

平成 29 年 6 月 8 日現在

機関番号：82118

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25246040

研究課題名(和文) ナノ秒時間分解・超高速ピクセルアレイX線検出器の開発

研究課題名(英文) Development of ultrafast pixel-array X-ray detector with sub-nanosecond time resolution

研究代表者

岸本 俊二 (Kishimoto, Shunji)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・教授

研究者番号：00195231

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 33,400,000円

研究成果の概要(和文)：ナノ秒応答とマイクロン空間分解能を両立させた超高速ピクセルアレイX線検出器システム(128ピクセル・一次元アレイ)を開発した。アバランシェフォトダイオード(Si-APD)により検出器自身の応答を従来のシリコンピクセル検出器と比べて100倍以上高速化した。このシステムを放射光X線を使う原子核共鳴散乱研究に用いた。サブナノ秒タイミング(0.5ナノ秒)により核放射線を区別し、特定元素の電子状態を10-100 μm の領域ごとに一度に測定することができた。

研究成果の概要(英文)：We developed an ultrafast pixel-array X-ray detector system (128 pixel, linear-array) with nanosecond response and micrometer-order spatial resolution. The system response was 100 times faster than that of normal silicon detectors. We applied this system to synchrotron radiation nuclear resonant scattering research, and then succeeded in resolving nuclear radiation from atomic scattering and in observing an atomic state, simultaneously with each 10-100 μm region and sub-nanosecond timing (0.5 ns).

研究分野：放射光X線計測学

キーワード：量子ビーム 放射光X線 X線検出器 時間分解測定 ピクセルアレイ検出器 放射光核共鳴散乱

1. 研究開始当初の背景

次世代太陽電池や有機エレクトロニクス材料への応用が期待される光反応性金属錯体の励起分子構造解析、強誘電体や磁性体ナノ構造研究などのため、レーザーパルスなどを試料に与える刺激 = 「ポンプ」として、また放射光パルス X 線を「プローブ」として使った時間分解 X 線回折実験が展開されている。これらの実験では数 10 ピコ秒幅の放射光 X 線パルスを使い、測定ごとにポンプとプローブとのタイミングを変えてピコ秒オーダーの時間変化を検出できている。しかし画像の測定時間間隔はミリ秒以下にできず、放射光パルスの最短時間間隔 (2 ナノ秒) を利用して X 線画像を連続して記録することはできない。放射光パルスの高い繰り返しレートを有効に利用できないので、物性研究に不可欠な試料環境の様々な条件下での迅速な測定には不利である。画像データ読出しの高速化をおこなっても最後は検出器自身の応答速度が問題になる。これまでの CCD (電荷結合素子) X 線検出器やフォトダイオード型ピクセルアレイ検出器 (PAD) は、出力応答にマイクロ秒 ~ 100 ナノ秒を要し、より高速の時間変化を連続記録するのは原理的に不可能である。一方、シリコン・アバランシェフォトダイオード (Si-APD: 比例モード作動) は高速電荷収集・内部増幅機能を有し、高速アンプで増幅度を補えば X 線光子 1 個によるナノ秒幅の高速パルス信号が得られる。そのため X 線によって励起された原子核からナノ秒オーダーで放出される核放射線を、瞬時に発生する電子散乱から区別することも可能になる。もし比例モード Si-APD を使ったナノ秒応答の超高速ピクセルアレイ検出器によって画像情報がナノ秒間隔で得られれば、X 線回折斑点の強度・位置変化を検出してナノ秒オーダーの時間変化を連続的に記録できる。ポンプ/プローブ遅延調整と併用すれば、ピコ秒からミリ秒まで広いダイナミックレンジで連続的に効率よく測定できる。放射光リングのパルス間隔 20-1000ns の運転モードと組み合わせると、試料の 10-100 μm 領域ごとの電子状態解明を一度に行う核共鳴散乱測定も可能になる。これまでは 100 μm 以下の空間分解能と 10 mm 以上の有感領域を併せ持つ超高速 Si-APD ピクセルアレイ検出器システムはなかった。その理由のひとつは、Si-APD ピクセルアレイはフォトダイオードと比べて構造が複雑なため 10mm 角以上の大きさや数 10 μm 以上の厚い空乏層ではピクセル間の分離、増幅度の均一性を保つことが困難なことである。また、ナノ秒パルス进行处理する超高速・高集積度電子回路の開発が不可欠ながら実現できてなかった。本研究課題の申請当時、我々は BiCMOS プロセスによる超高速パルス電子回路の ASIC (Application Specific IC) 化に取り組み、ピクセルサイズ 100 \times 200 μm の Si-APD 64 チャンネルリニアアレイ (有効長 ~ 10mm) を製作、FPGA (Field-

