フォトン・ファクトリーにおけるX線光学系*

橋爪 弘雄, 高良 和武**

Hiroo HASHIZUME and Kazutake KOHRA: X-Ray Optical Systems in the Photon Factory

Basic considerations and some specific topics on the design and construction of X-ray optical systems in the Photon Factory are given. Curved crystal monochromators used in appropriate optical geometry can collimate synchrotron radiation into small focus with an extremely high intensity. Multiple arrangements of plane perfect crystals in asymmetric diffraction are most useful in producing X-ray beams of various angular and wavelength spreads. Fluorescent secondary X-rays excited from metal targets by the synchrotron radiation are strong in intensity and free from high directivity and specific polarisation. [J. Cryst. Soc. Japan 18, 86(1976)].

1. はじめに

フォトン・ファクトリーの放射光X線を利用する研究分野としては、散乱・回折の他に分光・分析、放射線効果などがあり¹⁾、その他にも診断、産業など多方面に及ぶことが予想される。研究の目的、種類に応じて異なった光学系が準備されなければならないが、その設計、製作にあたっては放射光X線の性質、実験条件の特殊性を充分考慮し、また活用しなくてはならない。ここでは波長 $\lambda=0.1\sim 5\text{\AA}$ ($E=100\sim 2\text{keV}$) のX線光学系について基本的な考察と若干の着想を述べる。

研究の目的により要求されるX線特性(波長 λ , 波長および角度広がり $\Delta\lambda$, $\Delta\theta$, 断面積 S , 偏光度など)は異なるが、それを実現する光学系において利用される現象は、ほとんどの場合結晶による回折で、まれに鏡面による全反射である。 $\lambda=10\sim 50\text{\AA}$ の軟X線領域ではゾーン・プレートや多層膜による干渉効果の利用も考えられる。この点は在来の線源と同じであるが、放射光X線の特殊性を考慮しなければならない。別項に述べられているように、ビーム・パイプから出きたままの線束は連続スペクトルを持ち、電子軌道の一点から出てきたビームについては $\Delta\theta\sim 10^{-4}\text{rad}$ であるが、実際に利用される線源は円形軌道(断面積 $1\sim 2\text{mm}^2$)の一部で、リングから 30m 離れたところでは、線束の断面積 S の大きさは軌道面と垂直方向で $10\sim 15\text{mm}$, 面内では $60\sim 100\text{mm}$ (=ビーム・パイプ径)である。海外の例では長い方を 3~4 個に分けて使っている。放射光X線の発散角は小さいので、コリメータは不要と思われがちであるが、 S を拡大または縮小することがしばしば必要になる。回折顕微法やX線診断などでは $(10\sim 300)\text{mm}^2$ の線束が欲しい場合があり、このとき結晶の非対称反

* 本稿は“放射光総合研究所に関するシンポジウム”(1975年2月27, 28日, 東大生産技術研究所)で行なわれた講演に基づくものである。

** 東京大学 工学部

射, 回転・移動による走査, または後述する蛍光二次X線が使われるであろう. 逆に微結晶試料の構造解析, 生物試料の小角散乱, 元素分析, 光電子分光などでは S を $(0.1 \sim 0.01) \text{mm}^2$ にすることが要求される. 波長 λ については, 単に単色化だけでなく中心波長可変の光学系が必要とされる. また, 在来型のX線源で弱い連続線の中から特性線を取り出す場合に比べて, 放射光用光学系は性能が非常に良い必要がある. 収差の除去, 反射曲線のすそや寄生散乱の抑圧のため, 幾何学的精度, 表面仕上げなどにはるかに厳しい条件が要求される. 調整を遠隔操作で行なう機構が必要なことは確実であり, 場合によっては結晶を冷却する必要もある.

2. 弯曲結晶光学系

X線束を単色化し, 狭い場所に集光するには弯曲結晶または全反射鏡が用いられる. フォトン・ファクトリーの放射光は非常に強いので, 平面結晶で回折された線束をスリットで限っても強度が充分ある場合も多いと思われるが, 相互作用の非常に弱い散乱の検出や遷移過程を高時間分解能で追う研究には放射光を集めて試料に当てる光学系が必要になる. 代表的な弯曲結晶としては, ヨハン型, ヨハンソン型, 対数らせん型がある. これらは厳密には異なった光学的性質を持っているので, 目的に応じて使い分けることも必要になるだろう. フォトン・ファクトリー用の弯曲結晶を設計するにあたっては, とくに次の点に注意する必要がある: 1) 光源の大きさは約 $3 \times 0.5 \text{mm}^2$, 2) 放射光は電子軌道の接線方向に集中している, 3) 光源——結晶間の距離を約 20m 以下にすることは難しい.

