

平成30年12月25日現在

機関番号：82401

研究種目：新学術領域研究(研究領域提案型)

研究期間：2013～2017

課題番号：25109007

研究課題名(和文) X線自由電子レーザーによる超高速ナノ構造解析用検出器

研究課題名(英文) Detector for ultrafast structure analysis by XFEL

研究代表者

初井 宇記(Hatsui, Takaki)

国立研究開発法人理化学研究所・放射光科学総合研究センター・チームリーダー

研究者番号：40332176

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 86,100,000円

研究成果の概要(和文)：X線自由電子レーザー(XFEL)を利用した構造解析は化学反応、生体分子の反応で重要なフェムト秒スケールの構造変化を追跡できる極めて有力な手法である。しかしながら散乱角の小さな極めて強いX線回折パターンと広角散乱部分の1光子に満たない極めて弱い散乱パターンを同時に、かつXFELの繰り返し周波数と同じフレームレートで高速に撮像する必要がある。これまでは技術的制約からこの目的に合致した検出器は存在しなかった。本計画班では新たに発明した電荷分割方式による高ダイナミックレンジ化を実現した検出器SOPHIASを開発し、この課題の解決に成功した。

研究成果の概要(英文)：Structural analysis by using X-ray Free-Electron Laser has been attracting wide range of scientific field such as ultrafast chemical reactions of materials and macromolecules of biological interest. This methods, however, demands an X-ray imaging detector that can capture simultaneously the X-ray diffraction patterns as intense as 10,000 photons/pixel at the small angle scattering regime, and wide angle scattering as weak as well below single x-ray photon per pixel levels. In addition, the detector need to run at the frame rate matching the fast repetition rate of XFEL. So far, none of the detector has met these demands. In this work, we have successfully developed a detector SOPHIAS, where newly invented charge division pixel enabled high dynamic range within a small pixel of 30 um square.

研究分野：X線科学

キーワード：検出器 検出 X線 半導体 CMOS

## 1. 研究開始当初の背景

X線と物質の相互作用のうち、放射光分野で重要なものに光電効果によるX線吸収、吸収後に引き続いて起こる蛍光X線放出、弾性散乱、コンプトン散乱がある。これらのうち、X線吸収は試料の厚みが厚くなると、弾性散乱は散乱角がおおきくなると急激に強度が弱くなる。この強度差が極めて大きな吸収、散乱パターンの測定が多くのX線実験で重要となっている。このためX線が発見されてから今日に至るまで、如何にして強いX線と弱いX線を同時に測定するか、ということが実験技術として極めて重要なテーマであった。2000年代のトピックの一つが、この要請に対応した広いダイナミック・レンジ（高ピーク信号[1]）を有する光子計数型検出器が開発され、放射光分野で多くの成果を上げた[2]。

近年ではX線自由電子レーザー（XFEL）により極めて強いX線をフェムト秒スケールで発生させることができるようになり、日本では理化学研究所がSACLAを建設し2012年から共用を行っている。XFELでは、フェムト秒という短い時間内に多数の光子が同時に到来する。X線検出では量子効率を向上させるため厚膜（ $\sim 300\ \mu\text{m}$ ）のフォトダイオードを利用することが多いが、厚み方向に信号電荷が移動するだけでも1-10ナノ秒程度時間がかかるので、X線を数える計数方式は適用不可能となる。したがって信号電荷の合計を計測する積分型画像検出器の開発が世界的に活発に行われている[2]。

筆者らのチームは、2007年からSACLA施設の高性能画像検出器としてMulti-port CCD [3]を開発してきた。Multi-port CCDは、米国のLCLSで用いられているハイブリッド検出器CSPAD [4]に比べて広ダイナミック・レンジ、低いノイズ、小さな画素等、多くの飛躍的な性能向上をもたらした。

た。SACLAでは現時点で29の検出器システムが整備をおこない共用課題の約7割で利用されている[5]。最近では、韓国のXFEL施設PAL-XFELでも活用され始めている[6]。

