

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

井上 圭介

博士（学術）

総合研究大学院大学
高エネルギー加速器科学研究科
物質構造科学専攻

平成 28（2016）年度

博士論文（学術）

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

総合研究大学院大学
高エネルギー加速器科学研究科 物質構造科学専攻

井上 圭介

2016 年 12 月

目次

序論	本研究の意義	3
	放射光核共鳴散乱研究	3
	高エネルギーX線領域のための高速検出器	7
	序論の参考文献	10
第1章	放射光X線とX線検出器	12
1.1	放射光X線の特徴	12
1.2	放射光利用実験に用いるX線検出器	14
1.2.1	電離箱	15
1.2.2	シンチレーション検出器	16
1.2.3	半導体検出器 (HP-Ge 検出器、PIN フォトダイオード、SDD)	19
1.2.4	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	21
	第1章の参考文献	23
第2章	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	25
2.1	比例モード Si-APD を用いたX線シンチレーション検出器の特徴	25
2.1.1	検出効率	25
2.1.2	APD 増幅率	27
2.1.3	雑音特性	29
2.1.4	エネルギー分解能	31
2.1.5	パルス波形	32
2.1.6	計数率特性	35
2.1.7	時間分解能	37
2.1.8	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に適したシンチレータと Si-APD の条件	40
2.2	プロトタイプ検出器	42
2.2.1	プロトタイプ検出器の構成	42
2.2.2	冷却機構	44
2.2.3	プロトタイプ検出器の Geant4 シミュレーション	46
	第2章の参考文献	53
第3章	プロトタイプ検出器による放射光利用実験	56
3.1	プロトタイプ検出器の特性評価	56
3.1.1	波高分布	56
3.1.2	出力パルス波形・時間分解能	62
3.1.3	計数率特性	66

3.1.4	シンチレータ形状・APD 形状の検討.....	67
3.2	Ni-61 放射核共鳴前方散乱実験へのプロトタイプ検出器の応用	70
3.3	MPPC シンチレーション検出器の特性評価	76
	第 3 章の参考文献.....	80
第 4 章	放射光核共鳴散乱実験のための高性能化.....	81
4.1	HfO ₂ ナノ粒子添加プラスチックシンチレータを用いた APD シンチレーション検出器	81
4.1.1	HfO ₂ ナノ粒子添加プラスチックシンチレータ	81
4.1.2	HfO ₂ ナノ粒子添加プラスチックシンチレータ搭載 APD シンチレーション検出器の特性評価	82
4.2	4-ch アレイ比例モード Si-APD を受光素子とした検出器.....	86
	第 4 章の参考文献.....	91
第 5 章	まとめ.....	92
5.1	研究の到達点	92
5.2	今後の展望	93
	本研究に関する発表	95
	謝辞	97

序論 本研究の意義

本研究の目的は、比例モードで作動するシリコン・アバランシェフォトダイオード (Si-APD) を用いた高速 X 線シンチレーション検出器によって優れた高速特性と高エネルギー X 線に対する十分な検出効率を合わせ持つ放射光実験用検出器の開発である。本検出器を応用する放射光実験は、放射光核共鳴散乱である。

放射光核共鳴散乱研究

最初に、放射光核共鳴散乱について [1]を参考に説明する。放射性同位元素を γ 線源として原子核の共鳴吸収を利用するメスバウアー分光法は物性研究の手法としてよく知られている。放射光核共鳴散乱研究は、放射光 X 線のエネルギーを原子核の励起準位と同じにして共鳴吸収させ、メスバウアー分光法と同様な物性研究を行うものである。メスバウアー分光法では無反跳の原子核共鳴吸収現象であるメスバウアー効果を利用する。一般に、光子が共鳴吸収される場合、放出と吸収の際にそれぞれ反跳エネルギー E_R の損失があるため、放出・吸収される光子エネルギーと遷移エネルギーには $2 E_R$ の差が生じる。 γ 線の共鳴吸収が観測可能になるには、原子核の反跳エネルギーによるエネルギーの不足を補って励起準位のエネルギー幅が重なるような条件が必要である。原子核の場合は励起エネルギーが少なくとも keV 以上のため、 E_R は meV 以上になる。しかも準位幅は μ eV 以下のため、原子核の反跳エネルギーが準位幅と比べて非常に大きくなる。しかし、もし固体中に吸収体が含まれ原子が結晶格子に束縛されて反跳エネルギーが原子核全体に分配されると、無反跳で γ 線が放出・吸収される条件が満たされることがある。このように無反跳条件が満たされて原子核の共鳴吸収が起きることをメスバウアー効果と呼び、メスバウアー効果を利用して微細に変化した核準位エネルギーの状態を調べる測定方法がメスバウアー分光法である。線源または試料を往復運動させて、そのドップラー効果によって照射あるいは吸収する γ 線エネルギーをわずかに変化させてエネルギー分光する方法がとられる。

メスバウアー分光法で調べることができる原子核のエネルギー準位の変化には、原子核と核外の軌道電子との相互作用 (超微細相互作用) が反映されており、このことから原子核周辺の軌道電子の情報を引き出すことができる。超微細相互作用はアイソマーシフト・四極子分裂・磁気分裂に分けられる。アイソマーシフトは原子核周辺の電子の密度を反映しており、イオンの価数といった化学状態の調査に役立つ。四極子分裂は原子核周辺の電場を反映しており、これより配位状態を推定できる。磁気分裂は原子核周辺の電子のスピンに由来する磁場 (内部磁場) を反映しており、電子の磁気モーメントの大きさや方向といった磁性に

関する情報が得られる。凝縮体中でメスbauer効果が起こる確率である無反跳分率は、原子核周辺の原子との結合の様子に依存している。よって無反跳分率の温度変化測定等を行うことにより結合状態に関する情報も得られる。通常は実用的な長さの寿命を持つ放射性同位元素 (RI) が親核種として γ 線を放出する線源として使用される。 γ 線を吸収し励起されてメスbauer効果を観測する核種のことをメスbauer核種と呼ぶ。工業的、科学的に重要な鉄の同位体 ^{57}Fe (励起準位: 14.41 keV、半減期: 97.8 ns。親核種は ^{57}Co)がこのメスbauer核種の一つであることから非常に多くの分野で利用されてきた。スピントロニクス材料として期待されている希薄磁性酸化物の研究が例に挙げられる。希薄磁性酸化物は化合物半導体に磁性原子をドーピングした材料であり、希薄磁性酸化物の強磁性発現メカニズムの解明のためには、ドーピングした磁性イオンの状態を調べる必要がある。 ^{57}Fe を均一にドーピングした透明酸化スズ粉末 ($\text{Sn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_{2-\delta}$) を調べた報告がある[2]。500°Cで焼成した試料では磁化が観測されたが、室温のメスbauerスペクトルからは常磁性成分しか観測されない結果が得られた。焼成時間を長くすると飽和磁化率が小さくなったことを踏まえ、強磁性の起源は鉄イオンによるものではなく、酸素欠陥が寄与したと考えられた。 ^{57}Fe によるメスbauer測定の特徴ある成果の一つは、火星探査機に搭載されたメスbauer分光器によって火星の岩のメスbauer分析を行い、水酸基を含む結晶を同定したことである。この結果から火星に水が存在したことが示された[3]。

放射光を利用して原子核を励起する放射光核共鳴散乱法には放射光の特徴による様々な利点がある。まず、放射光のエネルギー選択性によって、適当な親核種がない場合や親核種の寿命が極めて短い場合でも測定ができる。また、大強度かつ小さなビームサイズ (1 mm 以下) が可能なため、超高圧、強磁場などの極限条件下にある試料サイズ 100 μm 以下の場合でも測定しやすい。試料条件を変えながら迅速に測定することも可能になる。放射光の直線偏光性を使えば、角運動量保存則から容易にプローブ核の量子化軸を決定することができる。

一方、放射光核共鳴散乱実験に伴う難しさは、非共鳴散乱線 (トムソン散乱・蛍光 X 線など) を分離して核共鳴散乱線を検出しなくてはならない点にある。現状の結晶モノクロメータによって得られる放射光の線幅は光学系を工夫すれば meV 程度となるが、このうち核共鳴散乱に寄与するのは核共鳴準位の自然幅程度の $10^{-7}\sim 10^{-9}$ eV のみとなる。このため非共鳴散乱線は膨大なバックグラウンドとなる。バックグラウンドである非核共鳴散乱線を分離する方法として、高速検出器による時間分光が行われてきた。このとき検出器が得る時間スペクトルを図 1 の模式図に示す。放射光入射のタイミングで非核共鳴散乱線は瞬時に現れ即発散乱線とも呼ばれる。核共鳴散乱線は ns から数 10 ns の原子核半減期に従って減衰する。

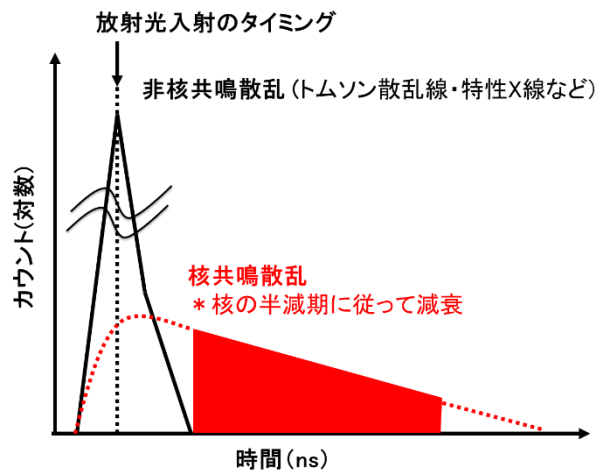


図 1：放射光核共鳴散乱実験で検出器が得る時間スペクトルの模式図。

核共鳴散乱には、前方にコヒーレントに散乱される前方散乱、ブラッグ角を充たす方向に散乱されるブラッグ散乱、全方向 (4π) に散乱されるインコヒーレント散乱等があり、それぞれを測定対象として、核共鳴前方散乱法、核共鳴ブラッグ散乱法、核共鳴非弾性散乱法がある。核共鳴ブラッグ散乱法は、トムソン散乱に対しては禁制の反射で、核共鳴散乱に対しては許容となるような条件の結晶と回折面を用いる方法で、検出の容易さから研究の初期段階には主として行われていた。しかし、適切なメスバウアー核種を含む結晶が必要なため現状では ^{57}Fe のような限られた核種しか適用できない。以降では核共鳴非弾性散乱法と核共鳴前方散乱法について説明する。

核共鳴非弾性散乱測定では、核の共鳴励起エネルギー付近において meV 程度以下に分光した放射光 X 線を、そのエネルギーを変化させながら試料に照射し、時間遅れ成分の検出を行う。これにより、フォノン励起を伴った核共鳴励起が起こる場合にのみ、脱励起に伴う時間遅れ成分を検出できることになる。よって、時間遅れ成分のカウント数を入射 X 線エネルギーの関数として求めれば、フォノンエネルギースペクトルが得られることになる。固体ならばフォノン状態密度を計算し、デバイモデルに基づいて熱力学的パラメータ (デバイ温度、エントロピー、比熱など) を求めることができる。例えば鉄の熱力学的パラメータを 153 GPa までの超高压下での核共鳴非弾性散乱により求め、地球の内核部分について議論した報告がある[4]。近年では赤外吸収分光が不得意とする水溶液中でも酵素の活性中心にある鉄の振動のみを抽出できる、といった利点から金属酵素の活性中心を研究する特異な手法として注目を集めている[5]。

核共鳴前方散乱法は、多数の励起核による核共鳴前方散乱線の干渉が時間ス

ペクトル上に形成する量子ビートとダイナミカルビートを観測する測定方法である[6]。時間構造を持つ量子ビートが核準位の分裂に起因していることから試料中の原子核周辺の磁性・電子状態を調べることができる。共鳴励起エネルギーに合わせた放射光を照射すると、分裂した準位間のエネルギー差がごく小さいため、許容されたエネルギー準位を一斉に励起する。この場合に再放出される共鳴散乱線は位相がそろっておりエネルギーがごくわずかに異なるため、光子波が干渉する。この干渉パターンを量子ビートと呼ぶ。図2(a)は単純な2準位(共鳴励起エネルギー)の干渉によって発生した量子ビートの模式図である。ビートの間隔 Δt は準位間のエネルギー差 ΔE に逆比例する($\Delta t = h/\Delta E$)。ダイナミカルビートは多重散乱によるもので、試料の厚い場合に顕著に現れる。試料の厚みが増えるほど、脱励起線の寿命は短縮され、ビートの間隔が狭くなる傾向を示す。これは図2(b)に示した厚さ: d が $0.1\ \mu\text{m}$ 、 $1\ \mu\text{m}$ 、 $2\ \mu\text{m}$ の場合のステンレススチール(励起核 ^{57}Fe)による核共鳴前方散乱時間スペクトルのシミュレーション結果に現れている。この核共鳴前方散乱時間スペクトルは、超微細相互作用から求められるエネルギー領域のスペクトルをフーリエ変換し、時間スペクトルを求める方法によって解析することができる。

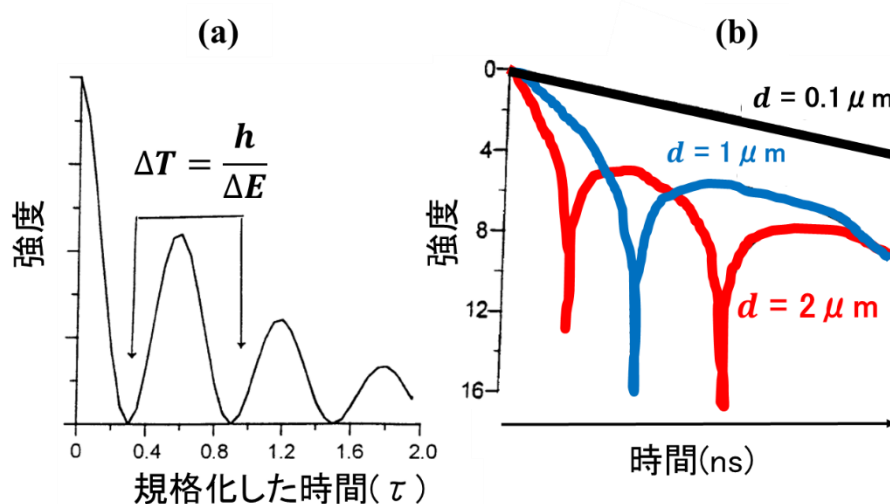


図2 : (a) 2準位の量子ビート。横軸は準位の寿命： τ で規格化した時間。
[7]のFIGURE 3.を基に作成した。

(b) 厚さ: d が $0.1\ \mu\text{m}$ 、 $1\ \mu\text{m}$ 、 $2\ \mu\text{m}$ の場合のステンレススチール(励起核 ^{57}Fe)による核共鳴前方散乱時間スペクトルのシミュレーション結果。[7]のFIGURE 9.を基に作成した。

以上の説明では励起状態の原子核が放出する γ 線を検出する場合を想定した

が、軌道電子を放出する内部転換過程によって基底状態に戻る場合も起こりうる。この内部転換電子、またはこれに伴う特性 X 線を核共鳴散乱の信号として検出する方法が行われることがある。また、RI による通常メスバウアー分光法と同様な吸収スペクトルを得ることができる放射光メスバウアー吸収分光法も開発されている[8]。

これまでに説明した、いずれの放射光核共鳴散乱実験においても核共鳴散乱線と非核共鳴散乱線（トムソン散乱線、透過 X 線、蛍光 X 線など）を時間分光するため、検出器には優れた時間分解能が要求される。励起核の寿命がナノ秒オーダーなら、ナノ秒以下の時間分解能である必要がある。核共鳴散乱線と非核共鳴散乱線の強度比は 10^6 を超えることから、高計数率測定が可能であることと低雑音を両立する必要がある。時間分解能と高計数率特性について、総合的に優れた検出器を、高速特性に優れた検出器という意味で高速検出器と呼ぶ。検出器がナノ秒幅の高速パルスを出力するなら、即発散乱線に近い時間領域からの測定が可能になる。寿命の短い核共鳴散乱線の測定が可能となり、それほど減衰していない時間領域から効率よく検出できる。特に高計数率では即発パルスが重なって波高の大きなパルスとなりやすいが、その直後でも核共鳴散乱線の単発パルスを分離できる。また、パルス立下り時間が短いほどトリガー時刻の変動が小さく、優れたタイミング特性を得やすい。

以上の特性を兼ね備えるため、放射光核共鳴散乱実験では比例モード Si-APD が標準的な検出器となっている。

高エネルギー X 線領域のための高速検出器

核共鳴散乱における既知のメスバウアー核種の寿命と核共鳴エネルギーの関係を図 3 に示す。多数のメスバウアー核種の測定が行われてきたが、白丸で示された放射光核共鳴前方散乱実験が行われている核種は、ほとんど核共鳴エネルギーが 30 keV 以下の核種に限られている。SPring-8 や ESRF のような第三世代の大型放射光施設において高エネルギー領域でも高輝度 X 線を活かし、Ni-61 などの測定も行われているが、低エネルギー領域の核種ほど実験例は多くない。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。低エネルギー X 線領域で標準的に使用されている比例モード Si-APD は、シリコン製で有感領域（空乏層）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。有感面積の広い単一の Si-APD 素子は検出器の静電容量が大きくなるため、パルス幅が伸びて時間分解能が劣化する点にも注意が必要になる。

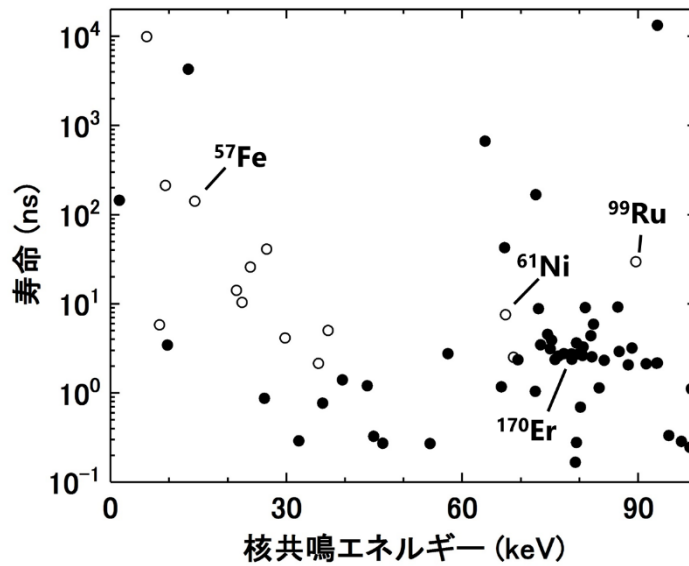


図 3：既知のメスバウアー核種の寿命と核共鳴エネルギーの関係。

○は放射光核共鳴前方散乱実験が行われている核種。

[9]を基に[10]、[11]を追加して作成した。

高エネルギーX線領域でも検出効率が低すぎないように改良した検出器として積層型Si-APD検出器が挙げられる。複数のSi-APDを積層させることでX線が通過するシリコンの厚さを伸ばし、1素子の場合より大きな検出効率が得られる。16.53 keV X線に対して1個のSi-APDでは検出効率は最大18.6%であったが4個積層型Si-APD検出器では55%を得た[12]。入射X線ビームに対してSi-APDを傾けることで、さらに大きな検出効率を得る工夫も行われた[13]。しかしながら、30 keV以上の高エネルギーX線に対しては1素子で得られる検出効率に限界があり検出効率の向上は難しい。加えて、散乱配置の測定により広い立体角に放出される核共鳴散乱線を検出する必要がある場合、前述のX線が通過する有感領域の厚さを伸ばす工夫ができない等の測定上の制限が加わる。

高エネルギーX線に対する十分な感度を示す高速シンチレータと応答の速い光電子増倍管(PMT)を組み合わせた高速シンチレーション検出器が開発されている。PMTを使えば $10^5 \sim 10^6$ の高い増幅率を得ることができる。PMTはタイミング測定用の高速なタイプを選択することができる。この時間特性は主として陰極から放出された光電子が陽極まで増幅される間に生ずる走行時間および、その時間差によって決まる。微細加工技術により極薄型のダイノードを高精度で積層したメタルチャンネル型ダイノードのPMTならばダイノードが近接しているため、小型で時間特性に優れる。メタルチャンネル型ダイノードの2イン

径 PMT の時間特性は、大まかに上昇時間 0.65~1.5 ns、パルス幅(FWHM)1.5 ~ 3 ns である[14]。この構造の受光径 8 mm、最小クラスの PMT(浜松ホトニクス社、R7400P)が入手できる[15]。鉛添加プラスチックシンチレータと R7400P によるシンチレーション検出器が開発され、57.6 keV の放射光 X 線ビームの測定で時間分解能 (FWHM) : 0.54 ns が得られた。ただし最大の計数率は 1.39×10^7 cps にとどまった[16]。これは計数率が大きいときに R7400P に流れる大電流による制限と考えられた。

ガイガーモード Si-APD は高い APD 増幅率 ($10^5 \sim 10^6$) が得られるため、ガイガーモード Si-APD を受光素子としたシンチレーション検出器が高エネルギー物理実験などで応用されている。ここで使用されているガイガーモード Si-APD は 1 素子あたり数 100 個以上のピクセルから成る MPPC(Multi Pixel Photon Counter)と呼ばれる半導体素子である。MPPC はブレークダウン電圧を超える印加電圧によって大きな増幅率で光電流を増幅し、各ピクセル表面に配置された抵抗素子 (クエンチング抵抗) に電流を流して増幅を止めてパルスを得ている。クエンチング抵抗に電流が流れてパルスの立ち下がりが形成されるためパルス幅が数十 ns 以上となる。これは比例モード Si-APD で得られるパルスの 10 倍以上の時間幅である。そのため、ナノ秒オーダーの高速応答の実現は困難である。

