

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 10 日現在

機関番号：82502

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2023

課題番号：21K17999

研究課題名（和文）能動型X線分光計AXS用の焦電型X線発生器PXGの開発研究

研究課題名（英文）Development of the pyroelectric X-ray generator on the active X-ray spectrometer

研究代表者

内藤 雅之（Naito, Masayuki）

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・放射線医学研究所 計測・線量評価部・研究員

研究者番号：30778147

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：焦電効果は温度変化に依存して物質表面に自発分極を生成する現象で、X線発生に利用できることが知られているが、その詳細な物理過程は明らかになっていない。近年、酸化チタン化合物半導体と金属のショットキー接合部で高い焦電効率を示すことが明らかになった。本研究ではNb添加BaSrTiO<sub>3</sub>とAuの接合（Au/Nb:SBTO）間に生じる焦電効果による真空中のX線発生について実験的に調査し、電子発生過程の解明を目指した。Au/Nb:SBTOを約1 Paの真空中に封入して温度変化させ、近傍に設置したSi検出器でX線発生量を測定した。結果として、Au/Nb:SBTOによる焦電効果ではX線の発生は確認できなかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

焦電効果による自発分極は高い電圧を簡便に得る手法として有用であり、その基礎原理の追求を目的としている。したがって、X線発生装置のみでなく高電圧を利用する広い分野への発展が考えられる。本研究ではその詳細までを明らかにするのに十分なデータは得られなかったが、その一端となる実験を取得することができた。将来的にその全容が明らかになれば、高電圧装置の小型・軽量化などに貢献することが予想される。

研究成果の概要（英文）：The pyroelectric effect is a phenomena to yield spontaneous electric polarization depending on temperature change. Recently, it was found that schottky junction of titanium oxide crystal represents large pyroelectric coefficient. In this research, X-ray generation by the pyroelectric effect of the conjunction between niobium-doped BaSrTiO<sub>3</sub> and Au (Au/Nb:SBTO) in a low pressure has been experimentally evaluated. Although The Au/Nb:SBTO was heated and cooled in a pressure of 1 Pa to detect X-rays by a Si detector, the X-ray generation by the pyroelectric polarization was not observed.

研究分野：線量評価

キーワード：焦電結晶 X線発生器 能動型X線分光計 焦電型X線発生器

# 様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

## 1. 研究開始当初の背景

近年、Mars Science Laboratory (米国火星探査)や Chang'E-3, 4 (中国月探査)など、月惑星の着陸探査が成功をおさめ、次期探査として月惑星の着陸探査が世界各国によって計画されている。着陸探査では、これまでの周回衛星による探査によって明らかになった知見をもとに、天体上の特徴的な領域を狙って調査可能であり、局所的情報を取得することでより確度の高い議論を行うことができると期待される。着陸地点周辺におけるその場分析の装置として能動型 X 線分光計 (AXS, 【図 1】)が有望である。AXS は X 線源と Si 検出器によって構成され、蛍光 X 線分析 (XRF)によって月惑星の主要元素(Na, Mg, Al, Si Ca, Ti, Fe など)の濃度を計測する。これまでに海外の着陸探査で同種の装置が搭載されたことがあるが、 $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{244}\text{Cm}$  などの放射性同位体を励起源として用いている。一方で、日本の宇宙探査計画は独自の制限があり、これらの放射性同位体を用いることができない。これまで、国内の探査計画向けの AXS の開発を行ってきた[1,2 他]。

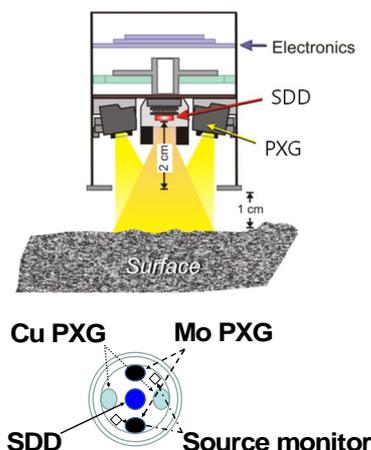


図 1. AXS の装置構成 . PXG と Si ドリフト検出器(SDD)によって XRF を行う .

