

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 20 日現在

機関番号：84502

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26790077

研究課題名(和文) X線2次元信号のサブミクロン分解能シングルショット計測手法の開発

研究課題名(英文) Development of x-ray single-shot two-dimensional detector with sub-micrometer spatial resolution

研究代表者

亀島 敬 (Kameshima, Takashi)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・XFEL利用研究推進室・研究員

研究者番号：50558046

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)：本研究課題は、1 $\mu$ mを下回る微細構造を持つX線信号を計測する能力を持つX線検出器の開発を目的とした。本検出器のキーデバイスである高空間分解能シンチレーターの開発およびその性能の検証を計2年間で実施した。平成26年度に、申請者が提案する手法：同母材のシンチレーター(Ce添加)・基板(無添加)間を固相拡散接合し、基板の機械強度を利用してシンチレーター層の薄膜化を行うことで、一様な屈折率を持つ4 $\mu$ m厚薄膜シンチレーターの開発に成功した。平成27年度は検出器の空間分解能計測を行うための計測装置を整備した。これを用い、空間分解能は600~700 nm に到達することを実証した。

研究成果の概要(英文)：In this research, we developed an x-ray two-dimensional detector capable of measuring x-ray signals with sub-micrometer structure. We planned to develop a key-factor, a high-spatial resolution scintillator, and to measure the spatial resolving power of the x-ray detector in two years. In 2014, we succeeded in producing a thin-film scintillator with thickness of 4 micrometer by using a novel fabrication method based on solid-state diffusion bonding. In 2015, we have constructed experiment setup for the spatial resolution measurement of the developed x-ray detector. The measurement result showed that the x-ray detector with a thin-film scintillator fabricated by the proposed method achieved spatial resolution of 600 ~ 700 nm.

研究分野：X線検出器

キーワード：X線検出器 シンチレーター セラミックス YAG LuAG XFEL SACLA SPring-8

### 1. 研究開始当初の背景

X線自由電子レーザー (XFEL)・大型放射光施設の利用実験では、X線の回折・散乱像を広範囲に取得する実験が多く、このデータの取得にX線イメージング検出器が主なツールとして用いられる。特に、XFELは高輝度、コヒーレンス、フェムト秒パルスを持つ新しいX線光源であり、世界最高レベルのコヒーレントX線を発生できるシンクロトロン放射光源 SPring-8 で数分から数時間の積算時間が必要であった測定を、フェムト秒パルス幅のシングルショット露光で実現できる。従って、XFEL 実験用の検出器はパルス毎にダイナミックレンジを持つ積分型が主流となり、特に日本・アメリカ・ヨーロッパの XFEL 施設で検出器の開発が進められている。開発されている検出器の種類として、大きく直接変換型、間接変換型の2種であり、それぞれ下記の特徴を持つ。

#### a) 直接変換型

→ X線1光子検出、大面積センサーアレイ

#### b) 間接変換型 (ファイバーオプティクス)

→ 高い量子効率

#### c) 間接変換型 (レンズ結像型)

→ 高空間分解能

c)は可視光への変換効率が低いことと、レンズで集められる光の量も開口数を大きく取れないためセンサーに到達する信号が弱く、シンクロトロン放射光源の実験では長時間露光による複数パルスの積算を行う。従って、シングルショット計測に価値をなすパルスX線光源の使用に向かないとされてきた。ゆえに、申請者らは a)と b)に焦点を置き、XFEL施設 SACLA の利用実験に特化したX線2次元検出器: Multi-port CCD (MPCCD) 検出器を日本独自の技術で開発してきた[引用文献①]。X線1光子検出可能な感度・高ダイナミックレンジ・大面積センサーアレイ機能を持つ CCD センサーを採用したX線2次元検出器でピクセルサイズが50 μmである。MPCCDは1)のタイプのセンサーであるが、シンチレーターをファイバーオプティクスで CCD センサーと接合することで b)のタイプとして使用することも可能であり、XFEL の利用実験を広くカバーする。しかし、c)のタイプが持つ高空間分解能性能の要求も多く、シングルショットX線分光器への信号[研究業績5]、X線干渉縞、X線集光プロファイル等のミクロンオーダーの構造を持つX線2次元信号の測定では a)や b)のタイプの検出器の空間分解能が数10 μm程度であるため、計測精度不十分または計測不可能という課題がある。これらの検出器で決まる計測性能の制限はXFELの利用実験手法の開発戦略上無視できない。ゆえに、a)・b)のタイプの検出器に並んでシングルショット計測が可能な高い感度・高空間分解能を併せ持つX線2次元検出器の開発は国内外で大きな研究課題の一つになっている。