以上のような放射光核共鳴散乱分野で使われてきた検出器の状況を踏まえて、高エネルギー X 線領域の測定においても、シンチレーション検出器で得られるような検出効率や立体角と、比例モード Si-APD による X 線直接測定で得られるナノ秒オーダーの応答特性・サブナノ秒の時間分解能を併せ持つ高速検出器が必要であると考えた。本研究では、重元素を含む高速シンチレータと比例モード Si-APD を組み合わせたシンチレーション検出器を開発した。光子エネルギー 100 keV までの X 線について比例モード Si-APD の比較的低い増幅率でもナノ秒幅の高速パルスを検出するための工夫や、ナノ秒パルス応答とサブナノ秒時間分解能を活かした測定をどのように実現するかが重要であった。このような検出器を実用化すれば、図 3 で示された核共鳴エネルギーが 30~100 keV の領域に多く存在する核種の核共鳴散乱実験に応用できる。これらの核種には触媒に用いられる ^{99}Ru (励起準位 : 89.36 keV) や、低温で強磁性を示す ^{170}Er (励起準位 : 79.31 keV) など重要な元素が多く含まれている。例えば ^{61}Ni (励起準位 : 67.41 keV) の放射光核共鳴前方散乱によって高圧下でのニッケルの磁性を調べた報告がある[17]。ダイヤモンドアンピルセル内のニッケル箔試料のサイズに合わせ、 $15 \mu\text{m} \times 15 \mu\text{m}^2$ に集光した X 線ビームが照射された。メスバウアースペクトルの磁気分裂は 260 GPa まで観測され、この圧力まで強磁性磁気秩序が安定していることが示された。この圧力値は、2013 年の論文発表時までに強磁性が観測された最も高い値だった。

このように高エネルギーX線領域の放射光核共鳴散乱ならば、高エネルギー励起核をプローブとして、少量しか用意できない試料や高圧下で超伝導が発現する試料なども測定することができ、特殊な条件下で調べられる試料の幅を広げることができる。このため、開発中の高機能材料の機能解明にも貢献できる。加えて、これまで比例モードSi-APDが使用されてきた核共鳴散乱以外の放射光利用実験においても、高エネルギーX線の高計数率測定への応用などの可能性が考えられる。高エネルギーX線の検出は希土類元素の吸収端近傍の測定において必要で、高計数率測定が可能になるなら精密電子密度測定、XAFSや共鳴磁気散乱法などで高精度、測定の迅速化などに貢献することが期待できる。

本論文の第1章では、放射光X線の特徴と放射光X線を利用する実験で使われる代表的な検出器について説明する。これまでの検出器にない特徴を持つものとして、本研究では実際に比例モードSi-APDを用いた高速X線シンチレーション検出器のプロトタイプを製作したので、その検出器について以下の第2章で説明する。第3章では、放射光X線を使って、このプロトタイプ検出器の性能を評価し、放射光核共鳴散乱実験(Ni-61励起準位：67.41 keV、半減期：5.34 ns)への応用を行った。それらの結果を報告する。第4章では、放射光核共鳴散乱実験への応用のための高性能化について述べる。シンチレータおよびSi-APD素子について、それぞれ改良を試みた実験結果について報告する。第5章では、本研究で目指した比例モードSi-APDを受光素子とする高速シンチレーション検出器の開発がどこまで進んだか、および今後の課題についてまとめる。以降では、この検出器を「APDシンチレーション検出器」と呼ぶ。

序論の参考文献

- [1] 瀬戸 誠, "核共鳴散乱による物性研究" 日本結晶学会誌 **43** (2001) 405.
- [2] K. Nomura, C. A. Barrero, J. Sakuma and M. Takeda, "Room-temperature ferromagnetism of sol-gel-synthesized $\text{Sn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_{2-\delta}$ powders", Phys. Rev. B **75** (2000) 184411.
- [3] G. Klingelhöfer, R. V. Morris, B. Bernhardt, Schröder, I. D. S. Rodionov, P. A. de Souza Jr., A. Yen, R. Gellert, E. N. Evlanov, B. Zubkov, J. Foh, U. Bonnes, E. Kankeleit, P. Gütlich, D. W. Ming, F. Renz, T. Wdowiak, S. W. Squyres, R. E. Arvidson, "Jarosite and hematite at meridiani planum from opportunity's mössbauer spectrometer", Science **306** (2004) 1740.
- [4] H. K. Mao, J. Xu, V. V. Struzhkin, J. Shu, R. J. Hemley, W. Sturhahn, M. Y. Hu, E. E. Alp, L. Vocadlo, D. Alfe, G. D. Price, M. J. Gillan, M. Schwoerer-Bohning, D. Hausermann, P. Eng, G. Shen, H. Giefers, R. Lubbers, G. Wortmann, "Phonon density of states of Iron up to 153 gigapascals", Science **292** (2001) 5518.

- [5] 依田 芳卓, “核共鳴振動分光の生物分野への応用—酵素活性中心のプロープとして—”, 放射光 **29** (2016) 150.
- [6] 野村 貴美, “シンクロトロン放射光を用いたメスバウアースペクトロメトリー — (II) 核共鳴前方散乱法—”, RADIOISOTOPES **52** (2003) 293.
- [7] L. Zhang, J. Stanek, S.S. Hafner, H. Ahsbahs, H.F. Grünsteudel, J. Metge, and R. Rüffer, “⁵⁷Fe nuclear forward scattering of synchrotron radiation in hedenbergite CaFeSi₂O₆ at hydrostatic pressures up to 68 GPa”, American Mineralogist **84** (1999) 447.
- [8] M. Seto, R. Masuda, S. Higashitaniguchi, S. Kitao, Y. Kobayashi, C. Inaba, T. Mitsui, and Y. Yoda, “Synchrotron-radiation-based mössbauer spectroscopy”, Phys. Rev. Lett. **102** (2009) 217602.
- [9] Ralf Röhlsberger, “Nuclear condensed matter physics with synchrotron radiation basic principles, methodology and applications”, Springer Berlin Heidelberg, (2005) p.300-310.
- [10] R. E. Simon, I. Sergueev, J. Persson, C. A. McCammon, F. hatert, and R. P. Hermann, “Nuclear forward scattering by the 68.7 keV state of ⁷³Ge in CaGeO₃ and GeO₂”, EPL **104** (2013) 17006.
- [11] D. Bessas, D. G. Merkel, A. I. Chumakov, R. Rüffer, R. P. Hermann, I. Sergueev, A. Mahmoud, B. Klobes, M. A. McGuire, M. T. Sougrati, and L. Stievano, “Nuclear forward scattering of synchrotron radiation by ⁹⁹Ru”, Phys. Rev. Lett. **113** (2014) 147601.
- [12] S. Kishimoto, N. Ishizawa, and T.P. Vaalsta, “A fast detector using stacked avalanche photodiodes for x-ray diffraction experiments with synchrotron radiation”, Rev. Scientific Instrum. **69** (1998) 384.
- [13] S. Kishimoto and M. Seto, “Propaties of a stacked and inclined Si-APD X-ray detector”, KEK Proceedings 2007-12 (2007) 1.
- [14] 浜松ホトニクス社, “PMT ハンドブック:第4章”, p.45.
- [15] Hamamatsu photonics, Data sheet of R7400.
- [16] S. Kishimoto, F. Nishikido, R. Haruki, K. Shibuya, M. Koshimizu, “Fast scintillation detectors for high-energy X-ray region”, Hyperfine Interact. **204** (2012) 101.
- [17] I. Sergueev, L. Dubrovinsky, M. Ekholm, O. Yu. Vekilova, A. I. Chumakov, M. Zajac, V. Potapkin, I. Kantor, S. Bornemann, H. Ebert, S. I. Simak, I. A. Abrikosov, and R. Ruffer, “Hyperfine splitting and room-temperature ferromagnetism of Ni at multimegabar pressure”, Phys. Rev. Lett. **111** (2013) 157601.

第1章 放射光 X 線と X 線検出器

1.1 放射光 X 線の特徴

放射光とは、高速の電子（または陽電子）が磁場によって曲げられる場合に制動放射によって発生する光である。そのスペクトルは遠赤外光領域から硬 X 線領域まで及ぶ連続的なスペクトルとなる。放射光を利用した実験は、透過・散乱・回折・干渉や光電子・蛍光 X 線生成による物質の局所構造や電子状態の研究など、多岐にわたる。本研究論文は X 線領域の放射光実験で用いる新しい高速 X 線検出器の開発に関するものである。以下では、最初に放射光 X 線の特徴（高輝度・エネルギー可変性・パルス性）についてまとめ、これらを活かした代表的な実験例を述べる。

1) 高輝度

放射光は真空紫外から硬 X 線にかけて、既存の X 線管に比べて桁違いに強い [1.1]。放射光の明るさは輝度で表される。第三世代放射光施設における輝度は $10^{15} \sim 10^{20}$ photons/sec/mm²/mrad²/0.1%b.w. である [1.2]。高輝度ビームによって十分な信号強度を得て、迅速測定・高精度測定や微弱な散乱の測定が可能になる。代表例として X 線結晶構造解析が挙げられる。この実験手法では試料の X 線回折像を解析することによって、試料中の原子とその周りの電子がどのように配列しているかを表す電子密度分布を精密に調べることができる。そのため、多様な物質の機能解明に役立っている。生体物質として重要なタンパク質は分子量が数千～数百万にも及ぶ巨大な分子であるが、1 分子では回折強度が弱く、結晶化する必要がある。結晶を使っても実験室系では測定は困難である。一方、放射光実験ならば高輝度ビームを使えば最近では数時間以内に測定が可能になっている。たとえ結晶成長が困難で 10 μ m 程度の微小な結晶しか入手できない場合でも、解析できるようになってきた [1.3]。

2) エネルギー可変性

放射光は幅広い波長範囲に渡る連続スペクトルを示す。物質の局所構造や化学状態を知る方法として、X 線吸収微細構造法(XAFS)がある。入射 X 線エネルギーを試料中の特定の元素の吸収端エネルギー付近で走査することによって、試料で吸収された X 線吸収スペクトルを取得する。X 線の吸収量は、入射光子エネルギーを高めるにつれて吸収端エネルギー付近で急峻に立ち上がり、以降は微細な振動構造を伴いながら緩やかに減衰する。前者を X 線吸収端構造

(XANES)、後者を広域 X 線吸収微細構造 (EXAFS) と呼び、これらの解析によって内殻電子の励起状態や原子配位などを調べることができる。X 線の吸収を調べるだけでなく、蛍光 X 線やオージェ電子の強度変化を測定する表面 EXAFS も行われている[1.4]。表面 EXAFS は表面のナノスケールの構造が重要な触媒研究に威力を発揮している。

3) パルス性

放射光は加速器によって加速された電子バンチによって発生するため、パルス幅：数百 ps 以下、パルス間隔：数 ns～数 μ s のパルス X 線が得られる。放射光 X 線によって試料を励起する実験では、ナノ秒程度の緩和過程である核共鳴散乱の観測ができる。より短いピコ秒の測定もレーザーのフェムト秒パルス光 (ポンプ光) などで刺激を与え、一定時間後の X 線散乱分布をパルス X 線(プローブ光)で得る、ポンプ・プローブ法によって行われている。時間分解 X 線測定の新しい手法も開発されており、例えばピコ秒時間分解蛍光 XAFS[1.5]や、ピコ秒時間分解 X 線結晶回折などが試されている[1.6]。

放射光 X 線を用いて物質構造を探るような放射光科学は、高度な発展を遂げている。2011 年では世界で 50 台以上の放射光施設が稼働している[1.7]。放射光を用いた実験の拠点となる放射光施設は、次のような設備を備える。

- ・線形加速器 (入射器)
- ・蓄積リングおよび放射光源
- ・ビームラインと実験装置

線形加速器は電子を発生・加速して蓄積リングにバンチ状の電子を打ち込む役割を持つ。電子蓄積リング内では、この電子バンチを一定のエネルギーで周回する軌道に保つ。蓄積リングにはリングに沿って偏向電磁石が配置され、磁場によって電子バンチを閉じた軌道上に保つと共に、放射光を発生させる。周回電子が放射損失によって失ったエネルギーは、高周波加速空洞を通過する際に補給される。偏向電磁石よりも更に高輝度な放射光が得られる光源として挿入光源がある。挿入光源はアンジュレータとウィグラーに分けられる。これらは、強力な磁石の N 極と S 極を交互に配置したもので、進行する電子バンチを蛇行させて曲がった場所で放射光を発生させる。この放射光は電子の進行方向に鋭い指向性を持つ。アンジュレータは電子の曲がる角度の調整によって、指向性がよく、かつ単色性の高い光が得られる。ウィグラーは電子を一定以上の角度で曲げ、幅広い波長領域に連続的に広がる放射光スペクトルが得られる。

放射光 X 線を分光器やミラーなどの光学系によってエネルギーを選択、ビームとして集光、整形する。このように実験に使う放射光を切り出し調整するため

の装置を配置し制御するシステムをビームラインと呼ぶ。

リング型放射光源とは別に、高コヒーレンスかつ高輝度なフェムト秒幅パルスが得られる自由電子レーザー(FEL)が実現されている。日本でも X 線領域が可能な XFEL である SACLA が 2012 年より稼働している[1.8]。

高輝度による利点を生かし、放射光利用研究は素晴らしい成果を挙げてきた。第 3 世代の放射光施設以降、30 keV を超えるような X 線エネルギーでも高輝度ビームが得られるようになった。これに伴い、大強度 X 線による計測に耐える放射光実験に適した検出器の重要性が増している。

1.2 放射光利用実験に用いる X 線検出器

表 1.1 のように放射光利用実験に用いる代表的な検出器を分類した。放射光利用実験に用いる検出器を選択する場合には、どのような情報を得たいかが重要である。検出器を使って知りたい情報は、入射 X 線の強度・エネルギー・タイミング・画像に大別できる。X 線検出器は信号読出し方法によって大きく 2 つに分けられる。X 線光子 1 個を 1 つの電圧パルスとして出力するパルス型検出器と、一定時間蓄積した電荷量を出力、あるいは時間平均した電流値を出力する積分型・平均値型検出器である。

パルス型検出器は X 線光子 1 個によるパルス状の電気信号を出力できるため、正確な強度測定ができる。入射 X 線が電離した電荷量に比例したパルスを波高分析すれば、エネルギー分析も可能である。雑音と X 線によるパルス信号を波高によって分離しやすいため優れた信号対雑音比が実現できる。ただし、パルス幅によって決まる有限な不感時間があるため、一定の強度以上ではパルスが重なって区別が困難になり定量的な X 線強度測定ができなくなる。

積分型検出器は入射 X 線光子数と電荷量の比例関係を仮定するため、数え落としのない大強度 X 線の測定ができる。欠点は雑音の分離が困難で出力のダイナミックレンジが狭くなりやすいことと、タイミング測定やエネルギー分析ができないことである。また、積分型検出器も高い線量領域では出力の飽和が起きる[1.9]。

以降では代表的な X 線検出器である電離箱、NaI(Tl)検出器と 4 種類の半導体検出器について説明する。ここで説明する半導体検出器は PIN フォトダイオード検出器、HP-Ge 検出器、SDD 検出器、比例モード Si-APD 検出器である(表 1.1)。

表 1.1 : 放射光利用実験に用いる代表的な X 線検出器と実験の例。

測定方式	特徴	X 線検出器	実験の例
積分型・ 平均値型	強度	電離箱	透過法による XAFS ・ XMCD
パルス型		NaI(Tl)検出器、 PIN フォトダイオード検出器	X 線回折
	エネルギー	HP-Ge 検出器、SDD 検出器	蛍光 X 線分析
	タイミング	Si-APD 検出器	核共鳴散乱

1.2.1 電離箱

電離箱は、入射した放射線が箱内のガスを電離し、そのときに発生する電荷を印加した電界によって収集・出力する検出器である。ガスは、空気よりも再結合の起こりにくい窒素やヘリウムが多く用いられる。より高いエネルギーの X 線に対しては、アルゴン・クリプトン・キセノンなどの希ガスに交換して感度を補う必要がある。各ガスについて、1つのイオン対を生成するのに必要な平均エネルギー(W 値)が入射 X 線エネルギーによらない定数として与えられており (表 1.2)、電荷量を測定することでガスが吸収した X 線強度を知ることができる。

表 1.2 : 各種ガスの電子に対する W 値(eV)[1.10]。

アルゴン	クリプトン	キセノン	窒素	空気
26.4	24.4	22.1	34.8	33.97

ガスの W 値を用いて、入射光子数レート n (photons/s)は次式で計算できる[1.11]。

$$n = \frac{1 I_s}{f e} W \frac{1}{E_0 \left(\frac{\mu}{\rho} \right) \rho L} \quad (1.1)$$

ここで、 W はガスの W 値、 ρ はガスの密度、 $\frac{\mu}{\rho}$ はガスの質量エネルギー吸収係数、 f は収集効率、 e は素電荷、 I_s は飽和電流値、 L は収集電極のビーム方向長さである。放射光利用実験では入射 X 線ビームの強度モニターとして広く用いられている。透過法による XAFS、X 線円磁気二色性(XMCD)などでは試料による X 線吸収量を求めるために用いられる。

1.2.2 シンチレーション検出器

ここでは、一般的な光電子増倍管(PMT)を受光素子とするシンチレーション検出器について説明する。シンチレーション検出器は入射した放射線をシンチレータによって光(可視光の場合が多い)に変換し、受光素子によって電気信号に変換する検出器である。X線がシンチレータに入射すると電離・励起を引き起こしX線のエネルギーがシンチレータに付与される。シンチレータが発光し入射X線のエネルギーが光に変換される割合は発光量で特徴づけられる。シンチレーション光はシンチレータ中を伝搬し反射・散乱または自己吸収によって減少する。受光素子の受光面に到達した光は量子効率として評価される割合で素子中に電荷キャリアを生成し、電気信号として読み出される。この一連の過程で少なくとも発光量、光の収集効率、量子効率で決まる割合でキャリア数が減少する。受光素子は微弱光を測定することが多い。十分な信号電流を得るために 10^6 程の増幅率をもつ光電子増倍管(PMT)が受光素子として一般に用いられる。実用的なシンチレータの発光量は入射する放射線のエネルギーと比例関係にあるため、受光素子において入射光子数と出力電圧の比例性が保たれるならば波高分析器によってエネルギー測定が可能である。

シンチレータは大きく無機シンチレータと有機シンチレータに分けられる。通常は無機シンチレータは、無機結晶に少量の活性化物質を添加して可視光の放出確率を高めたシンチレータである。活性化物質により結晶のエネルギー帯構造は変化し、全禁止エネルギーよりもエネルギーギャップの小さい新しいエネルギー状態が形成される。この種の無機シンチレータのシンチレーション機構を図 1.1 より説明する。シンチレータ中でX線が相互作用してそのエネルギーを損失した結果、軌道電子を価電子帯から伝導帯へ上げる(電子・正孔対を作る)。電子は結晶中を自由に移動し、活性化物質の位置に到達すると独自の励起エネルギー状態を持った中性の不純物配位を形成する。この活性化物質の状態が基底状態へ遷移可能な配位である場合には、輻射遷移を起こしシンチレーション光が放出される。

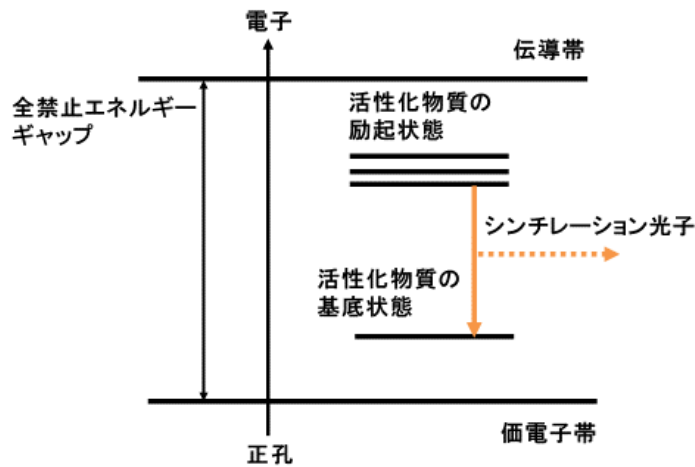


図 1.1 : 活性化された無機結晶シンチレータのエネルギー帯構造。
[1.12]の Figure 8.6 を基に作成した。

X 線検出器に用いられる代表的な無機シンチレータはタリウム活性化ヨウ化ナトリウム(NaI(Tl))である。NaI(Tl)シンチレータは透明な結晶で、ピーク発光波長：420 nm のシンチレーション光を大きい発光量(38000 photons/MeV[1.13])で放出する[1.14]。バイアルカリ光電面を備える PMT ならば入射光子を光電子に変換する効率（量子効率）のピーク波長は 390 nm となり適合する。ただし、その効率は最大でも 30%程度である[1.15]。蛍光の減衰時間は 230 ns ~250 ns と比較的長く、通常は 10^5 cps 以下の強度測定に使用される[1.16]。NaI(Tl)検出器の利点は放射光 X 線でよく利用される 100 keV 以下の広い X 線エネルギーの範囲で高い検出効率が得られる点である。ただし、ヨウ素の吸収端エネルギー(I-K 吸収端 33.17 keV)付近では非直線的な応答をする点には注意する必要がある[1.17]。本研究では新規に開発した検出器の検出効率や採用したシンチレータの発光量評価のために、NaI(Tl)検出器を測定の基準として用いた。

無機シンチレータは密度が大きく、発光量大きい結晶を入手しやすい。しかし、蛍光減衰時間が長い結晶が多い。大きな発光量と短い減衰時間を両立する無機シンチレータとして製品化されたセリウム活性化無機シンチレータでもナノ秒オーダーの減衰時間を得ることはできていない。

有機シンチレータは無機シンチレータと逆に、低密度かつ発光量小さいが、ナノ秒の高速発光の結晶を選択することができる。有機シンチレータの発光は、基本的に π 電子構造として知られている有機分子のエネルギー準位間での遷移によって起こる。図 1.2 に π 電子構造を持つ有機分子のエネルギー準位を示す。この図では即発蛍光に寄与するスピン 0 のシングレット状態の系列(S_0 、 S_1 、

