

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成26年6月09日現在

機関番号：34310
研究種目：基盤研究 (C)
研究期間：2011～2013
課題番号：23560058
研究課題名 (和文) 焦電性単結晶を用いた小型 X 線源の高効率化に関する研究
研究課題名 (英文) Study on Improvement of Efficiency for Miniaturized X-rays Source using Pyroelectric Single Crystals
研究代表者
吉門 進三 (YOSHIKADO, Shinzo)
同志社大学・理工学部電子工学科・教授
研究者番号：00158403
交付決定額 (研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000 円、(間接経費) 1,230,000 円

研究成果の概要 (和文)：焦電性結晶 (LiTaO_3) の温度変化のみによる X 線発生法は X 線管と比べて、X 線強度が不安定かつ原理上不連続である。本研究では、不安定性の原因の解明および不連続性の改善を目的とした。結晶表面における沿面放電が不安定性の要因であり、光電効果による電子供給、温度変化の周期の最適化により劇的に改善された。複数の結晶を用いて温度変化の周期・位相を制御し、ターゲットの形状と材質の最適化により強度を安定かつ連続化できた。高真空封入式の小型 X 線発生装置を試作し、良好な特性を得た。

研究成果の概要 (英文)：Compared with an X-ray tube, the X ray intensity of the X-rays generating method only by the temperature change of pyroelectric crystals (LiTaO_3) is instable and discontinuous principally. The purpose of this study is to clarify the instability and improve the discontinuity. One of the factors of instability was related to creeping discharge at the surface of a crystal and was improved drastically by the optimization of the electron supply by a photoelectric effect or the cycle a temperature change. Using two or more crystals and optimizing both the cycle and phase of a temperature change, the shape, and target material, the instability of intensity was improved. The miniaturized X-rays generators with a high vacuum enclosure were fabricated and the excellent X-rays-emission characteristic was achieved.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用物理学一般

キーワード：焦電性結晶、X 線発生メカニズム、連続発生、結晶沿面放電、電荷の蓄積、温度変化の周期、強度の安定化、封入式小型 X 線発生装置

1. 研究開始当初の背景

(1) X線は分析や医学など様々な分野で活用されているが、ほとんどX線管球を用いて発生させている。この方式では、外部から印加する電圧、電流のみでX線のエネルギー・強度を制御可能であり、応答速度が比較的速いといった長所がある。さらに、高圧電源や冷却機構が必要なため、小型化に制約がある欠点を併せ持っている。これらのデメリットを解消

できる新しいX線発生方式を1992年にJ. D. Brownridgeが報告した。低圧ガス中において異極像結晶(例えば、 LiNbO_3 、 LiTaO_3 等)の温度を変化させると高電界と電子が同時に発生し、電子が高電界により加速され、金属ターゲットに衝突することによりX線が発生する。本方式により発生するX線は、連続X線に対する特性X線の強度が強く、単色性が極めて良好である。一方向に分極方向を揃えた異極像単結晶

では、熱平衡状態において、結晶の電気面(自発分極の方向と垂直に交わる面)に自発分極による表面電荷と逆符号の電荷が吸着し、中和されている。例えば、負電荷面の温度が上昇すると、自発分極の大きさが温度変化に則応答し減少するが、電気面に吸着している正電荷は、時間的に遅れて脱離する。このため、過渡的に電気面が正味正に帯電し、結晶内外に電界が形成される。また、温度を降下させることにより逆向きの電界が形成される。この電界は、例えばLiNbO₃の場合、約20 MV/mに達する。結晶の電気面間に形成される電位差は結晶の厚さに依存し、原理的には、結晶の厚みを増すだけでより高電圧を形成でき、例えば10mmの厚みで最大200kVに達する。この強電界により雰囲気気体分子が電離されて生成される正イオンや電子等が、結晶が形成する電界で加速され、ターゲットに衝突することによりX線、ガンマ線、陽子、中性子が発生することが報告されている。

(2)本研究開始当初までに研究代表者らにより以下の知見が得られていた。

①低圧ガス中において、ターゲットに流れる直流電流の電荷量は雰囲気気体のイオン化エネルギーに対して負の比例関係になる。

②電子は結晶が形成する電界により、気体分子が電離されて生成される。

③X線発生量を高効率化させる雰囲気気体の条件を見出した。

④低圧ガス中において、X線強度は圧力に対して急峻なピークをもち、雰囲気気体の第一イオン化エネルギーとX線強度が極大値をとる圧力がボルツマン因子に関して比例することを見出した。これにより、気体分子が電離して生成される正イオンが、高圧側でX線強度を低下させる原因であることが証明された。

