

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 6月14日現在

機関番号：84502

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22550027

研究課題名（和文） 高速2次元ピクセル検出器による時間・空間分解 XAFS 法の開発

研究課題名（英文） Development of time- and spatial resolved XAFS with fast 2-dimensional pixel detector

研究代表者

豊川 秀訓（TOYOKAWA HIDENORI）

公益財団法人高輝度光科学研究センター・制御・情報部門・主幹研究員

研究者番号：60344397

研究成果の概要（和文）：高速・高空間分解能2次元型X線検出器を開発し、放射光実験でのX線吸収微細構造（XAFS）測定に応用した。ピクセルサイズは $75\mu\text{m}\times 75\mu\text{m}$ 、ピクセル数は 512×1024 ピクセルである。また、ダブルバッファリングにより24kHzでの高速連続露光測定を達成した。これは時間分解能として40マイクロ秒に相当する。本検出器を用いて標準試料による蛍光XAFSスペクトルを取得し、イオンチェンバーによる透過法の結果を高精度で再現することを実証した。

研究成果の概要（英文）：We have developed a fast frame rate and high spatial resolution 2-dimensional X-ray detector and applied it to XAFS measurement in synchrotron radiation experiments. The detector was fabricated with a pixel size of $75\mu\text{m}\times 75\mu\text{m}$ and a matrix of 512×1024 . The fast frame rate exposure could be achieved at 24 kHz with a double buffering readout. It corresponds to 40 μsec time resolution. We demonstrated measurement of fluorescent XAFS spectrum with standard samples. The results agreed very well with spectrum by the transmission method with the ionization chamber.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,400,000	420,000	1,820,000
2011年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2012年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：化学反応

1. 研究開始当初の背景

機能性物質・材料の化学反応の解明には、

反応時における様々な時系列反応現象を解析するために、マイクロ秒オーダー～ミリ秒

の時間分解能での反応追跡が必要であるが、時間分解クイック XAFS 法は、最も強力で有効な手法の一つである。物質の構成元素に対し選択的に局所構造・化学状態の時間変化を直接的に調べることができる点、物質の物理的状態（固体・液体・気体、結晶・非結晶）によらず適用できる点、希薄・微量・薄膜物質に対して高感度である点などの優れた特徴を持つためである。

本研究代表者は、放射光分野における X 線光子計数型ピクセル検出器開発及びその応用の先駆けとなる研究を展開してきた。この検出器は、各ピクセルに独立した電荷有感型アンプ、波形整形アンプ、コンパレーター、20 ビットカウンターを搭載しており、高感度、高計数率、広ダイナミックレンジ、高フレーム率を兼ね備えた、従来のイメージングプレートや CCD を応用した検出器では得られない性能を有する。

SPring-8 では、この PILATUS の優位性に着目し、蛍光 XAFS 検出器としても極めて有効であるという着想に至り、深さ分解 XAFS 法を世界で初めて実用化させることに成功した。現状の読み出し時間（3 ミリ秒）をマイクロ秒オーダーに高速化することができれば、クイック XAFS 法への応用も可能となり、従来困難であった種々の反応ダイナミクスに対する構造学的な解明へ向けての新展開が期待される。

2. 研究の目的

本研究は、一過性反応のダイナミクス解明を目指した超高速クイック蛍光 XAFS 法を展望し、マイクロ秒オーダー間隔での連続計測が可能な高速 2 次元ピクセル検出器の開発を行うことである。具体的には、スイスのパウル・シューラー研究所 (PSI) との研究協力により、現在深さ分解 XAFS 法に用いている検出器のピクセルサイズを $172\mu\text{m}$ から $75\mu\text{m}$ へ、最速フレーム率を 300fps から 24,000fps へと高性能化した次世代機を開発し、大型放射光施設 SPring-8 を用い、クイック XAFS 検出器としての評価実験を行う。

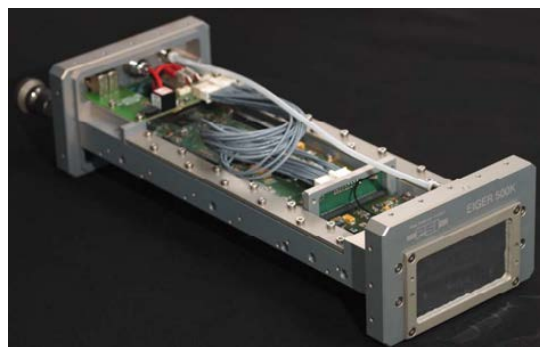
3. 研究の方法

基礎となる検出器技術はハイブリッド型ピクセル検出器で、微細電極化された半導体ピクセルセンサーと読み出し集積回路を金属バンプで接合して形成する。センサー部には、 $320\mu\text{m}$ 厚の高抵抗 n 型シリコン単結晶の全空乏層型シリコンウエハーを用い、光リソグラフィ技術により基盤の目状に陰極電極を $75\mu\text{m}$ 間隔でアレイ化する。読み出し集積回路は 0.25 ミクロン CMOS 半導体製造プロセスによりデザイン・製作されており、各ピクセルに独立した電荷有感型アンプ、波形整形アンプ、コンパレーター、カウンター