ヨハン型弯曲結晶は平面結晶を均一な曲率半径 R に曲げたもので, 第1図に示すように, 回折条件を満たす SCF , $S'MF'$ などの光線は結晶の曲率中心 O を中心とする半径 $R \cos \theta_0$, $R \cos \theta_h$ の二つの同心円に外接する³⁾. θ_0 , θ_h は入射線および回折線が結晶表面と成す角度で, θ_B をブラッグ角, α を格子面と結晶表面の間の角とすれば, $\theta_0 = \theta_B - \alpha$, $\theta_h = \theta_B + \alpha$ である. そこで, もし $R \cos \theta_0$ の円をストーレージ・リングの電子軌道 (曲率半径 R_s) と一致させれば, 効率の良い集光が行なえると期待される. そのようにしたとき, 光源—結晶, 結晶—焦点の距離は, それぞれ $\overline{SC} = R_s \tan \theta_0$, $\overline{CF} = R_s \tan \theta_h$ で

第1図 ヨハン型弯曲結晶

与えられる. いま, $R_s = 8.3 \text{m}$, $\overline{SC} = 20 \text{m}$ とし, 弯曲結晶にゲルマニウムの 331 反射を用いて $\lambda = 1.5 \text{\AA}$ のX線を集める ($\theta_B = 36.4^\circ$) とすれば, $R = 21.7 \text{m}$, $\alpha = 31.0^\circ$, $\overline{CF} = 78 \text{cm}$ となる. 結晶の横方向の大きさ l を 10cm とすれば, 開口角 Ω は $\Omega = l \cos \theta_0 / R_s = 4.6 \text{mrad}$ である. 上の条件ではゲルマニウム完全結晶の全反射角度幅 ω_0 は 0.7mrad で, これは結晶上の一点に入射する放射光の角度広がり $0.4 \text{mrad} (= 2\varphi)$ ²⁾ より大きいから, 回折される線束の $\Delta\lambda$ は 2φ で決定される: $\Delta\lambda = \lambda \cdot 2\varphi \cdot \cot \theta_B = 8.1 \times 10^{-4} \text{\AA}$. 焦点 F に集められるX線強度は, 弯曲結晶における回折が動力学的であると仮定し, 反射率 σ を 0.5 , 偏光因子を $\cos 2\theta_B$ とすれば, 放射光度 $N(\lambda)$ に菊田氏の計算値 ($E = 2.5 \text{GeV}$, $I = 1 \text{A}$, $H = 10 \text{kG}$)²⁾ を用いて, $N(\lambda) \cdot \Omega \cdot \Delta\lambda \cdot \sigma \cdot \cos 2\theta_B = 5.5 \times 10^{12}$ 光子/sec になる. 一方, 現在最も明るい光学系は, 生物試料の小角散乱などに用いられている弯曲結晶と全反射鏡の組合わせではないかと思われるが, これを

回転陽極型微小焦点X線源とともに用いたときの強度は約 $1 \sim 5 \times 10^8$ 光子/sec⁴⁾ である。したがって 10^4 倍以上の超高強度が得られることになる。焦点の大きさは、 $0.9\text{H} \times 8.3\text{V mm}$ である。水平方向をさらに絞りたい場合は、弯曲結晶の l を減らして Ω を小さくするか、軽元素結晶の高次反射を利用して ω_0 を小さくする。

対数らせん型は結晶表面の形が $r = Ae^{B\theta}$ の弯曲結晶で、有限の大きさをもつ線源から発するX線を小さい焦点に集めるものとして知られている。この型の弯曲結晶を上と同様の条件で用いると、収差が小さく、高能率の集光が行なえそうであるが、焦点がストーレージ・リングの内側に入ってしまうので実現不可能である。