⑤高真空中において、気体分子の電離により生じる電子量は減少するが、熱電子源による

電子供給を行い、結晶が形成する電界を利用して、X線強度が増加し安定度が極めて向上することを見いだした。

2. 研究の目的

(1) 異極像結晶を用いた小型X線発生装置は、同サイズのX線管球方式に比べ、X線強度が約1/1000以下と弱い。したがって、本研究では異極像結晶を用いた特にX線発生メカニズムを精査すると共に、大型化することなくX線強度をX線管球方式と遜色のない程度まで高めることを目的とする。

(2) 異極像結晶の温度変化を周期的に行う場合の各周期ごとのX線強度の不安定性の要因を明らかにする。

(3) X線強度を増大かつ安定化する方法について模索するために光電効果等の発生X線と管体金属との相互作用について調べる。

(4) (3)の結果を基に最適な管体金属を用いて複数の結晶用のX線発生装置を試作する。結晶の温度サイクルの位相をずらすことにより一温度サイクルにおけるX線の擬似的連続発生を行う。

(5) 実用化を想定して、排気装置を用いることなくX線を発生させるために、X線管球と同様に封入型の手の親指サイズの小型X線発生装置を試作する。

3. 研究の方法

(1) X線強度の不安定性の原因

チャンバーはステンレススチール製である。10 mm × 10 mm × 5 mm のLiTaO₃単結晶(z-cut)をペルティエ素子上に貼り、温度センサとしてサーミスタを取り付け、結晶下面の温度測定を行った。ターゲットには厚さ20 μmの銅箔を用い、結晶の上面と10 mmの距離を隔てて設置した。X線取り出し窓はポリイミドフィルムとした。結晶周囲で起こる発

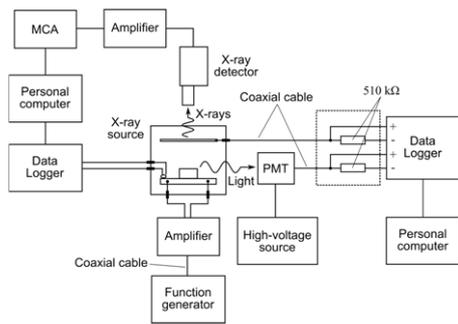
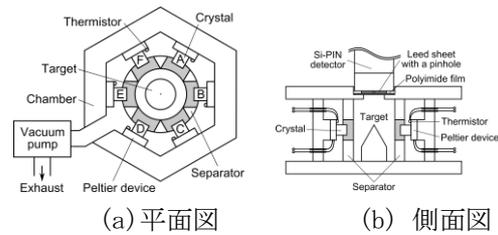


図1 測定装置系のブロックダイアグラム

光を観測するため光電子増倍管 (PMT) を設置した。図1に実験装置系を示す。チャンバー内の圧力は $10^{-5} \sim 10^{-4}$ Pa とした。結晶の温度変化は、周期 1000 s、温度変化幅が所定の温度変化幅になるようにした。ここで、1周期のうちの最大温度と最低温度の差である ΔT は 40°C を超えないようにした。発生した X 線は Si-PIN 検出器を用いて検出し、マルチチャンネルアナライザ (MCA) でサンプリング周期 1 s で測定した。ターゲットに流れる微小電流を測定し、発光の観測には PMT を用いた。測定は約 80 周期連続で行った。また、筐体内に設置された第 2 のターゲット金属に PMT の代わりに筐体外部から X 線を照射することにより、これから光電効果により電子を放出させて、結晶とターゲット間に電子を供給した。照射源として、本研究課題により購入した銀をターゲットする小型 X 線源 (MIn-X) を用いた。

(2) X線の擬似的連続発生

LiTaO_3 単結晶 (z-cut) 実験装置図を図 2 に示す。ま電氣的に接地したチャンバーはペルティエ素子及び結晶を内部に正六角形状に 6 個取り付ける無酸素銅 (Cu) 製の本体と、この本体を上下から挟む形で、隣り合う結晶同士の間仕切りをつくる上蓋、下蓋で構成される。上蓋及び下蓋はアルミニウム (Al)、ステンレススチール (SUS304)、無酸素銅 (Cu) 製である。SUS 製の上下蓋のみ、仕切りのない物を用意した。上蓋には直径 10 mm、厚さ