焦電型 X 線発生器 (PXG【図 2】)は強誘電体が温度に応じて自発分極を変化させる焦電効果を利用した X 線源で、AXS 搭載の励起源として開発を進めている。金属薄膜ターゲットと焦電結晶を 1 Pa 程度の低圧ガス中に向かい合わせて封入し、結晶を加熱・冷却すると X 線発生に利用できることが知られている [3]。焦電結晶の自発分極を電子加速に利用するため従来の X 線管と比較して高電圧が不要であり、小型・軽量が特徴である。一方で、加速電子の発生する物理的過程が不明確であり、発生 X 線の強度と安定性が課題となっている。

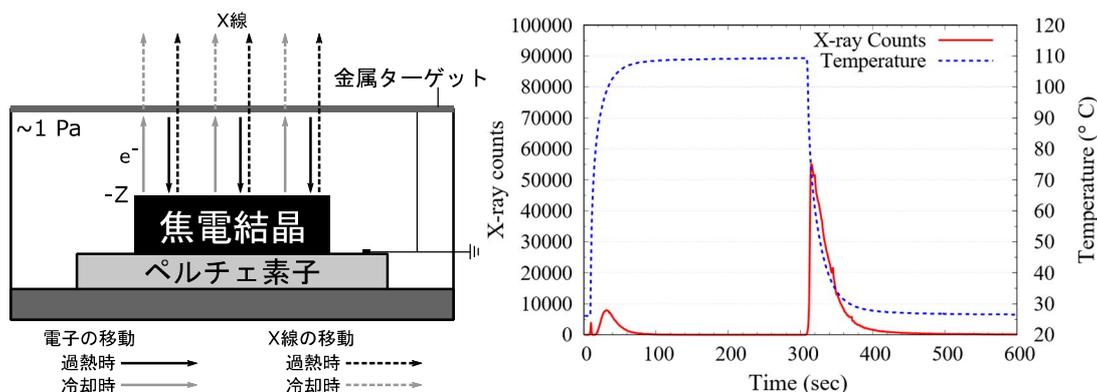


図 2. (左) PXG の概念図 . (右) 温度と X 線発生量の時間変化の例 . 過熱・冷却で X 線が発生 .

## 2. 研究の目的

電子発生の物理過程は、(i) 結晶表面からの電界電子放出と(ii) 雰囲気ガスの電離の 2 説が有力視されている。これまでに LiTaO<sub>3</sub> などの焦電結晶を用いた研究が多数行われているが、複数の相反する結果が報告されており[4,5 他]、未だその決着はついていない。本研究では、PXG による電子発生の物理過程を追求するとともに、発生する X 線の高強度・安定化を目的とする。

## 3. 研究の方法

### (1) 電子発生過程の追求

近年になって、酸化チタン化合物半導体と金属のショットキー接合部で強誘電体に近い焦電効果が合わることが明らかになった [6]。特に、Nb 添加 BaSrTiO<sub>3</sub> と Au の接合 (Au/Nb:SBTO)に生じる焦電効果の分極効率 は典型的な焦電結晶 LiTaO<sub>3</sub> の 10 倍以上で、小さい温度変化で大きな分極を生み出すことが可能である。強誘電体の焦電効果が結晶構造の電気分極が温度に依存して変化することによって生じるのに対し、ショットキー接合の焦電効果は接合部の電子が温度変化に応じて再配列されることによって生じる [6]。また、焦電結晶は分極の生成する領域が比較的大きい (> 数 mm) のに対し、ショットキー接合部は分極領域が小さい (< 1 mm x 1 mm)。こうした構造や性質の差が X 線の発生に与える影響を調査し、PXG の