## 2. 研究の目的

2007年頃の議論では、1画素あたり1万光子程度のピーク信号を実現することがXFEL分野における暫定的なターゲットとして認識されていた。シリコンセンサを用いた場合、X線光子エネルギー6 keVで16.4 MeVに相当する。我々は、画素あたり1万光子、あるいはそれ以上のピーク信号を小さな画素で実現することはCCD技術の延長には不可能と考え、新しい技術を2007年から並行して検討してきた。我々が注目したのは1光子当たりの電荷量である。6 keV光子の場合、1.6 keVの信号電荷が発生する。微弱信号領域で1光子を確実に検出する観点では1光子当たりの電荷が大きく有利であるが、1万光子検出時には信号電荷は多すぎる。したがって、1光子それぞれから発生する電荷を一定の割合で削減することが望ましい。そこで、電荷を常に一定の割合で分割できる画素構造を実現できないか考えた。シリコン中で信号電荷が深さ方向に移動する際に、熱拡散によってセンサ面内に $10\ \mu\text{m}$ 以上に広がる。この広がり、複数の画素に信号電荷が分割されてしまうので空間分解能が劣化する（charge sharing）。しかしながら電荷分割という観点からみると、信号電荷の広がりよりも十分小さな電荷収集微細構造を構築すれば電荷分割できることを意味しており、大変興味深い。そこで2007年12月、Silicon-on-insulator技術を活用した放射線検出器SOIPIXの開発を進めておられた高エネ研新井教授に共同研究者の工藤統吾とともに訪問し、その可能性について議論を行った。

その結果半導体微細加工技術をインテグレーションした SOIPIX では実現できる可能性があるとの結論に至った。そこでその後 SOIPIX コラボレーションに加わり、SOIPIX の基盤技術のうち特に放射光等の X 線用途で必要となる、つなぎ合わせ露光による大面積センサ製造方法、厚い空乏層を実現するための floating zone ウェハの導入と歩留まり改善、トランジスタの放射線損傷解析に取り組んできた。

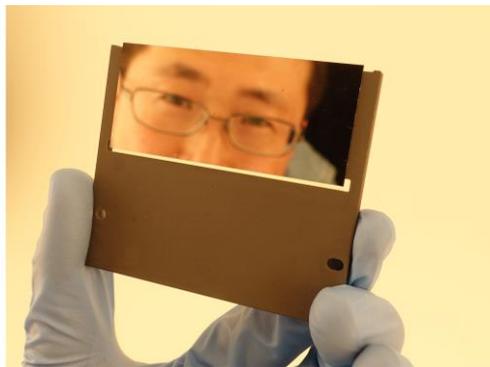


Fig. 1 SOPHIAS センサの外観。モノリシックセンサとして世界最大

### 3. 研究の方法

センサ裏面から入射した X 線光子は光電変換され信号電荷を生成する[7]。信号電荷は電界によって移動し、電荷収集される。電荷収集のための構造化イオン注入領域 (patterned implant) で信号電荷は電流に変換され、CMOS 回路で電圧信号として処理される。構造化イオン注入領域の構造は(b)に、CMOS 回路との接続も含めて示した。薄青で示した円状の領域 4 か所は Low gain の CMOS 回路へ 10 % の信号電荷が、それ以外の領域から High gain の CMOS 回路へ電荷 90 % が伝送される。この構造により、小信号領域ではほぼすべての電荷を用いて高い S/N 比を実現し、大信号時にはデータの精度の悪化を招くことなく高いピーク信号の計測が可能となる。

我々が考案したこの電荷分割方式は電力の消費を伴わず、極めて電力効率が良い。電荷積分アンプを 3 つ備えた伝統的な方式の検出器では 3 mW/pixel を消費している例 [8] もあるのに対し、SOPHIAS では 0.2  $\mu$ W/pixel 以下の消費電力に抑制することができている。