(a) 平面図 (b) 側面図

図2 複数の結晶を用いた X 線源の概念図

50 mm のポリイミドフィルム製の X 線取り出し窓が設けられ、下蓋の中央にターゲットを取り付けた。図2に結晶、ターゲット、検出器の位置関係を示す。一般的に、制動放射はターゲットの原子番号が大きい程起こりやすいと言われている。ターゲットには異なる高さや頂角をもつ底面の直径 15 mm の円錐形の Al、Cu、ニオブ (Nb)、タンタル (Ta) 製の金属ターゲットを用いた。結晶の温度変化にはペルティエ素子を用いた。結晶は $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ の LiTaO_3 単結晶 (z-cut) を 6 個用いた。結晶の -z 面がターゲットと対向するように取り付けた。サーミスタを用いて温度測定を行った。チャンバー内の圧力は約 1×10^{-4} Pa とした。結晶の温度変化は、ファンクション・ジェネレータから 3 つの三角波を出力し、分岐させ、6 個のペルティエ素子に入力することで行った。すなわち、出力された電圧の位相がそれぞれ 0° 、 60° 、 120° の周期 1000 s の三角波 (加熱 500 s、冷却 500 s) を分岐し、6 台の電力増幅器で増幅した後、そのうちの 3 つの位相を反転し、位相が 180° 、 240° 、 300° の三角波をつくった。これらの三角波を 6 個のペルティエ素子に隣り合う者同士の位相が 60° ずつずれるように印加することで温度変化を行った。Si-PIN 検出器を用いて X 線を検出し、MCA でサンプリングした。各ペルティエ素子の温度変化幅は $\Delta T = 30^\circ\text{C}$ とした。

以上、研究代表者 (統括)、大学院生 (一名) 設計・実験・解析担当) とする。

4. 研究成果

(1) X線発生メカニズムと不安定性

①z面の面電荷密度 $\sigma_z(t)$ の変化についてモデル化を行い、解析な結果を得た。分極の変化 ΔP_s は、近似的に焦電係数 γ 、温度の変化 ΔT を用いて、 $\Delta P_s = \gamma \Delta T$ で与えられる。LiTaO₃ では $\gamma < 0$ である。時間変化する温度 $T(t)$ に対して -z 面の面電荷密度 $\sigma_{-z}(t)$ の時間変化が次式のように導かれた。

$$\sigma_{-z}(t) = Ce^{-\frac{t}{\tau}} - 2\gamma \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\omega_n c_n}{\sqrt{\omega_n^2 + \frac{1}{\tau^2}}} \cos(\omega_n t - \varphi + \psi_n) =$$

ただし、 C 、 c_n は定数、 $\omega = 2\pi/L$ 、 L は温度変化の周期、 τ は吸着電荷の時間変化率である。 $\tau \ll L$ のとき、 $\sigma_{-z}(t)$ は定常状態で温度変化率 $q(t)$ の変化に近づき、 $\tau \gg L$ のとき、 $T(t)$ の変化の仕方に近づくことが分かった。 $+z$ 面の面電荷密度 $\sigma_{+z}(t)$ に対しても同様である。 $T(t)$ が周期 L の三角波状に変化するとき、1 周期のうちの最大温度 T_{\max} が各周期で $L/4$ の位置になるような $T(t)$ を求め定常状態の z 面の面電荷密度の変化を計算した。これにより、各温度変化のサイクルごとの結晶表面の電荷分布の状態が解析的に評価することが出来るようになった。これにより本方式の X 線源を設計する強力な指針となることが期待される。

②-z 面を使用した場合、加熱中は結晶周囲で気体の電離により電子が生じ、冷却中は気体の電離による電子の生成、及び結晶表面から電子が放出されていることが明らかとなった。 $+z$ 面を使用した場合の同様に考えることが可能である。 $-z$ 面に過剰に電荷が蓄積されると、電子が結晶側面の下側から上面の -z 面に向かって表面を流れ、-z 面の電荷が瞬間的に中和され、-z 面の電荷が 0 となり、電界が瞬間的に消失し、X 線発生が突然止まる。熱・冷電子源をターゲットに設置することにより、結晶-ターゲット間距

