

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 10 日現在

機関番号：82626

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26790075

研究課題名(和文) 針葉樹型カーボンナノ構造体電子源を用いた高輝度白色X線源の開発

研究課題名(英文) Development of an X-ray source using coniferous carbon nano-structured emitter

研究代表者

加藤 英俊 (Kato, Hidetoshi)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・分析計測標準研究部門・研究員

研究者番号：60583747

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：X線源において小型化、高エネルギー化、高出力化、高輝度化、出力安定性の向上、X線の真空外への取り出し効率向上等は重要な項目であり、これらの向上によりCT装置や分析装置などの卓上化や測定時間の短縮、また新規光源としての装置開発が可能となる。本課題では、従来の金属ターゲットに対して輝度の向上が予想される透過型カーボンターゲットにより高輝度なX線が発生できることを実証した。この成果を利用することで、その場でのX線分析が従来よりも高精度で可能となり、利用範囲拡大が望める。さらに、各種工業用X線源および装置への応用が期待できる。

研究成果の概要(英文)：There are various demands for X-ray sources to be more powerful tools for inspection. For instance, miniaturization, increasing X-ray output energy and intensity, improvement of stability and efficiency are strongly required. In this work, transmitting type carbon target has been developed to meet the demands and its performance was demonstrated. Instead of using conventional metallic target, transmitting target has advantage in X-ray intensity. It is expected as a handy type X-ray analysis will become possible by applying this target and accuracy of analysis will be improved at the same time. Moreover, it is considered as this technique can be also applied to industrial applications, such as more compact X-ray CT system and precise non-destructive inspection.

研究分野：X線源開発

キーワード：X線源 白色光源 高輝度 カーボンナノ構造体電子源

1. 研究開始当初の背景

(1) 分析用 X 線源と放射光施設
 近年、X 線を用いた分析・計測のための X 線源として、放射光を利用した高輝度 X 線源が得られるようになり、その計測法はさまざまな分野に広がり、研究のみでなく企業による産業応用も積極的に試みられるようになってきた。X 線を用いた分析には X 線回折や X 線吸収分光 (XAFS) などが挙げられるが、X 線回折の適用が結晶性固体に限られるのに対し、XAFS は非晶質固体、溶液にも適用でき、新規材料開発や材料作製プロセス管理のための分析法として期待が大きい。放射光施設を利用した XAFS は、大学研究者を中心に広く行われているが、大型施設が必要である。放射光施設は光源として X 線強度が高い (短時間測定が可能)、指向性が高いなどの利点があるが、場所や利用時間の制約もあり、実験室や現場で利用できる X 線分析装置が望まれている。これらニーズに対応する X 線源として回転ターゲットを用いた X 線源が使われてきているが、回転ターゲットの上限電圧が 40 kV であり、消費電流も多く、ターゲットのクリーニング等メンテナンスが必要のため、より利便性の高い X 線源が求められている。実験室系装置における電子源は、タングステンの他にランタン等の希土類、表面の仕事関数を下げるためのバリウム等で構成されている。これら元素が装置使用に伴いターゲットや窓表面に堆積し、電子源構成元素に起因する不要な特性 X 線のピークが現れて測定に悪影響を及ぼす問題があった。

(2) 冷陰極電子源

1991 年に発見されたカーボンナノチューブは、従来電子源で使用される熱電子放出型のフィラメントに対し、微小光源、高放出電流 (電流密度大)、予熱不要 (低消費電力) 等の多くの電子源としての利点を有するが、劣化しやすい問題があり、様々な研究グループにより研究が進められているが実用段階に至っていない。近年、カーボンナノチューブの特性を有しつつ、劣化の問題を解決する針葉樹型カーボンナノ構造体が共同研究先の企業により発見された¹⁾。図 1 に針葉樹型カーボンナノ構造体を示した。先端はナノサイズの中空構造でカーボンナノチューブと同等の曲率を持ち、基板側に向かうほど太く、

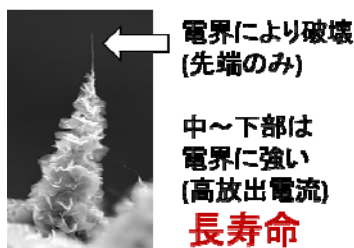


図 1 針葉樹型カーボンナノ構造体

基板との接合が強固である。そのため、クーロン力やジュール熱で壊れるとしても先端のみであり、電流電圧特性は若干変化するものの、大きく壊れることは無い。この構造に電圧を印加すると、先端に電界が集中し、電界電子放出現象により 100 mA/cm² 以上の電流密度の電子を放出出来ることを確認している。また、先行研究において長時間連続駆動試験を行い、寿命を予測した。引き出すことができる積算電流量 (寿命) は少なく見積もっても 10⁷ A・s 以上であり、10 mA の引出電流でも寿命 30 万時間以上とフィラメントと同等以上と推定された²⁾。さらに、電界電子放出と熱電子放出の違いにより、針葉樹型カーボンナノ構造体は電子放出時以外では劣化しないが、フィラメントは予熱による昇華で電子を出さなくとも劣化を伴う。したがって使用上の寿命はフィラメントを凌駕すると考えられる。当研究グループにより針葉樹型カーボンナノ構造体電子源を用い、乾電池駆動可搬型 X 線源の開発にも成功している²⁾。