実際に電荷分割方式の画素を実装したセンサの外観を Fig. 1 に示す。また性能を Table 1 にまとめた。SOPHIAS は世界で初めて 1 万光子/pixel のピーク信号を実現した検出器を実現することに成功した。

他の検出器のピーク信号性能を比較する場合、画素面積当たりのピーク信号を Figure of Merit (FoM) として比較することが妥当である。この指標では SOPHIAS は 12 photons/ $1\mu\text{m}^2$ @6 keV となる。現在注目されているスイスの Paul Scherrer Institut (PSI) が開発している Jungfrau 検出器は 3.7 photons/ $1\mu\text{m}^2$ @6 keV であり [9]、SOPHIAS の方が依然として 3 倍以上性能が良い、ということが言える。

### 4. 研究成果

SOPHIAS は現在、SACLA だけでなく SPring-8, Photon Factory のビームラインにおける放射光利用、群馬大学での粒子線治療への応用、大阪大学での非破壊検査応用などの利用も開始されており、今後の利用の拡大が見込まれている。

## 1. Reference

- [1] X 線分野ではダイナミック・レンジとは検出可能な最大光子数を指す場合が多い。他の分野、特にイメージセンサでは計測可能な最大信号量とノイズの比であるので注意が必要である。本稿では混同を避けるため検出可能な最大信号量をピーク信号と定義し以下用いる。
- [2] 最近の研究開発動向は、筆者らの下記の総説にまとめている。T. Hatsui, and Heinz Graafsma, IUCrJ, 2015, Vol. 2(3), p. 371-383.

- [3] T. Kameshima, S. Ono, et.al, Rev. of Sci. Instr., Vol. 85, (2014) Art. Num. [033110](#).
- [4] S. Herrmann, et.al., Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. Sec. A Vol. 718 (2013) [550-553](#).
- [5] SACLA の成果については次を参照されたい。  
<http://xfel.riken.jp/research/index.html>
- [6] Heung-Sik Kang et.al., Nature Photonics 11 (2017) [708-713](#).
- [7] T. Hatsui, et.al., Proc. of Int. Image Sensor Workshop, (2013) Art. Num. [3.05](#).
- [8] A. Koch et.al., Journal of Instrumentation, Vol. 8 (2013) C11001.
- [9] S. Redford et.al., Journal of Instruments, 11 (2016) [C11013](#).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 5 件)

1. “Analysis of Effective Gate Length Modulation by X-ray Irradiation for Fully-Depleted SOI p-MOSFETs”, I. Kurachi, K. Kobayashi, M. Okihara, H. Kasai, T. Hatsui, K. Hara, T. Miyoshi, and Y. Arai, IEEE Transaction on Electron Devices, *in press*. (査読あり)
2. ©"Improving charge-collection efficiency of SOI pixel sensors for X-ray astronomy", H Matsumura, TG Tsuru, T Tanaka, A Takeda, Y Arai, K Mori, Y Nishioka, R Takenaka, T Kohmura, S Nakashima, T. Hatsui, Y Kohmura, D Takei, T. Kameshima, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 794 (2015)

255-259. (査読あり)

3. "Data acquisition system for X-ray free-electron laser experiments at SACLA", Y. Joti, T. Kameshima, M. Yamaga, T. Sugimoto, K. Okada, T. Abe, Y. Furukawa, T. Ohata, R. Tanaka, T. Hatsui, M. Yabashi, J. of Synchrotron Radiation, 22 (2015) 571-576. (査読あり)
4. “Development of Experimental Methodology for Highly Efficient Wafer-Level Evaluation of X-Ray Radiation Effects on Semiconductor Devices”, Togo Kudo, Kazuo Kobayashi, Shun Ono, Takeo Watanabe, Hiroo Kinoshita, Masao Okihara, and T. Hatsui, IEEE Trans. Nuclear Science, Vol.61, Issue 3, 10.1109/TNS.2014.2321766 (2014) (査読あり)
5. “X-ray imaging detectors for synchrotron and XFEL sources“, T. Hatsui\*, and Heinz Graafsma\* IUCrJ, 2015, Vol. 2(3), p. 371-383. 学術雑誌(査読あり) invited review

