_0 モニターとして(又は I_0 モニターと併用して)用いればビームの動きやプロファイルの変化についての情報を得ることが出来、不良データを再測定することが出来るでしょう。

6. 余談

PFで用いている電離箱のコネクターの多くはMHV(高压用BNC)と呼ばれる物です。通常のBNCとは異なりますので無理をして入れないで下さい。またヘリウムのガスボンベのネジは左ネジです。窒素用等右ネジの減圧弁は普通は入りませんが力づくで入れないで下さい。最後に交流電源のアースとリターン(擬似アース)とは全く用途が違いますので御注意下さい。こんな事は常

識と思われるかも知れませんが実際にPFでなさった方がいらっしゃいますので余談ながらつけ加えさせて頂きました。

最後に第5節に記したモニター系のデータを提供して下さった小沢、宇野両氏に感謝すると共に十分に記述できなかったことをお詫び致します。

参考文献

- 1) EXAFSのpre-edgeのフィットにVictoreenの式を使えない理由はここにあります。
- 2) コワルスキー著、伏見和郎、吉村厚訳、「原子核エレクトロニクス」朝倉書店、河田燕著「放射線計測技術」東京大学出版会 等。
- 3) 野村昌治、小山篤、KEK Report, 投稿準備中。
- 4) 小沢春雄、宇野良清、大隅一政、貫井昭彦、雪野健、昭和63年度科研費報告書(61880012), H.Ozawa and R.Uno, Proceedings of the Institute of Natural Sciences, Nihon University, No.24 (1989).