Programmable Gate Array) による 10ns 時間分解能、 $>10^7 \text{ s}^{-1}$ /ピクセルでの時系列計数測定によって実現に踏みだしていた。リニアアレイを 1 枚の基板に取り付けて基板を積層し 2 次元検出器として機能を拡張する可能性も検討した。現有の Si-APD リニアアレイは有感部が 10 μm と薄いためピクセル分離や均一性は十分だが、数 10keV 以上の X 線に対する検出効率はいささか小さい。我々はこの弱点を補い高エネルギー X 線領域の実験に対応するため、新しくシンチレータを開発し、Si-APD アレイに装着して高検出効率・高時間分解能を両立させる研究を進めようとした。

2. 研究の目的

(1) Si-APD による超高速ピクセルアレイ検出器 (1 次元、積層型 2 次元) システムを開発する。第 1 段階として有感領域長さが現有素子の 2 倍: 20mm のリニアアレイ・システムを開発する。次にリニアアレイを 1mm ピッチ 20 枚積層することで受光部が 20mm 角の 2 次元システムを実現する。

(2) 上記 (1) のシステムを使って、サブナノ秒で核放射線を区別することと 10 μm 級の空間分解能を両立させた原子核共鳴イメージングを行う。さらに、2ns 間隔の X 線パルスを区別した時間分解 X 線構造解析を実現する。

(3) 重元素添加率を高めた高速プラスチックシンチレータを新しく開発し、Si-APD アレイの X 線入射側にその高速シンチレータを装着し検出効率を引き上げる。

3. 研究の方法

(1) 超高速ピクセルアレイ検出器システムの実現のため、第 1 ステップとして Si-APD の 128 チャンネル・リニアアレイを製作する。時間応答性能・ピクセル分離を確保するため、開発済みだった 64 チャンネル・リニアアレイの設計をベースとした。さらに、 $>500\text{MHz}$ で応答する超高速フロントエンド ASIC と $>250\text{MHz}$ の 4 つのクロックの位相調整により 1ns 以下のタイミングを発生できる高速 FPGA を使って、2ns 以下のパルス分解能・ $<1\text{ns}$ 時間分解能を持ち、 $>10^8 \text{ s}^{-1}$ /ピクセルで時系列計数分布が得られるマルチチャンネル・スケーラー (MCS) システムを 64 チャンネル・リニアアレイで実現する。その設計を元に 128 チャンネルのシステムを開発する。次に、リニアアレイ用基板の設計をもとに基板厚さと冷却を検討して積層型 2 次元システムの開発を行う。

(2) (1) の に述べた 64 および 128 チャンネル Si-APD リニアアレイと の MCS を使って、まず 2ns 間隔の X 線パルスの分離、すべてのチャンネルの均一な X 線検出を確認する。続いて原子核共鳴イメージングや 2ns 間隔の X

線パルスによる X 線回折像などの連続観測を行う。

(3) 重元素添加率を高めた高速プラスチックシンチレータを新しく製作し、特性評価しながらミリサイズの Si-APD アレイ検出器を実現する。高速シンチレータを装着したサブミリピクセルの Si-APD リニアアレイ検出器によって、20-100 keV 領域での X 線時間分解測定を可能にする。

4. 研究成果

(1) X 線センサーとして 128 ピクセル Si-APD リニアアレイを製作した。ピクセルサイズは $H100 \times V200 \mu\text{m}$ と縦方向を大きくした $H100 \times V400 \mu\text{m}$ の 2 種類とした。製作は浜松ホトニクスに依頼した。64 チャンネル素子と同じピクセル間ギャップ： $50 \mu\text{m}$ (H 方向： 19mm)、空乏層厚： $10 \mu\text{m}$ など、これまでの倍の有効長 20mm を持つ素子で達成できた。

