

令和 4 年 6 月 29 日現在

機関番号：84502

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K12640

研究課題名(和文) シンチレーター蛍光封止機構を持つ高空間分解能X線イメージング素子の開発

研究課題名(英文) Development of high spatial resolution imaging optics to seal fluorescence of a scintillator

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・主幹研究員

研究者番号：50558046

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：100～200 keV領域のX線を有効に活用するため、これに対し高い感度を持つ広視野・高空間分解能イメージング検出器の開発が望まれている。X線阻止能の高いシンチレータを用いたX線画像検出器が有望であり、その撮像方式は導波路光学系・レンズ結像光学系の2つがある。研究代表者はこれらを定量的に性能比較するモデルを考案し、シミュレーションを実施した。結果として、光学パラメータおよびシンチレータを最適化することでレンズ結像光学系の200 keV X線に対する感度は100マイクロメートル分解能を得る場合において54.1%と高い値を得られることが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

次世代の大型放射光施設では30～200 keV領域のX線強度が顕著に上昇するため、これを有効活用するために30～200 keV領域のX線に対して感度が高いX線画像検出器が求められている。また、医療・産業界においても100～200 keV領域のニーズが高く、同時にX線画像検出器の高精細化が求められている。これらの学術・社会的要請に対応すべく、本研究ではX線検出原理・現在利用できる技術をベースに、X線感度を最大とするX線画像検出器設計を考案した。学術的には高速現象または微弱信号の撮像、医療・産業用途では対象の被曝量を最小化出来る点で貢献する。

研究成果の概要(英文)：Wide-field-of-view and high-spatial-resolution X-ray imaging detectors are required for high energy X-ray application. To use a scintillator for X-ray sensing is one of promising imaging methods because the dense scintillator can effectively detect X-ray signals owing to its high X-ray stopping power. There are two methods: waveguide and lens for a scintillation image transfer. We have proposed a model to evaluate effective X-ray sensitivity in order to compare their methods quantitatively. The simulation result shows that the lens-image-transfer method can obtain a high detective quantum efficiency of 54.1 percents in the condition of 200 keV X-ray and 100 micrometer resolution by optimizing the lens and scintillator parameters.

研究分野：X線画像検出器

キーワード：X線 高感度 空間分解能 広視野 放射光 画像検出器 シンチレーター

1. 研究開始当初の背景

X線は高い透過力、結晶面間隔より短い波長、内殻電子を励起する高いエネルギーを持つ。これらの特徴を活かし、物質の内部構造、結晶構造、元素情報、など多くの情報を得ることが可能であり物質科学・生命科学・医学から基礎物理に至る広い分野において重要な役割を果たしている。X線を利用する系は、X線光源・計測試料の操作装置・検出器の3つで構成される。X線を試料に照射した際に、透過X線・回折X線・蛍光X線が信号として得られ、これらを計測する検出器は測定限界を決める要素の一つである。以上から、X線検出器の性能：空間分解能・視野サイズ・感度の向上は重要な研究テーマとなっている。

次世代の放射光回折限界リング[RIKEN, SPring-8-II Conceptual Design Report, (2014)]において高エネルギーX線(本報告書では30~200 keVを指す)の強度が顕著に上昇するため、高エネルギーX線に対する検出器の感度に対する重要性が高まっている。また、医療・産業界においては100~200 keV領域のニーズが高い。このエネルギー領域では、シリコン半導体イメージセンサの感度は極めて低く、適用は難しい。このような背景から、高エネルギーX線を有効に活用するため、高エネルギーX線に対し高い感度を持つ広視野・高空間分解能イメージング検出器の開発が望まれている。

2. 研究の目的

本研究は、高エネルギーX線の広視野・高空間分解能イメージング検出器を実現することを目的としている。高エネルギーX線の検出には高い阻止能と一定の厚みが必要となる。これに対するアプローチの一つとして、重元素を含む密度の高いシンチレータをX線の検出に用いる手法がある。X線像をシンチレータで可視蛍光像に変換し、これを可視イメージセンサに伝送・転写する間接検出方式である。この撮像方式は、信号の伝送過程で蛍光の拡散を生じ像が滲むため、この方式で高い空間分解能を得ることは困難とされてきた。本研究では、この課題を解決する新たな間接検出方式を提案・開発し、これを用いて高エネルギーX線領域におけるX線イメージング検出器の感度・空間分解能向上を達成することを目的とする。

