大気 PIXE における 2 検出器同時測定システムを用いた定量分析 一軽元素に対する感度改善のための装置開発-

世良耕一郎1、後藤祥子2、高橋千衣子2、齋藤義弘2

¹岩手医科大学医歯薬総合研究所高エネルギー医学研究部門(サイクロトロンセンター) 020-0173 岩手県岩手郡滝沢村滝沢字留が森 348-58

> ²日本アイソトープ協会仁科記念サイクロトロンセンター 020-0173 岩手県岩手郡滝沢村滝沢字留が森 348-58

1はじめに

我々は2007年、大気 PIXE 分析システムを用いた定量分析法を確立し、報告を行った^{1,2}。定量分析 を行うためにはビームの energy loss、発生した X 線の空気による吸収、吸収体の透過曲線、減弱した 陽子エネルギーに対する X 線発生断面積などの知識が必要となる。この研究の中で、ビームの Kapton 膜と空気による energy loss 後のビームエネルギーは、Bethe の式により on target で 2.55 MeV と計算 された。また X 線発生断面積は、ECPSSR 理論³⁾ に基づき世良が作成したコード ICPER⁴⁾ により計算 された内殻電離断面積と、W. Bambynek et al.⁵⁾、J. H. Scofield et al^{6,7)}等により与えられる蛍光収 率、Coster-Kronig 係数、radiative widths などの原子パラメータを用いて各元素の K・L 副殻に対し て計算された。また吸収体は、真空 PIXE に用いその透過曲線の精度が確認されているものを用いるこ ととした。X 線の空気による吸収は、ターゲットから検出器までの距離を固定し、検出効率の中に組み 込む形で測定が行われた。検出効率曲線の測定は世良等が以前に開発した方法とコード^{8,9)}を用いて行 われた。

さらに 2010 年、大気定量分析システムを用いた生きた植物試料に対する無標準定量法が確立された ^{10,11)}。またそれを用い、重元素供給後の植物内重元素濃度変動を観察することに成功し報告を行った(7th International Symposium on Bio-PIXE, Sendai, 2011)^{12,13)}。この方法により、農業用水に含まれる砒 素など重元素の植物内動態観察が可能となった。しかし1検出器のみの使用では、軽元素と重元素を同 時に計ることはできない。測定のためにはビームによる照射が必要だが、そのダメージにより植物の照 射野における代謝が時間経過とともに変化を受けることが確認されており^{10,11)}、軽・重元素を別々に測 定するために同一部への照射を繰り返すことはできない。従って軽元素動態を重元素と同時に測定する ためには、真空システムと同様の2検出器計測システムの構築が不可欠となる。

我々は科学研究費補助金基盤(B)により、大気 PIXE における 2 台目の検出器を 2010 年度に購入 した。2011 年にそれを分析システムに組み込み定量分析法を確立する予定だったが、3.11 地震により 大幅な計画の遅れを余儀なくされた。そのため 2011 年には 1 検出器による生きた植物に対する定量法 の開発を先行して行い、2012 年に専用架台を作成、大気 2 検出器計測システムを構築した。新検出器 に対する定量分析法の確立のためには、上述の検出効率曲線取得が前提となるが、それは旧検出器と同 じ方法 1,2)を用い行うことができる。

しかし、大気 PIXE における軽元素測定には未解決の重大な問題が残されていた。吸収体無しで測定 を行う場合、空気から発生する連続 X 線収量が大きく、また低エネルギーの特性 X 線の空気による吸収 も影響を与えるため、低エネルギーになるほど感度が著しく悪くなる。そのため、実質的に塩素より軽 い元素の測定が不可能だった。Al、Si、P、S などを高感度で測定するためには、抜本的な改革が必要 とされる状況であった。

本研究においては、軽元素に対する感度向上のための検出器先端キャップの開発を試みる。またそれ を装着した旧検出器の検出効率曲線は、新検出器のそれとともに我々の方法^{8,9}により決定され、定量 分析法が確立される。さらに標準試料などを用いて定量精度の確認が行われる。