(3) 先行実験

平成 21~22 年度 JST 先端計測調査研究「材料創成に資する動的その場解析のための X 線吸収測定装置」において、針葉樹型カーボンナノ構造体電子源とカーボン (軽元素) ターゲットを用いると、数百 eV 以上では特性 X 線の無い白色 X 線のスペクトルが得られることを実験的に確認している (図 2)。管電圧 70 kV、管電流 20 μA における X 線スペクトルである。

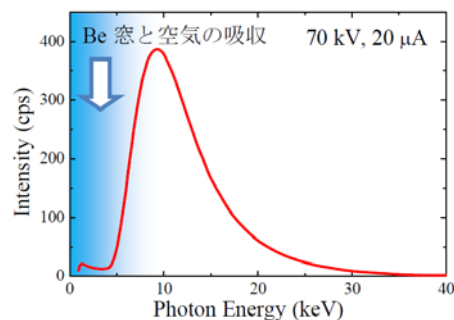


図 2 X 線エネルギースペクトル

X 線源性能として、省エネルギー、即時使用可、X 線スペクトルにコンタミネーション (不要な特性 X 線ピーク) がない白色 X 線源であるため、その場による X 線分析用新規光源として利便性が高い。しかし、出力 X 線強度が弱いという問題があるため、本研究課題では高出力化、高輝度化に取り組んだ。

2. 研究の目的

実験室や現場で利用できる分析用 X 線源を開発することを目的とし、従来の金属ターゲットに対して輝度の向上が予想される透過型のカーボンターゲットを用いることで高輝度な X 線が発生できることを実証する。

3. 研究の方法

X線発生シミュレーションにおいて、従来の金属ターゲットでは電子ビームのエネルギーに対し、輝度が50 keV程度で頭打ちになるが、透過型のカーボンターゲットでは頭打ちなく上昇するという結果が得られている(図3)。シミュレーション結果において、約100 keV以上では透過型の方が高輝度なX線が得られ、150 keVでは3倍以上となる。カーボンターゲットの場合、X線の自己吸収が少なく発生したX線が外に出やすいため、また、高エネルギー領域ではX線を前方に放射する確率が高くなるためである。さらに、電子エネルギー100 keV以上ではスペースチャージの影響は少なくなり、従来のX線源より焦点サイズを小さくでき、1桁以上輝度の高い白色X線が得られることが期待できる。本研究課題では、シミュレーション結果の検証を実験的に行った。

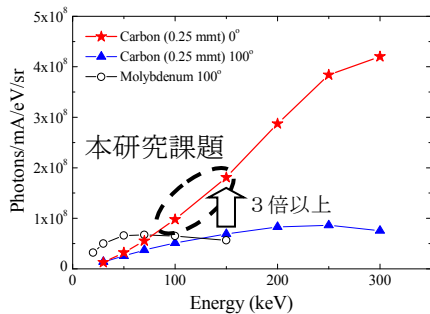


図3 連続X線発生のシミュレーション

本研究課題において、管電圧150kVのX線発生装置の設計製作を行った(図4)。電子源には冷陰極型電子源である針葉樹型カーボンナノ構造体を使用している。初期段階としては、針葉樹型カーボンナノ構造体電子源の化学気相蒸着装置による成膜技術及び長寿命化処理技術の向上を行った。また、100 kV以上の高電圧下における放電抑止構造及び均一電界を印加可能とする電子源保持部材及び電極の設計製作、ターゲットの検討と冷却システムの構築、真空装置の改良、高電圧発生回路の製作を行い、最終的に図4のX線発生装置を組み上げた。その装置を使用した白色X線の出射とエネルギースペクトルの測定を行い、シミュレーションとの比較を行った。