3. 研究の方法

シンチレータを用いて200 keVのX線像を撮像するには、撮像方式A シンチレータ・導波路光学系・イメージセンサからなる導波型X線画像検出器(図1(a))、撮像方式B シンチレータ・レンズ・イメージセンサから構成されるレンズ結像型X線画像検出器(図2)の2つが考えられる。それぞれの撮像方式の感度の点でメリット・デメリットが存在するが、これらを一元的に性能比較することについて詳細に議論されていなかった。本研究では、発案当初は撮像方式Aの調査を計画していたが、これに加えてX線感度の評価軸として検出量子効率DQEを用い、撮像方式A・Bを定量的に比較し、200 keV X線像のイメージングに対する最適な検出器のソリューションについて明らかにすることとした。

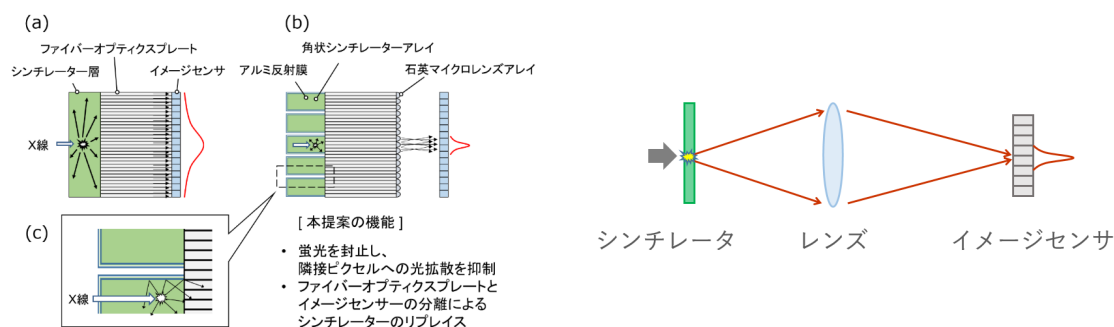


図1(a) 従来のX線検出機構、(b) 本申請初期の提案 (c) (b)の拡大図

4. 研究成果

最初に撮像方式Aについての検討結果を示す。図1(b)で示すように、ファイバーオプティクスプレート(FOP)上に角柱シンチレータアレイを形成し、表面を反射膜でコーティングして光

を封止・導波する構造を検討した。蛍光信号の出射口である逆面には石英で形成したマイクロレンズアレイを配置する。これにより、シンチレータピクセルで生じる X 線蛍光の全方向の光を FOP に導き出射面に光を伝送、マイクロレンズアレイで光拡散を抑えつつ、光をイメージセンサに伝送する。角柱シンチレータを高いアスペクト比 (= 厚み / 溝幅) で形成できれば、空間分解能を保持しつつ量子効率 η_{xqe} を高めることが出来る。一方で、図 3 に示すように溝部はシンチレータが無い不感領域となり、角柱占有率 (Fill factor) $\eta_{fill} = (L_p - L_g)^2 / L_p^2$ だけ量子効率 η_{xqe} が実効的に下がるというデメリットを持つ。従って、本構造は溝幅 L_g の細さに加えて、角柱高さ D ・溝幅 L_g 、ピクセルピッチ L_p ・溝幅 L_g 、の 2 つのアスペクト比が重要となる。

本研究開始時に、ダイシング加工で GAGG:Ce を $0.1 \text{ mm} \times 0.1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ の角柱シンチレータを 0.05 mm 幅溝・ 0.15 mm ピクセルピッチで形成する技術が発表された[1]。角柱高さ $D=1 \text{ mm}$ 、溝幅 $L_g=0.05 \text{ mm}$ 、ピクセルピッチ $L_p=0.15 \text{ mm}$ なので、 $D \cdot L_g$ アスペクト比 20、 $L_p \cdot L_g$ アスペクト比 3 の加工技術である。1 mm 厚の GAGG:Ce の量子効率は 100 keV で 68%、200 keV で 20% である。角柱占有率 $\eta_{fill} = (0.15-0.05)^2 / 0.15^2 = 0.444$ を乗じると、実効的な量子効率 η_{xqe} は 30.2%、8.9% となる。一方、本研究で当初検討していたレーザー加工は角柱高さ $D=0.1 \text{ mm}$ 、溝幅 $L_g=0.01 \text{ mm}$ $D \cdot L_g$ アスペクト比 ~ 10 であった。以上から、先行技術に対して利点を得ることは難しいと結論した。