焦点を点状にしたい場合、縦方を別個の弯曲結晶や全反射鏡で絞る以外に、二重弯曲結晶を利用する方法がある。ヨハン型の場合、第二主軸の曲率半径 R' は $R(\sin^2\theta_B - \sin^2\alpha)$ でなければならないが、放射光用弯曲結晶はもともと R が大きいので、 R' はそんなに小さな値にはならない。上述した例では、 $R' = 1.87\text{m}$ である。二重弯曲結晶では回折ないしは反射が一回ですむので、別々の集光系を用いる場合に比べて偏光因子などによる強度損失が少ない利点がある⁵⁾。

各種の弯曲結晶で得られるX線強度は、幾何光学的な条件の他に、結晶の積分反射能に依存する。一般に、弯曲結晶における回折は動力学的回折と運動学的回折の間中であると考えられる。曲率が小さく、格子の受ける変形が小さい場合は動力学的であり、逆の場合には運動学的回折に近くなる。完全結晶を平面状態から曲げていくと、最大反射率は減り、回折の角度幅は増え、両者の積で与えられる積分反射能は増大することは良く知られている。これは定性的には消衰効果が減小して、回折が運動学的になっていくためと理解されるが、強く変形された結晶における回折現象の詳細は未だ良く分かっていない。従来、弯曲結晶用の結晶には水晶が多く用いられているが、フォトン・ファクトリーで用いられる長焦点弯曲結晶には動力学的積分反射能の大きいゲルマニウムなどの重元素結晶の低次反射が有利ではないかと思われる。散乱を減らす目的には、弯曲結晶を多重に配置し⁶⁾、凹面凸面で反射を繰返する方法が考えられる。

3. 平面結晶光学系

フォトン・ファクトリーのX線は指向性が高い ($\Delta\theta \cong 10^{-4}\text{rad}$) ので、スリットを用いて結晶で回折させるだけで波長幅を $\Delta\lambda/\lambda \cong 10^{-4}$ に揃えることができるが、これ以下は完全に近い結晶の動学的回折効果を利用しなければならない。ゲルマニウム、シリコン、水晶などの完全結晶の回折角度幅 ω_s は $\lambda = 1\text{\AA}$ 前後の領域では $10^{-4} \sim 10^{-6}\text{rad}$ であり、反射率は100%に近い。回折格子面が表面と平行でない、いわゆる非対称反称では角度幅がさらに1～2桁狭く（あるいは広く）なる。このような結晶を多重に配し回折を繰返すと、いろいろの特性をもつ線束が作れる。いくつかの例を第2図に示す。(a)の対称反射の(＋, ＋)配置では、得られる線束の $\Delta\theta$, $\Delta\lambda/\lambda$ は同程度で、結晶 C_1 , C_2 の ω_s の程度である。これに対し、(b)および(c)の非対称(＋, ＋)配置では、 ω_s の拘束を離れて $\Delta\theta$, $\Delta\lambda/\lambda$ を変えることができ、両方の大きさがかなり異なる特異な線束を作ることにも可能である。このような配置では、一般に次式が成り立つ⁷⁾。

$$\Delta\theta = \begin{cases} (\omega_{s1}\sqrt{b_1} + \omega_{s2}/\sqrt{b_2})\tan\theta_{B2}/T - \omega_{s2}/\sqrt{b_2} \cdots \cdots b_2 \leq \tan\theta_{B2}/T \\ \omega_{s2}/\sqrt{b_2} - (\omega_{s2}/\sqrt{b_2} - \omega_{s1}\sqrt{b_1})\tan\theta_{B2}/T \cdots \cdots b_2 > \tan\theta_{B2}/T \end{cases}$$

(a)

(e)

(b)

(f)

(c)

(g)

(d)

(h)

第2図 いろいろな多重結晶光学系

$$\Delta\lambda/\lambda_0 = \lambda_0(\omega_{s1}\sqrt{b_1} + \omega_{s2}\sqrt{b_2})/T$$

ここで、 $T = \tan \theta_{B1} + \tan \theta_{B2}$ 、 ω_s ：対称反射の回折角度幅、 $b = \sin \theta_o / \sin \theta_h$ ：非対称因子、 λ_0 ：線束の中心波長、添字 1, 2 は C_1 , C_2 を示す。いろいろの配置で得られる線束は、各図の右側に示したデモンド図の斜線部（スペクトル窓と呼ぶ）で表わされる。結晶の種類と格子面および b 値を適当に選ぶことにより、一定の λ_0 に対して、かなり自由にスペクトル窓の形と大きさを変えることができる。応用上有用なのは、スペクトル窓が水平あるいは垂直に近い場合であろう。以上と同様な効果は非平行（+，-）配置を用いても得られる。（b）と同様な線束は $\theta_B \approx 90^\circ$ の回折を使う（d）でも実現できる。 $\Delta\theta$, $\Delta\lambda/\lambda$ がともに 10^{-6} 以下の高平行、単色線束を得るには（e）が利用できる⁷⁾。

