RI けい光 X 線分析における幾何学的条件 (第 1 報)

線源および試料の大きさと位置によるけい光 X 線の強度特性

松井佳子, 古田富彦

名古屋工業技術試験所

名古屋市北区平手町 1

1973年 6月15日 受理

RI けい光 X 線分析における最も適した幾何学的条件を求める目的で, いろいろな大きさの試料および線源を用いて, 試料の位置, 線源の位置, 線源と試料との距離を変えた場合について, 特性 X 線強度の変化を調べた。線源ホルダーの大きさ ϕ' が検出器の大きさ ξ に比べて小さい場合 $\phi' \leq \xi/3$ でかつ, 試料が十分に大きい場合にのみ ($\phi > 0.6\xi$), “Central Source Geometry” が適して, それ以外の場合には “Side Source Geometry” にするのが望ましいことがわかった。

また, 十分大きい試料の場合, 線源の位置 Y をずっと横に置くことによって, 特性 X 線強度は若干落ちるが, 線源と試料との距離 D の変動による誤差はかなり小さくできることを確かめた。

1. はじめに

X 線管球のかわりに RI 線源を用いるけい光 X 線分析法は, 現在, 鉱石, 合金, セメント原料, 石炭, 溶液などの分析およびメッキ厚さ測定などに利用され, 品質または工程管理, 野外調査用として実用の段階にはいっている。

RI けい光 X 線分析法において, 分析感度または精度および分析時間を左右する因子の 1 つとして, 幾何学的配置(線源, 試料, 検出器の形状およびその配置)があげられるが, これは半導体検出器のような小さな検出器を用いたり, 非常に小さな試料の分析をする場合にはとくに問題となる。

RI けい光 X 線分析法では, RI 線源からの一次線が試料に照射され, 試料において二次的に発生した特性 X 線は X 線検出器によって検出される。このさい, 検出器窓の前の X 線分光用フィルターあるいは検出器に接続したパルス波高選別器によって, 非分散分光されて, 特性 X 線の強度が選択的に測定される。この方法では従来の X 線分光法のような分光結晶, ゴニオメータ, スリットを必要としないため, X 線測定のための幾何学的効率は比較的大きい (0.1~10%)。たとえば 10^7 光子/秒の一次線強度の RI を用いたとき, 単体試料から $10^3 \sim 10^5$ cps の X 線計数率が得られる。

線源—試料—検出器の配置においては, つぎのような条件を備えていることが望ましい。

- 1) できる限り大きい幾何学的効率であること。
- 2) 線源から検出器に直接はいる一次線強度が, 無

視しうる程度のバックグラウンドであること。

- 3) 試料を置くためのアパーチャなどの装置材料からの特性 X 線または散乱線強度が最小であること。

- 4) 特性 X 線—散乱線強度比 S/N が最大であるこ

Fig. 1 Geometric arrangement.

と。

5) 線源—試料間の距離の変動による特性X線強度の変化が最小であること。

6) 装置からの漏えい線量が法定線量以下であること。

ここでは、Fig. 1のような線源—試料—検出器の配置で、図に示した各種のパラメータを変化させた場合の特性X線強度の変化を詳しく調べ、検出器、線源ホルダーおよび試料の大きさによって、どのような配置が最も適しているかを検討した。概念的には、試料表面において励起され検出される特性X線の強度分布は、線源の位置によってFig. 2のように変化する。

Fig. 2 Conceptual distribution of the observed characteristic X-ray intensity.

線源が検出器窓の中心の真下におかれる“Central Source Geometry”は線源に比べて大きな窓をもつ検出器で大きい試料を測定する場合に有効な配置で、シンチレーション計数管または比例計数管を検出器に用いる場合にかなり使われる。また、線源の位置が検出器窓の中心より横にずれた“Side Source Geometry”は小さい試料または線源ホルダーと検出器窓の直径が同程度の大きさのときに適した配置である。

2. 実験および計算

用いた検出器は1½ in. $\phi \times 5$ mm 厚さの NaI(Tl) シンチレーション計数管でアルミニウムのアパーチャで検出器の窓の直径 ξ を30 mmとした。線源は主として ^{109}Cd (3 mCi) を用い、厚さ T が5.5 mm、外径 ϕ' が10 mm、15 mm および20 mm の3種類の線源ホルダーに入れて使用した。試料としては5% CuO をプラスチックで固めたのを用い、Al のアパーチャで、試料の直径 ϕ を10 mm から40 mm まで変化させた。また、試料表面からの測定される特性X線の強度分布を見るために、直径が3 mm の銅の薄片を試料として X を変化させたときの測定も行なった。

測定した特性X線はCuのKX線(8.1 keV)であるが、 S/N 比の測定以外はシングルチャンネルパルス波高分析器を用いてCu KX線のみを測定した。

検出器と線源の間隔 D' については、 D_{opt} (線源と試料との間隔 D の最適な値) も X_{opt} (検出器の真下から試料の中心までの距離 X の最適な値) も D' にはよらず特性X線強度は D' が小さいほど大きい。この実験ではフィルターを入れる間隔として $D'=10$ mm とした。