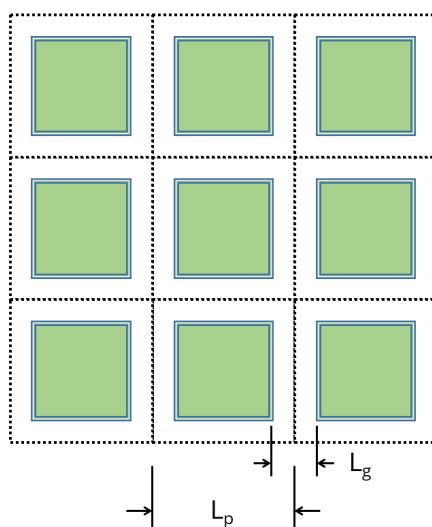


図 3 導波型シンチレータの X 線検出面から見た時の幾何学図

上記調査・検討結果を踏まえ、申請者は検出方式 B の検討を実施した。検出方式 A と検出方式 B の性能差を定量的に評価するために、申請者は X 線画像検出器の検出量子効率 Detective Quantum Efficiency (DQE) 式

$$DQE(R, E, NA) = \eta_{xqe}(R, E, NA) \left(1 + \frac{1}{\eta_{ly}(E) \cdot \eta_{ote}(NA) \cdot \eta_{vqe}} \right)^{-1} \quad (1)$$

を提案した。間接変換型 X 線検出器のカスケードノイズ伝搬のモデル[2,3]をベースとしている。DQE は目標とする空間分解能 R ・光学系開口数 NA ・適応する光子エネルギー E に依存する。 η_{xqe} は X 線量子効率 (シンチレータ吸収効率)、 η_{ly} は X 線 1 光子に対して生成される可視光子数 (Light yield)、 η_{ce} は光学系の光回収効率、 η_{vqe} はイメージセンサのシンチレータ発光波長に対する量子効率である。式(1)括弧内の第一項は X 線ショットノイズからの影響を、第二項はシンチレータ光ショットノイズからの影響を示している。 η_{xqe} の計算に必要なシンチレータ厚みは波動光学と幾何光学の両方を考慮した Berek の式[4]で求められる被写界深度

$$d = \begin{cases} \frac{\lambda \cdot n_s}{NA^2} + \frac{n_s}{NA} \sqrt{R^2 - \delta^2}, & \text{for } \frac{p}{M} < \sqrt{R^2 - \delta^2} \\ \frac{\lambda \cdot n_s}{NA^2} + \frac{n_s}{NA \cdot M} p, & \text{for } \frac{p}{M} > \sqrt{R^2 - \delta^2} \end{cases} \quad (2)$$

を用いている。ここで $\sqrt{R^2 - \delta^2}$ は許容錯乱円の半径を示している。 δ は式(1)のレーリー基準の回折限界空間分解能 $\delta = 0.61 \times \lambda/NA$ 、 p はイメージセンサのピクセルサイズである。この式は、光学系開口数 NA 、空間分解能 R に応じて許容できるシンチレータ厚が変化することを示している。これらの詳細は文献[5,6]で述べている。

図4は式(1)において空間分解能 $R = 100 \mu\text{m}$ と定めた時のレンズ結像型 X 線画像検出器 DQE 曲線である。X 線エネルギー $E = 5 \sim 400 \text{ keV}$ の光子エネルギー毎にプロットしている。図が示す通り、光子エネルギー毎に DQE にピークを与える NA が異なる。つまり、光子エネルギー毎に $NA \cdot$ シンチレータ厚 d を最適化する必要がある。図4は、100 keV であれば $NA = 0.2375$ 、 $DQE = 84\%$ の性能を得ることを示している。この時、式(2)からシンチレータ厚は $d = 1574 \mu\text{m}$ としている。200 keV であれば $NA = 0.0962$ 、 $DQE = 54\%$ に到達することが可能である。この時のシンチレータ厚みは $d = 3948 \mu\text{m}$ である。