2 理論

2.1 X 線発生断面積

真空中の陽子ビームのエネルギーは 2.9 MeV であるが、on target では 7.5 µm の Kapton foil、1 cm の air path を通過することによりそのエネルギーは真空 PIXE と比して減弱する。On target でのビームエネルギーは、Bethe の式により 2.55 MeV と計算された ^{1, 2)}。上述の蛍光収率などの原子パラメータは、内殻電離による空孔発生後の事象に関するものでありビームエネルギーの影響を受けないため、電離断面積のみがビームエネルギーに依存し再計算が必要となる。各元素の K 殻、L₁~L₃ 副殻に対する電離断面積は、我々により開発された ICPER コード 4を用いて計算され、原子パラメータを用い Ka、Kβ、La、Lβラインの X 線発生断面積に変換された。Ka,β-X 線に対する X 線発生断面積は、参考文献 1 の図 1 に示されている。

2.2 検出効率

半導体検出器の検出効率を決定するパラメータは、Be窓・表面のAu電極・不感層・空乏層(有感層) の厚さと、冷却した半導体が cold trap になることによる表面の氷の層の厚さの5つである¹⁴⁾。これら のうち空乏層の厚さのみが高エネルギー側の検出効率曲線を決定し、他はいずれも低エネルギー側の曲 線を決定する。我々の所有する4台の半導体検出器(純Ge一台を含む)の検出効率曲線は、世良がC. A. Baker et al.¹⁴⁾の理論に基づき作成した計算機コード EFFと、世良の考案した測定方法^{8,9)}により 決定された。上記のパラメータの多くは仕様書に記載されているが、後述のように仕様に基づき計算さ れる検出効率は実際のそれと大きく異なることが常であるため、実測による決定が不可欠である。

大気 PIXE の旧検出器(PGT LS10138HT)の仕様は、Be 窓の厚さ = 7.5 µm、同有効面積 = 13 mm²、 空乏層の厚さ = 3.5 mm、同有効面積 = 10 mm²、半導体表面と Be 窓の距離 = 3 mm、エネルギー分解 能の保証値 = 138 eV (at 5.98 keV) である。ちなみにエネルギー分解能に関しては、ほぼ仕様と同じ実 測値が得られている。一方大気 PIXE 新検出器 (PGT LS10129) の仕様は、Be 窓の厚さ = 7.5 µm、同 有効面積 = 13 mm²、空乏層の厚さ = 3.5 mm、同有効面積 = 10 mm²、半導体表面と Be 窓の距離 = 3 mm、エネルギー分解能の保証値 = 129 eV (at 5.98 keV) であり、こちらも仕様とほぼ同様のエネルギ 一分解能を持つことが確認されている。仕様では与えられていない Au 電極と空乏層の厚さに平均的な 値を仮定すると、仕様に基づく検出効率曲線が E. Storm and H. I. Israel ¹⁵⁾ により与えられている光子 吸収断面積を用い、世良のコード⁴⁾ により計算可能である。今回ターゲット上の beam spot と検出器窓 間の距離は 10 mm に固定され、特性 X 線の空気による吸収、及び後述の先端キャップの 1.5 µm Mylar 膜による吸収はいずれも吸収端を持たない氷の層の中に組み込まれ、検出効率の中で補正を行うことと した。

3 実験

3.1 低エネルギー領域感度改善のための検出器先端キャップの設計

空気による X線の吸収を抑えるため、ターゲットー検出器先端間の距離は最小にする必要があり、さらに機器内部を真空に引く必要がある。我々は Fig.1-a のようなアクリル製先端キャップを考案し、それを旧検出器先端に取り付けることにより軽元素に対する感度向上を図ることとした。先端には 1.5 µm Mylar film を貼りつけ、側面の荒引きポートからロータリーポンプで真空を引く。検出器先端から先の細い部分は内径が1 mm であり、コリメータとしての役割も果たす。通常、2検出器による同時分析の場合、吸収体を装着した重元素測定用の検出器と比べ吸収体を用いない軽元素測定用検出器の計数率は2桁ほど高くなり、コリメータによる計数率調整が必要となる¹⁶⁾。Fig.1-bに、2検出器の配置の写真を示す。向かって左側が先端キャップを装着した旧検出器、右側が新検出器であり、中央のポートから陽子ビームが照射される。先端が45度下方に向いている旧検出器に対し新検出器のヘッドは水平であったため、専用架台を設計しヘッドが下方45度に曲がる配置とした。これにより、液体などの試料の測定も可能となる。



Fig 1. (a) Photograph of a cap attached at the tip of Detector No. 2.(b) Irradiating and measuring conditions near a target of the two-detector measuring system in in-air PIXE.

