

氏 名 井上 圭介

学位(専攻分野) 博士(学術)

学位記番号 総研大甲第 1916 号

学位授与の日付 平成29年3月24日

学位授与の要件 高エネルギー加速器科学研究科 物質構造科学専攻
学位規則第6条第1項該当

学位論文題目 比例モード Si-APD を用いた高速 X 線シンチレーション検出器の開発

論文審査委員 主 査 教授 足立 伸一
教授 岸本 俊二
教授 熊井 玲児
准教授 兵藤 一行
准教授 平野 馨一
准教授 越水 正典 東北大学

論文の要旨

Summary (Abstract) of doctoral thesis contents

放射光 X 線を利用した実験は多岐にわたる研究分野で行われている。高輝度という放射光 X 線の特長を活かして迅速・高精度の測定や微弱な散乱の測定が可能になる。本研究で取り上げる放射光核共鳴散乱実験では電子散乱による大強度の非核共鳴線と微弱な核共鳴散乱線を時間分光測定で分離する必要がある。比例モードで作動させるシリコン製アバランシェ・フォトダイオード（比例モード Si-APD）検出器は 10^8 cps までの高い出力計数率が可能でサブナノ秒時間分解能といった優れた特性を兼ね備えるため、この目的に適しており標準的な検出器となっている。近年では、SPring-8 のような大型放射光施設の建設により大強度の高エネルギー X 線ビームが利用できるようになった。核共鳴散乱実験においても、ニッケル 61（核共鳴エネルギー：67.41 keV）のような高エネルギー X 線領域の核種の測定が行われている。しかし、現状では低エネルギー領域の核種ほど測定例は多くはない。この最大の要因は、高エネルギー X 線領域における実用的な高速検出器がないことによる。比例モード Si-APD は、シリコン製で有感領域が薄いため高エネルギー X 線に対する検出効率が急減する。これまでに開発された積層型 Si-APD 検出器や光電子増倍管を受光素子としたシンチレーション検出器では、高い検出効率・大きな立体角とナノ秒オーダーの応答特性・サブナノ秒の時間分解能の両立はできていない。そのため本研究では、比例モード Si-APD を受光素子として利用し高速シンチレータと組み合わせることにより、高エネルギー X 線に対する十分な感度と高速特性を両立する高速シンチレーション検出器の開発を行った。この検出器が実用化すれば、多くの高エネルギー X 線領域の核種の核共鳴散乱実験に応用できる。加えて、これまでに比例モード Si-APD が使用されてきた他の放射光利用実験においても、高エネルギー X 線測定への応用が考えられる。高エネルギー X 線の検出は希土類元素の K 吸収端近傍の測定などで重要であり、精密電子密度測定、XAFS や共鳴磁気散乱法などへの応用が考えられる。

市販の高速シンチレータ（EJ-256、直径 3 mm 厚さ 2 mm）と比例モード Si-APD

（S8664-3796(X)、受光部：3 mm 径）による検出部と冷却装置を備えたプロトタイプ検出器を製作し、高エネルギー放射光 X 線を用いた評価実験を行った。低温では APD 増幅率が增大すると共に熱雑音を低減できるため、比例モード Si-APD の冷却を行った。67.41 keV X 線の波高分布測定により、動作温度 -35°C において信号対雑音比を 2.2 ± 0.1 (バイアス電圧：+380 V 印加の時)まで高めてシンチレーション信号を取得できることを実証した。高ゲイン・広帯域の高周波アンプを利用して取得した時間スペクトル測定では、67.41 keV の放射光 X 線を時間分解能 0.50 ± 0.06 ns、検出効率 $6.6 \pm 0.1\%$ で取得することに成功した。この結果を得るまでにシンチレーション光の集光効率を高める工夫が必要となった。特に、市販の APD では標準となっている受光面保護用樹脂窓を取り除くことが重要だった。また、プロトタイプ検出器をニッケル 61 の核共鳴前方散乱実験に応用して時間スペクトルの観測に成功した。比例モード Si-APD を受光素子とする検出器の特徴を確認する実験も行った。同じシンチレータを使って比例モード Si-APD を受光素子とする場合と、ガイガーモード Si-APD (MPPC) を受光素子とする場合の計数率測定の比較を行った。比例モード