S_2 、 \dots)のみを示した。これらの電子配列は分子の振動状態に対応して点線で示した準位に分裂している。この有機分子が X 線のエネルギーを吸収すると基底状態より励起状態に遷移する。 S_1 より高い電子状態は放射を伴わない内部転換により S_1 電子状態へ遷移する。 S_{11} 、 S_{12} などの過剰な振動エネルギーを持つ状態も無視できるほど短い時間でエネルギーを失い、 S_{10} 状態となる。主要なシンチレーション光はこの S_{10} 状態と基底電子状態の遷移によって発生する。

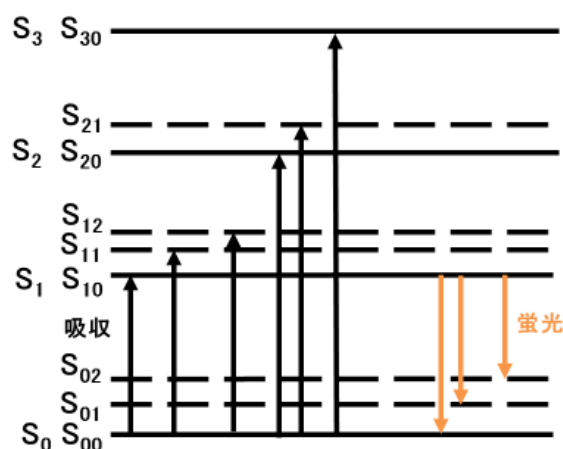


図 1.2 : π 電子構造を持つ有機分子のエネルギー準位。
[1.18]の FIG. 3.7.を基に作成した。

有機シンチレータは、純粋な有機結晶の他に、有機蛍光体を溶媒に溶かした 2 成分系のシンチレータが用いられる。この場合、まず溶媒に X 線のエネルギーが吸収され、溶媒内に分布する有機シンチレータにエネルギー移行して発光を起こす。ポリスチレンといったプラスチックを溶媒としたプラスチックシンチレータは、安価かつ成型加工が容易な有機シンチレータとなる。有機蛍光体の発光波長が短く、受光素子の感度が低下してしまうことの対策として、波長変換材が添加された 3 成分系のシンチレータが用いられることがある。波長変換材は、シンチレーション光を吸収してより長い波長の光を再放出する役割を果たし、実用的な発光スペクトルのシンチレーション光を得ることができる。高エネルギー X 線検出に応用する場合、通常のプラスチックシンチレータでは軽元素からなる有機物質であるために感度が低い。X 線領域での感度を補うために重元素原子を添加したプラスチックシンチレータが開発されている。このシンチレータによる X 線検出原理は、以下ようになる。まず、シンチレータに入射し

た X 線によって、光電吸収断面積の大きい重元素原子が光電効果により光電子を放出する。光電子は重元素周辺の溶媒を励起させて、この励起エネルギーが蛍光体に移行しシンチレーション光が発光する。市販されている重元素添加プラスチックシンチレータの例として、鉛が 5wt% 添加された、EJ-256-5% の特性を表 1.3 に示す。この蛍光体は非公開だが、PPO($C_{15}H_{11}NO$ 、2,5-diphenyloxazole)と波長変換材である POPOP($C_{24}H_{16}N_2O_2$ 、1,4-bis-2-(5-phenyloxazolyl))と推測される。

表 1.3 : EJ-256-5% シンチレータの特性[1.19][1.20]。

溶媒	ポリビニルトルエン
添加物	鉛 5wt%
密度 [g/cc]	1.08
最大放出波長 [nm]	424
減衰時間 [ns]	2.1
発光量 [photons/MeV]	5200
光出力% Anthracene	32
光出力の温度依存性	+20 ~ -60°C で変化なし
屈折率	1.58

1.2.3 半導体検出器 (HP-Ge 検出器、PIN フォトダイオード、SDD)

半導体検出器の X 線検出の原理は、半導体内に入射した X 線が半導体中でバンド構造を形成する原子の軌道電子を励起して電子・正孔対を作る現象に基づく。これは電子がエネルギーギャップを超えるエネルギーを付与されて価電子帯に存在している電子が励起して伝導帯へ移動し、価電子帯に正孔を形成する過程である。半導体のバンドギャップエネルギー E_g は 1 eV 程、絶縁体が 5 eV 以上なので同じエネルギーが付与された場合でも半導体で生成するキャリア数のほうが多い。キャリア数が多いことは、統計的な揺らぎが小さくなり、良好なエネルギー分解能を得るうえで有利である。

高純度ゲルマニウム検出器

半導体検出器は検出物質に半導体を用いた検出器である。半導体検出器の利点は優れたエネルギー分解能、コンパクト性、比較的速いタイミング特性が挙げられる。欠点は大型化が難しい点、放射線損傷による性能の劣化を起こしやすい点である。

高純度ゲルマニウム検出器(HP-Ge 検出器)は半導体として高純度ゲルマニウムを用い、その pn 接合部を検出媒体とした検出器である。原子番号 32 のゲルマニウムが検出素子であるため検出効率が高いが、K 吸収端エネルギー(11.1 keV)付近では吸収の大きさが大きく変化することに注意する必要がある。ゲルマニウムのバンドギャップエネルギー E_g は 0.74 eV(77 K)[1.21]と極めて小さく、室温では熱励起電子による漏れ電流が大きい。通常の HP-Ge 検出器では、ゲルマニウム結晶は液体窒素温度まで冷却して用いられる。100 keV で 400 ~ 500 eV のエネルギー分解能を得られる。より扱いやすい、電子冷却方式(パルスチューブ冷却)の検出器も実用化されている[1.22]。X 線測定用の典型的な HP-Ge 検出器の寸法は、直径数 10 mm、厚さ 5 ~ 10 mm ほどであり、体積が大きいほど高感度となる。ただし、厚いほどタイミング性能は悪化する。また、体積が大きいほどエネルギー分解能が劣化する関係がある。高純度ゲルマニウム検出器は、100 keV を超えるエネルギー領域まで優れたエネルギー分解能と十分な検出効率を示す利点を生かし、エネルギー分析が必要な放射光利用実験に応用されている。結晶分光器よりもエネルギー分解能は劣るが、感度が優れる点から磁気コンプトン散乱、共鳴非弾性散乱実験に使われてきた。ppm オーダーの高感度蛍光 X 線分析、蛍光 EXAFS 測定などにも応用されており、大強度蛍光 X 線に耐える HP-Ge 検出器の開発が進行している。例えば多チャンネル化により独立したチャンネルにかかる負荷を減らす、100 チャンネルのモノリシック HP-Ge アレイ検出器が市販されている[1.23]。

シリコンドリフト検出器

シリコンドリフト検出器(SDD)は厚い有感層を持つシリコン半導体検出器である。図 1.3 のように同心円状にストリップ型電極を配置し、広い領域でも均一な内部電場構造となるよう工夫されている。SDD でもペルチェ冷却や多素子化が試されている。放射光利用実験では 1 Mcps の高計数率で十分なエネルギー分解能を維持できる点から蛍光 XMCD などに応用されている。

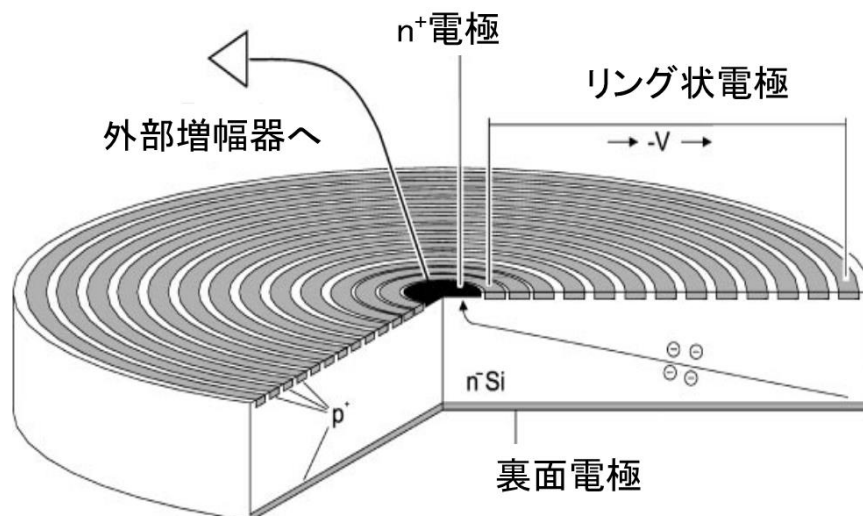


図 1.3 : シリコンドリフト検出器の構造。[1.24]の Fig. 1.を基に作成した。

PIN 型フォトダイオード

放射光利用実験に用いられるシリコンフォトダイオード検出器はPN型とPIN型に大別できる。PN型フォトダイオードは真空紫外から軟X線領域(数十 eV～10 keV)の入射光強度測定によく用いられる。ここでは、p型半導体とn型半導体の間に厚い真性半導体を挿入し、X線に対する吸収が底上げされたPIN型フォトダイオードについて説明する。

逆バイアス電圧を印加していないPINフォトダイオードは電離箱と同様に積分型の入射強度モニターとして使用できる。PINフォトダイオード検出器は高抵抗率の真性層(i層)がp層とn層に挟まれた p^+i-n^+ 構造をもつ。受光径は数cm、有感層の厚さは500 μm 近い素子が入手できる。廉価、小型、固体検出器であることなどにより扱いやすさに優れる。逆バイアス電圧を印加したならば数nsの時間応答が得られ、時分割測定において放射光のタイミング検出器としても応用される。近年では電子冷却により熱電子雑音の低減が可能なPIN型ダイオード検出器が流通している。 -15°C に冷却し暗電流を1.9 pAから3.4 fAに低減してX線反射率測定を行った報告がある[1.25]。

1.2.4 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

シリコン・アバランシェフォトダイオード(Si-APD)は内部増幅機能を持つ半導体検出器である。この増幅作用によってAPDは微小信号の検出に適しており、また、高速応答特性から近赤外・可視光領域の高速光通信用素子として利用されてきた。比例モードで作動させるSi-APDは100倍程度のAPD増幅率を持つた

め、Si-APDの空乏層で低エネルギーX線を直接検出する試みが電荷感応型増幅器を使って行われた[1.26]。十分な逆バイアス電圧が印加されていれば電荷キャリアは高速で掃引され、ナノ秒幅の高速電流パルスを出力できる。この特性により高速の電流/電圧変換型増幅器を使えば 10^8 cps までの高計数率パルス測定が実現できる。一般的に1個のSi-APD素子は薄く小さいことから 10^2 cps までの低い雑音レートで動作できる。そのため 10^{10} の広いダイナミックレンジが得られる。これらの特性を活かして精密X線回折実験による電子密度分布測定への応用[1.27]が行われた。磁気散乱による微弱なX線を検出できるため、磁気散乱への応用[1.28]やAPDは磁場の影響を受けにくいいため強磁場下の磁気散乱実験にも応用された。Si-APDのナノ秒幅パルス出力を使って時間分光を行うと、サブナノ秒の時間分解能が得られる。8.05 keVのX線を100 psの時間分解能（半値幅）で観測した報告もある[1.29]。放射光核共鳴散乱実験では大強度の非核共鳴電子散乱線と微弱な核共鳴散乱線を時間分光測定で分離するため、Si-APDは非常に適しており標準的な検出器となっている。Si-APDは低エネルギー電子線検出に応用することもできる。岸本らは、 ^{197}Au 原子核励起後に放出される内部転換電子をSi-APDによって検出し、時間分光法によってNEET現象の観測に成功した[1.30]。前に述べた核共鳴散乱実験では内部転換係数の大きい核種の場合に共鳴 γ 線と共に放出される内部転換電子をSi-APDによって特性X線などと合わせて検出する放射光メスバウアー吸収法が行われている[1.31]。Si-APDは100 keV以下の電子線に対して100%に近い検出効率を示すため、計数効率の高い測定が可能となる。

Si-APD市販標準品の一般的な受光面の大きさは直径数mmである。空乏層の厚さは10 μm ~150 μm ほどで、X線検出では感度を高めるため厚い素子が用いられることが多い。比例モードSi-APDは高計数率測定に適し、放射光光源の高性能化に伴い今後も様々な実験に応用されていくと考えられる。近年ではピクセル化の研究も進行しているが[1.32]、単素子のSi-APDをX線検出器に応用する場合には検出効率の低下により低エネルギーX線(<30 keV)に限られてくる。これは、有感部が薄いシリコンのため感度が低下してしまうことによる。

第1章の参考文献

- [1.1] 高良和武監修, “シンクロトロン放射光利用技術”, 株式会社サイエンスフォーラム (1989) p.14.
- [1.2] 大橋治彦, 平野馨一編, “放射光ビームライン光学技術入門”, (2008) p.20.
- [1.3] 大橋裕三編, “X線・中性子による構造解析”, 東京化学同人 (2015) p.17.
- [1.4] 太田俊明編, “X線吸収分光法”, アイピーシー (2002) p.5.
- [1.5] K. Ichiyangi, T. Sato, S. Nozawa, K. H. Kim, J. H. Lee, J. Choi, A. Tomita, H. Ichikawa, S. Adachi, H. Iheec and S. Koshihara, “100 ps time-resolved solution scattering utilizing a wide-bandwidth X-ray beam from multilayer optics”, *J. Synchrotron. Rad.* **16** (2009) 391.
- [1.6] F. Schotte, M. Lim, T.A. Jackson, A.V. Smirnov, J. Soman, J.S. Olson, G.N. Phillips Jr, M. Wulff, P.A. Anfinrud, “Watching a protein as it functions with 150-ps time-resolved X-ray crystallography”, *Science* **300** (2003) 1944.
- [1.7] 日本放射光学会編, “放射光が解き明かす驚異のナノ世界”, 講談社 (2011) p.36.
- [1.8] 理化学研究所, SACLA ホームページ, <http://xfel.riken.jp/index.html> (cited: 2016-10-15).
- [1.9] 雨宮慶幸, 伊藤和輝, “二次元検出器の原理と性能”, *日本結晶学会誌* **45** (2003) 163.
- [1.10] 岸本俊二, 田中義人編, “放射光ユーザーのための検出器ガイド”, 講談社 (2011) p.18.
- [1.11] 岸本俊二, 田中義人編, “放射光ユーザーのための検出器ガイド”, 講談社 (2011) p.25.
- [1.12] G.F. Noll, “Radiation detection and measurement”, John Wiley & Sons, inc., 4th ed. (2010) p.235.
- [1.13] I. Holl, E. Lorenz, G. Mageras, “A measurement of the light yield of common inorganic scintillators”, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **35** (1) (1988) 105.
- [1.14] W.V. Sciver, “Alkali halide scintillators”, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **3** (1956) 39.
- [1.15] 浜松ホトニクス社, “PMT ハンドブック:第4章”, (2015) p.34.
- [1.16] 岸本俊二, 田中義人編, “放射光ユーザーのための検出器ガイド”, 講談社 (2011) p.100.
- [1.17] I.V. Khodyuk, P.A. Rodnyi, and P. Dorenbos, “Non-proportional scintillation response of NaI:Tl to low energy X-ray photons and electrons”, *J. Appl. Phys.* **107** (2010) 113513.
- [1.18] J.B. Birks, “The theory and practice of scintillation counting”, Pergamon press, Oxford, (1964) p.47.
- [1.19] Eljen Technology, Data sheet of EJ-256, <http://www.eljentechnology.com/index.php/products/loaded-scintillators/79-ej-256> (cited: 2014-1-30).
- [1.20] Saint Gobain Cristals, Data sheet of BC-452, <http://www.crystals.saint-gobain.com/uploadedFiles/SG-Crystals/Documents/SGC%20BC452%20Data%20Sheet.pdf> (cited: 2014-1-30).

- [1.21] E. Sakai, "Present status of room temperature semiconductor detectors", Nucl. Instrum. and Methods **196** (1982) 121.
- [1.22] Canberra Industries Inc., Data sheet of Cryo-Pulse5 Plus, http://www.canberra.com/products/detectors/pdf/Cryo-Pulse_5_plus_C49275.pdf (cited:2016-10-11).
- [1.23] Canberra Industries Inc., "Germanium Array Detectors", (2007) <http://www.canberra.com/products/detectors/pdf/Germ-Array-Det-SS-M1151.pdf>, (cited:2016-10-11).
- [1.24] P. Lechner, C. Fiorini, R. Hartmann, J. Kemmer, N. Krause, P. Leutenegger, A. Longoni, H. Soltau, D. Stötter, R. Stötter, L. Strüder, U. Weber, "Silicon drift detectors for high count rate X-ray spectroscopy at room temperature", Nucl. Instrum. and Methods A **458** (2001) 281.
- [1.25] L. Zhang, J. Stanek, S.S. Hafner, H. Ahsbahs, H.F. Grünsteudel, J. Metge, and R. Ruffer, "Fast X-ray reflectivity measurement using a cooling PIN photodiode", Materials Science and Engineering **24** (2011) 012025.
- [1.26] M.R. Squillante, R. Farrell, J.C. Lund, F. Sinclair, G. Entine, and K.R. Keller, "Avalanche diode low energy X-ray and nuclear particle detector", IEEE Trans. Nucl. Sci. **33** (1) (1986) 336.
- [1.27] V.A. Streltsov, N. Ishizawa, and S.Kishimoto, "Synchrotron X-ray imaging of the electron density in RFeO₃ (R = Y, Ho) using an APD detector", J. Synchrotron Rad. **5** (1998) 1309.
- [1.28] S. Kishimoto, H. Adachi, M. Ito, "A cooled avalanche photodiode detector for X-ray magnetic diffraction experiments" , Nucl. Instrum. and Methods A **467-468** (2001) 1171.
- [1.29] S. Kishimoto, "Bunch-purity measurements of synchrotron X-ray beams with an avalanche photodiode detector", Nucl. Instrum. and Methods A **351** (1994) 554.
- [1.30] S. Kishimoto, Y. Yoda, M. Seto, Y. Kobayashi, S. Kitao, R. Haruki, T. Kawauchi, K. Fukutani, and T. Okano, "Observation of Nuclear Excitation by Electron Transition in ¹⁹⁷Au with Synchrotron X-rays and an Avalanche Photodiode", Phys. Rev. Lett. **83** (2000) 1831.
- [1.31] R. Masuda, Y. Kobayashi, S. Kitao, M. Kurokuzu, M. Saito, Y. Yoda, T. Mitsui, F. Iga, and M. Seto, "Synchrotron radiation-based Mössbauer spectra of ¹⁷⁴Yb measured with internal conversion electrons", Appl. Phys. Lett. **104** (2014) 082411.
- [1.32] S. Kishimoto, H. Yonemura, S. Adachi, S. Shimazaki, M. Ikeno, M. Saito, T. Taniguchi, M. Tanaka, "64-Pixel linear-array Si-APD detector for X-ray time-resolved experiments", Nucl. Instrum. and Methods A **731** (2013) 53.