放射光の連続スペクトルの中から一定の波長域の単色線を取り出す目的には、以上の各配置で C_1 , C_2 を別個の結晶（同種または異種）にする他に、単体結晶塊中の適当な二つの格子面を利用することもできる⁸⁾。別個の結晶を用いる場合に比べ、自由度は少ないが、熱的、機械的な安定性が非常に良いモノクロメータが作れる。研究の目的にもよるが、放射光では従来の特性X線のように特定の波長を用いる必要は必ずしもないであろう。これは連続スペクトルの利点の一つであるが、厄介な点もある。光学系の調整が多少ずれても強度はほとんど変わらないから、実験に使っているX線波長の正確な絶対値を知るには特別の方法を用いねばならない。このとき安定性の良い単体モノクロメータが二次的な標準として使えるであろう。

単色光の波長を変えて測定を行なう場合には、（f）が便利である。 C_1-C_1' , C_2-C_2' がそれぞれ常に（+，-）平行配置になっていれば、波長を変えても出射線束は常に入射線束と平行になる。もし、 C_1 と C_1' , C_2 と C_2' を高精度（ 10^{-6} rad 程度）で平行に保ちつつ、その間の距離を変える機構を工夫すれば、波長可変域は大幅に広くなり、また、出射線束の位置を不変にすることもできるだろう。放射光のビーム・パイプの延長線上ではバックグラウンドが強いことが予想されるが、これを避けるには C_1-C_1' , C_2-C_2' の距離を不等にすることが考えられる。もし、出射線束の方向が波長によらず一定で、しかも入射線束と平行でないモノクロメータがあれば、バックグラウンドを減らす目的にも、一本のビーム・チャンネルを有効に利用する目的にも極めて有用と思われるので、筆者達はその方法を研究している。（g）は Bonse-Hart 型のコリメータで、各波長成分について角度に対する強度分布が *tailless* の線束が得られる⁹⁾。（h）は高良一菊田一松下によって考案された多重非対称反射コリメータで¹⁰⁻¹²⁾、各波長成分の発散角が極端に狭い（ $10^{-7} \sim 10^{-8}$ rad）線束を生ずる。これらの原理を（a）—（c）、（e）、（f）の各要素（ C_1 , C_2 ）に利用すれば、変化に豊んだ光学系が作れる。

以上のような多重結晶配置を用いる実験は、ストレージ・リングの垂直ウィグラー・ビーム・チャンネルで行なわれるであろう。普通のビーム・チャンネルではX線の電気ベクトルが水平面内にあるため、回折角が 90° に近い反射の強度が減るのを避けるには、分散面を垂直にしなければならない。このためには試料まで含めた全結晶の回転軸を水平にする必要があるが、これは調整台の機構を複雑にするだけではなく、垂直軸の場合ほど精度の高い実験が行なえないおそれが多分にある。

次に、フォトン・ファクトリーの放射光を高平行、高単色化した場合のX線強度を概算しておく。第2図(a)の C_1 , C_2 にシリコン 333 反射を用いると、 $\lambda_0 = 1.5 \text{ \AA}$ に対して $\Delta\theta = 10^{-5}$ rad, $\Delta\lambda/\lambda = 10^{-5}$ の線束が得られるが、結晶をウィグラー軌道（曲率半径 1.4m, $H = 60 \text{ kG}$ ）

の接線方向 30m の所に置くと, その強度は約 6×10^6 光子/sec/mm² になる (放射光強度には菊田氏の計算値²⁾を用いた). 以上のような方法で得られる線束の $\Delta\theta$, $\Delta\lambda/\lambda$ の極限值は 10^{-9} 程度であろう. これ以下は, 結晶の物理的な大きさに起因する回折効果や格子歪みのために実現が困難である.