[学会発表] (計 25 件)

【学会発表(国内)】

1. “放射光 X 線による物質構造解析のための二次元 SOI ピクセル検出器の評価”, 橋本亮, 岸本俊二, 熊井玲児, 五十嵐教之, 新井康夫, 三好敏喜, 初井宇記, 工藤統吾, 第 28 回日本放射光学会年会、2015. 1. 11、立命館大学
2. “シリコン X 線 2 次元検出器の課題と解決策”, 初井宇記, 小野峻、魚島敬、工藤統吾、尾崎恭介、小林和生、桐原陽一、遠茂谷誠彦、矢橋牧名, 第 27 回日本放射光学会年会、2015. 1. 12、広島市

Table 1 Performance of SOPHIAS sensor

| Parameters |                            | Value                        | Units               |
|------------|----------------------------|------------------------------|---------------------|
| Sensor     | Pixel Size                 | 30                           | μm                  |
|            | Pixel Number               | 1.9 M (891 (V.) x 2157 (H.)) | N/A                 |
|            | Noise <sup>1,2</sup>       | 0.12                         | phs. at 6 keV X-ray |
|            | Peak Signal <sup>1,2</sup> | 12000                        | phs. at 6 keV X-ray |
|            | Frame Rate                 | 60                           | Hz                  |

1) Results obtained for a sensor. 2) Peak signal is defined as maximum signal satisfying linearity of 3 %.