第2章 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

これまでに行われた、比例モード Si-APD を受光素子として使うシンチレーション検出器の研究としては、RI による MeV オーダーの高エネルギー γ 線を対象としたものがあるが、電荷感応型前置増幅器を使う低い計数率でのエネルギー測定だった[2.1]。タイミング特性に着目した研究は、PET での Time Of Flight 法に関して 511 keV の γ 線を使って 1.02 ns (FWHM) という結果が報告されている[2.2]。しかし、 10^6 cps を超えるような高い計数率での時間分光実験に比例モード Si-APD を受光素子とするシンチレーション検出器が使われた例はなかった。これから述べる APD シンチレーション検出器は、100 keV 程度までの高エネルギー X 線領域で十分な検出効率を有し、 10^7 cps を超える高計数率でも計測が可能でサブナノ秒時間分解能で時間スペクトル測定が可能な高速検出器である。

2.1 比例モード Si-APD を用いた X 線シンチレーション検出器の特徴

2.1.1 検出効率

APD シンチレーション検出器の狙いの一つは、Si-APD による X 線の直接検出方式よりも高エネルギー X 線に対する検出効率を向上させることにある。X 線ビームを使って求めるパルス型検出器の固有検出効率 ε_{int} は次式で定義される[2.3]。

$$\varepsilon_{int} \equiv \frac{\text{記録されたパルス数}}{\text{検出器に入射した X 線ビーム光子数}} \quad (2.1)$$

検出器の窓材による吸収を無視すれば、検出媒体の固有検出効率 ε_i は次式で与えられる。

$$\varepsilon_i = (1 - e^{-\mu_M \rho t}) \quad (2.2)$$

ここで、 μ_M はX線に対する検出媒体の質量吸収係数、 ρ は検出媒体の密度、 t はX線が検出媒体内を通過する距離である。この式は、X線の質量吸収係数と物質の密度、X線が物質中を通過する距離が大きいほど固有検出効率が大きくなることを示す。100 keV以下のX線エネルギーに対しては光電吸収の寄与が支配的となり、光電効果の反応断面積 σ は原子番号の4~5乗に比例する。Si-APDは検出媒体が原子番号14のシリコンで通常は100 μ m程度と薄いため高エネルギーX線の吸収は大きくない。図2.1の赤線はシリコンの固有検出効率の計算値である。1~100 keVのX線エネルギーを横軸に示し、この領域で支配的で全吸収ピークとして観測が可能な光電効果の寄与のみの質量吸収係数[2.4]を縦軸の計算に用いた。シリコンの密度は2.33 g/cm³ [2.5]、X線がシリコンを通過する厚さは、現在入手できる最も厚いSi-APD素子の厚さである150 μ mを仮定した。この条件においてシリコンの固有検出効率は10 keV付近のX線エネルギーで急減し67.4 keVでは0.13%となる。

APDシンチレーション検出器の場合、発光寿命が短い高速シンチレータを選択する必要がある。代表的な高速シンチレータとしてプラスチックシンチレータがある。これは有機材料のため固有検出効率は小さいが、これを補った重元素添加プラスチックシンチレータが市販されている。図2.1の黒線は市販の鉛添加プラスチックシンチレータ(Eljen社、EJ-256、鉛添加量：5wt%)の固有検出効率の計算値である。X線が通過するシンチレータの厚さは一般的なAPD受光面のサイズ(直径数mm)と同程度のシンチレータを使用するとして3mmを想定した。EJ-256は重量百分率5wt%の鉛と水素、炭素で構成されていると仮定して、水素と炭素の重量百分率を求め、この化合物の全質量吸収係数を式2.2に適用して固有検出効率を計算した。データシート[1.19]より密度1.081 g/cm³、1立方センチメートル当たりの水素原子数：5.20 $\times 10^{22}$ 個、1立方センチメートル当たりの炭素原子数：4.62 $\times 10^{22}$ 個と仮定する。炭素原子1個の質量は水素1個の質量の12倍のため、炭素原子の重量百分率は次式より86.8wt%と求まる。

$$95\text{wt}\% \times \frac{4.62 \times 12}{(4.62 \times 12 + 5.20)} = 86.8\text{wt}\%$$

従って、水素原子の重量百分率は8.2wt%となる。

図2.1に示すように、Pb-L吸収端エネルギー(15 keV付近)とPb-K吸収端エネルギー(88 keV付近)を超えるとところでEJ-256の固有検出効率は急増している。~3 keV以上では常にシリコンを上回り、67.4 keVでは5.2%となる。この値は厚さ150 μ mのシリコンと比べて40倍大きい。

以上より、重元素を多く含む数mm角のシンチレータを利用したAPDシン

チレーション検出器ならば、通常の Si-APD 1 個の直接吸収に比べ飛躍的な検出効率の向上が見込める。X 線が厚さ 3 mm の EJ-256 を通過する場合は、67.4 keV X 線に対して 5%以上の固有検出効率を得られるため、検出効率 10%以上の検出器の開発は現実的な目標となる。

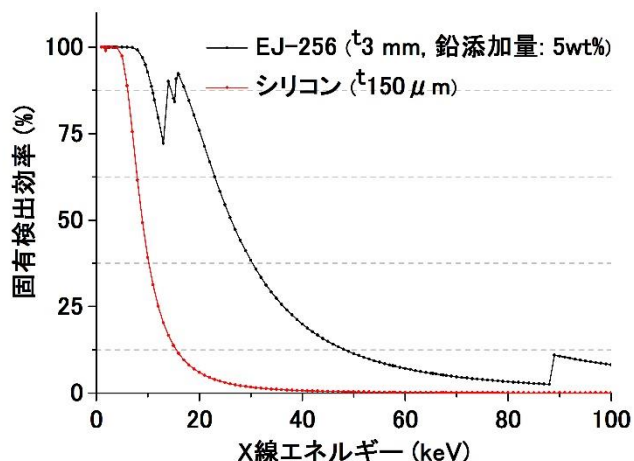


図 2.1 : シリコン (赤線) と鉛添加プラスチックシンチレータ EJ-256(黒線)の固有検出効率の計算値。シリコンは厚さ : 150 μ m、EJ-256 は厚さ : 3 mm を仮定して計算した。

2.1.2 APD 増幅率

APD シンチレーション検出器はシンチレータからの光を比例モード Si-APD によって受光し、その信号を増幅できる。信号増幅原理はシンチレーション光の受光によって発生した電子のアバランシェ増幅である。これは高電界の領域で加速された電子が衝突電離を繰り返し、電荷を増幅することによる。1 個の電子または正孔が単位距離移動することによって生成する電子・正孔対の数をイオン化率と呼び、電子に対する値を α 、正孔に対する値は β と表される。シリコンは、イオン化率比 $k : \beta/\alpha \sim 1/10 \sim 1/50$ のため Si-APD では電子の増幅が信号に大きく寄与する。全空乏層幅 ($x=0 \sim W$) でアバランシェ増幅が発生したとき、電子増幅による APD 増幅率 M は式 2.3 で表される[2.6]。

$$M = \frac{1}{1 - \int_0^W \alpha e^{-\int_x^W (\alpha - \beta) dx'} dx} \quad (2.3)$$

式 2.3 の指数関数の項は電界強度に依存するので、逆バイアス電圧 V_r によって電界強度を変化させれば増幅率を調整できる。 $M=\infty$ となる状態に至る電圧をブレイクダウン電圧 V_B と呼び、 V_B 以下の動作モードを比例モード、これ以上をガイガーモードと呼ぶ。 V_B より小さい V_r での増幅率は式 2.4 の経験式で表される。

$$M = \frac{1}{1 - \left| \frac{V_r}{V_B} \right|^{n_M}} \quad (2.4)$$

APD 増幅率は素子を冷却するほど増大する[2.7]。冷却により半導体内の格子振動が抑制されるとキャリアと格子の衝突頻度が減り、キャリアの平均自由行程が長くなる。これにより衝突電離に必要なエネルギーを得るキャリアが増え、イオン化率が増大するためである。本研究で用いる比例モード Si-APD と同じ構造の素子(浜松ホトニクス社、S8664-55[2.8])について、ピーク発光波長 430 nm の光に対する APD 増幅率の逆バイアス電圧依存性(式 2.5)と温度依存性(式 2.6)が報告されている[2.9]。

$$\frac{1}{M} \frac{dM}{dV} \sim + 3.3\%/V \quad (2.5)$$

$$\frac{1}{M} \frac{dM}{dT} \sim - 2.2\%/^{\circ}\text{C} \quad (2.6)$$

典型的な光電子増倍管(PMT)の値： $+2\%/V$ 、 $-0.3\%/^{\circ}\text{C}$ [2.10]に比べ、この APD 増幅率は温度・逆バイアス電圧に対する依存性が強い。S8664-30K の APD 増幅率と温度の関係について、150 mK までの実験が報告されている[2.11]。この結果では、冷却に伴う APD 増幅率の増加は 77 K まで起こり、150 mK から 77 K までは安定する。

Si-APD の直接吸収で測定された APD 増幅率は、X 線エネルギーが高いほど可視光に対する APD 増幅率を下回る傾向がある[2.12]。この原因は X 線励起によって APD 内で発生する電荷キャリアの深さ方向分布が、入射 X 線のエネルギーによって変化するためと考えられる。深さ方向に依存して APD の内部電界強度が異なるため、その内部電界で増幅された電子 1 個当たりの出力電荷量(APD 増幅率)の差が生じたと考えられる。実際に、APD の構造により可視光を基準に

した X 線に対する増幅率が変化することが報告されている[2.13]。

APD シンチレーション検出器では Si-APD による X 線直接測定に比べ APD 増幅率を増大させる必要がある。Si-APD 内部で生成する一次電荷のキャリア数はシリコンの電子・正孔対生成エネルギー(300 K において 3.63 eV[2.14])で決まる一方、シンチレーション検出器の場合は光の収集効率・受光素子の量子効率による損失があり、1 個の電荷キャリア発生に必要なエネルギーは 100 eV 以上となる[2.15]。加えて、一般的に高速シンチレータであるプラスチックシンチレータの発光量は小さい。したがって十分な信号波高を得るために APD 増幅率を可能な限り高めたい。市販の比例モード Si-APD には数百倍以上の APD 増幅率が得られる素子がある[2.8]。しかし、雑音を十分低く保つためには 200 倍程度が限界となる。もし増幅率 10^3 倍の高利得な高周波アンプを使用できるならば、 $200 \times 10^3 = 2 \times 10^5$ 倍の電荷増幅率が得られる。この値は PMT の増幅率 $\sim 10^6$ に近く、十分な波高の高速パルスが得られると考えられる。

2.1.3 雑音特性

APD シンチレーション検出器は高い APD 増幅率で動作させるために増幅率の揺らぎによる雑音の寄与が大きい。増幅率の揺らぎはイオン化率の変動により発生する雑音源で、過剰雑音と呼ばれる。過剰雑音は、過剰雑音係数 F を用いて表される。フォトダイオードの基本的な雑音は、空乏層内の電子・正孔のランダムな運動により生ずるゆらぎで、ショット雑音と呼ばれるものである。ショット雑音 i_{Ns} は f から $f+df$ 周波数帯域上の電流の二乗平均値として次式のように表される[2.16]。

$$\overline{i_{Ns}^2} = 2eI_{in}df \quad (2.7)$$

ここで、 e は素電荷、 I_{in} は入射光によって空乏層内に発生した電流である。APD のショット雑音電流 i_{Ns_APD} の振幅の二乗平均は、過剰雑音係数 F を用いて次式で表される[2.17]。

$$\overline{i_{Ns_APD}^2} = 2eI_{in}M^2dfF \quad (2.8)$$

ここで、過剰雑音係数 F は増幅に伴う雑音がない場合とある場合の比として定義される。 F は M と k を用いて次式で表される[2.18]。

$$F = M \left\{ 1 - (1 - k) \left(\frac{M - 1}{M} \right)^2 \right\} \quad (2.9)$$

式 2.9 のように、過剰雑音係数は増幅率が大きいほど増大し、 k が 0 に近いほど小さくなる。一定の条件のもとでは信号の増幅が信号対雑音比の改善に役立つ。例えば、高速応答のため CR 時定数を小さくする必要がある場合には、負荷抵抗を大きくして熱雑音の寄与を抑える手段はとれず、APD ならば信号増幅によってフォトダイオードに比べ優れた信号対雑音比を実現できる。過剰雑音係数は温度低下により増大することはなく、冷却すると暗電流の低減によりエネルギー分解能が向上する[2.19]。

APD の雑音は、入射光がなく逆バイアス電圧が印加された状態で流れる電流（暗電流 I_d ）によって評価される。暗電流は発生原因により式 2.10 の各項のように分けられる。

$$I_d = I_{dD} + I_{dg} + I_{ds} + I_{dt} \quad (2.10)$$

拡散電流 I_{dD} は空乏層端まで拡散した熱電子などによって発生する電流を表し、半導体材料で決定される。発生電流 I_{dg} は空乏層内に存在する不純物や結晶の積層欠陥等によって形成される深いエネルギー準位が原因である。この準位によりキャリアが放出または捕獲され雑音電流となる。これらは内部増幅されるため注意が必要である。表面リーク電流 I_{ds} は結晶表面に露出する pn 接合を介して流れる成分である。トンネル電流 I_{dt} は pn 接合のバンドギャップで発生するトンネル効果が原因の電流である。

これらすべての雑音源に共通する点は、pn 接合面積または界面での空乏層面積に比例することである。よって低雑音の測定のためには受光面の小さい素子が有利となる。一般的に暗電流の温度依存性の実測値はシリコン受光素子の場合、次式に示す依存性を示すことが知られている。

$$I_d \propto e^{-\frac{E_g}{2k_B T}} \quad (2.11)$$

E_g はバンドギャップエネルギー、 k_B はボルツマン定数、 T は温度である。このた

め、Si-APD の冷却により低雑音の測定ができる。比例モード Si-APD は受光面積が数 mm² の素子 1 個の場合、0.01~0.05 cps 程度の低雑音で測定できる。ただし APD シンチレーション検出器ではシンチレーション光検出のために増大させた APD 増幅率で測定する必要があり、過剰雑音の増大に注意する必要がある。

2.1.4 エネルギー分解能

X 線検出器のエネルギー分解能 $\Delta E/E$ は分解能の値をスペクトル上の幅で表現する場合は、幅が狭いほどエネルギーが近い 2 本の放射線を区別する能力が高いことを示す。この値は単一エネルギーの放射線によるパルス波高分布におけるピークの半値全幅 $FWHM$ をピークの中央値 H_0 で割った値を用いることが多い。

$$\frac{\Delta E}{E} \equiv \frac{FWHM}{H_0} \quad (2.12)$$

APD シンチレーション検出器のエネルギー分解能 $\Delta E/E$ を[2.20]に基づいて導く。APD 内で発生した初期光電子数の平均値を N 、APD 増幅率を M とすると、出力信号の電子数の平均値 NM の分散 $ver(NM)$ は次式で表される。

$$ver(NM) = M^2 ver(N) + NM^2(F - 1) \quad (2.13)$$

ここで、 F は過剰雑音因子であり式(2.9)の F と同じである。信号の全分散 $ver(NM)_{tot}$ はプリアンプと検出器の雑音を含み、APD とプリアンプの等価雑音電荷 ENC を用いて次式で表される。

$$ver(NM)_{tot} = M^2[ver(N) + N(F - 1) + ENC^2] \quad (2.14)$$

N の確率密度分布をガウス関数と仮定すると、 $\Delta E/E$ は次式で表される。

$$\frac{\Delta E}{E} = \frac{2.35\sqrt{ver(NM)_{tot}}}{NM} = \frac{2.35}{N}\sqrt{ver(N) + N(F - 1) + ENC^2} \quad (2.15)$$

第 1 項はシンチレータ結晶の非一様性と発光量の変動による光収集効率のばらつきを表す。第 2 項はアバランシェ増幅に伴う統計的変動を表し APD 増幅率に依存する。第 3 項は電子回路雑音を表し、 ENC は APD の端子間容量や暗電流、

アンプの波形整形時間に依存する[2.21]。冷却すると暗電流が低減するので *ENC* が減少しエネルギー分解能の向上が期待できる。

PMT によって受光するタイプのシンチレーション検出器と比べ APD の量子効率が高い点が優れたエネルギー分解能を得るために有利となることがある。CsI(Tl)などのいくつかのシンチレータを搭載した APD (浜松ホトニクス社、S8664-1010)および PMT (浜松ホトニクス社、R7899EG)の、 ^{137}Cs (662 keV)に対するエネルギー分解能を測定した報告[2.22]では、動作温度+20°C・CsI(Tl)の比較において APD のエネルギー分解能の値($4.9 \pm 0.2\%$)は PMT の場合($5.9 \pm 0.1\%$)よりも優れていた。CsI(Tl)を搭載した S8664-55 の 59.5 keV でのエネルギー分解能は $9.4 \pm 0.3\%$ であった。

APD シンチレーション検出器のエネルギー分解能は、利用する高速シンチレータの小さい発光量が不利となる。代表的な高速シンチレータとして知られるプラスチックシンチレータの発光量は NaI(Tl)の 10%(3800 photons/MeV)程度である。高速シンチレータの鉛添加プラスチックシンチレータ EJ-256 の発光量(5200 photons/MeV[1.18])は、CsI(Tl) (発光量 52000 photons/MeV[1.12])の 1/10 のため、ポアソン統計に従う光電子数の標準偏差は $\sqrt{10}$ 倍となる。このため、例えば 59.5 keV γ 線に対して CsI(Tl)により得られたエネルギー分解能： $9.4 \pm 0.3\%$ を参考にすると、EJ-256 を使用した場合のエネルギー分解能は $\sqrt{10} \times 9.4 \sim 30\%$ に劣化すると予想される。

2.1.5 パルス波形

APD シンチレーション検出器の出力パルスは、シンチレーション光の時間分布に比例モード Si-APD の応答を反映した波形となる。可視光吸収によってリーチスルー型 Si-APD のドリフト領域で電子が発生した場合を例に、キャリア走行時間から理想的な出力パルスの時間構造について考える[2.23]。リーチスルー型 Si-APD は受光面側から順に p^+ 、 π 、 p 、 n^+ 層からなる半導体受光素子である。電圧を印加すると内部電場が発生し中央の π 層は電子をアバランシェ領域へ高速に運ぶドリフト領域として働く。 π 層は厚く、有感領域を広くとれるように設計される。発生した電子は増幅領域に向かって走行時間 t_e でドリフトする。電子は増幅領域に侵入するとアバランシェ増幅を起こし、大量の電子・正孔対が発生する。この増幅に要する時間を増倍時間 t_M と呼ぶ。 t_M は APD 増幅率 M と平均自由行程を進む時間 t_A を用いて、次式で表される。

$$t_M \approx Mt_A \quad (2.16)$$

$t_A \approx 1 \text{ ps}$ のため寄与は小さいが、増幅率に比例して増大する特徴があり、例えば $M \sim 200$ 倍ならば $t_M \approx 0.2 \text{ ns}$ となる。 t_M が十分小さければ、出力パルスの立下り時間 t_r はAPDとアンプによって構成する回路の入力RC時定数 t_{RC} と t_e によって次式で表される。

$$t_r \approx t_e + t_{RC} \quad (2.17)$$

これに引き続き、増幅領域で発生した正孔が反対側へ空乏層内をドリフトする。この走行時間 t_h は増幅領域よりもドリフト領域の電界強度が小さく、正孔のドリフト速度は電子を下回るため $t_e < t_h$ となる。この正孔が電極に完全に収集された時点でパルスは終端する。以上の関係からパルス幅 t_{FWHM} は次式のように近似される。

$$t_{FWHM} \approx t_h + t_{RC} \quad (2.18)$$

t_{RC} に寄与するSi-APD検出器の接合容量 C は、受光面の面積 S と空乏層厚さ W に逆比例し、次式のように近似できる[2.24]。

$$C = \frac{\epsilon\epsilon_0}{W} S \quad (2.19)$$

ここで、 ϵ_0 は真空中の誘電率、 ϵ はシリコンの比誘電率である。従って、接合容量 C を抑えるためには受光面積が小さく、空乏層が厚いAPD素子である必要がある。リーチスルー型Si-APDは t_{RC} を小さく、有感領域を広くとるために W は厚く設計されている。 W の極めて厚い素子では W の厚みがキャリア（電子）の走行時間に比例するため、タイミング特性に悪影響を及ぼす。空乏層の全領域をキャリアが飽和ドリフト速度 10^7 cm/s で移動した場合、 $W = 100 \text{ }\mu\text{m}$ の素子は走行時間 1 ns となる。実際に得た高速パルスの例として、リーチスルー型Si-APD(浜松ホトニクス社、S2384)による 14.4 keV X 線の直接測定において $t_r \sim 1.7 \text{ ns}$ 、 $t_{FWHM} \sim 2.4 \text{ ns}$ の高速パルスを観測した報告がある[2.25]。

次にAPDシンチレーション検出器の出力パルス波形を検討する。図2.2に示すSi-APDの等価回路において、シンチレーション光により $i(t)$ の電流が発生した状況を考える[2.26]。

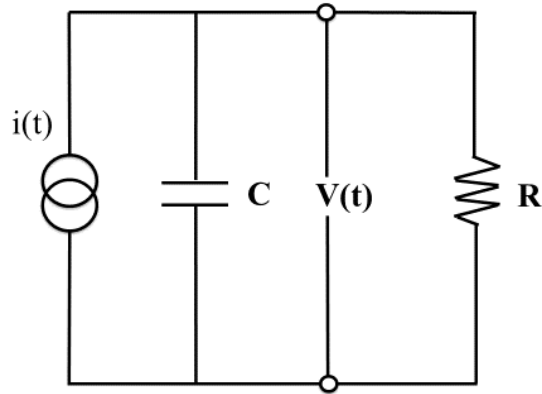


図 2.2 : シンチレーション光により $i(t)$ の電流が発生した Si-APD の等価回路。

高速プラスチックシンチレータの立ち上がり時間は非常に速く、NE111 では $t_r \sim 0.2 \text{ ns}$ が記録されている[2.27]。瞬時に発生した励起後時刻 t における即発蛍光の強度 I はシンチレータの減衰時間 τ を用いて次式で表される。

$$I = I_0 e^{-t/\tau} \quad (2.20)$$

式 2.20 で表されるシンチレーション光によって APD 内に発生した電流のモデルは次式で表される。

$$i(t) = i_0 e^{-t/\tau} \quad (2.21)$$

初期電流 i_0 は全パルスにわたって収集された全電荷 Q を用いて次式で表される。

$$Q = \int_0^{\infty} i(t) dt = \frac{i_0}{\tau} \quad (2.22)$$

Q はアバランシェ増幅により M 倍され、APD の出力電圧パルス $V(t)$ は次式で表される。

$$V(t) = \frac{M}{1/\tau - \theta} \cdot \frac{Q}{C\tau} \cdot (e^{-\theta t} - e^{-t/\tau}) \quad (2.23)$$

ここで、 τ はシンチレータの減衰時間、 θ は等価回路の時定数 RC の逆数である。式 2.23 の指数関数の項が素早く減衰するためには、時定数と減衰時間が共に小さい値を選ぶ必要がある。例えば端子間容量 $C = 20$ pF 程度かつ受光径 3 mm、空乏層厚さ $10 \mu\text{m}$ の Si-APD 素子を考える[2.8]。負荷抵抗 $R = 50 \Omega$ ならば時定数は 1 ns となるが、シンチレータの減衰時間は高速なプラスチックシンチレータを選択したとしても 2 ns 程度に留まる。このため十分に高速な APD 素子を使用したならば出力パルスのパルス幅はシンチレータの減衰時間で決まる。

2.1.6 計数率特性

APD シンチレーション検出器は、比例モード Si-APD がナノ秒幅の高速パルス出力を可能にするため高計数率の測定が期待できる。パルス幅(FWHM)1.1 ns の高速パルスを出力する Si-APD 検出器を用いた高計数率測定システムにより、8.0 keV X 線を最高計数率 3.25×10^8 cps で測定した例がある[2.28]。放射光リング・マルチバンチモードのパルス X 線に対する計数率モデルについて[2.29]を参考に述べる。

X 線管や RI より放出される X 線から得られるランダムパルスの場合、計数率のモデルは麻痺型モデルと非麻痺型モデルが用いられる。麻痺型モデルは一つのパルスを出力した後、不感時間以内に次の X 線が入射してパルスが出力された場合にパルスが重なり不感時間が延びる計数システムを表す。このモデルが X 線を観測できるイベントは入力 X 線パルスの間隔が不感時間以上の場合のみとなる。非麻痺型モデルは不感時間以内に入射した X 線ではパルスが出力されないような計数システムを考え、不感時間の伸長は発生しない。それぞれのモデルによる出力計数率 m は入射光子数レート n と不感時間 τ を用いて次式で表される。

$$\text{麻痺型モデル} \quad m = ne^{-(n\tau)} \quad (2.24)$$

$$\text{非麻痺型モデル} \quad m = \frac{n}{1 + n\tau} \quad (2.25)$$

上の式はランダムな X 線の入射間隔がポアソン分布に従うと仮定して導かれ

る。一方で、蓄積リングから放出される放射光は一定の周期とバンチ間隔（通常は数ナノ秒）で周回する電子バンチから発生する。このため、電子バンチ間隔と計数システムの不感時間の大小関係が計数率のふるまいを決める。検出器の検出効率は電子バンチから放出される X 線が観測される確率を表す。

