

陽子および α 粒子衝撃により発生する連続X線

ISHII, Keizo / 小沢, 和浩 / 張, 瑞香 / 瀬部, 孝 / 森田, 右 / 石井, 慶造 / OZAWA, Kazuhiro / CHANG, Jui-hsiang / SEBE, Takashi / MORITA, Susumu

(出版者 / Publisher)

法政大学工学部

(雑誌名 / Journal or Publication Title)

法政大学工学部研究集報 / Bulletin of the Faculty of Engineering, Hosei University

(巻 / Volume)

22

(開始ページ / Start Page)

119

(終了ページ / End Page)

129

(発行年 / Year)

1986-03

(URL)

<https://doi.org/10.15002/00004041>

陽子および α 粒子衝撃により発生する連続X線

小 沢 和 浩*・張 瑞 香**・瀬 部 孝**
森 田 右**・石 井 慶 造***

Continuum X-rays Produced by Light Ion Atom Collisions

Kazuhiro OZAWA*, Jui-hsiang CHANG**, Takashi SEBE**

Susumu MORITA** and Keizo ISHII***

Abstract

X-rays from an Al target bombarded with protons of 0.5, 0.75 and 1.0 MeV and α -particles of 0.5 MeV/amu were measured with a Si(Li) detector. Production cross section and spectra of continuum radiations are compared with predictions from the atomic bremsstrahlung and the secondary electron bremsstrahlung. Good agreements are obtained. Atomic bremsstrahlung is the most predominant process in this region of the bombarding energy. The angular distribution of 2.85–3.00 keV X-rays for 0.5 MeV protons is also in good agreement with the calculation of atomic bremsstrahlung.

§ 1. 緒 言

数 MeV/amu の陽子や α 粒子等で固体試料を衝撃すると試料中に含まれる元素からの特性X線とブロードなスペクトル分布をもつ連続X線が発生する。この特性X線を利用した微量元素分析法である PIXE 法 (Particle Induced X-ray Emission Spectroscopy) の検出限界はこのときに発生する連続X線の大小によって決定される。したがって、この分析法を用いる場合に発生する連続X線を把握しておくことが、検出感度を決定するためにも必要なことである¹⁾。通常分析に用いられる数 MeV/amu の陽子衝撃によって発生する連続X線は二次電子制動放射 (SEB) が最も優勢であり、そのスペクトルの上限値は $T_m = 4m_e E_p / M_p$ によって与えられる。この量 T_m は、質量 M_p 、エネルギー E_p の入射粒子が質量 m_e の自由電子に与えるエネルギーの最大値を示すものである。実際に、2.0~4.0 MeV の陽子で Al 箔試料を衝撃した場合、発生する連続X線スペクトルは二次電子制動放射の理論計算によって説明できることがわかっている²⁾。しかし、2.0 MeV 以下の陽子衝撃によって発生する連続X線は、 T_m の減少とともに二次電子制動放

* 法政大学大学院工学研究科電気工学専攻

** 法政大学イオンビーム工学研究所

*** 東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター

射から原子制動放射 (Atomic Bremsstrahlung) へと移行してゆくことが理論的に示されている²⁾。近年このエネルギー領域の小型加速器が手軽に利用できることが可能となっていることから、発生する連続X線の物理機構を解明しておくことは非常に重要なことである。

本研究においては、PIXE法の試料のバックグランドとして自己支持型 (self-supporting) のAl箔を仮定し、0.5, 0.75, 1.0 MeVの陽子及び0.5 MeV/amuの α 粒子衝撃によって発生する連続X線をSi(Li)型の半導体検出器によって検出し原子制動放射の理論計算値との比較を行ったものである。さらに、原子制動放射の角度分布についても実験を行い理論値との比較を行った。

§ 2. 理 論

2.1 二次電子制動放射 (SEB)

数 MeV/amu の陽子で試料を衝撃した場合に最も支配的となる連続X線は二次電子制動放射 (secondary electron bremsstrahlung) である。この発生機構を Fig. 1 に示す。入射粒子がターゲット原子に近づくと、軌道電子とのクーロン相互作用の結果、大きなエネルギー分布をもつ内殻電子を電離する。そのとき放出された二次電子は物質中を進み他の原子核のクーロン場によって制動を受け連続スペクトルをもつX線を放出する。この過程によって放出される連続X線の発生断面積は、理論的に次式によって与えられている³⁾。

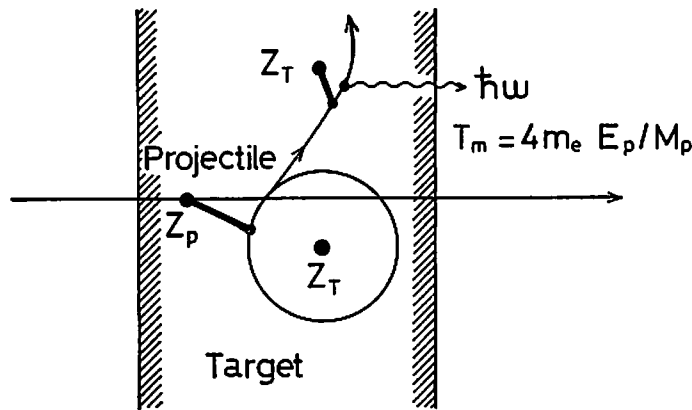


Fig. 1 二次電子制動放射 (SEB) の発生機構

$$\frac{d\sigma^{SEB}}{d(\hbar\omega)d\Omega_L} = \int dE_e \int d\Omega_e \int dE_e' \left[\frac{d\sigma^{br}}{d(\hbar\omega)d\Omega_{br}}(E_e', \hbar\omega, \theta_{br}) \left(\frac{-Ndx}{dE_e'} \right) \frac{d\sigma_e(E_e, \theta_e)}{dE_e d\Omega_e} \right] \quad (1)$$