計算は、簡単のため、特性X線はすべて試料の表面で発生することにし、試料表面のある点 $P(X, r, \theta)$ からの特性X線強度 FIP をつぎのような積として求めた。

$$FIP(X, r, \theta) = C \times G \times RA \times F \quad (1)$$

ここで、記号はそれぞれつぎのようなものである。

X, r, θ : Fig. 1 参照のこと

C : 線源の強さ、特性X線の発生効率および検出器の検出効率によって定まる定数

G : 試料から検出器をみた立体角 $\div 4\pi$

RA : 線源ホルダーによって検出器がかくれるので試料からみて検出器の見える割合

F : 線源からの一次線の試料面上での分布

また、中心が $(X, 0)$ にある半径 R の円盤状試料からの特性X線強度 FID は FIP を積分することにより求めた。

すなわち

$$FID(X, R) = 2 \int_0^\pi \int_0^R (FIP) r dr d\theta \quad (2)$$

なお、計算はすべて FACOM-270/30 を用いて行なった。

3. 結 果

3.1 X (検出器の中心線—試料の中心線の距離) 依存性

(1)式による *FIP* の *X* 依存性の一例を Fig. 3 に示した。線源—試料の間隔 *D* が大きくなるほど、その分布は横に広がっている。また、*D* を 3 mm と一定にして、試料として直径が 3 mm の Cu の小片を左右にずらした場合の特性X線強度分布、すなわち *X* 依存性の実験および(2)式による計算結果を Fig. 4 に示した。この場合、Fig. 2 に示したと同様に、線源ホルダーの端のところにピークがあり、線源の位置を横にずらしていくと (*Y* を大きくしていくと) 内側のピークがだんだん高くなり、検出器の端から半径の $\frac{1}{2}$ だけはいったところで最高になる。

Fig. 3 Result of the calculation of *G*, *RA*, *F*, and *FIP*.
 $\phi' = 10$ mm, $Y = 9$ mm

試料が大きい場合の特性X線強度は、Cu 小片での分布曲線を積分したような値になるが、線源の位置が検出器の真下 ($Y=0$) にあって、線源ホルダーの外径 $\phi' = 10$ mm の場合について、試料の直径 ϕ をパラメータにして得られた結果が Fig. 5 である。Fig. 4 の $Y=0$ の場合と比較してみると $\phi = 10$ mm の場合は、ブロードではあるが、まだ線源ホルダーの端のところにピークがある。 $\phi = 15$ mm 以上になると $X=0$ 、すなわち線源の真下に試料を置くのがもっともよい配置になってくる。

いろいろな ϕ の値について、*D* を一定にして *Y* をバ

Fig. 4 *X* Dependence of the fluorescent intensity for a small sample of diameter 3 mm. (Parameter *Y*)

Fig. 5 *X* Dependence of the fluorescent intensity in the case of central source geometry ($Y=0$). (Parameter ϕ)

ラメータにした特性X線強度の *X* 依存性を Fig. 6 に示した。

3.2 *Y* (線源の位置) 依存性

Fig. 6 のピークの強さを *Y* に対してプロットした結果が Fig. 7 であり (線源ホルダーの直径 $\phi' = 10$ mm), $\phi' = 20$ mm の場合の同様の結果が Fig. 8 である。 $\phi' = 10$ mm の場合には、試料の直径 ϕ が 20 mm 以上では $Y=0$ 、すなわち線源を検出器の真下におくのがもっと

Fig. 6 X Dependence of the fluorescent intensity for various sample diameters. (Parameter Y)

もよい配置となるが、 $\phi' = 20\text{mm}$ の場合には、試料が大きくても線源は検出器の横のほうに置くほうが影にならずによいようである。

Fig. 7 Y (source position) Dependence of the peak intensity (1). (Parameter ϕ)

Fig. 8 Y (source position) Dependence of the peak intensity (2). (Parameter ϕ)

3.3 ϕ (試料の直径) 依存性

S/N 比はマルチチャンネル PHA を用いて、特性 X 線と散乱線のピーク強度の比をとったが、その値および特性 X 線強度の ϕ 依存性を Fig. 9 に示した。線源の位置が検出器の真下にある場合 ($Y = 0\text{mm}$) より、横にずれている場合 ($Y = 9\text{mm}$) のほうが、小さい径の試料でプラトーになるが、いずれにせよ、線源ホルダーの直径 ϕ' が 10mm 、検出器の窓の直径 ξ が 30mm

Fig. 9 ϕ Dependence of the S/N ratio and the fluorescent intensity.