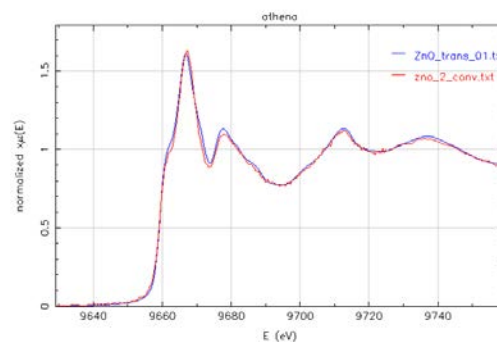
を搭載する。ピクセル当たりのビット数は 12 ビットとし、4 ビットを単位として蓄積と読み出しを同時処理できるように設計し、デッドタイムレスで連続測定できるようにする。

4. 研究成果

下の図は、本研究で開発した高速・高空間分解能 2 次元型 X 線検出器の写真である。ピクセルサイズは $75\mu\text{m} \times 75\mu\text{m}$ 、ピクセル数は 512×1024 ピクセルである。また、ダブルバッファリングにより 24kHz での高速連続露光測定を達成した。これは時間分解能として 40 マイクロ秒に相当する。



下の図は、大型放射光施設 SPring-8 の XAFS ビームライン BL14B2 で測定した酸化亜鉛ペレットを用いて測定した亜鉛 K 吸収端の XANES スペクトルで、青線はイオンチャンバーを用いた透過法の結果、赤線は本 2 次元検出器を用いて取得した蛍光 XAFS 法の結果である。両データは高精度で一致しており、本 2 次元検出器が XAFS 検出器として十分な性能を有することを示している。また、深さ分解 XAFS 検出器としての性能評価では、2nm 以下の分解能を達成するなど、本研究の目標性能を達成できていることを実証した。本課題の成果を受け、今後、大型放射光施設 SPring-8 の XAFS ビームラインに於いて一般ユーザーに本分析技術を提供する予定である。また、超高速 X 線回折測定や X 線発光分光とその磁気円二色性研究などへの展開を計画しており、次世代放射光実験を推進する分析装置となることが期待される。



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 Hidenori Toyokawa, Toko Hirono, Shukui Wu, Morihiro Kawase, Yukito Furukawa, Toru Ohata, CdTe pixel detector development at SPring-8, Journal of Physics: Conference Series, 査読有, 425, 2013, 62014, DOI: 10.1088/1742-6596/425/6/062014
- ② H. Toyokawa, T. Hirono, S. Wu, M. Kawase, Y. Furukawa, T. Ohata, Study of a CdTe pixel sensor for synchrotron radiation experiments, KEK proceedings, 査読有, 2012-8, 2012, 59-65, http://www-lib.kek.jp/cgi-bin/kiss_preprint.v8?KN=201225008&OF=8.
- ③ Hidenori toyokawa, Toko Hirono, Testuo Honma, Kentaro Kajiwara, Morihiro Kawase, Masugu Sato, KEK proceedings, 査読有, 2011-9, 2011, 212-217, http://www-lib.kek.jp/cgi-bin/kiss_preprint.v8?KN=201125008&OF=8.
- ④ H. Toyokawa, K. Kajiwara, M. Sato, M. Kawase, T. Honma, M. Takagaki, Energy-resolved X-ray imaging method with a counting-type pixel detector, Nucl. Instr. and Meth. A, 査読有, 650, 11, 2011, 84-87, DOI: 10.1016/j.nima.2010.12.119
- ⑤ 豊川秀訓, SPring-8における計数型1次元・2次元検出器の開発とその応用、X線分析の進歩、査読有、第42集、2011、95-110

[学会発表] (計19件)

- ① 豊川秀訓、広野等子、本間徹生、高垣昌史、Henrich Beat、Johnson Jan、Dinapoli Roberto、高速・高空間分解能2次元X線検出器によるXAFS法の技術開発、第60回応用物理学学会春季学術講演会、2013年3月27日～30日、神奈川工業大学
- ② 豊川秀訓、広野等子、呉樹奎、川瀬守弘、古川行人、大端通、1次元型及び2次元型CdTe検出器開発の現状、第26回日本放射光学学会年会、2013年1月12日～14日、名古屋大学
- ③ 豊川秀訓、呉樹奎、広野等子、川瀬守弘、古川行人、大端通、池田博一、佐藤悟朗、渡辺伸、高橋忠幸、複数ASIC実装CdTeピクセル検出器の開発、第73回応用物理学学会学術講演会、2012年9月11日～14日、愛媛大学・松山大学
- ④ Hidenori Toyokawa, Toko Hirono, Shukui

Wu, Morihiro Kawase, Yukito Furukawa, Toru Ohata, CdTe pixel detector development at SPring-8, The 11th international conference on synchrotron radiation instrumentation, 2012年7月9日～13日、Centre de congrès graves de Lyon, フランス