3.2 照射·測定条件

島津製作所小型サイクロトロンより引き出された 2.9 MeV の陽子ビームは、2 組の三連 Q magnet、 steering magnet などで調整され、真空散乱槽に導入される。真空散乱槽内はコリメータなど一切置かず ビームはそのままで通り抜け、その後 45 度の bending magnet により下方 45 度に偏向され、5 mm ϕ のグ ラファイトコリメータで整形された後、7.5 μ m の Kapton (Polyimid) foil を通り大気中に引き出され る。ビームの空気中での path は 10 mm、試料から発生した X 線は上記 2 台の Si (Li) 検出器により測 定される。平均的ビーム電流は 2.5 nA であった。大気・真空 PIXE システムを含むレイアウトは、参考文 献 17 の図 1 を参照されたい。大気 PIXE においてビーム電流を正確に測定することは難しいが、ビー ムの安定性は Ar-K X 線の計数率によりモニター可能である。

3.3 検出効率の測定

我々の開発した検出効率実測値の測定方法は、化合物の結晶を粉末化し、バッキング膜上に薄く塗布 しPIXE で測定を行う方法である。検出効率の最も高い 10 keV 近辺の効率を1 とし、相対検出効率を順 次求めていく^{8,9}。本法で絶対効率を求めることは困難だが、PIXE においては相対検出効率が得られれ ば(内部外部標準法・無標準法ともに)定量解析が可能となる。検出効率の低エネルギー領域には Si 不感層の K 吸収端や、Au 電極の M 吸収端などが存在し、検出効率曲線は複雑な振舞を示す。しかし従 来の標準線源を用いる方法では、低エネルギー領域の測定点が3 点ほどしか取れないため正確なパラメ ータ fitting が不可能であった。本法を用いることにより、低エネルギー領域でデータ点を多く(各元素 の特性 X 線エネルギー点毎に)取ることができる。Table1 に、今回測定に用いた化合物と標準液試料を 示す。標準液の中には、同一濃度希硝酸液・希塩酸液中標準液を同量ピペッティングし、Vortex ミキサ ーで均一化し作成されたものが8 種ある(Table1 の下方に記載)。

Chemical compounds	KMn, Al ₂ (SO ₄) ₃ , KCl, CdCl ₂ , KI, BaS, BaCl ₂ , ZnS, NiSO ₄ ,
Standard solutions	XSTC-8, XSTC-13 Al+Cu, Mg+Sr, Na+As, Na+Fe, Mg+Fe, Si+Cu, Fe+In, Cu+Zr

Table 1. Measured targets for determining detection efficiencies.

同一エネルギーに対し複数の実験値が得られた場合は、それらの平均値が用いられた。そのように各 エネルギー点に対し得られた実験値を用い、検出効率を決定する5つのパラメータの最小二乗フィッテ ィングにより⁴⁾、検出効率曲線が決定される。

4結果と議論

4.1 軽元素感度向上のための先端キャップの効果

Fig.2 に、同一の魚肉試料を大気 PIXE システム旧検出器により測定したスペクトルを示す。上方の スペクトルにおいては Ar、Ca のピーク以外は殆ど観測されていないが、これは先端キャップ無しで測 定されたものである。下方のスペクトルはキャップ付きで測定されたものであるが、キャップ無しでは 全く観測されなかった P、S のピークが明確に観測されている。これら二つのスペクトルは Ca-Kαピー ク収量で規格化されているが、感度が大幅に改善された理由は、図に見られるように連続 X 線の収量が 2 桁改善され、従って S/N 比が大幅に改善されたことによる。

Fig.3 に S/N 比改善の原理を概念的に示す。キャップ無しでは、10 mm の air path から発生する連続 X 線が全て検出される可能性があるが、キャップの使用により、試料のごく近傍の air から発生する X 線のみが検出される。さらにキャップの先端径が 3 mm のため、air path を 3 mm ほどまで近づける ことができ、空気による X 線の吸収を抑え感度を改善することができる。



Fig 2. Effect of a cap at the tip of a detector on the spectra. X-ray peaks of light elements can be clearly seen.