1 電子バンチ当たり x 個の X 線が観測される確率: $P_x(\mu)$ は、1 電子バンチ中の電子数が十分大きいと仮定できる。電子バンチの周期 f ($1/f$ は電子バンチの間隔)、検出器の検出効率 ε 、計数システムの応答時間（不感時間） τ とすると、 x の平均値 μ は $\mu = \varepsilon n / f$ となり、 $P_x(\mu)$ は次式のように表される。

$$P_x(\mu) = \mu^x \frac{e^{(-\mu)}}{x!} \quad (2.26)$$

蓄積リングを周回する 1 個の電子バンチの時間幅 ΔT_B (FWHM) は 120 ps ~ 140 ps 程度と短く、 $\tau > \Delta T_B$ について考える。 $\Delta T_B + (k-1)/f < \tau < k/f$ ($k=1, 2, 3, 4, \dots$) で、リングを周回する電子バンチの間隔が等しい場合、出力計数率 m は次の 2 通りのモデルから式が与えられる。

$$\text{麻痺型モデル} \quad m = f \left[1 - e^{-\left(\frac{\varepsilon n}{f}\right)} \right] e^{-\left(\frac{(k-1)\varepsilon n}{f}\right)} \quad (2.27)$$

$$\text{非麻痺型モデル} \quad m = \frac{f \left[1 - e^{-\left(\frac{\varepsilon n}{f}\right)} \right]}{1 + (k-1) \left[1 - e^{-\left(\frac{\varepsilon n}{f}\right)} \right]} \quad (2.28)$$

出力パルス幅 2 ns 以上 4 ns 以下に対応する $k = 2$ の条件かつ麻痺型の応答となると想定して、最高計数率を導く。実際に蓄積リングを周回する電子バンチ数は運転モードで異なり 2 ns 間隔 ($f = 500.1$ MHz) で蓄積リングの 1 周に存在できる電子バンチの数(ハーモニック数) N_h に対して N_e 個の電子バンチが周回していたと仮定する。この場合、1 秒あたりに周回する電子バンチの数は f ではなく、次式で表される f' で与えられる。

$$f' = \frac{N_e}{N_h} f \quad (2.29)$$

麻痺型モデルにおける最高計数率 m_{max} は n について微分した式が0となる条件から、次式のように求められる。

$$m_{max} = \left(\frac{f'}{k}\right) \left[\frac{k-1}{k}\right]^{k-1} \quad (2.30)$$

$f' = f = 500.1$ MHz の場合に $k = 2$ を式 2.30 に代入すると、 $m_{max} = 1.25 \times 10^8$ cps が求まる。APD シンチレーション検出器の場合にはシンチレーション光の時間構造により APD による直接検出の場合よりも出力パルス幅は広がりやすいが、X 線直接検出で可能な 10^8 cps を超える計数率測定を APD シンチレーション検出器でも実現するためには、出力パルスは 4 ns 以下でなくてはならない。

2.1.7 時間分解能

時間分解能を決定づける要因は、時間ジッターと時間ウォークに分けられる。時間ジッターは波高が一定の入力パルスによるタイミングの不確かさを意味する。時間ウォークはパルス波高の変動と立ち上がり部分の傾斜の変動に起因する不確かさである。

最も直接的なリーディングエッジタイミング法で入力パルスの時間を検出する場合に時間ジッターの及ぼす影響を図 2.3 に示す。

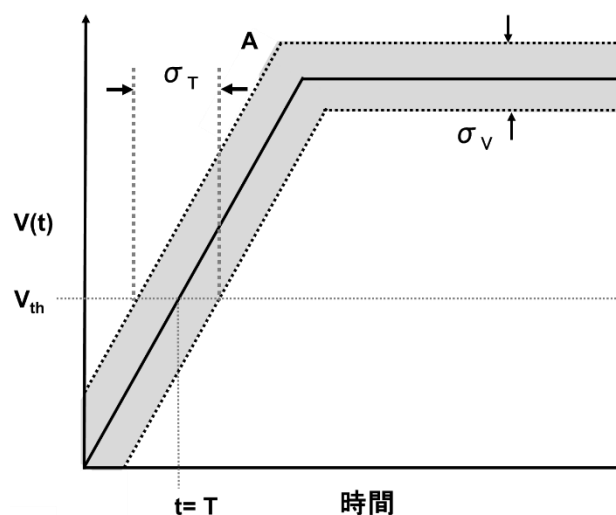


図 2.3 : リーディングエッジ型ディスクリミネータの入力パルスの雑音による時間ジッター。[2.30]の Fig. 6.を基に作成した。

入力パルス A をロジックパルスに変換するとき、トリガー時間の不確かさ σ_T は次式で表される[2.30]。

$$\sigma_T \cong K \frac{\sigma_V}{\left| \frac{dV}{dt} \right|_{t=T}} \quad (2.31)$$

ここで、 σ_V は信号パルスの RMS ノイズ、 $\left| \frac{dV}{dt} \right|_{t=T}$ はトリガー時刻 ($t = T$) における信号パルスの傾き、 K はディスクリミネータの種類に依存する係数である。リーディングエッジ型ディスクリミネータならば $K=1$ となる。式 2.31 では信号パルスはトリガー時刻で線形と近似した。 σ_T は信号パルスに含まれる雑音小さく、立ち上がり時間が短い信号パルスならば小さく抑えられる。

APD シンチレーション検出器はシンチレーション検出方式のため、次のような時間ジッターの要因が挙げられる。

- 1) シンチレータから発生するシンチレーション光子数の変動
- 2) シンチレータ内での光子の移動時間の変動
- 3) APD 増幅率の変動
- 4) 電気回路雑音

1)はシンチレータの発光量と共に増大する。2)は X 線のビーム形状や照射位置、シンチレータや受光面の形状に関係する。

次に、入力パルスの立ち上がり時間と波高の変動による時間ウォークを図 2.4 より説明する。

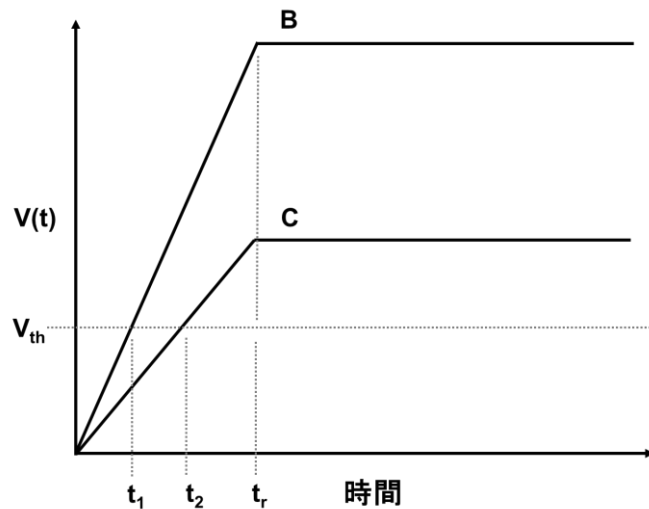


図 2.4：リーディングエッジ型ディスクリミネータの入力パルスの立ち上がり時間と波高の変動による時間ウォーク。[2.30]の Fig. 5.を基に作成した。

ここで B と C は同じ立ち上がり時間 t_r で、パルス波高が異なる入力パルス波形である。これらのパルスは同時に発生し、スレッシュホールド電圧 V_{th} で決まるトリガー時刻は異なり、それぞれ t_1 、 t_2 となる。このトリガー時刻の差が、入力パルスの立ち上がり時間と波高の変動による時間ウォークの原因となる。この時間ウォークは入力パルス波高がスレッシュホールド電圧よりも十分に高い場合や、立ち上がり時間が短い場合に小さくなる。

実際には、ディスクリミネータの感度も時間ウォークに寄与する。これは、入力パルスが V_{th} で決まるトリガー時刻の後で本当にディスクリミネータ回路をトリガーするためにはある電荷量が必要となるためである。このタイミング誤差は、小さいパルス波高の入力パルスで大きく影響する。

APD シンチレーション検出器は、シンチレーション検出器のため波高の変動が大きくコンスタント・フラクシオン型ディスクリミネータの場合にタイミング特性の向上が期待できる。この方式では理論上は入力パルス波高に依存しないトリガー時刻を決定できるが、入力パルスを参照して基準時刻を決定するため前に述べた入力パルスの立ち上がり時間と波高の変動、ディスクリミネータの感度による時間ウォークの影響は残る。更に、式 2.31 で表されるノイズによる時間ジッターも存在する。

優れた時間分解能を得るために APD シンチレーション検出器の出力パルスは短い立ち上がり時間と優れた信号対雑音比を示すことが望ましい。高速なシンチレータと APD を選択することでナノ秒の短い立ち上がり時間が期待できる。

大きな APD 増幅率が得られないために信号対雑音比は十分ではなく、特にプラスチックシンチレータのような小さい発光量のシンチレータを用いる場合には課題になる。冷却によって APD 増幅率を上げ、雑音を小さくすることが必要である。

2.1.8 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に適したシンチレータと Si-APD の条件

優れた検出器特性を得るために重要な APD シンチレーション検出器の条件をシンチレータと APD に分けて説明する。

目標とするシンチレータの条件として次のような目安となる値を想定した。

- | | |
|------------|-----------------------------------|
| (S.1) 検出効率 | 数 mm で 10%以上(67.4 keV X 線を検出する場合) |
| (S.2) 減衰時間 | 数 ns 以下 |
| (S.3) 発光量 | NaI(Tl)の 10% (3800 photons/MeV)以上 |

2.1.1 項で説明したように、有機物質のみで構成されたプラスチックシンチレータは固有検出効率が小さいが、重元素添加プラスチックシンチレータならば、X 線の吸収断面積を増大させることができるため、有望なシンチレータ材料の一つといえる。

優れた時間分解能を得るためには短い減衰時間と大きい発光量を両立するシンチレータが好ましい。この目的でシンチレータの開発が活発に行われており、無機シンチレータでは YAP(Ce)、LSO などの商品化に成功した優れたシンチレータがある。これら無機シンチレータは高密度かつ重元素を多く含む点が好ましいが、減衰時間が数 10 ナノ秒以上で、本研究が目指す数ナノ秒に迫るシンチレータはまだ得られていない。一方、有機シンチレータであるプラスチックシンチレータはナノ秒の高速発光を得ることができる。図 2.5 にこれらの代表的なシンチレータの減衰時間と発光量の関係を示した。BaF₂ はサブナノ秒の発光成分を有することがよく知られているが、室温で全発光量の 3/4 を占める減衰時間 620 ns の遅発成分が存在するため本研究の目的には適さない[2.31]。γ 線の時間分光のため APD を受光素子としてシンチレータを比較した報告[2.32]では、511 keV γ 線を検出するときの時間分解能 (FWHM) が NaI(Tl)、BGO、CsI(Tl)の場合には <10 ns までしか得られなかったが、プラスチックシンチレータでは 1.4 ns まで向上した。

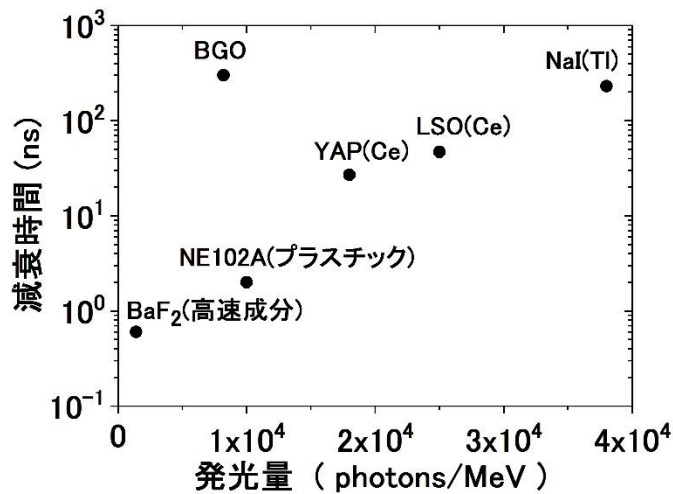


図 2.5 : 代表的なシンチレータの発光量と減衰時間の関係。
[2.33]の Table 8.1 を基に作成した。

APD を受光素子とする場合の最も重要な条件は、薄い空乏層・小さな静電容量の高速な素子であることである。空乏層が薄いと電子キャリア走行時間がより短いため高速特性が優れている。その条件を満たす APD として、高エネルギー荷電粒子検出用シンチレータの受光素子として設計された S8664 型 Si-APD が挙げられる[2.21]。S8664 型 Si-APD はリバーズ型 APD と呼ばれる。リバーズ型 APD は通常のリーチスルー型 APD の増幅領域を受光面側に配置し、可視光により受光面で発生したキャリアを受光面側で効率よく増倍できるように設計される。S8664 型 Si-APD の構造を図 2.6 に示す。

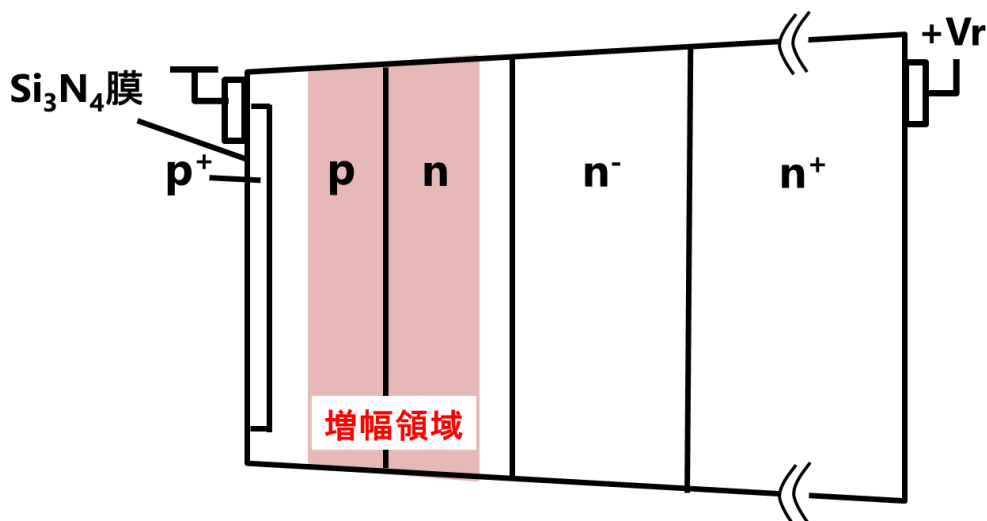


図 2.6 : S8664-55 型 Si-APD の断面図。[2.21]の Fig. 2.を基に作成した。

受光面は Si_3N_4 製の反射防止(AR)膜で覆われている。AR 膜から順に p^+ 、 p 、 n 、 n^- 、 n^+ 型半導体から構成されている。有感部の境界には溝が形成されている。この溝によって n^+ 層は n^- のみと接触するため、表面リーク電流は最小に抑えられる。十分な電圧を印加した場合、 p 層と n 層の境界で最大となる電界が発生し、この電界は n^+ 層へ伸びるにつれてゆるやかに減少する。

リバー型 Si-APD は通常のリーチスルー型に比べ空乏層が薄く、表面側で発生する電子キャリア走行時間が短いため高速特性が優れている。増幅領域の下端に n 型半導体を挿入することで空乏層厚さを大きく、静電容量を小さくしている。

本研究で開発する高速 APD シンチレーション検出器では、高速パルスを十分な波高と低い雑音レベルで得るために APD を冷却できる構造とする必要がある。冷却システムは増幅率の安定のため精度よく温度制御できるものとしなくてはならない。温度制御は 2.1.2 項の議論から 0.1°C 程度の精度・安定性が必要となる。

2.2 プロトタイプ検出器

2.2.1 プロトタイプ検出器の構成

プロトタイプ検出器に用いた Si-APD は特注した S8664 型 Si-APD (浜松ホトニクス社、S8664-3796(X)、受光径：3 mm、空乏層厚さ： $10\ \mu\text{m}$)を用いた。図 2.7 (a)にこの写真を示す。

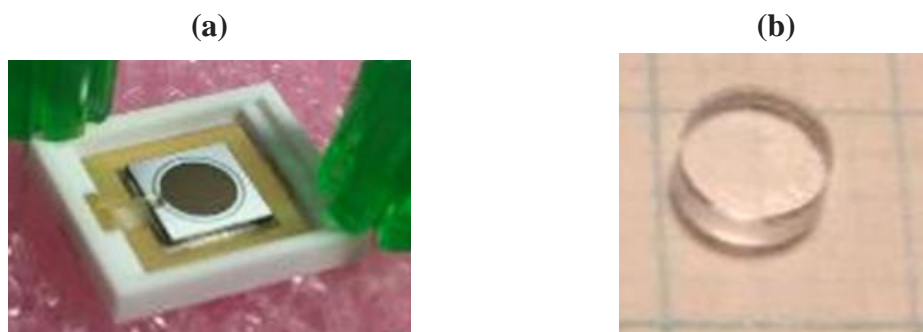


図 2.7 : (a) S8664-3796(X)の写真、(b) EJ-256-5wt%の写真。

この素子はシンチレーション光の光漏れを抑えるため、通常の市販タイプと異なり、受光面を被覆しているエポキシ製樹脂窓が取り除かれた素子である。シンチレータは鉛含有プラスチックシンチレータ EJ-256 (Eljen 社、鉛添加量: 5wt%、 $\phi 3 \times 2$ mm) を使用した。図 2.7 (b) にこのシンチレータの写真を示す。シンチレータを APD 受光面にオプティカルグリース(応用光研、6262A) で接着してシンチレーション検出器として動作させた。シンチレータを Si-APD に搭載する時に受光面が傷ついた場合は、暗電流が増大するため注意が必要である。シンチレーション光の集光のため、シンチレータの表面は反射材であるテフロンテープで覆った。反射材で覆わない場合と比べて 2 倍ほど高いパルス波高が得られた。APD の出力端子は、長さ 40 mm の同軸ケーブル(インピーダンス 50 Ω 、RG178) を使って SMA コネクタに接続した。

67.4 keV の X 線を検出する場合を例に、プロトタイプ検出器の電圧パルス波形を以下のように推測した。 $E(\text{MeV})$ の X 線によって、発光量 $L(\text{photons/MeV})$ のシンチレータに発生するシンチレーション光子数は EL 個となる。この光子が全て APD で受光されたと仮定すると、初期キャリア数は Si-APD の量子効率 Q_E を用いて ELQ_E 個となる。この初期キャリアが APD 増幅率 M で増幅されて、 $ELQ_E M$ 個のキャリアが出力される。これより、APD の出力電荷量 Q_{out} は電気素量 $1.60 \times 10^{-19} \text{ C}$ を用いて次式で表される。

$$Q_{out}(\text{C}) = E \times L \times Q_E \times M \times 1.60 \times 10^{-19} \quad (2.32)$$

次の条件を代入すると、 Q_{out} は $8.1 \times 10^{-15} \text{ (C)}$ となる。

- E : 67.4 keV (入射 X 線エネルギー)
- L : 5200 photons/MeV (EJ-256 の発光量[1.19])
- Q_E : 80% (430 nm の光に対する Si-APD の量子効率[2.34])
- M : 180 倍(5.9 keV X 線によって求められた実測値)

波高分布測定時には、電荷感応型プリアンプ(Canberra、2001A、感度: 2 V/pC) を用いた。プリアンプ出力の最大電圧波高 V_s は次式のように計算できる。

$$V_s = 2 \left(\frac{\text{V}}{\text{pC}} \right) \times 8.1 \times 10^{-3} (\text{pC}) = 16 \text{ (mV)}$$

この値ならば雑音レベル(V_{pk-pk} 10 mV 以下)と分離できる。時間スペクトル測定時には高周波アンプ(KEYCOM、LNA12-6、増幅率: 60 dB) を用いた。式 2.23 に基づいて高周波アンプの出力パルス波形を計算した。 $R = 50 \Omega$ 、シンチレータの減衰時間が 2.1 ns として、負極性の出力信号を取り出すときの電圧パルス波形を図 2.8 に示す。この波高は 95 mV、パルス幅は約 4 ns となつ

た。プロトタイプを模擬した電圧パルス波形のモデルにより、高周波アンプの雑音レベル ~ 40 mV から分離できるナノ秒幅の高速パルスを得ることができた。

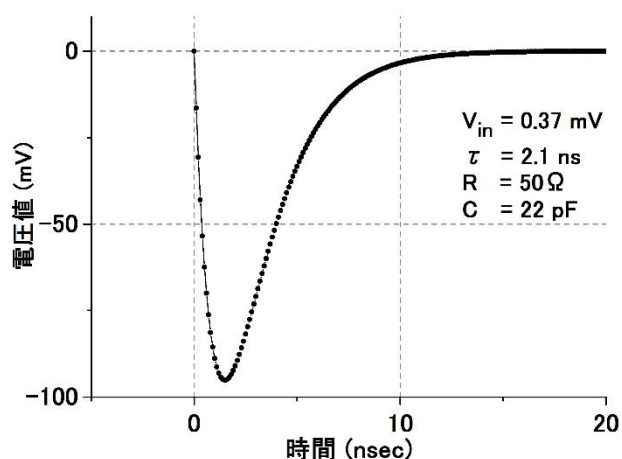


図 2.8 : プロトタイプの実出力を模擬した電圧パルス波形。

2.2.2 冷却機構

プロトタイプ検出器はペルチェ素子を利用した Si-APD 冷却機構を備える。ペルチェ素子は小型・軽量 かつ振動が発生しない利点がある。APD の基板を固定した銅板をペルチェ素子(Marrow industries、NL2064[2.35])によって冷却し、アルミ製フィンと冷却ファン(Mineber Motor inc.、1608L-05W-B60[2.36])によって放熱した。プロトタイプ検出器の検出部周辺の断面図を図 2.9 に示す。検出部は導電性接着剤(ドータイト)を使ってペルチェ素子の冷却面に固定し、ペルチェ素子の放熱側は導電性接着剤によってアルミ製真空容器に接着した。