### 2. 研究の目的

パルスX線光源で空間分解能の高い計測を行うには、シングルショット露光で十分なSNRを保つ高感度および高位置分解能を両立するX線2次元検出器が必要である。10 μm以下の空間分解能を得るには、直接変換型ではダイナミックレンジなどの性能を相当程度犠牲にせざるを得ない。ゆえに、研究代表者は、新たな製法を利用した薄膜シンチレーターを開発し、感度と空間分解能を両立した間接変換型のX線2次元検出器の開発を本研究の目的とした。空間分解能の最終目標値は1 μm以下としている

### 3. 研究の方法

#### (1) X線高空間分解能計測の基本

X線の間接変換検出は a)シンチレーター、b)結像光学系、c)可視用イメージセンサーの

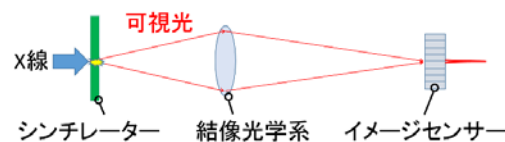


図1 間接変換型X線2次元検出。

3つの要素で構成される(図1)。a)にX線を照射すると可視領域の蛍光が発生し、これをb)でc)に結像する。実効ピクセルサイズはレンズやファイバーオプティクスプレート等の光学系を使用し、イメージの拡大縮小をして目的に応じたサイズに設計できる。空間分解能は理想的には a)の蛍光波長と b)の開口数による回折限界で決まる。

b)で拡大光学系を用いることで、一般的なX線用半導体センサーのX線直接変換検出では得られない10 μmから1 μmを下回る分解能を得ることができる。しかし、実際にはX線の透過性と a)の厚みから発光点が光軸方向に分布するため、そのデフォーカス成分が原因で空間分解能が劣化する。ゆえに、X線の高空間分解能計測ではデフォーカス成分を落とすために薄膜シンチレーターを使用することが基本となる。1 μmを下回る分解能を得るには光学的に厚み10 μm以下の薄膜シンチレーターが必要とされる[引用文献②]。

#### (2) 本研究提案の薄膜シンチレーター製法

研究代表者はCe:YAGとNon-doped YAGの両セラミックスを固相拡散接合で異物を使用せず接合し、複合化セラミックスを生成する。その後、機械加工で発光体であるCe:YAGを薄膜化することで高空間分解能シンチレーターを製作することを提案した(図2(a))。Ce:YAGとNon-doped YAGの屈折率の差は0.1%オーダーと非常に低いため、屈折率構造はほぼ一様となり、シンチレーターと基板間の界面で起きる反射を限りなくゼロにできる。また、基板部のNon-doped YAGを厚くすることができるため機械的強度が高く、加工

面を研磨し両面に反射防止膜を施すことが可能である。これにより、空間分解能を制限する a) X 線の侵入長から生じる発光点のフォーカスのズレ、b) シンチレーターやこれを支える基板の表面・界面で起きる多重反射や散乱を完全に解決できる。放射線耐性の観点では、シンチレーターと基板間で接着剤等を使用していないので界面の劣化が事実上無くなり、無機シンチレーターと同等の耐性を持つと言える。加えて、基板部である Non-doped YAG の厚みを mm~cm スケールで自由に設計できるので X 線を完全に放射線耐性の高い基板部で消滅させることができる。これにより、レンズや 2 次元線センサーに X 線が到達しないので、システム全体で放射線耐性が非常に高い 2 次元検出器が実現できる。