(2) Si-APD リニアアレイ用 0.5ns サンプリング・マルチチャンネルスケーラー (MCS) を製作、放射光 X 線ビームを使った実験によりサブナノ秒時間分解能を得ることに成功した。 2ns ごとの入射 X 線パルスをピークの重なりなく、ほぼ完全に分離できる時間分解能 0.7ns 以下の達成のため、サンプリング時間 0.5ns の MCS 回路ボードをフロントエンド ASIC と高速 FPGA を用いて 64ch 入力のを製作した。このプロジェクトの前に開発されていたサンプリング時間 1ns ・64 チャンネル MCS ボードの設計を見直し、より高い時間分解能を得るために ASIC チップの配置見直しとそれに適合するパッケージやり直し、高速 FPGA の採用と冷却強化を行なった。その結果、まず

64 ピクセル Si-APD リニアアレイ用 0.5ns サンプリング・マルチチャンネルスケーラー (MCS) 回路ボードを使って 0.5ns (FWHM) の時間分解能を得ることに成功した。H26 年度に問題となった高周波雑音はアナログ電源部のグラウンドをデジタル電源から切り離すことで解決できた。このボードを使って Fe-57 を含んだ FeBO_3 (333) 結晶に RF 磁場を印加したときの核共鳴ブラッグ散乱線への影響を評価する実験や、放射光 2ns 間隔パルス X 線のほぼ完全な分離を確認する実験を行なった。検出器システムのテスト結果は国際会議 SRI2015 のプロシーディングスとしてまとめ、ドイツ DESY で行なわれた ICAME2015 サテライトミーティングでの招待講演として報告した。核共鳴ブラッグ散乱の結果は論文執筆中である。

2ns ごとの入射 X 線パルスを完全に分離できる時間分解能 0.5ns (FWHM) を達成した 64 チャンネル用 0.5ns サンプリング MCS システムに続き、H27 年度に製作した 128 チャンネル 0.5ns サンプリング MCS システムボードに、H25 年度に製作した 128 ピクセルの Si-APD リ

ニアアレイ (ピクセルサイズ： $H100 \times V200 \mu\text{m}$ および $H100 \times V400 \mu\text{m}$ 、ピクセル間ギャップ： $50 \mu\text{m}$ 、H 方向長さ： 19mm 、空乏層厚： $10 \mu\text{m}$) を装着した。放射光マイクロ X 線ビーム (ビーム径 $< 10 \mu\text{m}$) により PF リング BL-14A にてピクセルごとの計数分布 (検出効率) や時間分解能を調べ、64 チャンネル・システムと同様な性能を確認できた (図 1, 2 参照)。続いて、64 チャンネルおよび 128 チャンネル Si-APD リニアアレイ検出器システムによる放射光核共鳴散乱実験や X 線イメージング実験を実施した。 2ns ごとの X 線パルスを検出器に直接入射して検出器システムの特性を評価した結果を国際会議 IEEE2016 (2016 年 11 月 3 日、フランス・ストラスブール) で口頭発表した。また、X 線干渉像の強度変化を記録する実験を行なった (PF 実験課題：2016G578 (BL-14C) および SPring-8 実験課題：2016A5400 (BL16B2))。

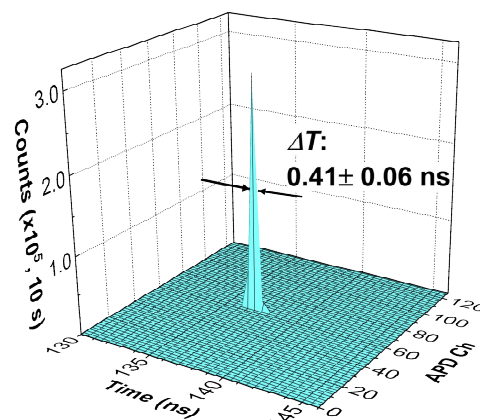


図 1 PF リング・シングルバンチ X 線でのピーク時間幅 (半値幅： $0.4 \sim 0.5 \text{ns}$)