ダイシング GAGG:Ce 導波路[1]との性能比較を表1に示す。ダイシング GAGG:Ce 導波路の光伝送効率 η_{ote} はセンサー面側に発光する光が全て伝送されると仮定して 0.5 としている。光伝送効率 η_{ote} が高いため swank factor I_{sf} がほぼ 100% となり、DQE は X 線光子数 \cdot X 線ショットノイズでほぼ決まる。厚みは公表値である 1 mm としている。一方、レンズ結像型は光伝送効率 η_{ote} が極めて低いことが課題であるが、100~200 keV の X 線では 1photon 毎のシンチレーション光子数 η_{ly} が高いためトータルの変換効率 $\eta_{\text{ly}} \cdot \eta_{\text{ote}} \cdot \eta_{\text{vqe}}$ が 3 electrons/200 keV を超える。したがって、DQE の第 2 因子であるスワンクファクタへの影響は 75% と、その影響は比較的小さい。また、シミュレーションが示す最適なシンチレータ厚である $d = 3948 \mu\text{m}$ の LuAG:Ce プレートの作成は透明セラミックス技術を用いれば、100 mm オーダーのサイズで作成可能である。結果的に、200 keV \cdot 空間分解能 100~150 μm の領域では、シンチレータの厚みを大きく取れるレンズ結像型の DQE が導波型と比較し 6 倍程度高いことが分かった。

このシミュレーション結果は 200 keV の X 線エネルギー \cdot 100 μm より高い解像度で撮像する場合、レンズ結像型が現時点で最も DQE 性能が高いことを示している。導波型は共晶体成長などの技術[7]を用いて、より高いシンチレータ高さ $D \cdot$ ギャップ幅 L_g のアスペクト比、クラッド部 \cdot コア部の面積比で決まる Fill factor η_{fill} を改善していく必要がある。200 keV \cdot 100 μm 空間分解能の条件で、レンズ結像型の DQE 値を上回るには、シンチレータ 4 mm 厚でレンズ結像型 swank factor I_{sf} と同等の 75% まで Fill factor を改善する必要がある。即ち、100 μm の空間分解能を 75% の Fill factor で達成する場合、 $\eta_{\text{fill}} = 0.75 = (100 - L_g)^2 / 100^2$ から L_g は 13 μm となる。求められるアスペクト比はシンチレータ厚 4 mm に対して $4 \text{ mm} / 13 \mu\text{m} = 307$ と極めて難度の高い数値である。

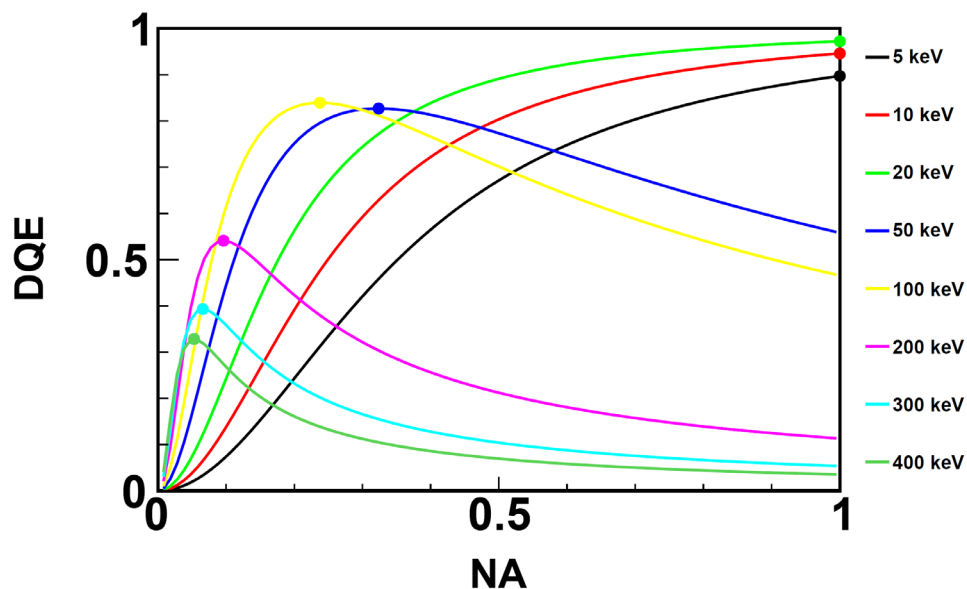


図4 空間分解能 $R = 100 \mu\text{m}$ ($50 \mu\text{m}$ L&S)におけるレンズ結像型 X 線画像検出器 DQE の X 線エネルギー \cdot NA 依存性。各 X 線エネルギーにおける DQE 最大値に円をプロットしている。