Fig 3. (a) Connectional graphic view of detection of continuous X-rays originating from air. All the continuous X-rays originating from 1 cm air path are detected under the condition without the cap.(b) Owing to the effect of the cap, only the small portion of the continuous X-rays is detected.

4.2 検出効率曲線の決定

上術の相対的検出効率の実測値に対し、検出効率を決定する5つのパラメータによる最小自乗 fitting が行われた。その際、パラメータの初期値は仕様書の値を用い、Be 窓の厚さは freeze された。Au 電極 と Si の不感層厚さに関しては、初期値としてそれぞれ140Å、1 µm の値が用いられた。(これらの値は ほぼ標準的な Si(Li)半導体検出器の仕様に基づくものである。)Fig.4 に大気新検出器 (Detector 1: PGT LS10129) に対する結果を示す。Fig.4-a は実験値と仕様に基づく検出効率曲線を示し、4-b には fitting により新たに決定された検出効率曲線を合わせて示す。仕様と比べ、決定された検出効率が低エネルギ 一領域で大幅に低いことの理由の一つは、air path による吸収が検出効率曲線に組み込まれているから である。



Fig.4 Detection efficiency of No. 1 Si(Li) detector.
(a) Solid line shows the efficiency curve calculated from the values in the specifications where experimental values are also shown in the figure. Error bars indicate standard deviations of the results obtained for the same energy.
(b) Solid line over the experimental values indicates the newly determined efficiency curve as a result of least squares fitting to the experimental values.

ターゲットと検出器窓の距離を常に一定に保つことは容易であり、この検出効率曲線を用いることに より X 線の air path による吸収も検出効率と同時に補正することが可能となった。一方、fitting によ り予測される不感層の厚さは 0.08 µm とかなり薄い値となり、近年の半導体検出器には不感層がほぼ存 在しないと言われる事実を裏付ける結果となった。また、高エネルギー側の検出効率は大分仕様よりも 低く、予測される空乏層の厚さは 2.63 mm と、仕様書に与えられている 3.5 mm よりも薄いことが分か る。したがって重元素に対する感度はやや悪くなる。

それぞれの K、L-X 線のエネルギーに対する検出効率は、計算機コード EFF の中で自動的に計算され、定量解析プログラム KEI 4 に使用されるデータベースの中に自動的に書き込まれる。このデータベース中には、各特性 X 線に対する X 線発生断面積、12 種の吸収体の透過率など定量計算に必要なパラメータが、5 台の検出器の検出効率とともに書き込まれている。

Fig.5 には、Fig.4 と同様に決定された大気旧検出器(Detector 2: PGT LS10138HT) に対する検出 効率曲線が示されている。この検出器に対しては以前に検出効率曲線が測定されていたが 1.2)、今回は 低エネルギーに対する感度向上のための先端キャップを装着した状態での検出効率曲線が新たに測定さ れた。先端の直径が 3 mm になったため試料に近接でき空気による吸収は減少した一方、先端の 1.5 μm 厚の Mylar 膜の吸収の分は検出効率を減少させている。しかし総合すると、以前に測定した低エネルギ 一領域の検出効率と比べ、キャップの装着により大分改善されている。 1.5 μm 厚の Mylar 膜による吸 収は、空気 1.7 mm 以下に相当するため、7 mm ほどの air path の減少から考えても感度改善は明らか である。その他の要因として、上記、連続 X 線の減少による S/N 比の大幅な上昇のため、低エネルギー 領域における分析感度が著しく改善される結果となっている。



Fig. 5 Same as Fig. 4 but for the old Si(Li) detector with a cap.

4.3 大気 2 検出器計測システムによる実試料の測定

Fig.6 に、大気 2 検出器測定システムにより測定された土壌試料のスペクトルを例として示す。試料 は腐葉土であるため、一般の土と比し Si、Al などの濃度は低い。検出器 1 (新検出器) には 300 µm Mylar film が X 線吸収体として装着され、一方検出器 2 (旧検出器) には本研究により製作された先端キャッ プが装着された状態でスペクトルが得られている。試料には、Palladium-Carbon 粉末 (パラジウム= 10000 ppm) が粉末内部標準として添加されている ¹⁸)。図に見られるように Rb、Sr、Zr などの重元素 の X 線が検出器 1 で得られたスペクトルにおいて観測され、Al、Si などの軽元素が検出器 2 のスペク トルに観測されている。また K から Zn までの元素は、両方ともに観測されている。



Fig. 6 Spectra of a soil sample containing mould obtained with the two-detector measuring system in in-air PIXE.