離の最適化により電子が電界放出されやすく、結晶-ターゲット間を十分に加速してエネルギーを得ることができることが示された。

③温度変化の周期 L を一定として、長期間にわたり温度変化を繰り返しても、放電発生の周期性が大きく変化することはなかった。これにより、温度変化の周期を最適化することにより、X 線強度の安定化が実現できることが明らかとなった。

④面電荷密度 $\sigma_z(t)$ 解析結果および種々の実験結果を基に結果をもとに、放電発生メカニズムおよび、放電発生後の X 線の強度推移を説明するモデルを考案した。また結晶に蓄積した正電荷に対し二次的に吸着、脱離する電子の存在を仮定したモデルを提案した。このモデルに立脚することにより、沿面放電の発生メカニズム、放電発生後の強度推移、および、 L の値と安定性との関係が明らかにされた。

⑤結晶の温度変化周期を最適化することにより、X 線強度の安定性は改善が可能であり、その値はおよそ 200~300 s の範囲に存在すると考えられる。また沿面放電が起こる表面電荷密度の閾値を見積もり、-z 面に供給される電子の総量、および表面電荷密度の閾値は、 L にはほとんど依存しないことが分かった。

⑥光電効果による電子供給の効果を検証するために、外部からチャンバー内の金属に別途 X 線照射を行いながら 1 個の結晶の温度を変化させた。その結果、ある特定の照射強度で X 線発生が高強度化および安定化した。一定の効果が現れたことを踏まえ、光電効果により効率的に電子を供給できると期待される装置構造を提案した。

(2) 複数個の結晶を用いた X 線発生

①結晶を 3 個以上用い、温度変化を適切に制

御した場合、X線が連続的に発生することが分かった。また、結晶数が増えると、強度のリップルが小さくなった。チャンパー材質を変えても、X線強度に大差はないが、強度のばらつきはチャンパー材質に依存し、原子番号が大きいほどばらつきは小さくなることが分かった。

②ターゲットに用いる金属の原子番号が大きくなるとX線強度ばらつきが大きくなり、再現性が悪化し、Cuターゲットが最適であることが分かった。ターゲットの頂角について検討した。制動放射の角度分布は、衝突する電子のエネルギーによって変化するため、温度変化幅によって最適な頂角の値は異なることが分かった。

③複数個のLiTaO₃単結晶を用いたX線発生法において、発生するX線の強度はチャンパーの材質よりも、ターゲットの材質と形状に大きく影響されることが分かった。④6個の結晶を用いた場合、Lの値と安定性との関係を調べた。1個の結晶の場合と同様に、Lの値が小さいとき強度が安定する傾向があることが分かった。このとき、発生したX線による光電効果による電子供給が起こっていたことが示唆された。

(3) 小型X線源の試作

図3に示すような、最大径約40mm高さ約40mmの小型X線発生装置を試作した。LiTaO₃単結晶(z-cut)を用い、ターゲットをCuとした。筐体として金属(コバール)およびガラスを用いた。



図3 高真空封入式小型X線発生装置の試作品

X線取り出し窓にはベリリウムを用いた。筐体内を高真空まで排気した後ガラスを封じきった。熱電子を供給するフィラメントを取り付けた。また、筐体内の高真空状態を維持するためにゲッタを封入した。高真空封入式小型X線発生装置の試作品は約1年以上にわたって、安定したX線強度を維持できることが明らかとなった。また、装置内に設置された熱電子供給源による電子供給量および本研究で検討された温度変化周期の最適化により、極めて安定したX線強度が得られることが確認された。また、試作品の4分の1以下の小型化が可能である。

今後の課題としてX線強度のさらなる安定化と1桁以上の向上がある。現段階では予備的な実験から結晶の形状の最適化により実現されることが示唆されている。従来、本方式の欠点が実用化の妨げとなっていたが、本研究の次の段階への移行により、実用化が進み、国際的にも極めて大きいインパクトを与えることができると考えている。応用分野として、放射線治療や歯科用レントゲン撮影用の小型X線源がある。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計5件)

①H. Honda, S. Fukao, K. Ito, Y. Guan, Y. Nakanishi, Y. Sato, Y. Ito and S. Yoshikado, “Evaluation of Compact X-ray Source Using Multiple LiTaO₃ Single Crystals”, *Key Eng. Mater.*, 査読有, Vol. 485, 2011, 295-298