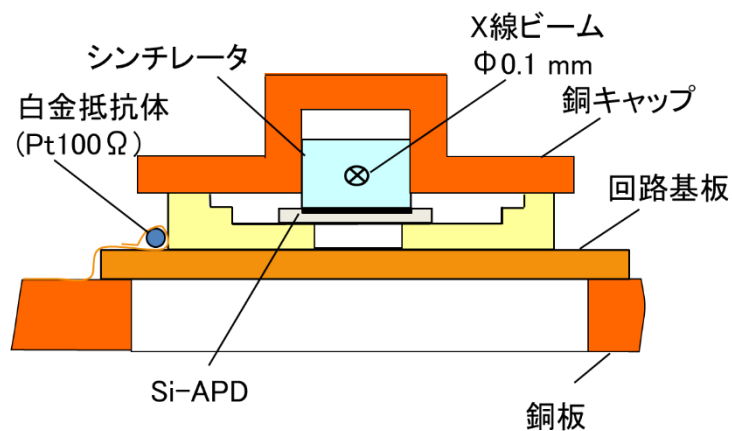


図 2.9 : プロトタイプ検出器の検出部周辺の断面図。白金抵抗体(Pt-100Ω)は銅テープで被覆した。

APD の温度は極細白金抵抗体(Netzsch 社、UNR-141、 ϕ 0.1 mm、Pt-100Ω)で測定した。APD 素子の温度を正確にモニタリングするため、APD のセラミック部分に銅テープで張り付けた。熱接触を保つため銅テープと白金抵抗体の間はサーマルグリースを塗布した。白金抵抗体は 4 導線式で結線し、温度制御器 (CHINO 社、DB-1000) で温度をモニターし、直流電源(菊水電子工業社、PMC-18-5A)の出力電流を制御して温度コントロールを行った。

図 2.10 (a)に検出器の外観の写真、(b)にその内部の写真を示す。測定時には断熱と結露防止のためターボ分子ポンプで 3×10^{-3} Pa 以下に排気した。X 線ビームは厚さ 50 μ m、 ϕ 4 mm のベリリウム窓を通して入射される。検出器には、APD 受光面に垂直に入射するための窓とシンチレータ側面に入射する窓が X 線ビーム入射側と裏側の 1 組ずつ、合わせて 2 組の窓がある。

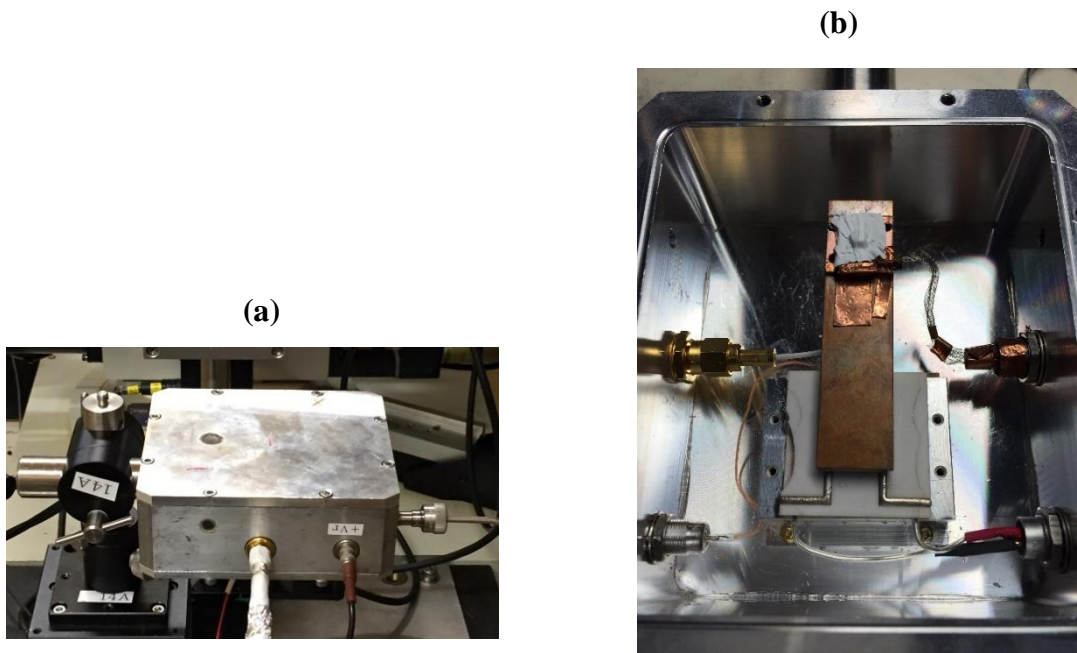


図 2.10 : (a)検出器外観の写真、(b)検出器内部の写真。

2.2.3 プロトタイプ検出器の Geant4 シミュレーション

Geant4 (Geant4.10.00.p01)によってプロトタイプ検出器のシミュレーションを実行した。Geant4 は、CERN で開発されたモンテカルロ・シミュレーション・ツールキットである[2.37]。まずプロトタイプ検出器の測定条件に対応する**基本シミュレーション・モデル**を作成した。以降ではこのモデルによる出力を評価し、**APD 樹脂窓の影響とシンチレータ形状・APD 形状による影響**についてまとめる。

基本シミュレーション・モデル

このモデルに使用した主な物理プロセスを表 2.1 に示す。100 keV 以下の X 線に起因する相互作用を模擬するため、低エネルギー電磁相互作用モデル (Livermore model)を使用した。G4AtomicDeexcitation は G4PhotoElectricEffect と G4LowEnergyIonisation の情報を元に、特性 X 線・オージェ電子を生成するプロセスである。加えて、シンチレーション光のための輸送プロセスも用いた。二次粒子生成閾値は $10 \mu\text{m}$ に設定した。

表 2.1 : シミュレーション・モデルに使用した主な物理プロセス。

対象の粒子	物理プロセス名	対応する物理相互作用
X 線	G4PhotoElectricEffect	光電吸収
	G4ComptonScattering	コンプトン散乱
	G4RayleighScattering	レイリー散乱
電子	G4Ionisation	電離
	G4eMultipleScattering	多重散乱
	G4eBremesstrahlung	制動放射
X 線と電子	G4AtomicDeexcitation	特性 X 線放出 ・ オージェ電子放出
シンチレーション光子	G4Scintillation	シンチレーション
	G4OpAbsorption	光学的吸収
	G4OpBoundaryProcess	屈折・全反射
	G4OpRayleigh	

図 2.11 (a)に基本シミュレーション・モデルのシミュレーション体系を示す。空気中に APD 受光面(φ 3 mm)に接着した EJ-256 シンチレータ(φ 3×2 mm)を配置した。シンチレータはテフロンテープ(厚さ 0.2 mm)に覆われている。使用した物質の特性を表 2.2 に示す。加えて、表 2.3 のように光学的表面を設定した。Ground back painted は粗い面があり、外側に反射材が塗られている境界面、Polished は完全に滑らかな境界面を模擬する。EJ-256 シンチレータの特性は密度を除き、カタログ値を設定した。発光量 5200 photons/MeV で発光し、単一の 425 nm のシンチレーション光子を放出すると仮定した。

表 2.2 : シミュレーション・モデルに使用した物質の特性。

物質名	化学的組成	密度(g/cm ³)	屈折率
空気	N _{0.76} O _{0.23} Ar _{0.01} C _{0.00}	1.20×10 ⁻³	1.0
テフロン	C ₂ F ₄	2.2	1.0
エポキシ樹脂	C ₁ H ₁ O ₁	1.0	1.52
EJ-256	C ₉ H ₁₀ (Pb:5wt%)	1.11	1.58
シリコン(APD)	Si	2.33	1.92

表 2.3 : シミュレーション・モデルで定義した表面状態。

光学的表面	物質の種類	表面状態
テフロン/EJ-256	Dielectric-Dielectric	Ground back painted
エポキシ樹脂/EJ-256	Dielectric-Dielectric	Polished
エポキシ樹脂/APD	Dielectric-Metal	Polished
EJ-256/APD *	Dielectric-Metal	Polished

*窓なしの APD を用いたモデルの場合

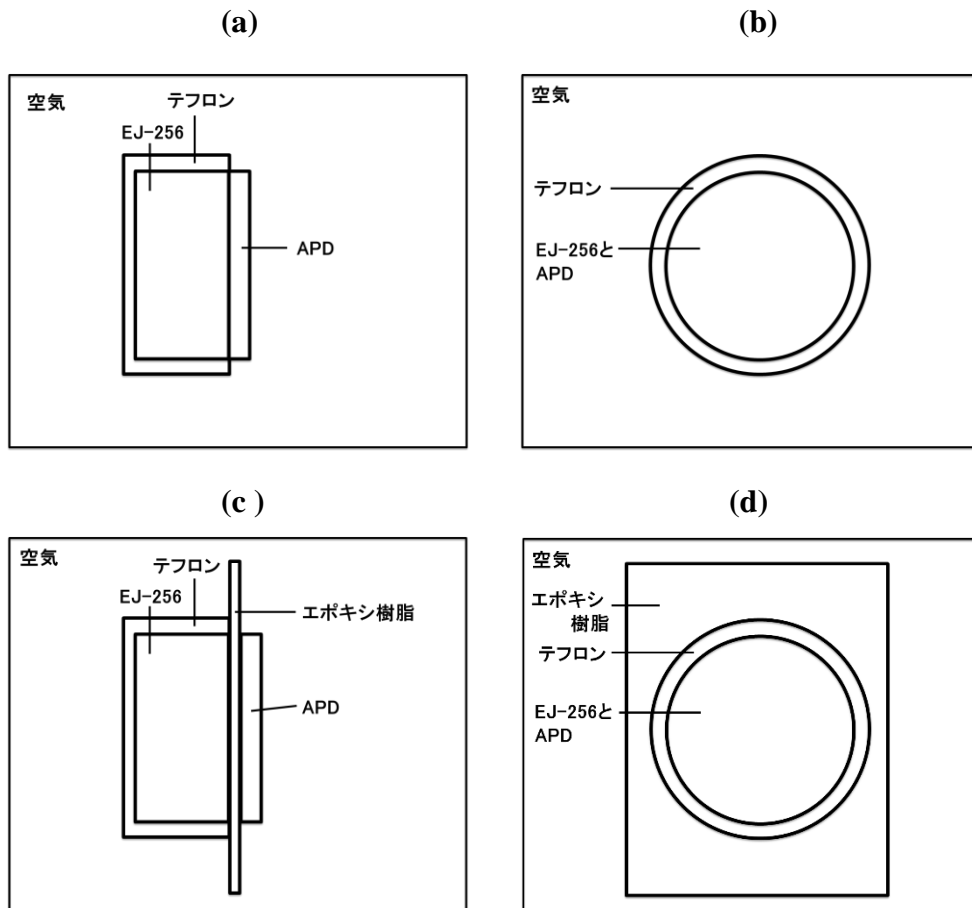


図 2.11 : 基本シミュレーション・モデルの APD 受光面に垂直な断面図(a)と平面図(b)。樹脂窓のあるシミュレーション・モデルの APD 受光面に垂直な断面図(c)と平面図(d)。寸法の対応関係は表していない。

モデルによる出力

図 2.12 は可視化ドライバ(DAWN)によって画像化した基本シミュレーション・モデルである。このような画像を出力して検出器の幾何学的な配置が想定通りであることを確認した。以降ではシンチレータの側面の中央に X 線ビーム (67.4 keV、 ϕ 0.1 mm) を垂直に入射する初期条件のもとで検出器出力の調査を行う。図では X 線は青、シンチレーション光は緑で表され、シンチレータ内に X 線励起で発生したシンチレーション光の模擬に成功した。

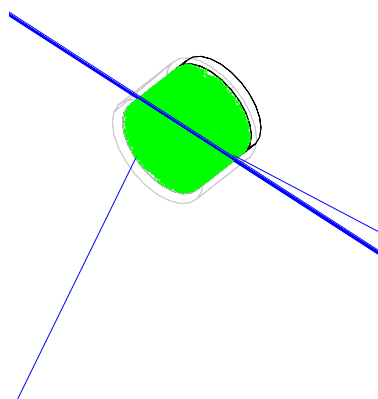


図 2.12 : 基本シミュレーション・モデルのシミュレーション体系。

シンチレータ中のエネルギー損失量の評価を「有感検出器」によるデータ収集方法によって行った。シミュレーション体系内の物質を「有感検出器」に設定することで、「有感検出器」中での物理量 (エネルギー損失量など) を収集することができる。まず、シンチレータを「有感検出器」として定義し、各ステップ (粒子が次の相互作用を起こすまでのプロセス) でのエネルギー付与量を格納し、ファイルへの書き出しを行った。図 2.13 は入射 X 線光子数 10^6 photons の場合のエネルギー損失量分布である。全吸収ピークとシンチレータに含まれる鉛の LX 線によるエスケープピークが確認された。また、14 keV 付近にコンプトンエッジを示すコンプトン連続部も現れた。

同様に APD を「有感検出器」として定義し、APD 受光面に到達したシンチレーション光子数を計算した。入射 X 線光子数 2×10^5 photons の場合の光子数分布を図 2.14 に示す。全吸収ピークのガウスフィットによるピーク位置は 348 photons と計算された。この値は発光量と X 線光子数で決まるシンチレーション光子数 ($5200 \text{ photons/MeV} \times 67.4 \text{ keV} = 351 \text{ photons}$) に近く、発生したシンチレーション光子がほぼ完全に収集された状況を再現することができた。

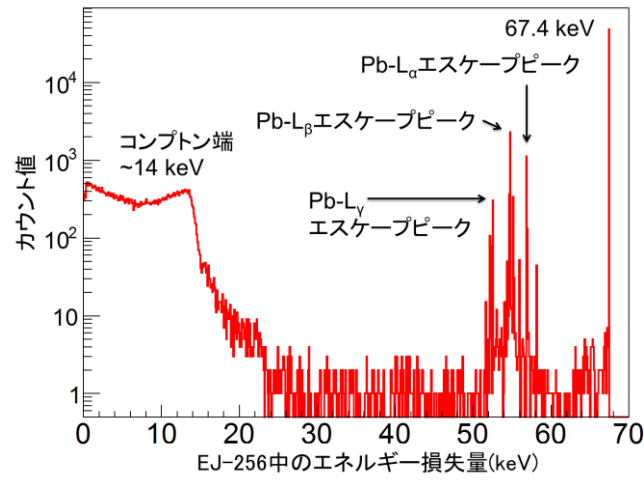


図 2.13 : 67.4 keV X 線入射による EJ-256 中のエネルギー損失量分布のシミュレーション結果。

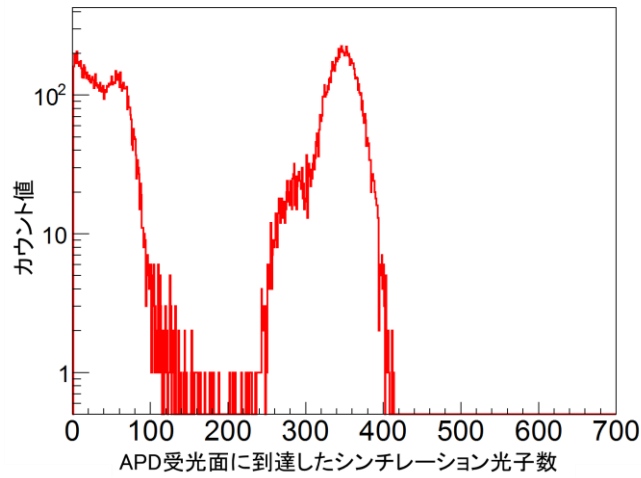


図 2.14 : APD 受光面に到達したシンチレーション光子数分布のシミュレーション結果。

この APD 受光面に到達したシンチレーション光子数分布による検出効率 ϵ_{g4} を次式により定義した。

$$\epsilon_{g4} = \frac{\text{シンチレーション光子数分布の積分値(光子数)}}{\text{入射 X 線光子数}} \quad (2.33)$$

上式の分子を決める積分領域として、ピーク領域とこれよりも低い光子数領域を設定し、それらの検出効率 ϵ_{g4_peak} と $\epsilon_{g4_lower_ch}$ を別々に求めた。 ϵ_{g4_peak} は図 2.14 のピーク形状から 200 photons 以上の計数領域から算出した。全領域の検出効率 10.4%の内 $\epsilon_{g4_peak} = 5.3\%$ 、 $\epsilon_{g4_lower_ch} = 5.1\%$ となった。この ϵ_{g4_peak} の値は 2.1.1 項で計算した光電効果のみの寄与による固有検出効率とほぼ一致し、予想される検出効率をよく表すことができた。

APD 樹脂窓の影響

一般的な浜松ホトニクス社製の APD は受光面を保護するため受光面の上にエポキシ樹脂製の窓が存在する。この樹脂窓の有無による影響を図 2.11 (c)、図 2.11 (d)に示す樹脂窓のあるシミュレーション・モデルを作成して調査した。このモデルには基本シミュレーション・モデルにおける APD 受光面の直上に樹脂窓(9.1 × 7.6 mm² × 0.4 mm[2.6])を配置した。この場合、光子数分布のピーク位置は基本シミュレーション・モデルの 60%に減少した。樹脂窓が光子数の損失に及ぼす影響が極めて大きいことが判明し、樹脂窓のない APD を用いた検出器がより効率的に光収集することを確認できた。

APD 形状・シンチレータ形状の影響

APD の高速特性を維持したまま検出効率を高めるために、APD 受光面より寸法の大きいシンチレータを搭載した検出器が考えられる。この場合、シンチレータの裏面からシンチレーション光子がより多く散逸することが予想される。一方、アレイ化のために四角形の受光面の方が都合がよい状況も考えられる。以上の状況を再現するため、基本シミュレーション・モデルを元に APD 形状・シンチレータ形状を変更した複数のモデルを作成した。APD は受光サイズ $\phi 3$ mm と 5 × 5 mm² の 2 種類を用いた。これらのシンチレーション光子数分布(図 2.14 に対応)におけるピーク位置をガウス関数フィットによって求めた。1 つのシンチレーション事象で放出された全光子数は、本モデルの場合 351 photons (67.4 keV × 5200 photons/MeV = 351 photons) となる。シンチレーション光子数分布のピーク位置の 351 photons に対する割合を集光効率 α_{g4} として次式のように定義した。

$$\alpha_{g4}(\%) = \frac{\text{シンチレーション光子数分布のピーク位置(光子数)}}{\text{1つのシンチレーション事象で放出された全光子数}} \quad (2.34)$$

表 2.4 は受光サイズ $\phi 3$ mm の APD に 4 種類の異なる形状のシンチレータを

別々に搭載した場合の集光効率 α_{g4} である。 $5 \times 5 \text{ mm}^2 \times 2 \text{ mm}$ シンチレータの場合に得られた集光効率 33%は $\phi 3 \times 2 \text{ mm}$ の場合(図 2.15 (a))の 60%に比べ減少した。APD 受光サイズよりもシンチレータが大きい配置のため、シンチレータの裏面から多くのシンチレーション光子が逃散した状況を再現できたと考えられる(図 2.15 (b))。一方で $\phi 2 \times 2 \text{ mm}$ シンチレータの場合(図 2.15 (c))は 75%となり $\phi 3 \times 2 \text{ mm}$ の場合に比べ増大した。シンチレータの断面が APD 受光サイズよりも小さい配置では相対的にシンチレータに対する APD 受光面の立体角は広がり、光漏れが抑えられたためと考えられる。しかし、この配置は X 線通過するシンチレータ内の距離が小さくなるために最良の配置ではない。X 線通過距離と集光効率 α_{g4} の過不足のない配置は、APD 受光面と同じ断面のシンチレータを搭載する場合となる。表 2.5 には、受光面サイズが $5 \times 5 \text{ mm}^2$ の APD に 3 種類の異なる形状のシンチレータを別々に搭載した場合の集光効率 α_{g4} を示した。表 2.4 の場合と同様な結果を得た。

本項ではプロトタイプ検出器を模擬したシンチレーション・モデルを作成し、エネルギー損失量分布とシンチレーション光子数分布を計算した。検出効率は計算値として妥当な値が得られた。一般的な APD が備える受光窓の影響に着目し、樹脂窓の有無による集光効率を定量的に予測した。加えて、APD 受光面サイズとシンチレータの寸法と集光効率の関係を調べ X 線通過距離と集光効率 α_{g4} を両立する配置として APD 受光面と同じ断面のシンチレータの組み合わせを提案した。2.2.1 項で説明したプロトタイプ検出器はこの条件を満たすよう製作した。

表 2.4 : 受光径 3 mm の APD に 4 種類の異なる形状のシンチレータを別々に搭載した場合の集光効率 α_{g4} 。

シンチレータ形状(mm)	$5 \times 5 \times 2$	$\phi 3 \times 2$	$\phi 3 \times 6$	$\phi 2 \times 2$
集光効率 α_{g4} (%)	33	60	68	75

表 2.5 : $5 \times 5 \text{ mm}^2$ の APD に 3 種類の異なる形状のシンチレータを別々に搭載した場合の集光効率 α_{g4} 。

シンチレータ形状(mm)	$5 \times 5 \times 5$	$5 \times 5 \times 2$	$\phi 3 \times 2$
集光効率 α_{g4} (%)	79	78	85

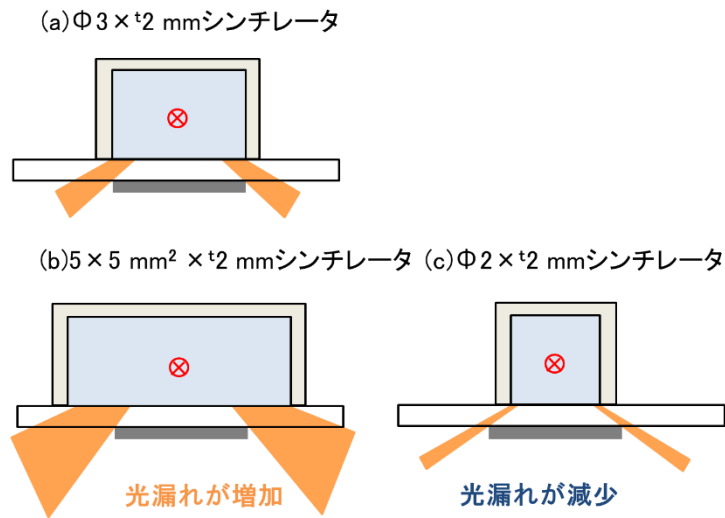


図 2.15 : シンチレータと APD (受光径 3 mm) によって構成したシンチレーション検出器で発生する光漏れの模式図。シンチレータの形状は (a) $\phi 3 \times 2$ mm (b) $5 \times 5 \text{ mm}^2 \times 2$ mm (c) $\phi 2 \times 2$ mm の場合を示す。

第 2 章の参考文献

- [2.1] J. Kataoka, “Performance of the most recent avalanche photodiodes for future X-ray and gamma-ray astronomy”, SPIE. **5501** (2004) 249.
- [2.2] M. Moszyński, T. Ludziejewski, D. Wolski, W. Klamra, M. Szawlowski, M. Kapusta, “Subnanosecond timing with large area avalanche photodiodes and LSO scintillator”, IEEE Trans. Nucl. Sci. **43** (3) (1996) 1298.
- [2.3] G.F. Noll, “Radiation detection and measurement”, 4th ed., John Wiley & Sons, inc., New York, (2010) p.119.
- [2.4] NIST, “XCOM Photon cross section database”, <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/html/xcom1.html> (cited: 2016-10-11).
- [2.5] G. Bertrilni, F. Cappellani, and G. Restelli, “Current state of the art in semiconductor detectors”, Nucl. Instrum. and Methods **112** (1973) 219.
- [2.6] 米津宏雄, “光通信素子工学”, 工学図書 (1995) p.392-402.
- [2.7] P.P. Webb, and R.J. McIntyre, and J. Conradi, “Properties of Avalanche Photodiode”, RCA Rev. **35** (1974) 260.
- [2.8] 浜松ホトニクス社, “Si APD S8664シリーズ”, http://www.hamamatsu.com/resources/pdf/ssd/s8664_series_kapd1012j.pdf (cited:2016-10-28).