Fig.7 には標準試料 GBW Tibet soil を大気新検出器で測定したスペクトルと、真空 PIXE で得られた スペクトルを比較し示す。大気 PIXE システムにおいては 300 µm Mylar 吸収体が、真空 PIXE には 500 µm Mylar 吸収体が用いられているという違いがあるが、真空 PIXE において検出されている全ての元 素が、大気 PIXE スペクトルにも観測されている。



Fig. 7 Spectra of a standard sample (Tibet soil) obtained with in-air and in-vacuum PIXE.

Fig.8 には同じ Tibet soil 標準試料の低エネルギー側スペクトルを示す。Fig.中には、大気・真空それ ぞれ検出器 No.2 で吸収体無しで測定されたスペクトルが比較されている。真空 PIXE においては2 mm のグラファイトコリメータが ¹⁶)、大気 PIXE においては上述の先端キャップが用いられている。後者に おいては、空気と Mylar 膜による吸収のため Al より軽い元素のピークは観測されていないが、低エネ ルギー領域においても真空 PIXE と大気 PIXE は、ほぼ等しい情報を提供していることが確認できる。



Fig.8 Same as Fig. 7 but for light elements. The spectrum for in-air PIXE was obtained with a cap.

Fig.9 には、実際の土・灰試料中の軽元素の定量分析結果を示す。図中には、従来の真空 PIXE と本 大気 2 検出器測定システムの両方で分析された結果が比較されている。図に見られるように Al、Si を 含め全ての元素において、両者による結果は実験誤差の範囲内で一致しており、本大気 2 検出器計測シ ステムは、X 線の吸収などの不確定要因の多い軽元素においても、真空 PIXE と同等の結果を与えるこ とが確認できた。



Fig.9 Results of analyses of the light elements in practical soil and ash samples obtained with in-air and in-vacuum system.

Fig.10には同様の比較を生物試料に対して示す。図中、Fish-1はFig.2に軽元素側スペクトルを示した魚肉である。硫黄のピークは統計精度が悪く実験誤差が大きいが、全元素に対し、真空 PIXE と大気 PIXE の結果は実験誤差の範囲内で一致している。



Fig.10 Same as Fig. 8 but for two fish samples.

Fig.11 には、本大気 2 検出器測定システムによる GBW 標準試料 Tibet soil の分析結果を、保証値と 比較して示す。Ca を含めそれ以上の原子番号の元素は検出器 1 で測定を行い、Al~K までの 3 元素は 検出器 2 により測定された。Fig.から分かるように、本大気 2 検出器システムによる結果は、保証値と ほぼ一致している。



Fig.11 Results of analysis of Tibet soil sample, where the present results are shown in open circles and the certified values are indicated in closed circles.

Fig.12 には、Fig.6 にスペクトルを示した土試料中に対し、真空 PIXE システム・大気 2 検出器測定シ ステムの両者で分析を行った結果を対比して示す。Al、Si を含む軽元素から Sr などの重元素まで、本 大気 2 検出器同時測定システムによる結果は真空 PIXE と同等の精度を有していることが確認できる。



Fig.12 Results of analyses of 13 elements in practical soil sample whose spectrum is shown in Fig. 3 obtained with both in-air and in-vacuum PIXE.