② H. Honda, S. Fukao, Y. Guan, Y. Nakanishi, Y. Sato, Y. Ito and S. Yoshikado, “Continuous Emission of X-rays by Thermal Excitation of Six LiTaO₃ Single Crystals”, *IOP Conf. Ser. : Mater. Sci. Eng.*, 査読有, Vol. 18, 2011, 092034

- ③ H. Honda, Y. Nakanishi, S. Fukao, Y. Sato, Y. Ito and S. Yoshikado, “Mechanism of X-ray Generation using Pyroelectricity”, *Key Engineering Materials*. 査読有、Vol. 485、2013、245-248
- ④ F. Naruse, H. Honda, Y. Nakanishi, S. Fukao, Y. Sato, Y. Ito and S. Yoshikado, “Improvement of the Stability of X-ray Emission by Thermal Excitation of a Pyroelectric Single Crystal”, *Key Engineering Materials*. 査読有、Vol. 582、2013、174-177
- ⑤ K. Yoshii, Y. Yoneda, I. Jarrigo, T. Fukuda, Y. C. Suzuki, Y. Ito, T. Terashima, S. Yoshikado and S. Fukushima, “Electronic Structure of BaTiO₃ using X-ray Resonant Emission Spectroscopy at the Ba-L3 and Ti-K Adsorption Edges”, *Journal of Physics and Chemistry of Solids*. 査読有、Vol. 75、2014、339-343

[学会発表] (計8件)

- ① H. Honda, S. Fukao, Y. Nakanishi, Y. Sato and S. Yoshikado, Y. Ito, “Evaluation of X-ray Source using Multiple LiTaO₃ Single Crystals”, 2011 MRS FALL MEETING, 2011年11月29日、ボストン、マサチューセッツ
- ② 本田博敬、中西義一、深尾真司、佐藤祐喜、伊藤嘉昭、吉門進三、「LiTaO₃単結晶を用いた X 線発生法における X 線発生強度の安定性の評価」、第31回エレクトロセラミックス研究討論会、2011年10月28日、東京大学駒場Ⅱリサーチキャンパス生産技術研究所総合研究実験棟
- ③ 本田博敬、中西義一、深尾真司、佐藤祐喜、伊藤嘉昭、吉門進三、「高真空中で LiTaO₃単結晶を用いた X 線源の強度の安定化」、第72回応用物理学会学術講演会、2011年8月30日、山形大学小白川キャンパス
- ④ 成瀬史彦、本田博敬、中西義一、深尾真司、伊藤嘉昭、佐藤祐喜、吉門進三、「焦電性結晶の熱励起による X 線発生における強度および安定性の改善」、第32回エレクトロセラミックス研究討論会、2012年10月27日、東京工業大学大岡山キャンパス
- ⑤ 成瀬史彦、本田博敬、中西義一、深尾真司、佐藤祐喜、伊藤嘉昭、吉門進三、「LiTaO₃単結晶を6個用いた X 線発生における強度の改善」、第60回応用物理学会春季学術講演会、2013年3月26日、神奈川工科大学
- ⑥ F. Naruse, H. Honda, Y. Nakanishi, S. Fukao, Y. Ito, Y. Sato and S. Yoshikado, “Improvement of the stability of X-ray Emission by the Thermal Excitation of Pyroelectric Crystals”, 2013 IEEE-UFFC Joint Symposia, 2013年7月24日、チェコ、プラハ
- ⑦ 成瀬史彦、本田博敬、中西義一、深尾真司、伊藤嘉昭、佐藤祐喜、吉門進三、「焦電性結晶を用いた X 線発生における強度および安定性の改善」、第74回応用物理学会学術講演会、2013年9月17日、同志社大学
- ⑧ 成瀬史彦、本田博敬、中西義一、深尾真司、伊藤嘉昭、佐藤祐喜、吉門進三、「焦電性結晶の熱励起による X 線発生における X 線強度の安定性の改善」、第33回エレクトロセラミックス研究討論会、2013年10月25日、文部科学省研究交流センター

6. 研究組織

(1) 研究代表者

吉門 進三 (YOSHIKADO, Shinzo)
同志社大学・理工学部・教授
研究者番号：0015840