放射光の連続スペクトルの中から結晶のブラッグ反射で波長 λ の成分を取り出すと, 高次反射による λ/n ($n=2, 3, \dots$) 成分が重なって生ずる. これは (+, +) 配置の多重結晶系でも同じである. 高調波成分は, 散乱・回折の実験において多くの場合, 検出器を波高分析器と併用することにより実効的に除去できると思われるが, エネルギー鈍感型検出器 (写真フィルム, テレビ型検出器) を用いる場合, あるいは照射を行なう目的には, モノクロメータで除くことが必要になる. その一方法として, 屈折率の波長依存性を利用して回折角度位置をずらす二結晶光学系¹³⁾が考えられる.

4. 蛍光 X 線の利用

放射光の指向性, 偏光性が不都合な場合, あるいは広い照射面積が必要な場合, これを金属ターゲットに当てて蛍光 X 線を励起し, 二次的線源として利用する方法が考えられる. 物質の蛍光励起効率 $E_Z(\lambda)$ は第 3 図に示すような励起波長 (λ) 依存性を持ち, 一般に重元素ほど大きい, 原子番号 22 番 (Ti) 以上では吸収端波長 λ_K における値が 15% 以上に達する¹⁴⁾. 波長が短くなると効率が下がるか, 一次線が強力な連続スペクトルの放射光の場合, $\lambda \leq \lambda_K$ の全波長成分が蛍光励起に寄与するので大きな強度が得られる可能性がある. 放射光の強度を $N_p(\lambda, \theta, \varphi)$ とすると蛍光の全強度は

$$\int_0^{\lambda_K} \int_{-\Delta\theta}^{\Delta\theta} \int_{-\Delta\varphi}^{\Delta\varphi} N_p(\lambda, \theta, \varphi) E_Z(\lambda) d\lambda d\theta d\varphi$$

で与えられる. $\Delta\theta$, $\Delta\varphi$ は蛍光ターゲットの見込み角である. フォトン・ファクトリーのストレージ・リングのウィグラー (曲率半径 1.4m) から 1m の所に銅ターゲットを置き, その 10×0.4 mm の面積を照射すると, 発生する $K\alpha$ 蛍光 X 線 ($\lambda_F = 1.54\text{\AA}$) の強度は全立体角で約 1.5×10^{17} 光子/sec と計算される. これは通常の X 線管を管電圧 40kV, 管電流 15A で運転のときに匹敵する. 現実にはターゲットをリングからもっと離して置かざるを得ないかもしれないが, それでも既存の最大級の X 線源以上の強度が得られる. λ_F は元素に固有の値なので, この方法で任意の波長の X 線は得られないが, 蛍光は連続線を含まないの, 非常に清浄な線スペクトルが簡単な方法で得られる. また, 一次線の偏光に関する情報は二次線励起過程で失われるので蛍光は無偏光となり, かつ角度に関してほぼ均一に分布する発散線になる.

第 3 図 二, 三の元素の蛍光励起効率 $E_Z(\lambda)$ とフォトン・ファクトリーで得られる放射光スペクトル $N(\lambda)$

文 献

- 1) 放射光総合研究所（仮称）設立趣意書，日本学会議第4部，1974年10月
- 2) 菊田惺志：フォトン・ファクトリー計画資料Ⅱ，p.137，1975年3月
- 3) J. Witz : Acta Cryst. **A25**, 30 (1969)
- 4) K. C. Holmes : Endeavour XXXIII, No. 119, p. 60, MAY (1974)
- 5) D. W. Berreman, J. W. M. DuMond and P. E. Marier : Rev. Sci. Instr. **25**, 219 (1954)
- 6) K. DasGupta : Phys. Rev. **128**, 2181 (1962)
- 7) K. Nakayama, H. Hashizume, A. Miyoshi, S. Kikuta and K. Kohra : Z. Naturforsch. **28a**, 632 (1973)
- 8) T. Matsushita : J. Appl. Cryst. **7**, 254 (1974)
- 9) U. Bonse and M. Hart : Appl. Phys. Letters. **7**, 238 (1965)
- 10) S. Kikuta and K. Kohra : J. Phys. Soc. Japan. **29**, 1322 (1970)
- 11) S. Kikuta : J. Phys. Soc. Japan. **30**, 222 (1971)
- 12) T. Matsushita, S. Kikuta and K. Kohra : J. Phys. Soc. Japan. **30**, 1136 (1971)
- 13) U. Bonse : X線トポグラフィと動力学理論に関する国際夏期学校における講義，リモージュ，1975年8月
- 14) L. S. Birks : Spectrochemica Acta. **17**, 148 (1961)