ここで、 Ω_L は検出器の立体角、 σ^{br} はエネルギー E_e' をもつ電子の制動放射発生断面積、 $\sigma_e(E_e, \theta_e)$ は入射粒子によるターゲット原子中の電子放出断面積を示す。また、 $-Ndx/dE_e'$ は単位体積中の原子数 N による二次電子のエネルギー損失を示し、Bethe によって以下のように与えられている。

$$-\frac{dE_e'}{Ndx} = \frac{4\pi e^4}{m_e v^2} Z \ln \left(\frac{1.16}{I} E_e' \right) \quad (2)$$

m_e, e, v はそれぞれ、二次電子の質量、電荷、速度を示す。 Z はターゲット原子の原子番号、

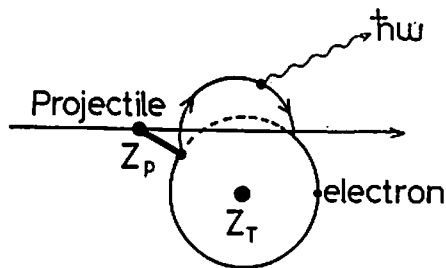
\bar{I} は平均励起エネルギーを示し、われわれはこの値を 163eV として計算を行った。また、Jackson⁶⁾ は制動放射の断面積を次式によって近似計算を行った。

$$\frac{d\sigma^{br}}{d(\hbar\omega)d\Omega_L} = \frac{2}{\pi} \frac{Z^2 e^2}{\hbar c} \left(\frac{e^2}{m_e c^2} \right) \left(\frac{c}{v} \right)^2 \frac{1}{\hbar\omega} \ln \left(4 \frac{E_e'}{\hbar\omega} \right) \sin^2 \theta_{br} \quad (3)$$

このように(1)式に実験条件をあてはめて理論計算を行うことができる。

2.2 原子制動放射 (AB)

入射粒子のエネルギーが 2.0 MeV/amu 以下の領域になると二次電子制動放射の発生断面積



はしだいに減少することが(1)式の理論計算から予想される。さらに、低エネルギーの陽子または α 粒子衝撃においては、二次電子制動放射はほとんど無視でき、連続X線の成分は原子制動放射が優勢な領域へと移行してゆく。原子制動放射とは Fig. 2 に示すように、ターゲット原子中の内

殻軌道電子が、入射粒子によって連続エネルギー状態へ励起され、その後、もとの軌道へ戻る際放出する連続X線で、入射粒子が一つの原子を通過中にその原子から放出される。その詳細な計算過程は、K. Ishii⁹⁾ らによって与えられているが、その発生断面積は以下で示される。

$$\frac{d\sigma^{AB}}{d\hbar\omega d\Omega_\omega} = \frac{8a_0^2 \alpha^5}{\pi \hbar\omega} Z_p^2 \left(\frac{c}{v_p} \right)^2 \int_{\omega/v_p}^{\infty} \frac{dq}{q} \left\{ 1 - \left(\frac{\omega}{qv_p} \right)^2 + \left[\frac{3}{2} \left(\frac{\omega}{qv_p} \right)^3 - \frac{1}{2} \right] \sin^2 \theta \right\} |s_1(q) - s_2(q)|^2 \quad (4)$$

ここで、 a_0 はボーア半径、 α は微細構造定数、 Z_p, v_p はそれぞれ入射粒子の原子番号と速度、 θ は放出X線の角度を示す。 $s_1(q), s_2(q)$ の項についての詳細な計算方法は文献(2)に譲る。

§3. 実 験

3.1 自己支持型 (self-supporting) Al 箔ターゲットの製作

試料の条件としては、入射粒子のエネルギー損失が無視できるくらい薄いもので、バックグランドなしの自己支持型として耐えられる物質で手軽に製作可能なものが好ましい。このため、不純物の混入には充分気をつかわねばならないが Al を用いた。また、Al の場合特性X線のエネルギーが 1.487 keV と低エネルギーなため、目的とする連続X線部が Si(Li) 型の半導体検出器特有のバックグラウンドの混入なしに引き出せるため好都合であった。試料の製作過程を Fig. 3 に示す。表面のきれいなガラス板を有機洗剤できれいに洗い流したあとで、有機洗浄を行う。使用した薬品は、トリクロルエチレン、アセトン、メチルアルコールで、この順に超音波洗浄をした。ガラス板の表面が乾燥した後、約5%のブドウ糖溶液(約60°C)の中にガラス板を入れ、ガーゼ等で表面に一樣に溶液を塗布する。もう一度板を乾燥させ、高純度の Al (99.9999%) をその表面に