- [2.9] K. Deiter, Y. Musienko, S. Nicol, B. Patel, D. Renker, S. Reucroft, R. Rusack, T. Sakhelashvili, J. Swain, P. Vikas, “Properties of the avalanche photodiodes for the CMS electromagnetic calorimeter”, *Nucl. Instrum. and Methods A* **442** (2000) 193.
- [2.10] T. Ikagawa, J. Kataoka, Y. Yatsu, N. Kawai, K. Mori, T. Kamae, H. Tajima, T. Mizuno, Y. Fukazawa, Y. Ishikawa, N. Kawabata, T. Inutsuka, “Performance of large-area avalanche photodiode for low-energy X-rays and gamma-rays scintillation detection”, *Nucl. Instrum. and Methods A* **515** (2003) 671.
- [2.11] T. Yasumune, T. Masuda, Y. Oshima, K. Maehata, K. Ishibashi, and T. Umeno, ”Measurement of output signals from an avalanche photodiode by irradiating with X-rays in the temperature range from 150 mK to 4.2 K”, *J. Appl. Phys.* **50** (2011) 072201.
- [2.12] J.P. Pasant, “Avalanche photodiodes for particle detection”, *Nucl. Instrum. and Methods A* **387** (1997) 186.
- [2.13] M. Moszyński, M. Kapusta, M. Balcerzyk, M. Szawlowski, D. Wolski, I. Wegrzecka and M. Wegrzecki, “Comparative study of avalanche photodiodes with different structures in scintillation detection”, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **48** (2001) 1205.
- [2.14] R.D. Ryan, “Precision measurements of the ionization energy and its temperature variation in high purity silicon radiation detectors”, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **NS-20** (1973) 473.
- [2.15] G.F. Noll, “Radiation detection and measurement”, 4th ed., John Wiley&Suns, inc., New York, (2010) p.365.
- [2.16] Amnon Yariv 著, 多田邦雄, 神谷武志 監訳, ”原著 5 版 光エレクトロニクス 展開編“, 第 2 版, 丸善 (2000) p. 504.
- [2.17] 米津宏雄, “光通信素子工学”, 工学図書 (1995) p.408.
- [2.18] R.J. McIntyre, “Multiplication noise in uniform avalanche diodes”, *IEEE Trans. Electron Devices*, **ED-13** (1966) 164.
- [2.19] L.M.P. Fernandes, J.A.M. Lopesa, J.M.F. dos Santosa, “Excess noise factor in large area avalanche photodiodes for different temperatures”, *Nucl. Instrum. and Methods A* **531** (2004) 566.
- [2.20] G.A. Petrillo, and R.J. McIntyre, “Scintillation detection with large-area reach-through avalanche photodiodes”, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **NS-31** (1984) 417.
- [2.21] D. Renker, “Properties of avalanche photodiodes for applications in high energy physics, astrophysics and medical imaging”, *Nucl. Instrum. and Methods A* **486** (2002) 164.
- [2.22] J. Kataoka, T. Saitoa, Y. Kuramotoa, T. Ikagawaa, Y. Yatsua, J. Kotokua, M. Arimotoa, N. Kawaia, Y. Ishikawab, N. Kawabata, “Recent progress of avalanche photodiodes in high-resolution X-rays and γ -rays detection”, *Nucl. Instrum. and Methods A* **541** (2005) 398.
- [2.23] J.A. Hauer, Y. Choi, A.S. Hirsch, R.P. Scharenberg, B.C. Stringfellow, M.L. Tincknell, N.T. Porile, G. Rai, J. Girbarino, R.J. McIntyre, ”A time-of-flight detector based on silicon avalanche diodes”, *Nucl. Instrum. and Methods A* **337** (1994) 362.
- [2.24] 浜松ホトニクス社, ”光半導体素子ハンドブック : 第 10 章“, (2015) p. 251.
- [2.25] S. Kishimoto, “High time resolution X-ray measurements with an avalanche photodiode detector”, *Rev. Sci. Instrum.* **63** (1992) 824.
- [2.26] G.F. Noll, “Radiation detection and measurement”, 4th ed., John wiley & Sons, inc., New York, (2010) p.308-310.
- [2.27] B. Bengtson, and M. Moszyński, ”Energy-transfer and light-collection characteristics for

- different types of plastic scintillators”, Nucl. Instrum. and Methods **117** (1974) 227.
- [2.28] S. Kishimoto, T. Taniguchi, and M. Tanaka, ”500-MHz X-ray counting with a Si-APD and a fast-pulse processing system”, AIP Conf. Proc. **1234** (2010) 819.
- [2.29] S. Kishimoto, ”Behavior of a fast counting system with an avalanche photodiode detector for synchrotron X-rays”, Nucl. Instrum. and Methods A **397** (1997) 343.
- [2.30] EG&G Ortec, ”Principles and applications of timing spectroscopy, application note”, **AN-42**, Oak Ridge, TN, USA. <http://www.ortec-online.com/Service-Support/Library.aspx> (cited: 2016-10-24).
- [2.31] 小林正明, ”シンチレータを用いる放射線計測”, こだま出版 (2014) p.209.
- [2.32] C. Carrier, and R. Lecomte, "Timing performance of scintillators read out by silicon avalanche photodiodes", Nucl. Instrum. and Methods A **299** (1990) 115.
- [2.33] G.F. Noll, ”Radiation detection and measurement”, 4th ed, John wiley & Sons, inc., New York, (2010) p.238.
- [2.34] Hamamatsu Photonics, ”Product information: Quantum efficiency of S8664 W/Silicone resin”, K30-I50247, (2014).
- [2.35] Marlow industries, Data sheet of NL2064T,
<http://www.marlow.com/media/marlow/product/downloads/nl2064t-13ab/NL2064.pdf> (cited: 2014-1-30).
- [2.36] Minebea Motor.inc., 04020VA-24P-AA-00,
<http://www.eminebea.com/jp/product/airmover/data/04020va.pdf> (cited: 2014-1-30).
- [2.37] CERN, Geant4 Official Web Site, <http://geant4.cern.ch/> (cited: 2016-8-10)

第3章 プロトタイプ検出器による放射光利用実験

3.1 プロトタイプ検出器の特性評価

3.1.1 波高分布

放射光実験への応用を想定し、KEK Photon Factory BL-14A でプロトタイプ検出器の特性評価実験を行った。BL-14A は光源として垂直ウィグラーを備え、82.7 keV までの高エネルギーX線を利用できる[3.1]。以降では、EJ-256(Eljen 社、鉛添加量：5wt%)と受光径 3 mm、厚さ 2 mm、樹脂窓なしの Si-APD を用いたプロトタイプ検出器による結果をまとめる。

波高分布測定装置の構成を図 3.1 に示す。Si-APD の逆バイアス電圧 V_r は、 n^+ 側の電極に接続したピコアンメーター(Digital H. V.、KEITHLEY 6487)の電圧源によって 0.1 V 以下の精度で供給された。出力信号は APD の p^+ 側から同軸ケーブルによって取り出した。プロトタイプ検出器の電荷信号は電荷感応型プリアンプ(Canberra、2001A)によって 2 V/pC の感度で電圧信号に変換される。この電圧パルス信号の波高は全積分電荷に比例する。プリアンプの出力は主増幅器(Linear Amp、ORTEC 572、Fain gain : 1.0、Corse gain : 100)に入力され、波形整形時間は 0.5 μ s に設定した。主増幅器の出力はマルチチャンネル波高分析器(MCA、Canberra、Multiport II)に接続されている。MCA によってアナログ量であったパルス電圧値はデジタル値に変換され、MCA のメモリー(10 bit、1024 チャンネル分)のチャンネルに対応づけられる。測定時間中、各チャンネルにはカウント数が積算され波高スペクトルが得られる。

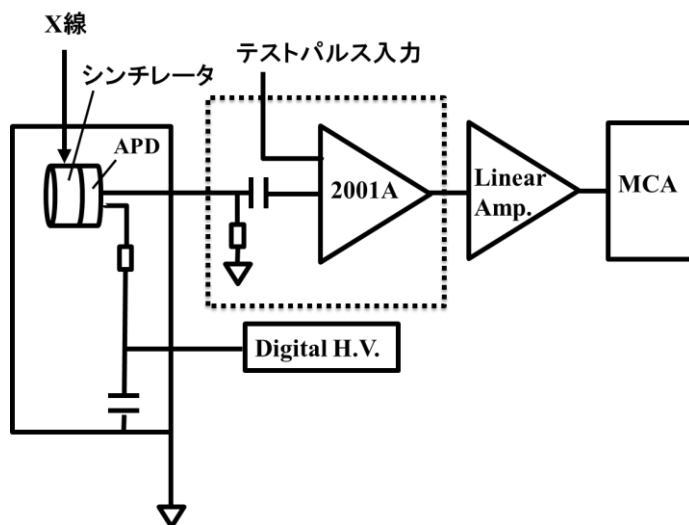


図 3.1 : プロトタイプ検出器を用いた波高分布測定装置。

BL-14A 実験ハッチ内のセットアップを図 3.2 に示す。垂直ウィグラーから発生した放射光は Si(553) 二結晶分光器によって単色化した。入射 X 線エネルギーはニッケル 61 試料を使った放射光核共鳴散乱を想定して、ニッケル 61 の第一励起準位：67.41 keV に合わせた。この X 線はタンタル製 $\phi 0.1$ mm ピンホールによって整形した。ビーム強度の時間変動は電離箱(Kr ガスフロー)のモニター値で補正し、検出器に入射するビーム強度をタングステン・フィルターを用いて調整した。検出器へのビーム照射位置は、シンチレータ側面の中央を抜け X 線ビームが APD に直接当たらない配置(側面入射配置)を選んだ。X 線ビームがシンチレータを通して APD 受光面に対して垂直、かつシンチレータ中央に入射する配置(正面入射配置)では、APD が 67.41 keV X 線を直接吸収する信号が検出されてしまうためである。この 2 通りの配置で測定した波高分布を図 3.3 に示す。両方で現れた低チャンネル側のピークは、67.41 keV X 線によって発生したシンチレーション光による信号である。正面入射配置でシンチレーション光の信号より高いチャンネル側に現れたピークは、APD 表面接合部の電子増幅による信号ではなく、接合部の奥にある空乏層で X 線が吸収されて生成する正孔が増幅されたことによる信号と考えられる。また、高チャンネル側に連続的な計数が現れた。これは、X 線が非弾性散乱によって Si-APD 内部でエネルギーを損失したためである。一方、側面入射配置の高チャンネル側にもわずかな計数が記録された。側面入射では X 線はシンチレータのみを通過して、主にシンチレータ中の鉛によって光電吸収を起こす。この光電吸収に伴い放出された特性 X 線(Pb-LX 線)が Si-APD によって直接検出され生じた信号(電子増幅による)と考えられる(図 3.4)。

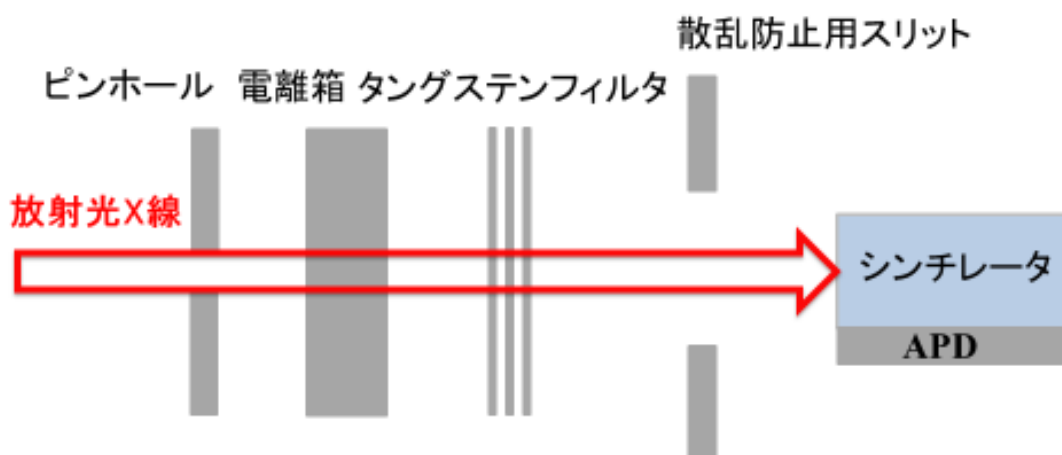


図 3.2 : BL-14A 実験ハッチ内のセットアップ。

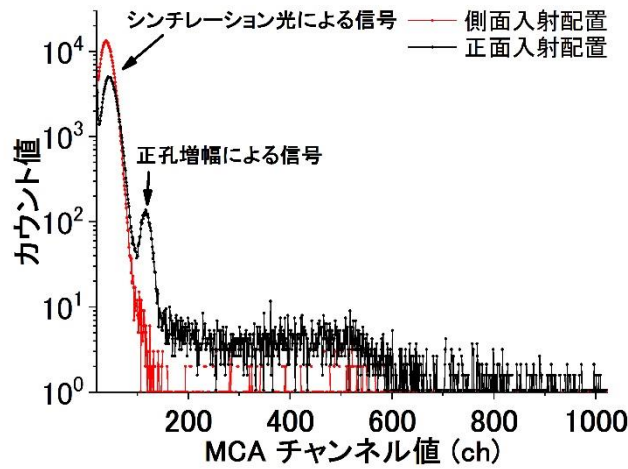


図 3.3 : プロトタイプ検出器(EJ-256 シンチレータ $5 \times 5 \text{ mm}^2 \times 2 \text{ mm}$ と受光径 3 mm、樹脂窓ありの Si-APD、動作条件： $-35^\circ\text{C} \cdot +410 \text{ V}$)によって正面入射配置と側面入射配置で測定した波高分布。黒線：正面入射配置、赤線：側面入射配置。

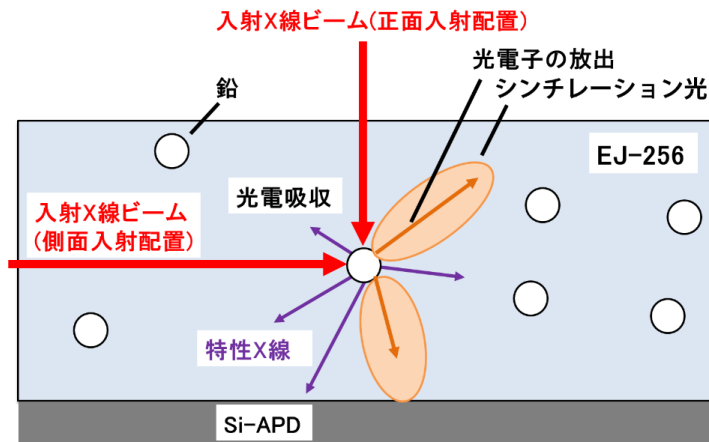


図 3.4 : 正面入射配置と側面入射配置でのプロトタイプ検出器の模式図。X 線照射により、シンチレーション光と EJ-256 内に分散している鉛から放出された特性 X 線が APD 受光面に到達する様子を示した。

図 3.5 は X 線ビーム入射時と入射なしの場合の波高分布である。動作温度 -35°C ・逆バイアス電圧 $+383 \text{ V}$ の動作条件では、APD 増幅率は 180 ± 20 倍と評価された。この増幅率の値は 5.9 keV Mn-KX 線の直接検出による信号を参照し、 2 V/pC の感度をもつプリアンプのテストパルス入力を利用して測定した[3.2]。X 線入射なしの暗電流による計数から明瞭に区別できる 67.41 keV X 線によるシンチレーション光のピークを確認できた。ガウス関数によるフィットによりピー

ク位置は 176 ± 1 ch、FWHMは 81 ± 1 ch と求められた。式 2.12 よりエネルギー分解能は 46%(FWHM、誤差は 1%以下)と求められた。

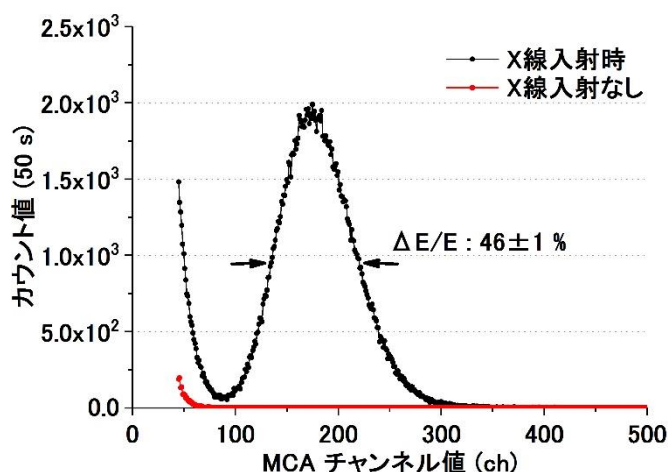


図 3.5 : プロトタイプ検出器で取得した波高分布。黒線 : 67.41 keV X 線ビーム入射時、赤線 : X 線ビーム入射なし。動作温度 -35°C 、逆バイアス電圧 $+383$ V。

次に、動作温度と APD の逆バイアス電圧値が波高分布に与える影響の調査を行った。図 3.6 (a)は動作温度 -35°C 、逆バイアス電圧 $+382$ V と $+385$ V の波高分布である。 $+385$ V では $+382$ V より約 2 倍のピーク位置が得られた。図 3.6 (b)は 0°C 、 -20°C 、 -35°C の動作温度においてピーク位置が合うように逆バイアス電圧を調節した波高分布である。

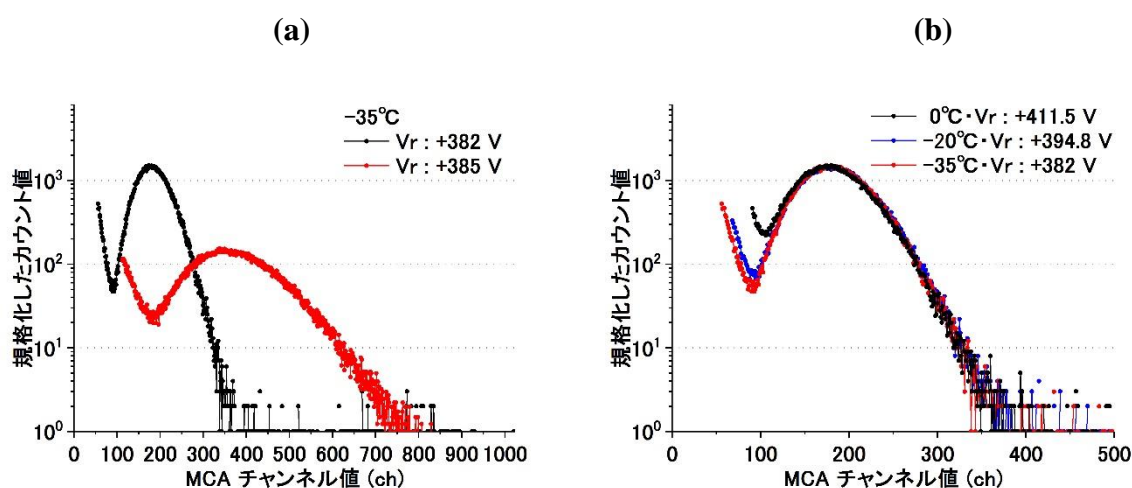


図 3.6 : プロトタイプ検出器の 67.41 keV X 線入射時の波高分布。

(a) 黒線 : $-35^{\circ}\text{C} \cdot +382$ V、赤線 : $-35^{\circ}\text{C} \cdot +385$ V