表 1 間接変換型 X 線画像検出器 DQE 値の比較

検出方式		導波型[1]	レンズ結像型
空間分解能	[μm]	150	100
利用する光子エネルギー	[keV]	200	200
シンチレータ材料		GAGG:Ce	LuAG:Ce
シンチレータ発光効率 η_{ly}	[photons/200keV]	12000	3200
シンチレータ厚 d	[mm]	1.0	3.9
量子効率 η_{xqe}		0.20	0.72
Fill factor η_{fill}		0.44	1.0
実効量子効率 $\eta_{\text{xqe}} \cdot \eta_{\text{fill}}$		0.09	0.72
光伝送効率 η_{ote}		0.5 ^a	0.001
変換効率 $\eta_{\text{ly}} \cdot \eta_{\text{ote}} \cdot \eta_{\text{vqe}}$	[electrons/200keV]	6000	3.0
swank factor I_{sf}		~ 1.0	0.75
$(1+1/(\eta_{\text{ly}} \cdot \eta_{\text{ote}} \cdot \eta_{\text{vqe}}))^{-1}$			
DQE $\eta_{\text{xqe}} \cdot \eta_{\text{fill}} \cdot I_{\text{sf}}$		0.089	0.541

^a センサー面側に発光する光が全て伝送されると仮定して 0.5 としている

- [1] S. Yamamoto *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. A **919**, 125 (2019).
- [2] M. Stampanoni *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. A **491**, 291 (2002).
- [3] U. W. Arndt and D. J. Gilmore, J. Appl. Cryst. **12**, 1 (1979).
- [4] S. Inoué, *Video Microscopy* (Plenum Press, New York, 1986).
- [5] 亀島 敬 and 初井 宇記, SPring-8/SACLA Information **27**, 98.
- [6] T. Kameshima and T. Hatsui, in *14th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation* (IOP, Hamburg (Germany), 2022) (to be published).
- [7] S. Yamamoto *et al.*, Scientific Reports **8**, 3194 (2018).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計11件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 亀島 敬, 初井 宇記
2. 発表標題 高解像度X線イメージング検出器の広視野化
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年～2021年

1. 発表者名 亀島 敬, 初井 宇記
2. 発表標題 高解像度・広視野X線イメージング検出器システムの開発
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 亀島 敬
2. 発表標題 SPRING-8/SACLAにおけるレンズ結像型X線画像検出器の開発
3. 学会等名 PF研究会「X線画像検出器の現状と将来展望」(招待講演)
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 Takashi Kameshima and Takaki Hatsui
2. 発表標題 Development of five lens-coupled X-ray imaging detectors with 150 Mpixels for X-ray microscopy
3. 学会等名 14th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation (国際学会)
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 亀島 敬
2. 発表標題 光拡散フリー透明シンチレータを用いた高解像度X線画像検出器の開発
3. 学会等名 極限的励起状態の形成と量子エネルギー変換研究グループ 第六回研究会（招待講演）
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 亀島敬, 初井宇記
2. 発表標題 高解像度・広視野X線イメージング検出器システムの開発
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 亀島敬
2. 発表標題 SPring-8/SACLAにおけるレンズ結像型X線画像検出器の開発
3. 学会等名 PF研究会「X線画像検出器の現状と将来展望」（招待講演）
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 Takashi KAMESHIMAand TakakiHATSUI
2. 発表標題 Development of a 200-nm-resolution X-ray imaging detector with a field of view of 2 mm square
3. 学会等名 IFDEPS Virtual Thursdays 2021（国際学会）
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 Takashi Kameshima and Takaki Hatsu
2. 発表標題 Development of five lens-coupled X-ray imaging detectors with 150 Mpixelfor X-ray microscopy
3. 学会等名 14thInternational Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation (国際学会)
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 亀島 敬, 初井 宇記
2. 発表標題 サブミクロン分解能X線イメージング検出器の広視野化
3. 学会等名 第34回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2020年～2021年

1. 発表者名 Takashi KAMESHIMA, Takaki HATSUI
2. 発表標題 Development of a 200-nm-resolution X-ray imaging detector with a field of view of 2 mm square Thursday, April 8th, 2021 IFDEPS Virtual Thursdays 2021, Session 8, New detector projects indirect detection 4/8/
3. 学会等名 The International Forum on Detectors for Photon Science
4. 発表年 2020年～2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------