5 議論

大気 PIXE において全元素同時分析のための2検出器同時測定システムを構築することは長年求めら れていたことであったが、科学研究費補助金基盤(B)において二台目の検出器を購入し、同時測定シス テムを構築することができた。しかし大気 PIXE の場合、吸収体を外して測定を行った場合でも低エネ ルギー領域における感度は著しく悪く、この問題が解決されない限り、大気2検出器同時測定システム の構築は実質的に意味のあるものとは言えなかった。本研究において、Fig.1 に示される先端キャップ の開発によりその問題はほぼ解決され、「大気2検出器同時測定システム」が実質的な意味を持つよう になった。

大気 PIXE の真空 PIXE に対する利点は、非破壊分析が可能と言う点である。しかしある程度のダメ ージはビーム照射に伴う熱の上昇により受けるため、He ガスの吹き付けによる冷却などの手法も有効 と期待される。その場合空気中の energy loss は軽減され、さらなる感度の向上が期待される。また植 物のような生きたままの試料に関しては、ビーム照射によるアポトーシスの誘導に伴うと思われる代謝 の変化が観測される^{10,11}。そのため重元素変動の測定を行った後、軽元素変動の測定を行うことには意 味がなく、元素変動の観測のためには同時に全ての元素の変化を観測する必要がある。本法の開発によ り、Al 以上の全元素動態の同時観察が可能となった。

また、本法により得られた元素濃度値は精度も十分に高いことが確認された。実試料でも Fig.9、10、 12 に示されるように、真空 PIXE と同等の精度を有することが確認され、標準試料の測定においても Fig.11 に示すように保証値を高い精度で再現することが確認された。本法はすでに、生きた農作物中の Si、P、S、Cl などの軽元素動態を、重元素と同時に観察する研究に応用されている。

6 要約

- 大気2検出器測定システムが構築され定量分析法が開発されたことにより、軽元素を含む全ての元素の定量分析を同時に行うことが可能となった。
- 2. 軽元素に対する感度向上のため、検出器に装着する「先端キャップ」が開発され、軽元素に対する 感度が2桁ほど改善された。その結果、Al以上の軽元素を、中・重元素と同時に測定することが可 能となった
- 3. 大気 2 検出器同時計測時の条件下において、両検出器に対する検出効率曲線が決定された。実験値 は化合物の結晶粉末・標準液を用いて測定され、我々の開発したコード EFF を用い最終的な検出効 率曲線が決定された。
- 4. 確立された定量分析法を用い、実試料及び標準試料が、本大気 2 検出測定システム及び真空 PIXE システムにより計測され、両方法で得られた定量値・保証値と比較することにより本法の精度・信 頼性が確認された。
- 5. 本法は、生きた植物中の軽元素と重元素の同時動態観察に有効であることが期待される。

謝辞

本研究は、科研費基盤(B)研究補助金により推進されました。また、共同利用の運営に携わる他の 岩手医科大学サイクロトロンセンター、日本アイソトープ協会仁科記念サイクロトロンセンターのスタ ッフの方々に謝意を表します。