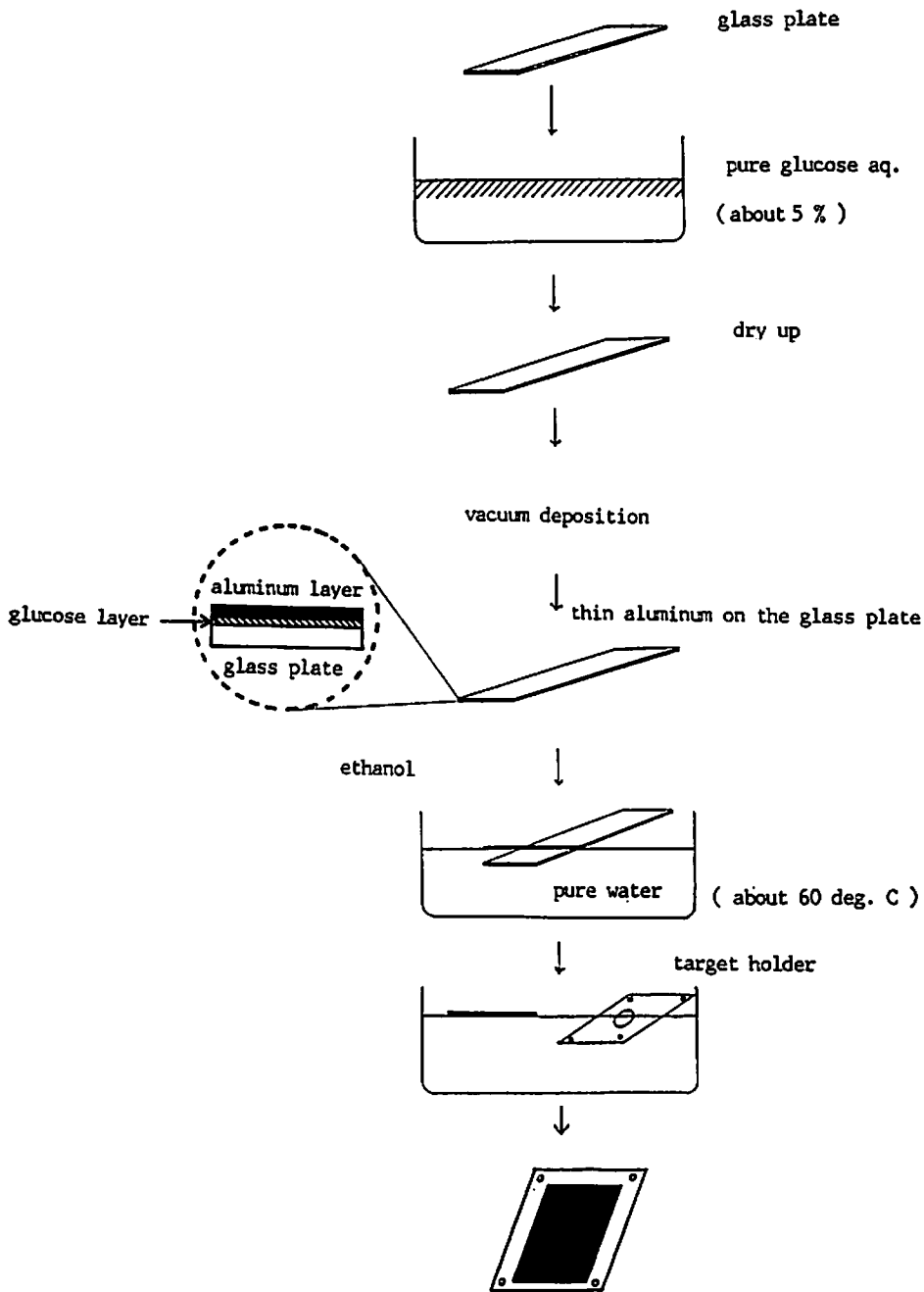


Fig. 3 自己支持型 (self-supporting) Al 箔試料の製作過程

真空蒸着 (真空度 5×10^{-7} torr) する。その後、約 60°C の純水中に板を挿入すると、ブドウ糖層に水がしみ込み Al 箔をはく離させることができる。このとき水の表面張力を少なくするため、エチルアルコールを数滴純水中に落とすと、Al 箔が切れたり割れたりするのを防ぐことが可能である。最後にターゲットホルダーで水に浮いた Al 箔を直接すくい上げる。表面の酸化防止のため製作直後に真空中に入れるのが理想的である。

真空蒸着では、ポートとして BN (チッ化ホウ素) の材質のものを使用した。これは Al がかなり腐食性の強い金属であるため Mo, Ta, W 等のポートはすぐに切れてしまい、不純物混入の恐れがあるためあまり好ましいと思われなかったからである。

3.2 RBS 法による Al 箔試料の厚さの決定

製作した Al 箔試料の厚さを決定するために、1.5 MeV の ${}^4\text{He}^+$ を試料に入射し (入射角 7° , 散乱角 23°), その後方散乱スペクトルを得た。Fig. 4 にその結果を示す。 ${}^4\text{He}^+$ の照射量は $3 \mu\text{C}$ であり, 後方散乱の角度は 150° で測定を行った。RBS スペクトルのエネルギー幅 ΔE と表面から散乱を起こした点までの深さ Δx との関係は次式によって与えられる。

$$\Delta x = \frac{\Delta E}{N[\epsilon]} \tag{5}$$

ここで, N は, Al の原子数密度 (6.02×10^{22} atoms/cm 3), $[\epsilon]$ は stopping cross section factor で, 次式で表される。

$$[\epsilon] = \frac{K}{\cos \theta_1} \epsilon(\bar{E}_{in}) + \frac{1}{\cos \theta_2} \epsilon(\bar{E}_{out}) \tag{6}$$