電子発生過程を追求めた。

(2) X線の高強度・安定化

研究代表者らはこれまでに、PXGの金属薄膜ターゲット周辺の電極構造がX線の強度に影響を与えることを実験的に明らかにしている [2]。一方で、その根拠となる物理的解釈が得られていない。また、焦電結晶を用いた際に結晶の表面で発光を伴う大規模な放電現象 (CT-CB放電) が不安定に発生することを確認しており、放電によって分極が失われることでX線強度と安定性が落ちる原因となることを報告している [7]。そこで、複数のサイズ・形状のターゲット電極【図3】を用いた際のX線発生量を実験的に調査するとともに、結晶-電極周辺領域の電場分布の計算を行った。これにより、ターゲット電極形状によるX線強度の変化に対する物理的解釈を追求めるとともに、放電現象の抑制に適切な実験条件を追求めた。

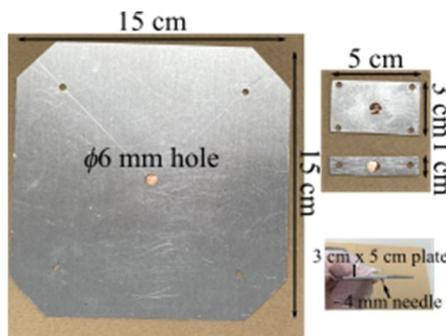


図3. 実験に使用したターゲット電極。複数のサイズと突起を張り付けたターゲットを使用した。

4. 研究成果

(1) 電子発生過程の追求め

Au/Nb:SBTOを使用した基礎実験では、温度変化に依存するX線の発生を観測することができなかった。この原因として、既存の電極構造では電子放出・加速に十分な電気分極が確保できなかったことが考えられる。すなわち、ショットキー接合部では従来のLiTaO<sub>3</sub>よりも高い効率で電気分極を生成することができるものの、生成した分極がショットキー接合の耐電圧を超えてしまう。したがって、(i), (ii)のどちらの物理過程も起こすことができず、X線発生が見られなかったと考えられる。一方で、焦電結晶が強誘電体であるのに対してショットキー接合は高電圧部が金属であるため、耐電圧の問題を改善することでX線発生に利用できれば(i), (ii)の判別に利用可能である。例えば、(i)の物理過程であれば電極金属のイオン化エネルギーに依存して生成電子数が変化すると考えられる。

(2) X線の高強度・安定化

【図4】にPXGのX線発生量の時間変化を、今回使用したターゲット電極の毎に示す。与えた温度変化は【図2】に準じている。特に結晶冷却時のX線強度と安定性は電極の大きさと構造に依存して変化した。電極が小さい時(図4a)には測定間の再現性がある程度安定したが、X線強