(別紙様式 2)
(Separate Form 2)

Si-APD の場合に 8.2 Mcps までの出力計数率が得られた一方で、MPPC の場合には 1.36 Mcps に留まり入射 X 線強度を高めても出力計数率が減る麻痺型の応答を示した。高計数率測定において比例モード Si-APD を受光素子とする検出器が MPPC よりも直線性に優れていることを確認できた。本研究で得られた最高計数率は入射光子数と検出効率に制限されたが、この検出器で観測したパルス幅を計数率モデルに適用すると、50 Mcps を超える最高計数率が期待される。

核共鳴散乱実験で要求される検出器の高感度化を図る試みとして、1) 重元素ナノ粒子添加プラスチックシンチレータの利用と2) 多チャンネル化の2通りを試みた。1)として、高い検出効率と高速発光かつ十分な発光量を得るためにHfO₂ナノ粒子を添加したプラスチックシンチレータを新規に開発し、プロトタイプ検出器のシンチレータを市販のEJ-256から置き換えて評価した。57.6 keVでのX線測定においてHfO₂ナノ粒子添加プラスチックシンチレータによりEJ-256に比べて優れた時間分解能0.34 nsを得た。一方、検出効率は予想より小さかったため、原因の解明など今後も改良と評価を継続すべきと考えている。また、HfO₂ナノ粒子添加プラスチックシンチレータはHf-K吸収端エネルギー(65.35 keV)以上のX線エネルギーではAPDで直接検出されるHf-LX線の強度が増大するため、時間スペクトル測定の場合にはK吸収端よりエネルギーが低いX線領域で使うべきことが判明した。この知見は今後の開発の指針となる。60 keVを超えるX線検出の場合は、K吸収端エネルギー90.52 keVのビスマスを添加物としたシンチレータが候補と考えている。上記の2)として、多チャンネル化による検出効率の向上を図る試みとして、3×3×3 mm³サイズのEJ-256シンチレータを4個1列に配置した4チャンネル検出器の製作と性能評価を行った。各チャンネルのSi-APDはプロトタイプと同じS8664型で受光面は3×3 mm²である。この検出器によってイリジウム193の核共鳴エネルギー73.04 keVの放射光X線に対する波高分布と時間スペクトルを各チャンネルについて取得した。APD特性のばらつきがあったものの検出効率の総和として15.8±0.4%を得た。イリジウム193の放射光核共鳴前方散乱実験において実用的な検出効率が期待できる結果だった。

本研究の APD シンチレーション検出器は高速特性を得るために、増幅率が数 100 倍程度の比例モード Si-APD と発光量が比較的小さな高速シンチレータを使用する必要があった。そのため、得られた信号対雑音比は 2 程度の値に留まった。信号対雑音比の向上のためには A)信号波高を上げること、B)雑音レベルを下げる工夫の 2 通りの方向性がある。今後進める研究内容として、A)のために、発光量の大きな高速シンチレータの開発と APD をさらに低い温度で作動させ APD 増幅率を上げるための精密な温度制御機構の開発が重要である。B)のためには、暗電流がさらに低く設計された Si-APD の採用や雑音レベルの低い高周波アンプの開発が必要と考えている。本研究は、高エネルギー X 線領域での放射光利用研究を支える高性能検出器の開発を目的とし、新しい検出方式の原理実証と応用実験・改良の試みを行ったものである。今後の基礎となる十分な結果を得たと考えている。