- ⑤ Hidenori Toyokawa, CdTe pixel and strip detector development at SPring-8, X-ray detectors for synchrotron applications, SRI2012 satellite workshop, 2012年7月5日～7日、ETH Zurich、スイス
- ⑥ 豊川秀訓、呉樹奎、広野等子、川瀬守弘、古川行人、大端通、池田博一、佐藤悟朗、渡辺伸、高橋忠幸、電子収集・ショットキー型CdTe2次元検出器の開発と性能評価、第59回応用物理学学会春季学術講演会、2012年3月15日～18日、早稲田大学
- ⑦ 豊川秀訓、広野等子、呉樹奎、川瀬守弘、古川行人、大端通、池田博一、佐藤悟朗、渡辺伸、高橋忠幸、放射光実験用CdTeピクセルセンサーの開発と性能評価、研究会「放射線検出器とその応用」(第26回)、2012年1月24日～26日、高エネルギー加速器研究機構
- ⑧ 豊川秀訓、川瀬守弘、広野等子、古川行人、大端通、梶原堅太郎、佐藤眞直、高垣昌史、本間徹生、ピクセル検出器閾値スキャン法によるX線エネルギー精密測定法の開発、第72回応用物理学学会学術講演会、2011年8月31日～9月2日、山形大学
- ⑨ 豊川秀訓、呉樹奎、広野等子、川瀬守弘、古川行人、大端通、池田博一、佐藤悟朗、渡辺伸、高橋忠幸、光子計数型X線画像検出器としてのCdTeピクセルセンサーの評価、第72回応用物理学学会学術講演会、2011年8月31日～9月2日、山形大学
- ⑩ Hidenori Toyokawa, Toko Hirono, Morihiro Kawase, Shukui Wu, Yukito Furukawa, Toru Ohata, Hirokazu Ikeda, Goro Sato, Shin Watanabe, Tadayuki Takahashi, International workshop on radiation imaging detectors 2011, 2011年7月3日～7日、ETH Zurich, スイス
- ⑪ 豊川秀訓、川瀬守弘、広野等子、古川行人、大端通、梶原堅太郎、佐藤眞直、本間徹生、計数積算型ピクセル検出器を用いた精密エネルギー測定、研究会「放射線検出器とその応用」(第25回)、2011年2月1日～3日、高エネルギー加速器研究機構
- ⑫ 豊川秀訓、PILATUS検出器の現状と新世代検出器の開発状況、第25回日本放射光学学会企画講演「次世代放射光に向けた装置開発と利用研究～放射光実験用検出器と超高速現象の研究～」、2011年1月7日～10日、つくば国際会議場
- ⑬ Hidenori Toyokawa, Toko Hirono,

Morihito Kawase, Yukito Furukawa, Toru Ohata, Masugu Sato, Tetsuo Honma, Development of counting-type CdTe pixel detector for high energy X-ray application at SPring-8, The 17th International Workshop on Room-Temperature Semiconductor X-ray and Gamma-ray Detectors 2010年10月30日～11月6日、Knoxville Convention Center, 米国

- ⑭ Hidenori Toyokawa, Kentaro Kajiwara, Masugu Sato, Morihito Kawase, Tetsuo Honma, Development of color Laue method using the counting-type pixel detector PILATUS, The 2011 IEEE Nuclear Science Symposium, Medical Imaging Conference, 2010年10月30日～11月6日、Knoxville Convention Center, 米国
- ⑮ 豊川秀訓、SPring-8における計数型1次元・2次元検出器の開発とその応用、第46回X線分析討論会、2010年10月22日～23日、広島県情報プラザ
- ⑯ 豊川秀訓、PILATUS 検出器及び次世代型2次元検出器開発、第162回X線材料強度部門委員会、2010年10月1日、大型放射光施設 SPring-8 内萌光館
- ⑰ 豊川秀訓、広野等子、古川行人、大端通、佐藤真直、本間徹生、高垣昌史、高エネルギー放射光実験用 CdTe ピクセル検出器の開発Ⅲ、第71回応用物理学会学術講演会、2010年9月14日～17日、長崎大学
- ⑱ 豊川秀訓、放射光実験での2次元X線検出器の現状と展望、第71回応用物理学会学術講演会シンポジウム「放射光を用いた医学生物学イメージング現状と将来」、2010年9月14日～17日、長崎大学
- ⑲ Hidenori Toyokawa, Kentaro Kajiwara, Masugu Sato, Morihito Kawase, Tetsuo Honma, Energy-resolved X-ray imaging method with the counting-type pixel detector, The 5th international workshop on semiconductor pixel detectors for particles and imaging, 2010年9月3日～7日、Grindelwald、スイス

[図書] (計1件)

- ① 豊川秀訓、兵藤一行、講談社、放射光ユーザーのための検出器ガイド、2011、180-196

[その他]
ホームページ等

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

豊川 秀訓 (TOYOKAWA HIDENORI)
公益財団法人高輝度光科学研究センター・制御・情報部門・主幹研究員
研究者番号：60344397

(2) 研究分担者

広野 等子 (HIRONO TOKO)
公益財団法人高輝度光科学研究センター・制御・情報部門・研究員
研究者番号：90393313

(3) 連携研究者

()

研究者番号：