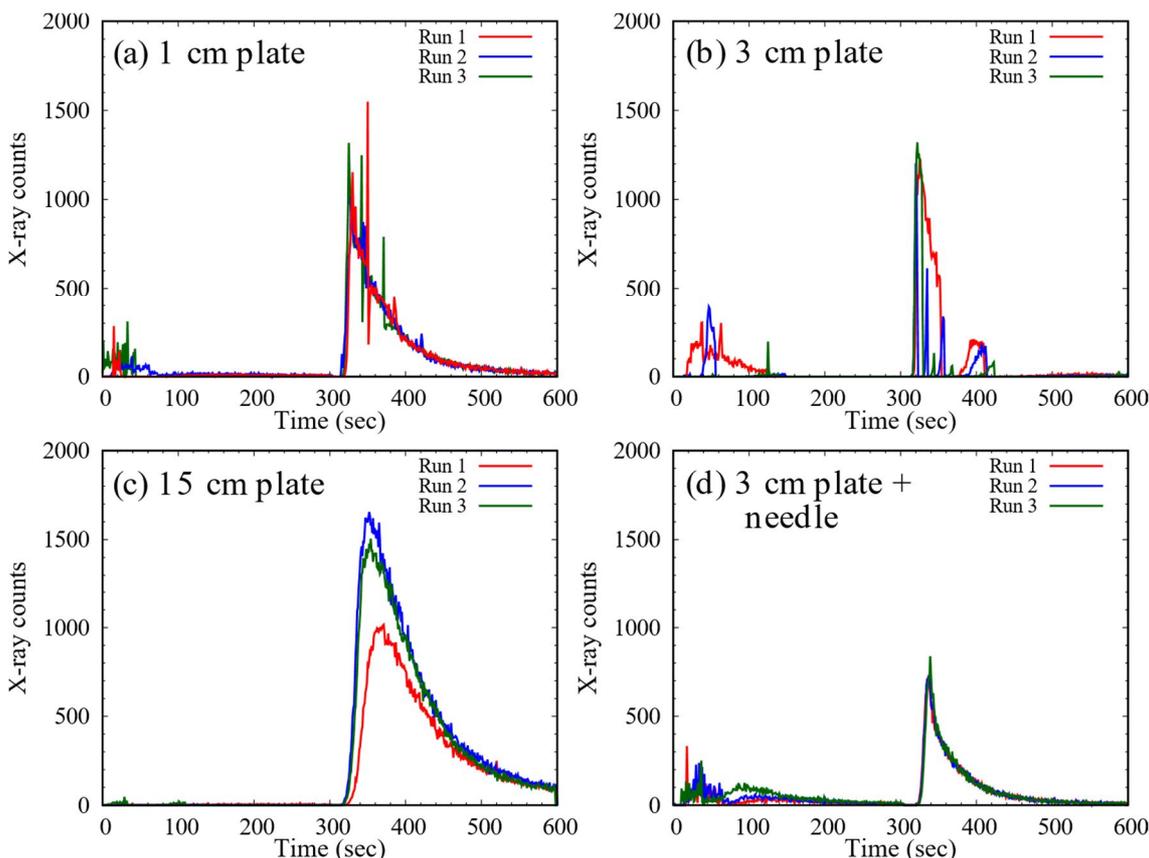


図4. ターゲット電極の構造毎のX線発生量の時間変化。

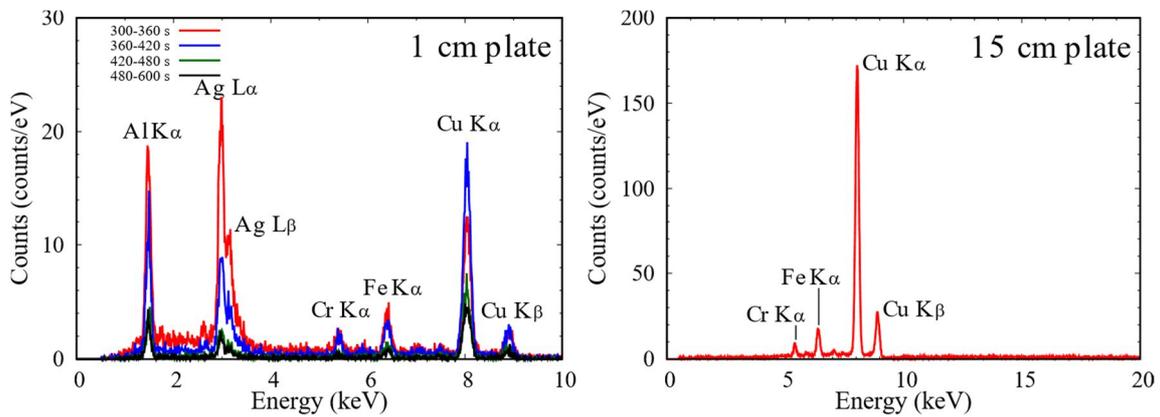


図 5. ターゲット電極の大小による X 線スペクトルの比較. 電極が小さい時 (左)にはスペクトル形状も時間と共に変化したのに対し、電極が大きい時 (右)にはスペクトル形状が安定していた。