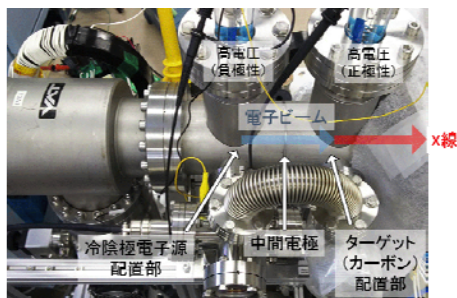


図4 本研究で製作したX線源

ここで、本装置における針葉樹型カーボンナノ構造体電子源の出力結果を示す。X線源は、陰極、中間電極、陽極の3極構造で製作し、出力電流制御を陰極-中間極間電圧で制御し、陰極-陽極間電圧で管電圧を決定することとした。製作したX線源の陰極(針葉樹型カーボンナノ構造体電子源)出力特性の測定を行った結果を図5に示す。図5における印加電圧は陰極-中間極間電圧である。針葉樹型カーボンナノ構造体電子源から1mA以上の出力が得られることを確認している。また、電流電圧特性よりF-Nプロットに変換した(図6)。電界電子放出による特徴として、F-Nプロットにおいて直線となることが分かっている。本研究における電子源のF-Nプロットは直線性を示し、針葉樹型カーボンナノ構造体からの電子放出であることを確認した。F-Nプロットの傾きより、電界増倍係数が得られる。針葉樹型カーボンナノ構造体の仕事関数をカーボンナノチューブの仕事関数と等しいと仮定して、実験結果より得られる電界増倍係数はカーボンナノチューブよりも低い1200となった。この結果は、針葉樹型カーボンナノ構造体電子源の評価試験及び加速器用電子源の評価試験の際に得られた値と同程度であり、再現性がとれた結果となった^{3,4}。

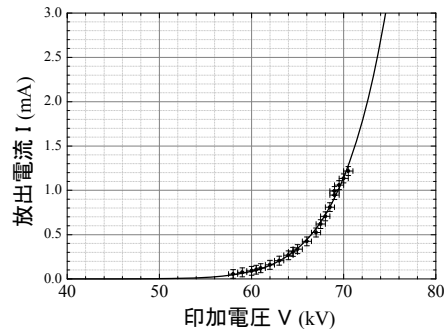


図5 電子源の電流電圧特性

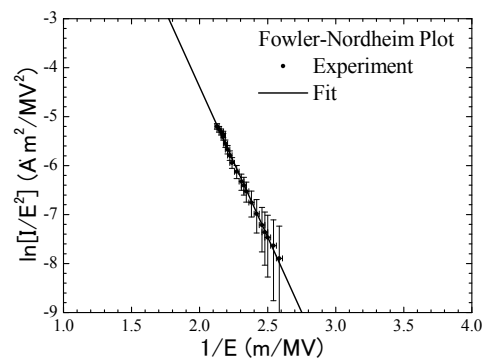


図6 電子源のF-Nプロット

また、陽極部であるターゲットには炭素板及び熱伝導性の高い導電性ダイヤモンドを使用した。また、冷却機構の導入、及び、回転ターゲット化を行い、高出力時におけるターゲットの発熱に対する対策を行った。これら

製作した X 線発生装置を用いた白色 X 線の射出、及び、エネルギースペクトルの測定を行った。測定時は、X 線を真空外へ取り出すため、X 線窓(真空窓)にはベリリウムを用い、タングステン製コリメータにより不要な散乱 X 線成分の除去を行っている。製作した X 線源から発生する X 線強度を X 線検出器(サーベイメータ、シリコンドリフト検出器、ゲルマニウム半導体検出器)を用いて測定した。

4. 研究成果

本研究結果として、シミュレーションで得られたように、管電圧上昇に伴い、白色 X 線強度(輝度)が向上することが実験的に実証した。本成果による高輝度白色 X 線源は、その場で X 線分析が従来よりも高精度でできるようになることが予想され、利用範囲拡大が望める。さらに、各種工業用 X 線源および装置への応用が期待できる。

<引用文献>

- ①R. Suzuki et al., Adv. X-Ray. Chem. Anal., Japan 41, pp. 201-206 (2010).
- ②加藤英俊, 鈴木良一, 「乾電池駆動可搬型 X 線源～非破壊検査による安全安心社会の実現に向けて～」検査技術, 18 巻, 1 号, pp. 61-63 (日本工業出版, 2013 年 1 月).
- ③H. Kato, B. E. O' Rourke, and R. Suzuki, "Electron Gun using Coniferous Carbon Nano-Structure" JJAP Conference Proceedings 2, pp. 011302-1 - 011302-8 (2014).
- ④H. Kato, B. E. O' Rourke, and R. Suzuki, "Stable and high current density electron emission using coniferous carbon nano-structured emitter" Diamond & Related Materials 55, pp. 41 - 44 (2015).

5. 主な発表論文等

[学会発表] (計 1 件)

- ①H. Kato, B. E. O' Rourke, and R. Suzuki, "New X-ray source using coniferous carbon nano-structure as the field emission electron source" 7th Advanced Materials & Nanotechnology (Rutherford Hotel, Nelson, New Zealand) 10 February 2015.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

加藤 英俊 (KATO, Hidetoshi)
産業技術総合研究所・分析計測標準研究部門・研究員
研究者番号: 60583747