K は入射粒子のエネルギーと散乱粒子のエネルギーの比をとったものであり実験条件によって

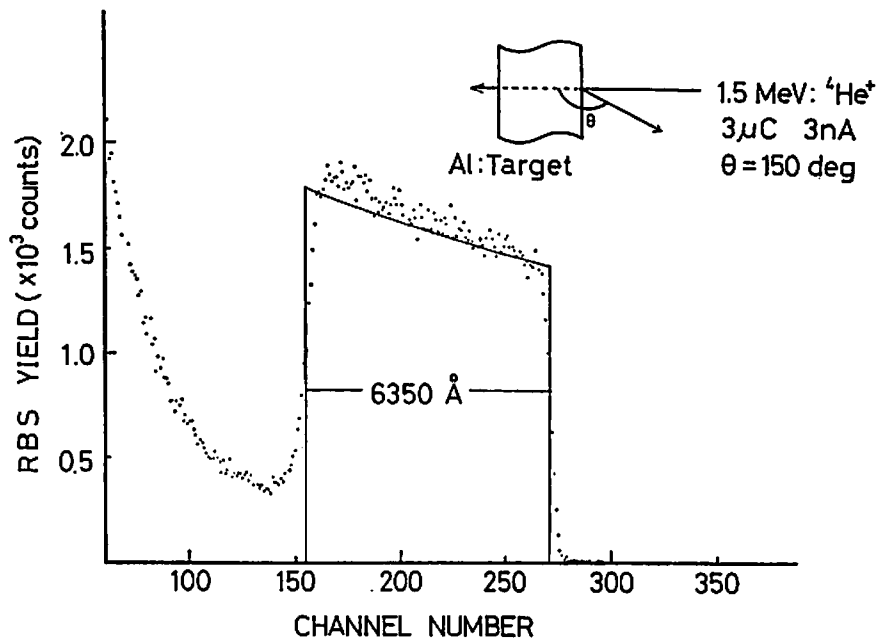


Fig. 4 Al 箔ターゲットからの RBS スペクトル

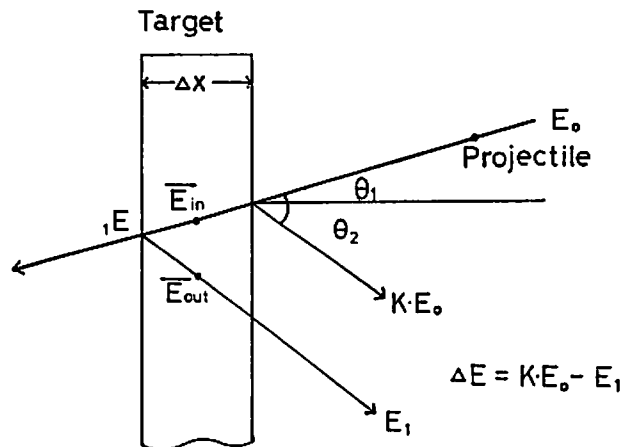


Fig. 5 Al 箔試料の厚さの解析法

決まる定数である。 $\epsilon(E)$ はstopping power⁴⁾を示し粒子のもつエネルギーの関数としてZieglerによって与えられたものを用いて計算を行った。 \bar{E}_{in} , \bar{E}_{out} はそれぞれFig. 5に示すように、試料の表面から散乱点の間の平均のエネルギーと深さ x の点で散乱直後のエネルギー ${}_1E$ と試料外に放出され検出器によって検出されるエネルギー E_1 との間の平均エネルギーを示す。

$$\bar{E}_{in} \doteq \frac{1}{2}(E_0 + {}_1E) \quad (7)$$

$$\bar{E}_{out} \doteq \frac{1}{2}({}_1E + E_1) \quad (8)$$

最終的には試料の厚さ Δx を知りたいわけであるが得られた後方散乱スペクトルからの情報は試料表面から散乱される ${}^4\text{He}^+$ のエネルギー KE_0 と後面で散乱され試料を通過して表面から出てきたエネルギー E_1 がわかるだけである。したがって、試料通過時の平均エネルギー \bar{E}_{in} と \bar{E}_{out} は未知である。そこで、

$$\bar{E}_{in}^{(0)} = E_0, \quad \bar{E}_{out}^{(0)} = KE_0 \quad (9)$$

と近似することによって、厚さの近似計算⁶⁾を行いその近似値 $\Delta x^{(0)}$ から ${}_1E^{(0)}$ の値を求める。

$${}_1E^{(0)} = E_0 - \Delta x^{(0)} \cdot N \cdot K \cdot \epsilon(E_0) / \cos \theta_1 \quad (10)$$

次に、入射時の平均エネルギー $\bar{E}_{in}^{(1)}$ と試料の後面で散乱を起こして表面に現れる粒子の平均エネルギー $\bar{E}_{out}^{(1)}$ を(7), (8)式を用いることにより計算することができる。以下同様の反復計を行うことによってAl箔試料の厚さ $\Delta x^{(n)}$ を6350Å(面密度171 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$)と決定した。Fig. 4に示した実線は、この計算方法をマルチチャンネルアナライザーの各チャンネルのエネルギー幅(3.03 keV)に対応する厚さを逐次計算してゆくことによって求めた理論計算スペクトルである。

3.3 原子制動放射の検出とデータの解析

Fig. 6に実験装置の概要を示す。法政大学イオンビーム工学研究所の2.5MVバン・デ・グラフ型加速器によって0.5, 0.75, 1.0 MeV/amuに加速された H_2^+ および0.5 MeV/amuの ${}^4\text{He}^+$ 粒子ビームをその進行方向から45°傾けて置かれた自己支持型(self-supporting)のAl箔試料に入射させる。ビームはAl箔試料を通過し、ファラデーカップに集められる。照射量は H_2^+ の場合800 μC , ${}^4\text{He}^+$ のとき400 μC , ビーム電流はpile-upを防ぐため30 nA以下で実験を行った。ビームのスポットは途中2箇所3 mmの間隔で置かれたスリットによって ϕ 2 mm以下となっ