という条件のもとでは、試料の大きさ ϕ は35mm程度以上が望ましい。

3.4 D (線源-試料の距離) 依存性

特性X線強度の D 依存性については試料の直径 ϕ をパラメータにしたものをFig.10に、また試料が十分に大きいものについて、線源の位置 Y をパラメータにしたものをFig.11に示した。実際の試料表面は必ずしも平坦でなく、 D が変動する。特性X線強度が最大となる位置が D の変動による影響がもっとも小さく、最適な線源-試料間距離 D_{opt} といえる。Fig.10において試料の直径 ϕ が大きいほど、 D_{opt} が大きくなるのはFig. 3において D が大きいほど、 FIP の分布がブ

Fig. 10 D Dependence of the fluorescent intensity. (Parameter ϕ)
 $\phi' = 10\text{mm}$, $Y = 9\text{mm}$, $X = 5\text{mm}$

Fig. 11 D Dependence of the fluorescent intensity from a large sample. (Parameter Y)

ロードになるためと思われる。また、Fig. 11 から、on-line 分析等のように試料が十分大きくて、バツキ、試料面の凹凸等による D の変動があるような場合には、線源の位置 Y を横にずらすことによって、特性X線の強度は若干落ちるが、 D 依存性の分布がブロードになり、 D の変動による誤差は小さくなることがわかる。 Y と特性X線ピーク強度の関係、および Y と D

Fig. 12 Y Dependence of the percent variation (●) of the X-ray intensity due to 1mm change of D and the maximum intensity (○) in count rate distance plateau for a large sample.

が1 mm変動したときの特性X線強度に対する平均変化率との関係を Fig.12に示した。

用いる線源、特性X線のエネルギーおよび試料の組成が異なると、試料中での一次線および特性X線の吸収のされ方が異なるため、 D 依存性も異なる。すなわち、特性X線強度の発生に、試料面から実効的に深い部分からの寄与が大きいほど、 D_{opt} は小さくなる。Fig.13に ^{109}Cd および ^{241}Am を線源として用いたときの5% CuOを含むプラスチック試料からのCuK X線の D 依存性、および ^{241}Am のときの金属銅からのCuK X線とブリケットされた鉱石試料からのBaK X線の D 依存性を示した。

Fig. 13 The difference of D -optimum due to that of the absorption coefficient of the sample matrix for the incident and fluorescent X-rays.

4. まとめ

以上の結果をまとめたものを Table 1 に示した。

Abstract

Choice of Optical Geometrical Conditions for Radioisotope X-Ray Fluorescence Analysis (I)

Dependence of Fluorescent X-Ray Intensity on Size and Position of Source and Sample

Yoshiko MATSUI and Tomihiko FURUTA

Government Industrial Research Institute, Nagoya,
1, Hirate-machi, Kita-ku, Nagoya

For a purpose of obtaining the optical geometrical conditions for radioisotope X-ray fluorescence analysis, the dependence of the characteristic X-ray intensity on the

Table 1 $\xi = 1$

ϕ'	ϕ	Y_{opt}	X_{opt}	D_{opt}
$\leq 1/3$	> 0.6	0	0	$\sim 1/10$
	< 0.6	$1/3 + \phi'/2$	$\sim 1/3$	$\sim 1/12$
$\geq 1/2$		$1/3 + \phi'/2$	$\sim 1/3$	$\sim 1/6$

ϕ' ; Source diameter

ϕ ; Sample "

Y_{opt} ; Optimum source position

X_{opt} ; " sample "

D_{opt} ; " source-sample distance

Cu 小片の実験で、検出される特性X線の試料面上での強度分布は線源ホルダーの内側の端でもっとも強くなっていることから、線源ホルダーの大きさ(ϕ')が検出器の大きさ(ξ)に比べて小さい場合($\phi' \leq \xi/3$)でかつ、試料が十分に大きい場合(のみ)($\phi > 0.6\xi$)、"Central Source Geometry"が適していて、それ以外の場合には"Side Source Geometry"にするのが望ましいことがわかった。

線源と試料との最適な間隔 D_{opt} は、線源の種類、測定する特性X線のエネルギー、試料の組成等によりいくらか異なる。

また、十分大きい試料面の凹凸、on-line 試料のバタツキ等のある場合には、線源の位置 Y を、ずっと横に置くことによって、特性X線強度は若干落ちるが、線源と試料との距離 D の変動による誤差はかなり小さくできることを確かめた。

position of the source and the sample was investigated in the case of various diameters of the source and the sample.

"Central source geometry" is suitable only for a small source (ϕ') and a relatively large sample diameter (ϕ) compared with the detector window diameter (ξ), i.e. $\phi' \leq \xi/3$ and $\phi \geq 0.6\xi$. In the other cases, "Side source geometry" is suitable.

In the case of a sufficiently large sample, it was confirmed that the variation of the X-ray intensity due to that of source-sample distance (D) is decreased by setting a source at a distance (Y) far from the detector in compensation for the intensity reduction.

(Received June 15, 1973)