度は電極が十分大きいとき (図 4c)に比べて小さくなった。瞬間的に X 線強度が大きくなる現象も複数回観測された。結晶上部からターゲット電極への放電 (CT-MT 放電)の痕跡として、放電に伴う瞬間的なピークとして計数されたと考えられる。一方、電極が十分大きいときには X 線強度が大きくなったが、複数回の測定による再現性が比較的小さかった。電極サイズが中間程度 (図 4b)の時には、X 線の計数が停止するイベントが複数見られ、強度・再現性共に低くなった。この X 線計数の変動は CT-CB 放電の特徴であり、結晶の分極が瞬時に失われたことに由来する [7]。ターゲット電極が十分大きな場合にこの現象は見られなかったが、これは電極が十分大きい場合には結晶-電極間の電場分布の安定性が高いためと考えられる。一方で、電極が十分大きい場合の X 線計数の再現性が安定しないのは、結晶表面の非一様性などに由来して生成分極が一様でなく、結晶沿面で小規模な放電 (CS 放電)を起こすことが原因と考えられる。

また、電極の大小では測定される X 線のスペクトルにも違いが見られた (【図 5】)。冷却開始直後の瞬間的な X 線計数が活発な期間 (300-420 s)には Al や Ag など、ターゲット電極由来の特性 X 線ピークの寄与が大きく、その後は金属薄膜ターゲット由来の Cu の特性 X 線ピークが主として測定された。この結果は、図 4a で見られた瞬間的なピークが CT-MT 放電によるものであることを支持するものと言える。一方で、このような放電現象は結晶分極の損失を招くため、ターゲット電極が十分大きな場合と比較して強度が小さくなったと考えられる。金属薄膜ターゲットに突起を取り付けた場合には、CT-MT 放電がある程度抑制され、再現性を高めることに成功した (図 4d)。しかしながら、今回取り付けた突起は 4 mm と比較的大型で、突起による X 線の自己吸収が大きくなり、電極が小さい場合と比較しても得られた X 線の計数は小さくなった。

これらの結果から、ターゲット電極周辺の構造を工夫することで、PXG の X 線強度と安定性の向上に寄与できることが明らかになった。一方で、今回の X 線強度が最大となる条件では PXG の特徴である小型・軽量の特性を排してしまう。より詳細な電場解析に基づいて電極構造を行うことで、将来の小型・軽量の X 線発生装置として開発を進める必要がある。

#### 参考文献

- [1] Brownridge, Nature 358 (1992) 287. [2] Nagaoka et al., Trans. JSASS Aerospace Tech. Jpn. 16 (2018) 137. [3] Nagaoka et al., JPS Conf. Proc. 11 (2016) 040004. [4] Hanamoto et al., Appl. Rad. Isotopes 116 (2016) 134. [5] Hanamoto et al., Appl. Rad. Isotopes 135 (2018) 40. [6] Yang et al., Nature 584 (2020) 377. [7] Naito et al., Proc. SPIE 10392 (2017) 1039215.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Naito Masayuki, Kusano Hiroki, Nagaoka Hiroshi, Hasebe Nobuyuki, Kodaira Satoshi	4. 巻 12240
2. 論文標題 Electric discharge relevant to pyroelectric spontaneous polarization inducing irreproducibility of pyroelectric x-ray generation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Proceedings of SPIE	6. 最初と最後の頁 1224007
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1117/12.2632418	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Naito Masayuki, Kusano Hiroki, Nagaoka Hiroshi, Hasebe Nobuyuki, Kodaira Satoshi
2. 発表標題 Electric discharge relevant to pyroelectric spontaneous polarization inducing irreproducibility of pyroelectric x-ray generation
3. 学会等名 SPIE Optical Engineering + Applications（国際学会）
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

6. 研究組織

氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号）	所属研究機関・部局・職 （機関番号）	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------