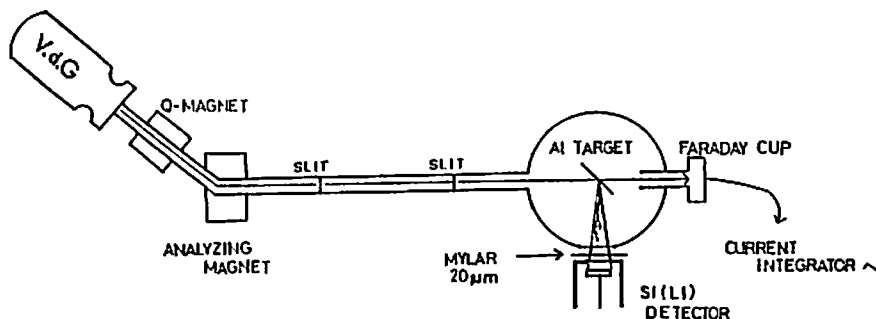


Fig. 6 90°方向での原子制動放射X線の検出実験装置の概要

ている。このような実験で試料から発生するX線収率 $Y_X(\hbar\omega)$ は、次式によって与えられる。

$$Y_X(\hbar\omega) = \sigma_X(\hbar\omega) \cdot N_{Al} \cdot Q \cdot d\Omega \cdot x / \cos\theta \quad (11)$$

ここで、 N_{Al} は Al の原子数密度 6.02×10^{23} atoms/cm³、 Q は入射粒子総数、照射量が 800 μ C の場合 5.0×10^{16} 個、 $d\Omega$ は Si(Li) 型検出器の立体角 4.85×10^{-4} sr、 x は Al 箔試料の厚さ 0.635 μ m、 θ はビームと試料のなす角 45° である。 $\sigma_X(\hbar\omega)$ は、すべての X 線発生断面積を示し、特性 X 線の発生断面積 $\sigma_{ch}(\hbar\omega)$ と連続 X 線の発生断面積の和

$$\sigma_X(\hbar\omega) = \sigma_{ch}(\hbar\omega) + \sigma_{SEB}(\hbar\omega) + \sigma_{AB}(\hbar\omega) + \sigma_{RI}(\hbar\omega) + \sigma_{NB}(\hbar\omega) + \dots \quad (12)$$

として与えられる。このようにして発生した X 線は、厚さ 10 μ m の Mylar 膜を通過し、真空槽外に放出される。さらに pile-up 防止用の 20 μ m の Mylar 膜を通り、ビームから 90° の方向に置かれた Si(Li) 型検出器によって観測される。真空槽と検出器の間の距離は 0.55cm として測定を行った。Mylar 及び空気による X 線の吸収はそれぞれ次の実験式によって補正を行った。

$$\mu_M = \frac{1}{10} \exp \left\{ \frac{0.5218 - \ln E_X (\text{keV})}{0.310} \right\} \quad (13)$$

$$\mu_A = 0.935 \exp \{ -2.8238 \ln E_X (\text{keV}) + 1.4780 \} \quad (14)$$

μ_M, μ_A はそれぞれ Mylar, 空気の X 線吸収係数である。検出器は、ORTEC 社製 Si(Li) 型半導体検出器でそのエネルギー分解能は 5.9 keV の Mn-K α 線に対して 160 eV 以下のものを使用した。この検出器の検出効率については、⁵⁶Fe, ⁶⁶Zn, ¹⁰⁹Cd, ¹³³Ba の標準 X 線源を用いて効正を行っている。

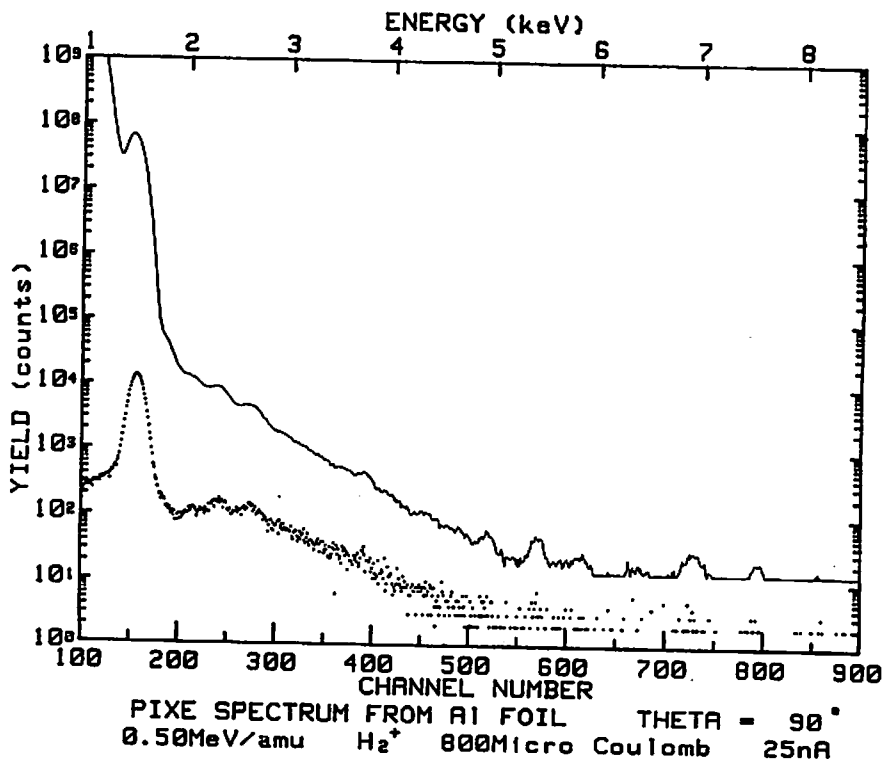


Fig. 7 0.5 MeV/amu の H₂⁺, 800 μ C を Al 箔試料に照射したときに発生した X 線スペクトルと補正計算後のスペクトル

実験から得られたX線収率から(11), (13), (14), (15)式を用いて, X線発生の断面積 $\sigma_X(h\nu)$ を算出した。

$$Y_0(h\nu) = Y_X(h\nu) / \{ \exp(-\mu_M \cdot x_M) \cdot \exp(-\mu_A \cdot x_A) \cdot \epsilon_d \} \quad (15)$$