Summary of the results of the doctoral thesis screening

放射光核共鳴散乱研究などで広く用いられている比例モード・シリコン・アバランシェフォトダイオード (Si-APD) 検出器は高速応答・低雑音など多くの優れた特性を有するが、検出素子が軽元素のシリコンであること、 $100\ \mu\text{m}$ 程度以下の薄い構造が必要とされることから $30\ \text{keV}$ 以上の高エネルギー X 線領域での検出効率は大きくない。そこで本研究は、検出効率と高速特性を両立させる検出器として、重元素を含む高速シンチレータとシンチレーション光の受光素子としての比例モード Si-APD を使用する新しい検出器の開発を目的とした。

本論文は、研究の目的、放射光利用実験に用いる X 線検出器の現状を概観した第 1 章、比例モード Si-APD を用いる高速 X 線シンチレーション検出器の特徴、製作したプロトタイプについてまとめた第 2 章、プロトタイプ検出器の放射光 X 線ビームを使った評価と Ni-61 放射光核共鳴前方散乱実験について述べた第 3 章、放射光核共鳴散乱実験のための高性能化の試みについての第 4 章、まとめとしての第 5 章から構成されている。第 2 章、第 3 章に述べられているように、本研究では市販の高速シンチレータ (EJ-256、直径 $3\ \text{mm}$ 厚さ $2\ \text{mm}$) と比例モード Si-APD (S8664-3796(X)、受光部： $3\ \text{mm}$ 径) による検出部と冷却装置を備えたプロトタイプ検出器を製作し、高エネルギー放射光 X 線を用いた評価実験を行った。低温では APD 増幅率が增大すると共に熱雑音を低減できるため比例モード Si-APD を冷却し、動作温度 -35°C において $67.41\ \text{keV}$ X 線の波高分布測定により信号対雑音比を 2.2 ± 0.1 まで高めてシンチレーション信号検出を実証した。時間スペクトル測定では、 $67.41\ \text{keV}$ の放射光 X 線を時間分解能 $0.50 \pm 0.06\ \text{ns}$ 、検出効率 $6.6 \pm 0.1\%$ で取得することに成功した。この結果を得るまでに、シンチレーション光の集光効率を高めるため APD 受光面の保護用樹脂窓を取り除き、 1000 倍の大ゲイン高周波アンプを採用するなどの工夫を行っている。また、プロトタイプ検出器をニッケル 61 の核共鳴前方散乱実験に応用して時間スペクトルの観測に成功した。この結果は、検出効率や立体角を改善する工夫を行えば高エネルギー X 線領域での放射光核共鳴散乱実験を支える検出器になりうることを示した。核共鳴散乱実験で要求される検出器の高感度化を図る試みとして、1) 重元素ナノ粒子添加プラスチックシンチレータの利用と 2) 多チャンネル化の 2 通りを試みた。1) として HfO_2 ナノ粒子を添加したプラスチックシンチレータを新規に開発し、 $57.6\ \text{keV}$ での X 線測定において EJ-256 に比べて優れた時間分解能 $0.34\ \text{ns}$ を得た。上記の 2) として検出効率の向上を図るため、 $3 \times 3 \times 3\ \text{mm}^3$ サイズの EJ-256 シンチレータを 4 個 1 列に配置した 4 チャンネル検出器の製作と性能評価を行った。イリジウム 193 の核共鳴エネルギー $73.04\ \text{keV}$ の放射光 X 線について検出効率 $15.8 \pm 0.4\%$ を得ており、放射光核共鳴前方散乱実験において実用的な測定が期待できる結果である。このように本研究は、高エネルギー X 線領域での放射光利用研究を支える高性能検出器の開発を目的とし、新しい検出方式の原理実証と応用実験・改良の試みを行ったもので、今後の基礎となる十分な研究成果を得たと考えられる。

本審査の発表では、予備審査での指摘を受けて放射光核共鳴散乱への応用の必要性和物性研究への波及効果に関する考察が行われ、研究の目的についても整理された。また最新

(別紙様式 3)
(Separate Form 3)

の実験結果が反映された発表が行われた。質疑応答にも的確に答え、研究内容および関連する分野に関する十分な知見があることを示した。研究意義を理解しやすくするための記述の追加、構成の整理を前提として、本審査委員会は、全員一致で博士論文の本審査合格と判定した。