参考文献

- K. Sera, K. Terasaki, J. Itoh, Y. Saitoh, and S. Futatsugawa, "Physical Quantitative Analysis in In-Air PIXE.", *Int'l Journal of PIXE*, Vol.<u>17</u>-1,2, 1-10 (2007)
- 2. 世良耕一郎、後藤祥子、齋藤義弘、寺崎一典、佐々木敏秋、伊藤じゅん、二ツ川章二、"大気 PIXE における物理的定量法の開発"、NMCC 共同利用研究成果報文集 第十四巻, 213-221 (2008)
- 3. W. Brandt and G. Lapicki, "Energy –Loss Effect in Inner-Shell Coulomb Ionization by Heavy Charged Particles.", *Phys. Rev.*, A23, 1717 1729 (1981)
- K. Sera and S. Futatsugawa, "Personal Computer Aided Data Handling and Analysis for PIXE.", Nucl. Instr. and Meth., B <u>109/110</u>, 99-104, (1996)
- W. Bambynek, B. Crasemann, R. W. Fink, H. U. Fleund, H. Mark, C. D. Swift, R. E. Price and P. Venugopala Rao, "X-ray fluorescence Yields, Auger, and Coster-Kronig Transition Probabilities.", *Rev. Mod. Phys.*, Vol. <u>44</u>, No. 4, 716-813 (1972)
- J. H. Scofield, "Exchange Correlations of K X-ray Emission Rates", Phys. Rev., A<u>9</u> No.3, 1041-1049 (1974)
- J. H. Scofield, "Hartree-Fock Values of L X-ray Emission Rates.", Phys. Rev. A<u>10</u> No.5, 1507-1510 (1974)
- 8. K. Sera, S. Futatsugawa, and K. Matsuda, "Determination of Physical Quantities for PIXE by Means of PIXE 2. Efficiency Curve", *Int'l Journal of PIXE*, Vol. <u>4</u>-2, 3, 181-191 (1994)
- 9. 世良耕一郎、二ツ川章二、松田和弘、畠山智、斎藤義弘、"PIXEの定量解析のための物理量の決定 方法(データハンドリング及び解析のためのコンピュータープログラム)"、NMCC 共同利用研究 成果報文集, 第二巻, 97-119 (1994)
- K. Sera, S. Goto, C. Takahashi, and Y. Saitoh, "Standard-Free Method for Living Plants in In-Air PIXE.", *Int'l Journal of PIXE*, Vol.<u>21</u>-1, 2, 13-23 (2011)
- 11. 世良耕一郎、後藤祥子、高橋千衣子、齋藤義弘、"大気 PIXE による生きた植物試料に対する無標準 定量分析法の開発", NMCC 共同利用研究成果報,第17巻, 69-80 (2011)
- 12. K. Sera, K. Terasaki, T. Sasaki, S. Goto, C. Takahashi, and Y. Saitoh, "Movement of Heavy Elements in Plants by Means of a Standard-free Method for Living Plants in In-Air PIXE.", *Int'I Journal of PIXE*, Vol.22–1-2, 149-155, (2012)
- 13. 世良耕一郎、寺崎一典、佐々木敏秋、後藤祥子、高橋千衣子、齋藤義弘、"生きた植物試料に対する 無標準定量分析法を用いた植物内元素変動の観察"、NMCC 共同利用研究成果報文集,第 18 巻, 108-116 (2012)
- 14. C. A. Baker, C. J. Batty and S. Sakamoto, "Efficiency of Si(Li) X-ray Detectors at Low Energies", *Nucl. Instr. Meth.*, A<u>259</u>, 501-505 (1987)
- E. Storm and H. I. Israel, "Photon Cross Sections from 1 keV to 100 MeV for Elements Z=1 to Z=100.", Nucl. Data Tables, A<u>7</u>, 565-681 (1970)
- K. Sera, T. Yanagisawa. H, Tsunoda, S. Futatsugawa, S. Hatakeyama, Y. Saitoh, S. Suzuki, and H. Orihara, "Bio-PIXE at the Takizawa Facility. (Bio-PIXE with a Baby Cyclotron).", *Int'I Journal of PIXE*, Vol. 2-3, 325-330 (1992)
- 17. K. Sera, T. Sasaki, J. Itoh, Y. Saitoh, and S. Futatsugawa, "Simultaneous Measurement of Two Different Targets by Means of Vacuum and In-Air PIXE.", *Int'l Journal of PIXE*, Vol.18 –1,2 1-12 (2008)
- K. Sera, and S. Futatsugawa, "Quantitative Analysis of Powdered Samples Composed of High-Z Elements.", *Int'l Journal of PIXE*, Vol.8-2,3, 185-202 (1998)

Quantitative analysis with a two-detector measuring system in in-air PIXE

K. Sera¹, S. Goto², C. Takahashi², Y. Saitoh² and K. Yamauchi³

¹Cyclotron Research Center, Iwate Medical University Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0173, Japan

²Nishina Memorial Cyclotron Center, Japan Radioisotope Association 348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0173, Japan

Abstract

A two-detector measuring system in in-air PIXE system composed of two Si(Li) detectors has been developed for simultaneous measurement from low- to high-Z elements. In order to improve detection sensitivity at the low energy region, a new device which is attached at the tip of the detector has been designed. As a result, it exhibited a miraculous effect in improving detection sensitivity at low energies and it became possible to detect K-X rays of aluminium. In order to perform quantitative analysis in in-air system, we have measured detection efficiencies for the two Si(Li) detectors including the effect of X-ray absorption in air on the basis of the method that we developed. Concerning the beam energy at the target and corresponding X-ray production cross sections, the same values as were reported in the previous paper could be used since the same conditions in the irradiating system was employed. It was confirmed that the present method allows us to quantitatively analyze all the elements heavier than aluminum and almost the same results as those obtained by in-vacuum PIXE were obtained for various kinds of samples. It is also confirmed that the present method gives accurate results from light to heavy elements in the analyses of a standard material.