### (3) 本研究の光学系

本件で使用する光学系は感度・分解能の観点から、高開口数の光学系を組んだ。従来の方式では、レンズやセンサーを X 線の曝露から防ぐために、シンチレーターで変換された可視光をミラーで反射させて X 線の光路から外す必要があった。また、高開口数を持つレンズはワーキングディスタンスが小さいのでミラーを設置するスペースが取れず、消耗品となっていた。本研究で開発するシンチレーターは前述の通り、基板部を mm~cm スケールに厚くできるので X 線は放射線耐性の高い基板部でほぼ消滅し、レンズやセンサーに到達しない。ゆえにシンチレーターの直後に対物レンズを設置することが可能となり、高開口数の光学系を組み合わせることができる。

### 4. 研究成果

#### (1) 4 μm 厚薄膜シンチレーター製作の実現

研究代表者は 3. (2) 項で記述した方法にて、最薄 4 μm 厚の Ce:YAG シンチレーターの開発に成功した。図 2 (b) は 5・10・20 μm 厚の Ce:YAG の写真となる。これにより、複合化セラミックスを利用した薄膜製法の確立をなした。

#### (2) Lu<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> を材料とした薄膜の実現

YAG に加え、高エネルギー X 線に対する量子効率向上のため、イットリウムより重元素であるルテチウムを材料とした Ce:Lu<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (LuAG) の 5 μm 薄膜の開発に成功した。図 3 は Ce:LuAG と Non-doped LuAG との界面の電子顕微鏡像である。シンチレーター部である Ce:LuAG と基板部である Non-doped LuAG との界面に空孔が全くないことが見てとれる。これは接合時に焼結現象も伴うので、体積拡散に加え粒界拡散も発生し、空孔を埋めながら分子レベルで結合するためである[引用文献③④]。

#### (3) 8 μm 空間分解能の X 線検出器の実現

最初の SACLA のイメージングのニーズとして、10 μm 程度の空間分解能・2 mm 角程度の

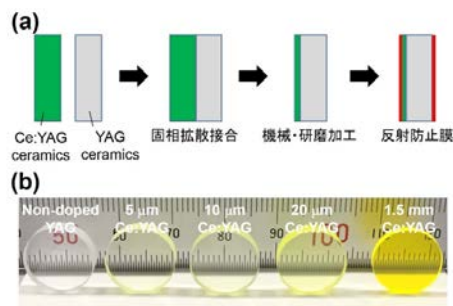


図 2 (a) 複合化セラミックスを利用した薄膜の製法。(b) 製作した Ce:YAG 薄膜シンチレーター。

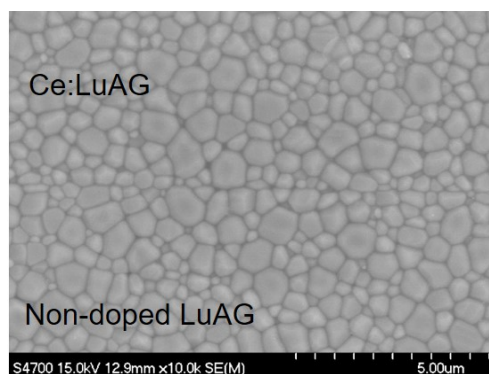


図 3 Ce:LuAG シンチレーターと基板 LuAG 界面の電子顕微鏡像

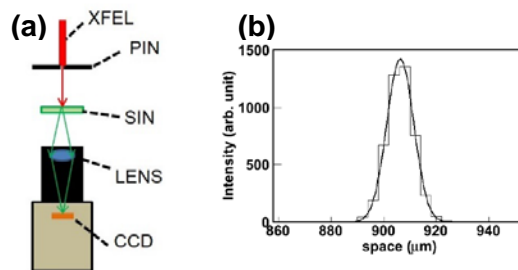


図 4 (a) 評価実験セットアップ: (XFEL) 10 keV XFEL ビーム, (PIN) φ10 μm タングステンピンホール, (LENS) イメージングレンズ, (CCD) 可視用 CCD カメラ。(b): CCD センサーに結像された φ10 μm XFEL ビームプロファイル。