ここで, ϵ_d は Si(Li) 検出器の検出効率を示す。実験によって得られた X 線スペクトルと Mylar, 空気の吸収および検出器の検出効率によって補正を行ったスペクトルの一例を Fig. 7 に示す。これは先の Al 箔試料に 0.5 MeV/amu の H_2^+ を 800 μ C 入射させた場合にビームから 90° の方向で検出した X 線スペクトルである。点線は実験によって得られたデータ, 実線は, 補正後のデータである。1.487keV の大きいピークは Al の特性 X 線, 2.308keV と 2.622keV に S と Cl の不純物ピークが表れている。これは, 試料製作時に混入した不純物と思われるが, Al からの連続 X 線部は十分に引き出すことができている。

3.5 原子制動放射の放出角度分布の実験

原子制動放射の放出角度の依存性を明らかにするため, Fig. 8, 9 のような配置で実験を行った。入射粒子としては 0.5 MeV/amu の H_2^+ を使い, 照射量 800 μ C, ビーム電流は 30 nA 以下の条件で先の Al 箔試料に入射し, 発生する連続 X 線を 30°, 60°, 120°, 150° の方向に置いた Si(Li) 検出器で測定した。

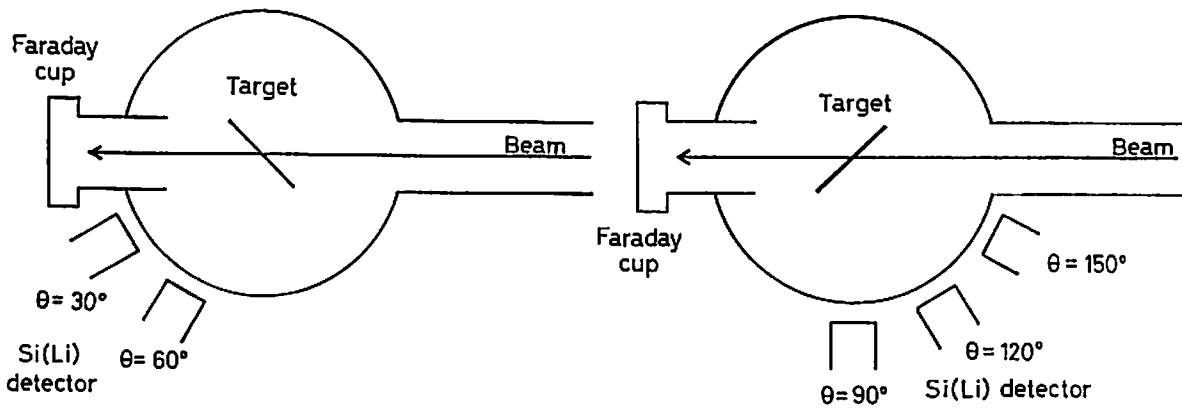


Fig. 8 原子制動放射の角度分布の測定(30°, 60°) Fig. 9 原子制動放射の角度分布の測定(90°~150°)

§ 4. 理論計算との比較

Al 箔試料からの連続 X 線スペクトルをその発生断面積に換算したものを Fig. 10~12 に示す。点線は実験によって得られたスペクトルで実線は理論計算値を示す。AB は(4)式を用いて計算を行った原子制動放射の理論値, SEB は(1)式を用いて計算を行った二次電子制動放射の理論計算値を示す。入射粒子のエネルギーが 0.5~1.0 MeV/amu のこの領域においては, 発生する連続 X 線は原子制動放射の理論によって説明されることがわかる。ここでは T_m の値は 1.09~2.18 keV であり, 二次電子制動放射の成分はほとんど無視できる領域であることも明らかである。理論計算値との僅かな違いは入射粒子のターゲット原子核によるクーロン偏向等の他の物理的効果