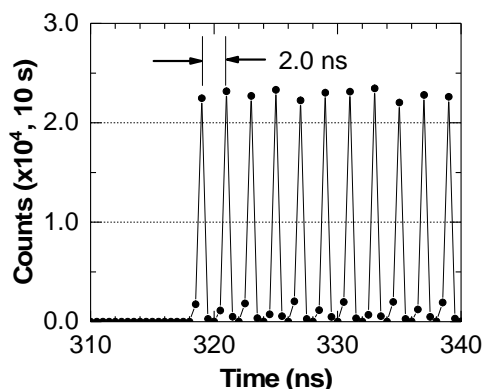


図 2 2ns 間隔 X 線パルス分離の様子

(3) 高速シンチレータとして重元素 (ビスマス、ハフニウムなど) ナノ粒子プラスチックシンチレータ (PLS) の製作を実施した。X 線エネルギーを核共鳴散乱実験の対象核種である Ni-61 の励起準位と同じ 67.4keV として、厚さ 1mm の検出効率： $> 10\%$ (市販の鉛添加 PL シンチと比べ 3 倍以上)、発光寿命は 2ns 以下、発光効率： $> 10\%$ (NaI:TI 比) が得

られる高速シンチレータを目指して特性評価を行った。酸化ハフニウムナノ粒子添加 PLS では、発光効率、時間分解能で市販品を越える性能が得られたが検出効率は目標にいたらず、課題として残された。市販の鉛添加 PLS を搭載した浜松ホトニクス S8664 型 Si-APD シンチレーション検出器について報告する論文は別途発表し、Ni-61 核共鳴散乱実験に応用した結果は現在執筆中である。受光素子として Si-APD の 4 素子アレイを使った APD シンチレーション検出器を製作し、Ni-61 や Ir-193 (73.04keV) の核共鳴散乱実験への応用を準備中である。Si-APD リニアアレイへの搭載を目指して開発を継続する予定である。

(4) サンプリング速度 5Gbps のアナログメモリセル (AMC) による高速波形サンプリングを行う回路ボードを製作した。小規模 APD アレイにも使用できるように 16 チャンネル入力とした。アナログメモリセル (AMC) によって 5Gbps で波形サンプリングを行う回路ボードを使って、KEK-PF リングのハイブリッドモード運転において X 線パルス波形記録実験を行なった。結果を 2016 年 3 月の物理学会 (領域 10) にて発表した。

(5) 「研究の目的」(1) のに掲げた「積層型 2 次元システムの開発」はリニアアレイの信号処理回路の集積度の不足、64 チャンネルで数 W という電力消費量の多さから、本研究内での達成はできなかった。今後、フロントエンド回路の集積度向上、低消費電力化により積層せずに二次元ピクセルアレイを実現したいと考えている。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 11 件)

S. Kishimoto, T. Mitsui, R. Haruki, Y. Yoda, S. Shimazaki, M. Saito, M. Ikeno, and M. Tanaka, "Si-APD Linear-array X-ray Detector with 10-100 μm spatial and sub-nanosecond time resolution", AIP Conf. Proc. 査読有, 1741, 2016, 40034.
DOI: 10.1063/1.4952906

Keisuke Inoue and Shunji Kishimoto, "Observation of 67 keV X-rays with a scintillation detector using proportional mode", AIP Conf. Proc., 査読有, 1741, 2016, 40032.
DOI: 10.1063/1.4952904

Keisuke Inoue, Shunji Kishimoto, "Fast scintillation timing detector using proportional-mode avalanche photodiode for nuclear resonant scattering experiments in high-energy synchrotron X-ray region", Nucl. Instr. and Meth. A, 査読有, 806, 2016, 420-424.
DOI: 10.1016/j.nima.2015.10.035

S. Kishimoto, T. Mitsui, R. Haruki, Y. Yoda, T. Taniguchi, S. Shimazaki, M. Ikeno, M. Saito and M. Tanaka, "Nuclear resonant scattering measurements on ^{57}Fe by multichannel scaling with a 64-pixel silicon avalanche photodiode linear-array detector", Rev. Sci. Instrum., 査読有, 85, 2014, 113102.

DOI: 10.1063/1.4900862

Y. Sun, M. Koshimizu, N. Yahaba, F. Nishikido, S. Kishimoto, R. Haruki and K. Asai, "High-energy X-ray detection by Hafnium-doped organic-inorganic hybrid scintillators prepared by sol-gel method", Appl. Phys. Lett., 査読有, 14, 2014, 174104.