視野であった。この仕様に合わせて光学系を設計した。これに、20 μm 厚の Ce:YAG シンチレーターとピクセルサイズ 7.4 μm の市販の CCD カメラを組み合わせ、SACLA にてその空間分解能を評価した。10 keV の XFEL パルスを φ10 μm の径のタングステンピンホールに通し、φ10 μm X 線ビームに整形する。このビームを薄膜シンチレーターに照射し、点像分布関数を測定した。レンズと CCD は放射線耐性を持たないが、YAG 基板の厚みを利用して X 線を遮蔽することで、図 4(a) に示すように機器の全てを直線上に配置したシンプルな



構成を実現している。図 4(b) はシンチレーター上の蛍光をイメージングして得られたビームの横方向のプロファイルであり、ビームの径は  $12\ \mu\text{m}$  FWHM で観測された。これにピンホールのプロファイルをデコンボリューション処理することで結像光学系が  $8\ \mu\text{m}$  FWHM の空間分解能を持つことが確認された。また、半日の間  $400\ \text{mJ}/\text{mm}^2$  の出力で XFEL を図 4(a) のセットアップでシンチレーターに照射し続けたが、シンチレーター・レンズ・CCD 共にダメージは確認されなかった。

#### (4) $8\ \mu\text{m}$ 空間分解能の X 線検出器の実現

図 5 は図 4(a) の評価セットアップをシングルユニット化した間接型 X 線イメージング検出器である。結像光学系で決まる空間分解能が  $8\ \mu\text{m}$  であるため、そのナイキスト周波数のちょうど 2 倍： $4\ \mu\text{m}/\text{ピクセル}$  になるように倍率を最適化した。また、視野角は  $2.56 \times 1.92\ \text{mm}^2$  である。SPring-8 BL29XU にてこの検出器を使い、X 線イメージングの実験を行

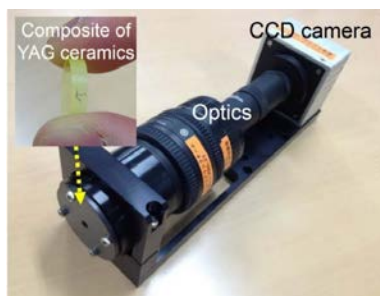


図 5 構築した間接型 X 線イメージング検出器.

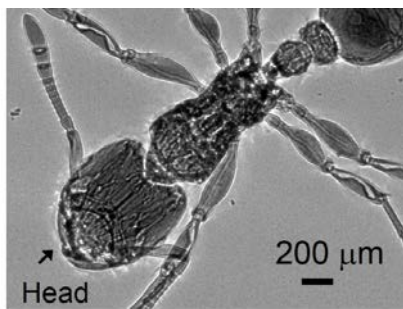


図 6 コリメート X 線で撮像したアリの透過像。X 線のコリメートビーム (X 線倍率 1 倍) を使用し試料のアリに  $12\ \text{keV}$ 、 $3 \times 10^{10}\ \text{photons}/\text{sec}/\text{mm}^2$  で照射した。露光時間は  $0.5\ \text{sec}$  でイメージを撮像した。図 6 はこの時に得られたアリの X 線透過像であり、シンチレーター全面において感度と空間分解能の点で一様な性能を示していることが確認できる。この検出器は SACLA の XFEL 利用実験で供用中となっている [引用文献⑤]。