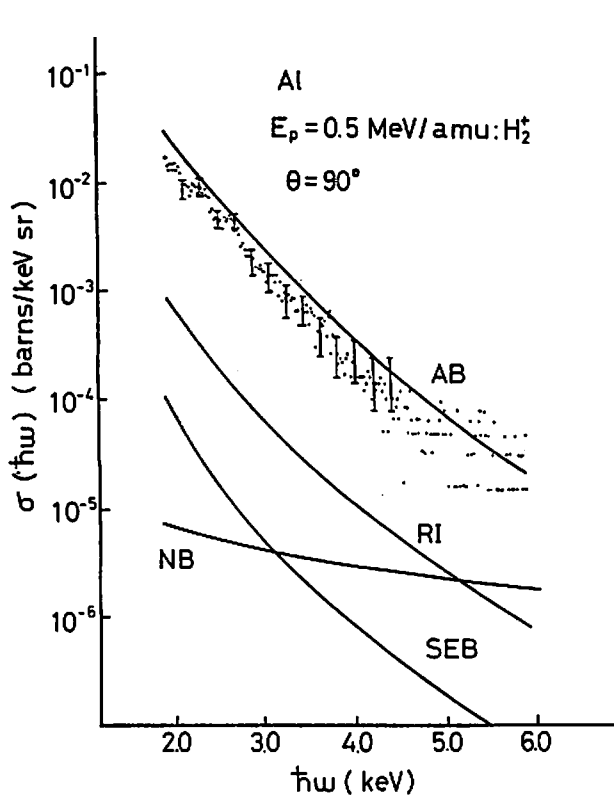


Fig. 10 0.5 MeV/amu の H_2^+ , $800 \mu C$ を Al 箔試料に照射したときに発生する連続 X 線の発生断面積

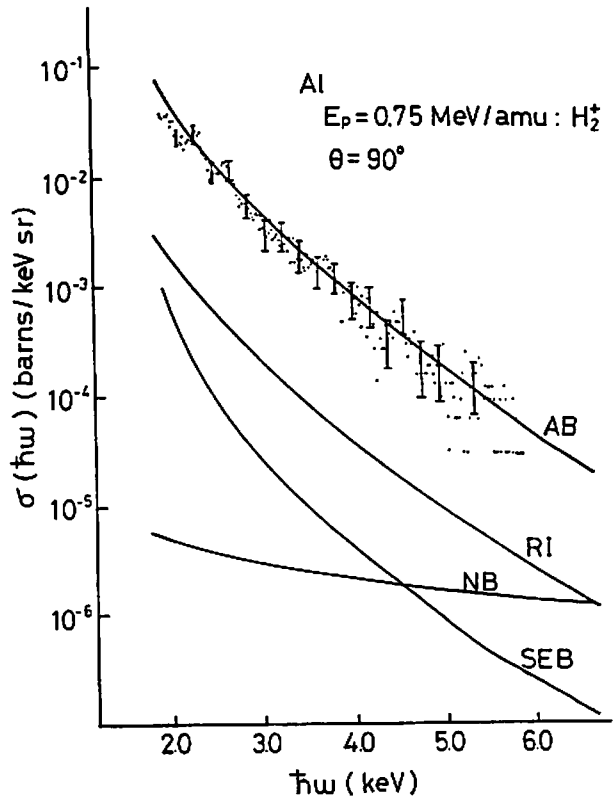


Fig. 11 0.75 MeV/amu の H_2^+ , $800 \mu C$ を Al 箔試料に照射したときに発生する連続 X 線の発生断面積

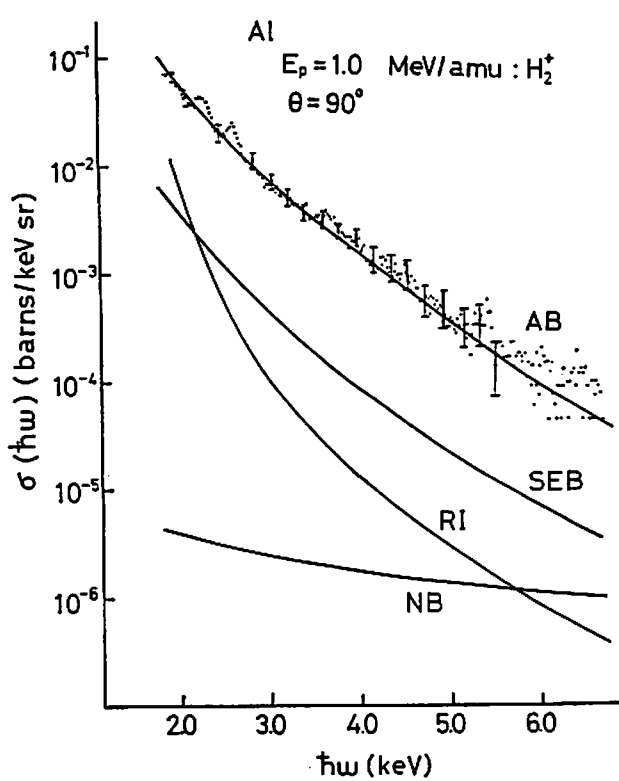


Fig. 12 1.0 MeV/amu の H_2^+ , $800 \mu C$ を Al 箔試料に照射したときに発生する連続 X 線の発生断面積

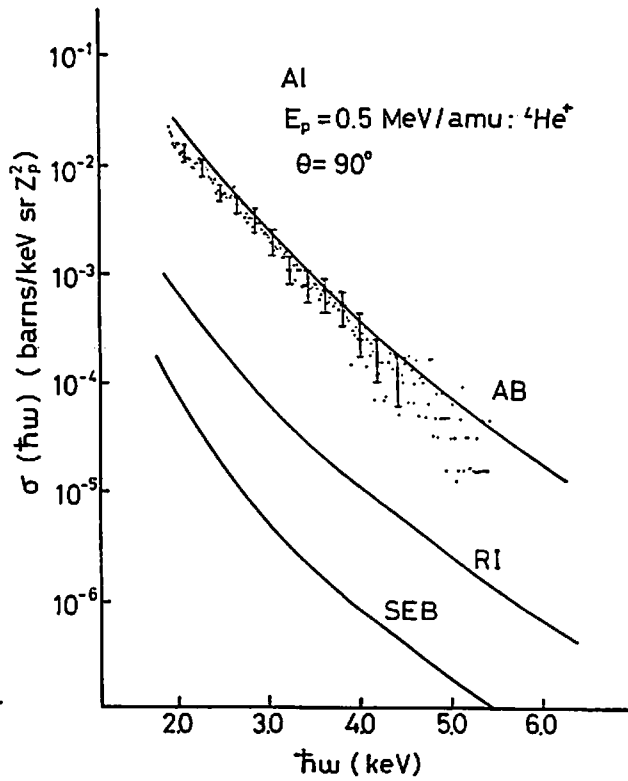


Fig. 13 0.5 MeV/amu の ${}^4He^+$, $400 \mu C$ を Al 箔試料に照射したときに発生する連続 X 線の発生断面積

が原因と思われる。Fig. 13 には 0.5 MeV/amu の $^4\text{He}^+$ を入射した場合の X 線発生断面積を示す。縦軸は微分断面積をさらに入射粒子の核の電荷の 2 乗で割った値である。また用いた理論式 (4) では原子制動放射の発生断面積は、入射粒子の核の電荷の 2 乗に依存することを示しているが、これも今回の実験においてはよい一致が得られている。点線が実験によって得られた X 線スペクトルの発生断面積、実線はすべて理論計算値を示す。RI (Radiative Ionization) は²⁾ ターゲット原子中の軌道電子が入射粒子のクーロン場によって散乱されるときに放出される連続 X 線で入射粒子のエネルギーが 10 MeV/amu 以上になると優勢となる連続 X 線である。

また NB (Nuclear Bremsstrahlung) は、入射粒子自身がラザフォード散乱を起こすときに放出される連続 X 線である。

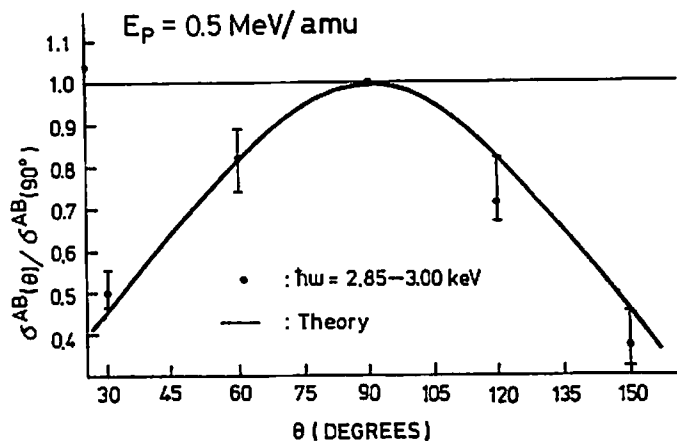


Fig. 14 原子制動放射の放出角度依存性

Fig. 14 には、角度分布の実験データと理論計算値との比較を示す。縦軸は、各方向の実験値と 90° の方向の断面積との比をとったものである。 90° 方向を対象とした分布をもっていることがわかる。入射粒子としては 0.5 MeV/amu の H_2^+ を用い、その照射量はすべて $800 \mu\text{C}$ である。示したデータは、不純物ピークを避けるために 2.85–3.00 keV のエネルギー領域である。理論式(4)では、この X 線の角度分布は次のように示されている。

$$\sigma_{AB}(h\nu, E_p, \theta) = c_1 + c_2 \sin^2 \theta \quad (15)$$