DOI: 10.1063/1.4875025

S. Kishimoto, H. Yonemura, S. Adachi, S. Shimazaki, M. Ikeno, M. Saito, T. Taniguchi and M. Tanaka, "64-pixel linear-array Si-APD detector for X-ray time-resolved experiments", Nucl. Instr. and Meth. A, 査読有, 731, 2013, 53-56.
DOI: 10.1016/j.nima.2013.06.023

[学会発表](計 15 件)

S. Kishimoto, R. Haruki, and T. Mitsui, "Silicon avalanche-photodiode linear-array X-ray detector of 64 or 128 pixels with 0.5 ns time-bin multichannel scaler", 2016 IEEE Nuclear Science Symposium & Medical Imaging Conference (国際学会), 2016 年 10 月 29 日 ~ 2016 年 11 月 6 日, ストラスブール(フランス)

Shunji Kishimoto, "A Si-APD linear-array pixel detector for nuclear resonant scattering measurements", The 5th International Workshop on Nuclear Resonance Scattering of Synchrotron Radiation (招待講演)(国際学会), 2015 年 9 月 21 日 ~ 2015 年 9 月 23 日, ハンブルグ(ドイツ)

S. Kishimoto, T. Mitsui, R. Haruki, Y. Yoda, S. Shimazaki, M. Saito, M. Ikeno, and M. Tanaka, "Si-APD linear-array X-ray detector with 10-100 μm spatial and sub-nanosecond time resolution", 12th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation (国際学会), 2015 年 7 月 6 日 ~ 2015 年 7 月 10 日, ニューヨーク(USA)

岸本俊二, 池野正弘, 庄子正剛, 田中真伸, 「5 GS/s デジタイザーによる Si-APD ピクセルアレイ検出器のパルス波形記録」, 日本物理学会 第 71 回年次大会, 2016 年 3 月 19 日 ~ 2016 年 3 月 22 日, 東北学院大学(宮城県仙台市)

S. Kishimoto, T. Mitsui, R. Haruki, Y. Yoda, T. Taniguchi, S. Shimazaki, M.

Ikeno, M. Saito and M. Tanaka, "Silicon avalanche-photodiode linear array detector with multichannel scaling system for pulsed synchrotron X-ray experiments", International Workshop on Semiconductor Pixel Detectors for Particles and Imaging (国際学会), 2014年9月1日~2014年9月5日, ナイアガラフォール(カナダ)

S. Kishimoto, "X-ray time-resolved measurements with a 64-pixel Si-APD linear-array detector", AFAD Workshop, 2014年1月15日, メルボルン(オーストラリア)

[その他]

ホームページ等

高エネルギー加速器研究機構・測定器開発室ホームページとして以下の二つの本科研費研究関連プロジェクトを紹介:

「Si-APDによるX()線用ピクセルアレイ検出器の開発(FPIX)」

http://rd.kek.jp/project/fpix/index_j.html

「高速シンチレータの開発(FSCI)」

http://rd.kek.jp/project/fsci/index_j.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岸本 俊二 (KISHIMOTO, Shunji)

高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・教授

研究者番号: 00195231

(2) 研究分担者

田中 真伸 (TANAKA, Manobu)

高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核科学研究所・教授

研究者番号: 000222117

足立 伸一 (ADACHI, Shinichi)

高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・教授

研究者番号: 60260220

春木 理恵 (HARUKI, Rie)

高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・研究員

研究者番号: 30404031

(3) 連携研究者

三井 隆也 (MITSUI, Takaya)

量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所・上席研究員

研究者番号: 20354988

越水 正典 (KOSHIMIZU, Masanori)

東北大学・工学研究科・准教授

研究者番号: 40374962

錦戸 文彦 (NISHIKIDO, Fumihiko)

量子科学技術研究開発機構・放射線医学総合研究所・研究員

研究者番号: 60367117

池野 正弘 (IKENO, Masahiro)

高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核科学研究所・シニアフェロー

研究者番号: 40391718

島崎 昇一 (SHIMAZAKI, Shoichi)

高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核科学研究所・専門技師

研究者番号: 80391803

(4) 研究協力者

瀬戸 誠 (SETO, Makoto)

京都大学・原子炉実験所・教授

研究者番号: 40243109

内田 智久 (UCHIDA, Tomohisa)

高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核科学研究所・准教授

研究者番号: 40435615