#### (5) サブ $\mu\text{m}$ 空間分解能の実現

サブ  $\mu\text{m}$  空間分解能を実現するために  $5\ \mu\text{m}$

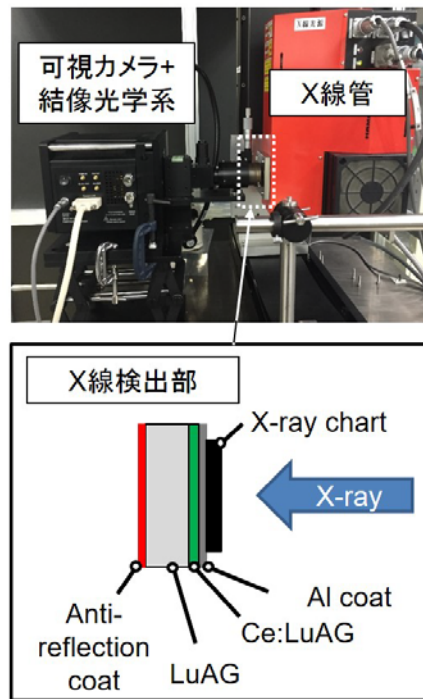


図 7 サブ  $\mu\text{m}$  空間分解能計測のセットアップ.

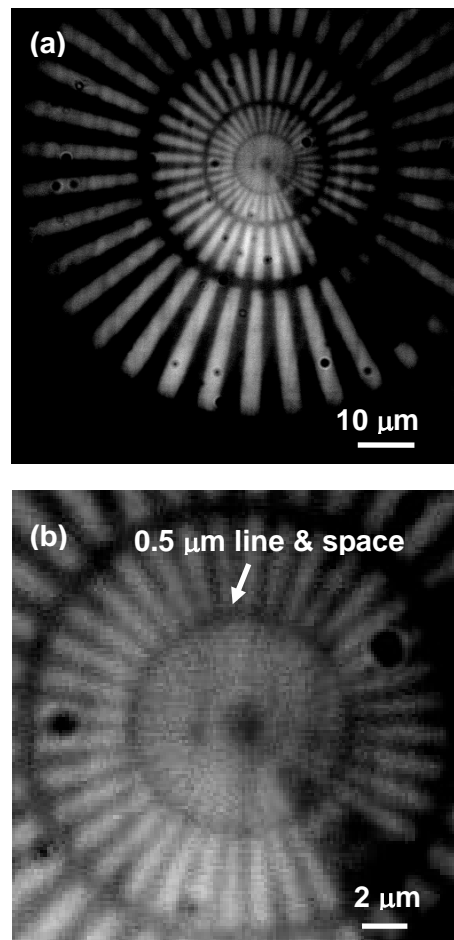


図 8(a) X 線チャート X 線透過像. (b) (a) の拡大像

厚 Ce:LuAG、開口数  $0.85 \cdot$  倍率 100 倍対物レンズ、市販のピクセルサイズ  $16\ \mu\text{m}$  を持つ冷

却EMCCDを用いて、間接変換型X線イメージング検出器を構築した。空間分解能評価には最小構造100 nm line & spaceを持つX線チャート(NTT-AT社製XRESO-100)にCuターゲットX線管のX線ビームを照射し、その透過像を観測することで評価した。Ce:LuAGシンチレーターのX線入射面にアルミニウムコート、その背面に反射防止膜を施した。アルミニウムコートは迷光の遮断と、対物レンズと逆方向の発光を反射し、対物レンズが回収する光の量を倍程度に増やす役割を持つ。X線チャートをシンチレーターのX線入射面に直接乗せ、X線による回折成分を最小に抑えている(図7)。シンチレーター上には $5 \times 10^7$  photons/mm<sup>2</sup>/secの強度でX線を照射した。X線の光子中心エネルギーは8 keVである。本セットアップにて、図8(a)に示すX線透過像の取得に成功した。本データは300秒露光を10枚積算した画像となる。図8(b)はX線チャート中心部を拡大した画像である。500 nm line & space (1 μm 分解能)を明確に分離していることが確認できる。また、これより小さい構造も分解しており、本研究の最終目標値である1 μm空間分解能を超える600 ~ 700 nmを達成している。