c_1, c_2 は入射粒子のエネルギー等の実験条件によって決まる定数である。二次電子制動放射においては、その発生機構が 2 step の過程をとるため、その角度分布は 90° 対象とはならず、二次電子の相対論効果のために前方強度が増加することが知られている⁷⁾。しかし、今回検出した連続 X 線においてはその影響はほとんどない、これは、原子制動放射が一つの原子系内において放出される連続 X 線であることを裏づけるものである。

§ 5. 結 言

今回の研究により、1.0 MeV/amu 以下のエネルギーの陽子および α 粒子衝撃によって発生する連続 X 線は、原子制動放射がその主な成分となっていることがわかった。0.5 MeV/amu の陽

子および α 粒子衝撃においては、原子制動放射X線は入射粒子の核の電荷の二乗の依存性があることも明らかになった。このエネルギー領域での内殻電離では、入射粒子のクーロン偏向効果や結合エネルギー効果が相当に寄与することが分っている。しかし、今回の実験結果は、原子制動放射においてはこれらの効果が殆どきかないことを示しており対照的である。また、角度依存においても、その理論が示すように 90° を対象とした分布をもっていることがわかる。これより、小型加速器からの 1.0 MeV/amu 以下の陽子および α 粒子を用いる場合のPIXE法の最小検出可能濃度を算出することができるようになった。

参 考 文 献

- 1) T.C. Chu, K. Ishii, A. Yamadera, M. Sebata and S. Morita: *Nucl. Instrum. Methods*, **190**, 395 (1981).
- 2) K. Ishii and S. Morita: *Phys. Rev.*, **A30**, 2278 (1984).
- 3) K. Ishii, H. Tawara and S. Morita: *Phys. Rev.*, **A13**, 131 (1976).
- 4) J.F. Ziegler: *Helium Stopping Powers and Ranges in All Elemental Matter*, Vol. 4 of the *Stopping and Ranges of Ion in Matter* (Pergamon press, New York, 1977).
- 5) W.K. Chu, J.W. Mayer M-A. Nicolet, "Backscattering Spectrometry", Academic press.
- 6) J.D. Jackson: *Classical Electrodynamics* (Wiley, New York, 1962), p. 505 (Sec. 15); K. Alder, A. Bohr, T. Huus, B. Mottelson and A. Winther, *Rev. Mod. Phys.*, **28**, 432 (1956).
- 7) K. Ishii, M. Kamiya, K. Sera, S. Morita and H. Tawara: *Phys. Rev. Lett.* Vol. 15. Number 5 (1977) 15