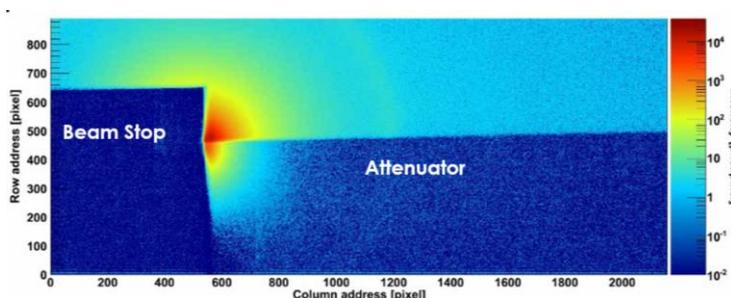


Fig. 2 SACLA で実際に散乱パターンを SOPHIAS で測定した結果 (画像はログスケールで表示)。

【招待講演発表(国際)】

1. T. Hatsui, "X-ray Imaging Detector for SACLA", PSD11 (11<sup>th</sup> International Conference on Position Sensitive Detectors, Milton Keynes, UK, September 7, 2017).
2. T. Hatsui, "Advanced Pixel Architecture with Charge Division Capability for Ultrafast X-ray Imaging", High-Energy and Ultrafast X-ray Imaging Technologies and Applications, Santa Fe, USA, August 2-3, 2016.
3. T. Hatsui, "SOPHIAS for the X-ray Free-Electron Laser Experiments", 10<sup>th</sup> International Meeting on Front-End Electronics, Krakow, Poland, June. 2<sup>nd</sup>, 2016.
4. T. Hatsui, "Requisites of X-ray Imaging Detectors for X-ray Free-Electron Lasers and future Synchrotron Radiation Sources", International Conference on X-ray Optics, detectors, sources, and their applications 2016 (XOPT2016), Yokohama, Japan, May 19<sup>th</sup>, 2016.
5. T. Hatsui, "An X-ray Imaging Detector for SPring-8-II", Fifth Diffraction Limited Storage Ring (DLSR) Workshop, Hamburg, Germany, March 11<sup>th</sup>, 2016.
6. T. Hatsui, "X-ray Imaging Detectors: Current state-of-art and future outlook", 9th Asia-Oceania Forum for Synchrotron Radiation Research (AOFSSR 2015), Melbourne, Australia, Nov. 25-27, 2015
7. T. Hatsui, " Detector Development Strategy at the SPring-8" (Three-way Meeting, RIKEN SPring-8 Center, Japan, Feb. 27th, 2015).
8. T. Hatsui, " X-ray Imaging Detectors at SACLA: Current Status and Future Perspectives", (6th Ringberg Meeting on Science with FELs, Schloss Ringberg, Germany, Feb. 22nd, 2015)
9. Nobukazu Teranishi, and T. Hatsui, "X-ray image sensors for SACLA and future Ultimate Storage Ring Light Sources", Workshop on Active CMOS Pixel Sensors for Particle Tracking (CPIX14) (Bonn, Germany, Sept. 15<sup>th</sup>-17th, 2014).
10. T. Hatsui "Direct-detection Monolithic Active Sensors for X-ray Free-Electron Lasers and ultimate storage ring light sources", (Position Sensitive Detectors PSD10 Surrey, UK, Sept. 7<sup>th</sup>-10<sup>th</sup>, 2014)
11. T. Hatsui (*invited review*), "Developments of Detectors for XFEL experiments", Workshop on Crystallography at XFEL Sources, (IUCr Congress, Montreal, Canada, August 5<sup>th</sup>, 2014)
12. T. Hatsui "Direct-detection Monolithic sensors for X-ray Free-Electron Lasers and ultimate storage ring light sources", (International Workshop on Radiation Imaging Detectors iWoRID 2014, Trieste Italy, June 26<sup>th</sup>, 2014)
13. T. Hatsui "SOPHIAS for the X-ray Free-Electron Laser Experiments: Lessons and Outlook of SOI Pixel Process", (Front-end Electronics 2014, Argonne Illinois, USA, May 20<sup>th</sup>, 2014)
14. T. Hatsui, "SOI Pixel Process: Lessons Learned from the Development of SOPHIAS, a Sensor for X-ray Free-Electron Laser Experiments", Research Techniques Seminar, (Fermil National Accelerator laboratory, Batavia, Illinois, USA, August 1<sup>st</sup>, 2013)
15. T. Hatsui, "SOI Pixel Development at SPring-8", Three-way meeting, (Argonne National Laboratory, Argonne, Illinois, USA, July 30<sup>th</sup>, 2013)
16. T. Hatsui, "SPring-8 Overview: From SACLA detector developments to SPring-8 Upgrades", Three-way meeting, (Argonne National Laboratory, Argonne, Illinois, USA, July 30<sup>th</sup>, 2013).
17. T. Hatsui, "X-ray 2D detectors for SACLA: Current Status and Future Perspective", The 12<sup>th</sup> Symposium on X-ray Imaging Optics (Osaka, Nov. 18<sup>th</sup>, 2013).
18. T. Hatsui, "Developments of X-ray 2D Detectors for SACLA", The 21th Anniversary International Workshop on Vertex Detectors (VERTEX 2012), (Jeju, Korea, 2012.9.21).
19. T. Hatsui, "Detector Developments for SACLA", International Workshop on Semiconductor Pixel Detectors for Particles and Imaging (PIXEL2012), (Inawashiro, Japan, 2012.9.4).
20. T.Hatsui, "SACLA Operation Status", 17th Sagamore Conference (Kitayuzawa, Japan, 2012.7.19)
21. T. Hatsui, "Silicon-On-Insulator PHoton Imaging Array Sensor (SOPHIAS) for X-ray Free-Electron Laser", SRI satellite workshop on X-ray Detectors for Synchrotron Applications, (Zurich, Switzerland, 2012, 7.6).
22. T. Hatsui, "Detector and Data Acquisition System for SACLA", Coherence 2012 Workshop, (Fukuoka, Japan, 2012.6.21).