#### <引用文献>

- ① Takashi Kameshima, Shun Ono, Togo Kudo, Kyosuke Ozaki, Yoichi Kirihara, Kazuo Kobayashi, Yuichi Inubushi, Makina Yabashi, Toshio Horigome, Andrew Holland, Karen Holland, David Burt, Hajime Murao and Takaki Hatsui, Rev. Sci. Instrum. 85, 033110 (2014)
  - ② T. Martin and A. Koch, Journal of synchrotron radiation 13, 180 (2006)
  - ③ 村松 克洋, 八木 秀喜, and 柳谷 高公, OPTRONICS 9 (2012)
  - ④ H. Yagi, K. Takaichi, K. Hiwada, K.-i. Ueda, and T. Yanagitani, Japanese Journal of Applied Physics 45, L207 (2006).
  - ⑤ Y. Kayser, S. Rutishauser, T. Katayama, H. Ohashi, T. Kameshima, U. Flechsig, M. Yabashi, and C. David, Optics Express 22, 9004 (2014)
5. 主な発表論文等
- [雑誌論文] (計3件)
- ① Y. Kayser, S. Rutishauser, T. Katayama, T. Kameshima, H. Ohashi, U. Flechsig, M. Yabashi, and C. David, Shot-to-shot diagnostic of the longitudinal photon source position at the SPring-8 Angstrom Compact Free Electron Laser by means of x-ray grating interferometry, Opt. Lett. 41, 733-736 (2016), 査読有, doi: 10.1364/OL.41.000733
  - ② Takashi Kameshima, Takahiro Sato, Togo Kudo, Shun Ono, Kyosuke Ozaki, Tetsuo Katayama, Takaki Hatsui, and Makina Yabashi, A scintillator fabricated by solid-state diffusion bonding for high spatial resolution X-ray imaging, AIP conf. proc. SRI 2015, 査読有, in press
  - ③ Y. Kayser, S. Rutishauser, T. Katayama, H. Ohashi, T. Kameshima, U. Flechsig, M. Yabashi, and C. David, Wavefront metrology measurements at SACLA by means of X-ray grating interferometry, Optics Express 22, 9004-9015 (2014), 査読有, doi: 10.1364/OE.22.009004
- [学会発表] (計4件)
- ① Takashi Kameshima, Takahiro Sato, Togo Kudo, Shun Ono, Kyosuke Ozaki, Tetsuo Katayama, Takaki Hatsui, and Makina Yabashi, A scintillator fabricated by solid-state diffusion bonding for high spatial resolution X-ray imaging, SRI 2015, 8<sup>th</sup> July 2015, Marriott Marquis New York
  - ② 亀島 敬、佐藤 堯洋、工藤 統吾、小野 峻、尾崎 恭介、片山 哲夫、初井 宇記、矢橋 牧名、X線信号の高空間分解能シングルショットイメージング手法の開発、第70回日本物理学会年次年会、2015年3月24日、早稲田大学・早稲田キャンパス(東京都 新宿区)
  - ③ 亀島 敬、佐藤 堯洋、工藤 統吾、小野 峻、尾崎 恭介、片山 哲夫、初井 宇記、矢橋 牧名、薄膜シンチレーターを用いた高空間分解能X線イメージング、第28回日本放射光学会年会、2015年1月12日、立命館大学びわこ・くさつキャンパス(滋賀県 草津市)
  - ④ 亀島 敬、佐藤 堯洋、工藤 統吾、小野 峻、尾崎 恭介、片山 哲夫、初井 宇記、矢橋 牧名、コンポジットYAGセラミックを利用した高空間分解能X線2次元計測、第75回応用物理学会秋季学術講演会、2014年9月20日、北海道大学札幌キャンパス(北海道 札幌市)
- [図書] (計1件)
- ⑤ 亀島 敬、複合化セラミックシンチレーターのX線高空間分解能イメージングへの応用、OPTRONICS 9月号, 123-126 (2015)
- [その他]
- <http://www.riken.jp/outreach/ip/24747/>
6. 研究組織
- (1) 研究代表者  
 亀島 敬 (KAMESHIMA, Takashi)  
 公益財団法人高輝度光科学研究センター・XFEL利用研究推進室・研究員

研究者番号： 50558046