【招待講演発表(国内)】

1. 工藤統吾、小林和生、小野峻、寺西信一、渡邊健夫、木下博雄、沖原将生、初井宇記, "半導体デバイスのX線照射耐性に関する迅速評価方法の開発", (応用物理学会シリコンテクノロジー研究会, 東京, 3/3 2014).

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 2 件)

名称：放射線イメージング装置用光学素子、放射線イメージング装置及びX線イメージング装置

発明者：亀島 敬

権利者：理化学研究所

種類：特許

番号：特許願 2017-141073 号

出願年：平成 29 年

国内外の別：国内

名称：電流導入端子並びにそれを備えた圧力保持装置及びX線撮像装置

発明者：松田 祐二，亀島 敬，菅田 修身，東末 敏明

権利者：理化学研究所

種類：特許

番号：特許願 2017-197477 号

出願年：平成 29 年

国内外の別：国内

○取得状況（計 2 件）

名称：放射線検出素子、放射線検出装置および放射線検出素子の製造方法

発明者：亀島 敬

権利者：理化学研究所

種類：特許

番号：特許第 6179925 号(特許願 2014-172299)

出願年：平成 26 年

登録年：平成 29 年

国内外の別：国内

名称：RADIATION DETECTING ELEMENT, RADIATION DETECTING APPARATUS AND MANUFACTURING METHOD OF RADIATION DETECTING ELEMENT

発明者：Takashi Kameshima

権利者：RIKEN

種類：特許

番号：US 9, 678, 221 B2

登録年：平成 29 年

国内外の別：国外

〔その他〕

ホームページ等

<https://soipix.jp/c02.html>

〔受賞〕

高エネルギー加速器科学奨励会小柴賞、「SOI 技術を用いた広ダイナミック・レンジ X 線イメージセンサーの開発」、初井宇記。2018 年 2 月 23 日科学新聞

【査読なしの報文】

Sec. II-3 “Detector System” in SPring-8-II Conceptual Design Report, T. Hatsui as a contributing author, and responsible for the above

section. RIKEN SPring-8-Center

<http://rsc.riken.jp/pdf/SPring-8-II.pdf>

【国際会議開催にかかわる委員(主要(初井))】

1. Organizer, International Forum on Detectors for Photon Science (IFDEPS) 2018, March. 11-14, 2018, Annecy, France.
2. Organizer, International Forum on Detectors for Photon Science (IFDEPS), Feb. 28-March 2, 2016, Lake Kawaguchi, Japan (会議主催者 3 名のうちの一人)
3. Co-chair of the microsposium MS-44 “New Detectors Enabling New Science” of the IUCr Congress 2014, Aug. 8<sup>th</sup>, 2014
4. Topic co-convenor of the session “Synchrotron Radiation and FEL Instrumentation” in IEEE Nuclear Science Symposium Oct. 27-Nov. 2, 2013, Korea.

【主要委員会委員等(初井)】

1. Member, International Union of Crystallography (IUCr): Commission on Synchrotron and XFEL Radiation 2017.9.1-present
2. Consultant, International Union of Crystallography (IUCr): Commission on Synchrotron Radiation 2012-2017

6. 研究組織

(1) 研究代表者

初井 宇記 (Hatsui, Takaki) 国立研究開発法人理化学研究所・放射光科学総合研究センター・チームリーダー 研究者番号：40332176

(2) 研究分担者

阿部 利徳 (Abe, Toshinori) 公益財団法人高輝度光科学研究センター・光源基盤部門・研究員 研究者番号：10570187

寺西 信一 (Teranishi, Nobukazu) 公立大学法人兵庫県立大学・付置研究所・特任教授 研究者番号：20738893 (平成 26-29 年度)

工藤 統吾 (Kudo, Togo) 公益財団法人高輝度光科学研究センター・情報処理推進室・副主幹研究員 研究者番号：40372148

(3) 連携研究者

亀島 敬 (Kameshima, Takashi) 公益財団法人高輝度光科学研究センター・XFEL 推進室・研究員 研究者番号：50558046