(b) 黒線 : $0^{\circ}\text{C} \cdot +411.5$ V、青線 : $-20^{\circ}\text{C} \cdot +394.8$ V、赤線 : $-35^{\circ}\text{C} \cdot +382$ V

すべてのピーク位置は 180 ± 2 ch となり、APD 増幅率をほぼ同じに揃えた。

図 3.6 (a)では逆バイアス電圧を高めることで APD 増幅率が增大し、波高分布中のピーク位置が増大することを確認できた。冷却の効果は APD 増幅率が同じになる条件で比較した。図 3.6 (b)に示すように、 0°C から -20°C に下げると低チャンネル側の計数は大きく減少した。 -20°C から -35°C まで温度を下げた場合でも、熱電子雑音の低減による計数の減少が確認できた。

これらの動作条件と信号対雑音比の関係を調べるため、ピーク対バックグラウンド比を求めた。ピーク対バックグラウンド比 R_{PB} は式 3.1 のように定義した。式の分子はシンチレーション光信号のピークをガウス関数でフィットして決定した X 線ピーク位置である。分母は X 線ビーム入射なしの波高分布に現れたバックグラウンド計数を指数関数でフィットし、1 カウントとなる端のチャンネル値を用いた。

$$R_{PB} = \frac{\text{X 線ピーク位置}}{\text{バックグラウンド計数値が 1 となるチャンネル値}} \quad (3.1)$$

図 3.7 に 20°C 、 0°C 、 -20°C 、 -35°C の場合の逆バイアス電圧値に対するピーク対バックグラウンド比 R_{PB} を示す。どの温度でも逆バイアス電圧が高いほど R_{PB} は減少した。これは逆バイアス電圧を高めて APD 増幅率を増大させるほど、暗電流への過剰雑音の寄与が増大したことを示す。

冷却による効果に注目すると、 20°C から -35°C まで冷却するほど高い R_{PB} の測定が可能になった。 $-35^\circ\text{C} \cdot +380 \text{ V}$ の場合に 2.2 ± 0.1 まで高めることができた。この結果より、低い温度ほど暗電流が抑えられ、信号対雑音比の優れた状態で測定できることが確認された。

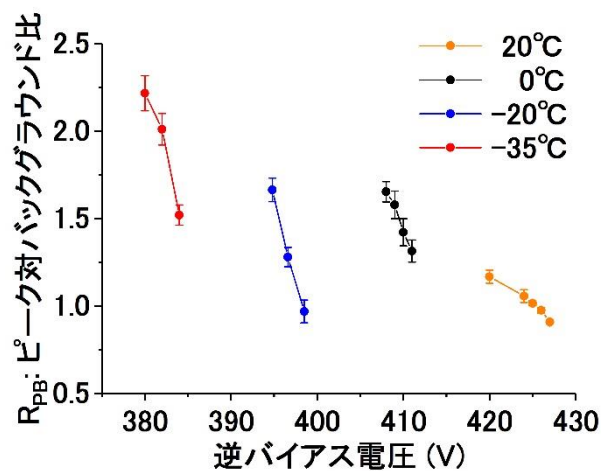


図 3.7 : 20°Cから-35°Cの動作温度における逆バイアス電圧に対するピーク対バックグラウンド比。

20°Cから-35°Cの動作温度におけるシンチレーション光信号の波高分布中のピーク位置に対するエネルギー分解能の関係を図 3.8 に示す。各温度について、ピーク位置が同じ場合で比較すると、より低い動作温度ほどエネルギー分解能は向上した。

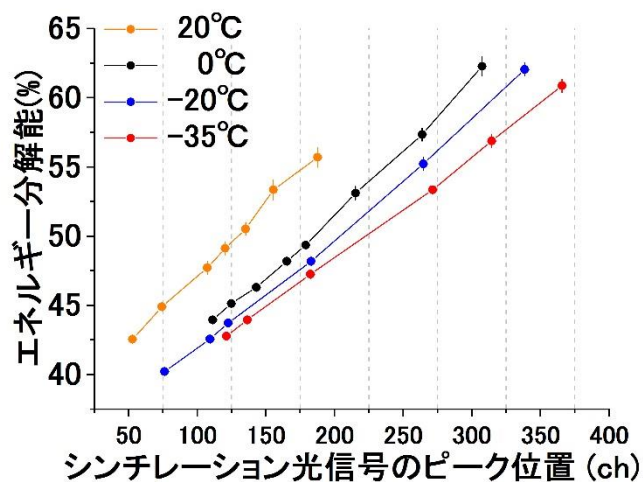


図 3.8 : 20°Cから-35°Cの動作温度におけるシンチレーション光信号の波高分布中のピーク位置に対するエネルギー分解能。

波高分布測定における検出効率 ε_P は式 2.1 に基づきプロトタイプ検出器の計数値と入射光子数の比から計算した。プロトタイプ検出器の計数値はビーム入射時からビーム入射なしの場合の計数値を除いた値 $N_P - N_{P_BG}$ を用いた。入射光子数は 67.41 keV の X 線エネルギーにおいて検出効率が 100%と考えられる NaI(Tl) 検出器(応用光研、SP-10、シンチレータ厚さ: 5 mm)の出力計数値からビーム入射なしの計数値を除いた値 $N_{NaI} - N_{NaI_BG}$ を入射光子数とした。NaI(Tl)検出器による測定時にはプロトタイプ検出器よりもタングステン・フィルターを追加してビーム強度を調整したため、別途、測定したフィルターの透過率を使い、測定時のフィルター厚さの差による透過率 T_F で入射光子数を補正した。ビーム強度の時間変動は電離箱によるプロトタイプ検出器測定時の計数値 N_{I_P} と NaI(Tl)検出器測定時の電離箱の計数値 N_{I_NaI} で補正した。以上の測定値によってプロトタイプ検出器の検出効率 ε_P を式 3.2 より計算した。

$$\varepsilon_P = \frac{\frac{N_{I_P}}{N_{I_NaI}} \times (N_P - N_{P_BG})}{\frac{1}{T_F} \times (N_{NaI} - N_{NaI_BG})} \quad (3.2)$$

図 3.5 の波高分布測定では $\varepsilon_P = 6.9 \pm 0.1\%$ を得た。これは Si-APD (厚さ: 150 μm) による直接測定を想定した計算値(0.84%)の約 8 倍の値である。しかしながら、[3.3]で使用された Si-APD 検出器で 10%の検出効率を得た例のように、実用化のためには、より高い値で測定できる工夫が必要となる。

3.1.2 出力パルス波形・時間分解能

プロトタイプ検出器の出力パルス波形・時間分解能を評価した方法と結果を示す。時間分光システムは図 3.9 のように構成した。検出器からの信号は高周波パルスアンプ(KEYCOM、LNA12-2、増幅率 60 dB)によって増幅される。周波数帯域は 100 kHz から 1 GHz である。このアンプの出力は入力極性と同一極性でパルスを出力するため、APD の p^+ 側からのプラス極性パルスのアンプに入力する場合は極性を反転させるパルスインバータ(Pulse Inv.、Picosecond Pulse Lab、Model 5100)を使って負極性パルスに変換した。このパルスを変換したコンスタント・フラクシオン型ディスクリミネータ(CFD、ORTEC 935)によって Fast NIM 信号に変換した。ディスクリミネータの出力は時間一波高変換器(Time to Amplitude Converter、TAC、ORTEC 566)の Start 入力とカウンタ(NCT08-01)の入力に接続し

た。分周器（デジテックス研究所、17K37）を使って高周波加速空洞の加速信号に同期したタイミング信号(500.1 MHz)をリング 1 周分に相当する周波数 1.60 MHz に分周したうえで TAC の Stop 端子に入力した。TAC は Start 信号と Stop 信号の時間差に比例した電圧を出力する装置なので、TAC の出力を MCA で波高分析することで時間スペクトルを記録することができる。

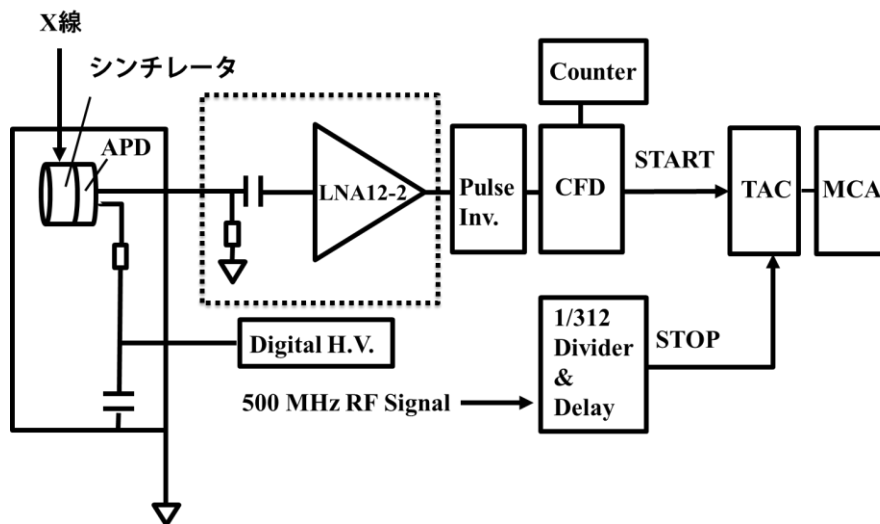


図 3.9 : プロトタイプ検出器を用いた時間分光システム。

図 3.10 はパルスインバータを通した出力パルス波形をオシロスコープ (Tektronix 社、TDS3052B、周波数帯域 : 500 MHz) で観測した 67.41 keV X 線の電圧パルス波形である。動作温度は -35°C 、逆バイアス電圧は $+382\text{ V}$ であった。パルス幅(FWHM)3 ns、パルス波高 100 mV を得ることができた。ビーム入射なしのときに測定した暗電流による波高は 50 mV だったため、信号対雑音比は 2 であった。波高分布測定装置で測定された同じ動作温度・逆バイアス電圧でのピーク対バックグラウンド比(1.9 ± 0.3)より劣化することなく高速パルスを得ることに成功した。

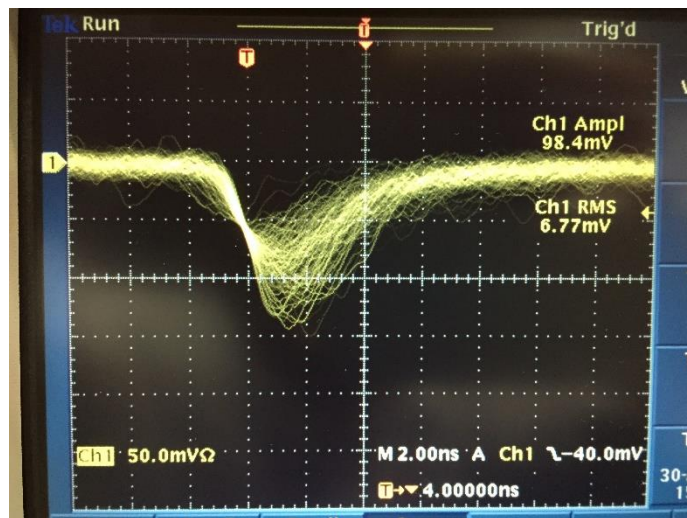


図 3.10 : 67.41 keV X 線照射時のプロトタイプ検出器によるパルス波形。パルスインバータにより反転させた波形を示した。

図 3.11 は PF リング・ハイブリッドモードで観測した 67.41 keV X 線による時間スペクトルである。PF リング・ハイブリッドモードは、シングルバンチ部分(電流値 : 50 mA)とマルチバンチ部分が共存する運転モードである。本項以外の BL-14A での測定では PF リング・マルチバンチ運転モードの X 線によるスペクトルを取得した。このとき、蓄積リングの電子バンチは 2 ns 間隔の 64 個分のバンチ群(126 ns 幅)が 30 ns のバンチのない領域をはさんで 4 個並ぶ時間構造であった。図 3.11 ではシングルバンチ部分のピーク位置を時間 (t) : 0 ns に設定した。APD の動作条件は -35°C ・ $+382\text{ V}$ であった。CFD のスレッシュホルド電圧 V_{th} は -35 mV であった。ピークのガウス関数フィットによって計算した時間分解能(ΔT , FWHM)は $0.51 \pm 0.06\text{ ns}$ が得られた。誤差は電子バンチの時間幅(FWHM)の標準偏差で与えた。放射光核共鳴前方散乱実験への応用を想定して、高分解能モノクロメータで得られる非核共鳴散乱強度/核共鳴散乱強度は $\sim 10^6$ [3.4]となることから同様の割合となる時間幅も評価する必要がある。本スペクトルの場合にはピーク強度の制限から最大ピーク強度から 10^{-4} になる時間幅 (10^{-4} 値全幅、FW 10^{-4} M) を評価した。この時間幅は 4.0 ns だった。この FW 10^{-4} M にはシンチレーション光の減衰によるテール部と APD に直接吸収された Pb-LX 線によるピーク ($t = -1.2\text{ ns}$) が含まれている。

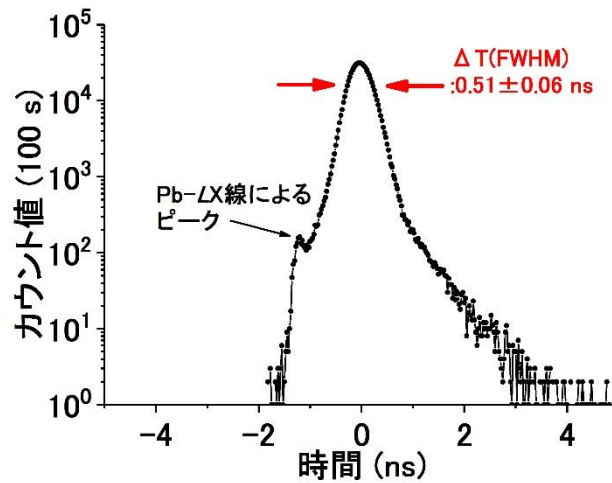


図 3.11 : PF リング・ハイブリッドモードのシングルバンチ部分を取得した時間スペクトル。動作条件： -35°C ・ $+382\text{ V}$ 、CFD のスレッシュホールド電圧 $V_{th} = -35\text{ mV}$ 。

図 3.12 に逆バイアス電圧と時間分解能の関係を動作温度別に示した。逆バイアス電圧値の増大と共に時間分解能が向上している原因は、波高の増大により時間ウォークが改善されたためと考えられる。より明確な関係が図 3.13 に現れている。この図は動作温度が 0°C と -35°C の場合に逆バイアス電圧を調整して、シンチレーション光信号のピーク位置を変えたときに得られた時間分解能を示している。同じ動作温度ではシンチレーション光のピーク位置が大きいほど、優れた時間分解能が得られた。この図に示されていないが、温度が一定のときにブレークダウン電圧近くまで逆バイアス電圧を高めると APD 増幅率が増大・エネルギー分解能が劣化して波高の変動が大きくなる。このため時間ウォークによって時間分解能は劣化する。時間スペクトル測定時の検出効率 $6.6 \pm 0.1\%$ が得られた。

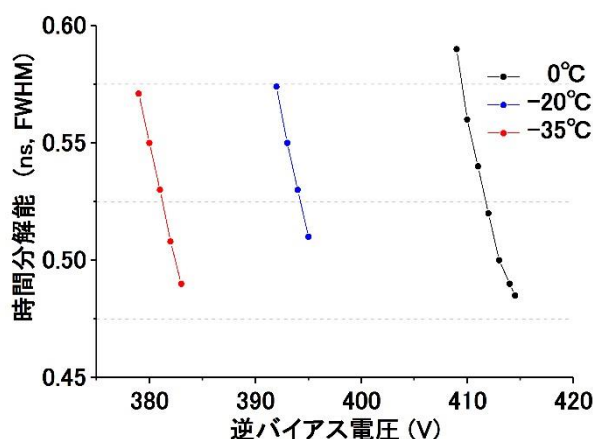


図 3.12 : 0°C、-20°C、-35°Cの動作温度における逆バイアス電圧と時間分解能の関係。

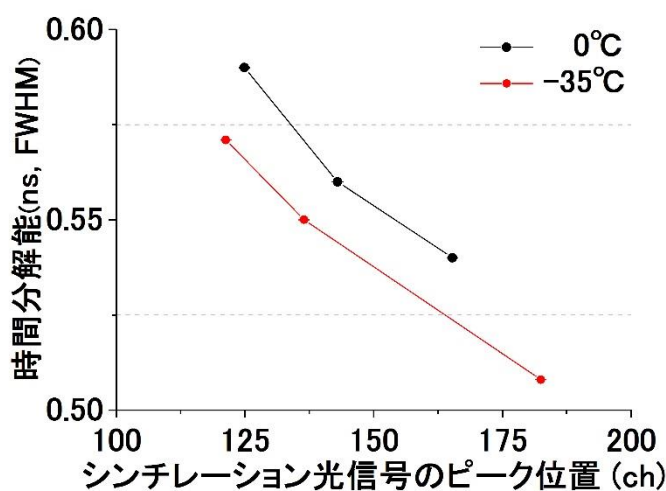


図 3.13 : 0°Cと-35°Cの動作温度における波高分布測定でのシンチレーション光信号のピーク位置と時間分解能の関係。

3.1.3 計数率特性

プロトタイプ検出器による高計数率測定を確認するため、計数率特性の評価を行った。図 3.2 のセットアップで可能な限り高い入射光子数を得るため、シンチレータ側面に $1 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$ の 67.41 keV X 線ビームを照射した。プロトタイプ検出器の出力計数率は、CFD ($V_{th} = -35 \text{ mV}$)から出力された Fast NIM 信号(パ

ルス幅：2 ns)をカウンタ(NCT08-01)によって計数した。入射 X 線光子数レートは、NaI(Tl)検出器で測定した X 線ビームの出力計数率をプロトタイプ検出器測定時に対応するタングステン・フィルターの透過率で補正して推定した値である。図 3.14 に入射 X 線光子数レートに対する出力計数率を示す。本測定の最大入射光子数レートは $(1.4 \pm 0.1) \times 10^8$ photons/s に留まったが、この光子数レートまで線形な応答を確認できた。入射光子数レート $(1.4 \pm 0.1) \times 10^8$ photons/s の場合に最大出力計数率 $(8.2 \pm 0.7) \times 10^6$ cps が得られた。図 3.10 のパルス波形の底幅 ~ 8 ns が不感時間 τ に対応すると仮定する($k = 4$)と、式 2.30 より最高計数率は、 5.3×10^7 cps と予想される。

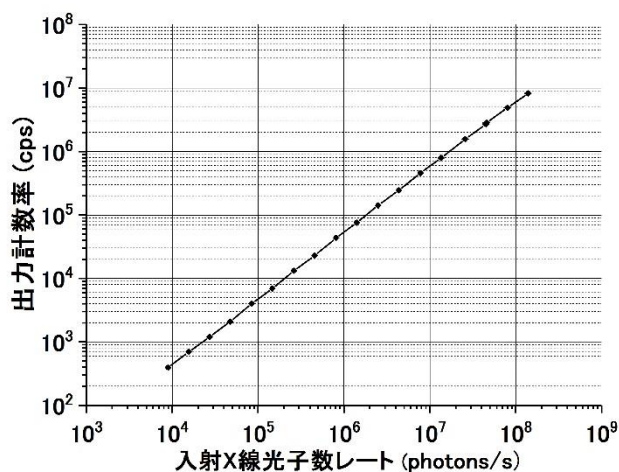


図 3.14：プロトタイプ検出器の入射 X 線光子数レートに対する出力計数率。

3.1.4 シンチレータ形状・APD 形状の検討

2.2.3 項で評価したプロトタイプ検出器の APD 樹脂窓の影響とシンチレータ形状・APD 形状による影響を確認すべく、実験を行った。表 3.1 に使用した APD の特性を示す。これらを用いて APD と EJ-256 シンチレータを別々の組み合わせで構成したプロトタイプ検出器によって 3.1.1 項、3.1.2 項と同様に 67.41 keV X 線の波高分布と時間スペクトルを取得した。

表 3.1 : 実験に使用した Si-APD の特性。

番号	型番	受光面サイズ	樹脂窓	$M = 50$ における 端子間容量(pF)
(a)	S8664-3796(X)	$\phi 3 \text{ mm}$	なし	22
(b)	S8664-30K-SPL-7679(X)	$\phi 3 \text{ mm}$	あり	22
(c)	S8664-3839(X)	$5 \times 5 \text{ mm}^2$	あり	79

(a)、(b)の端子間容量は[2.6]による規格値。(c)の端子間容量は[3.5]による。

APD 樹脂窓の影響

表 3.2 に、樹脂窓ありの $\phi 3 \text{ mm}$ APD と樹脂窓なしの $\phi 3 \text{ mm}$ APD に同じシンチレータ(EJ-256、 $\phi 3 \times 2 \text{ mm}$)を別々に搭載したプロトタイプ検出器による 67.41 keV X 線測定結果と、Geant4 シミュレーションによって求めたシンチレーション光のピーク位置（光子数分布）と 5.9 keV X 線で別途測定した APD 増幅率の値をまとめた。樹脂窓ありの測定では APD 増幅率が樹脂窓なしの約 89%(=160/180)であったが、ピーク位置は約 60% (=105/176)となり大幅に低下した。この傾向はシミュレーションの結果と同様となった。実験時に現れたシンチレーション光の波高の低下は、シミュレーション結果に現れた「光漏れ」によるものと考えられる。

表 3.2 : 樹脂窓ありの $\phi 3 \text{ mm}$ APD と樹脂窓なしの $\phi 3 \text{ mm}$ APD に
同じシンチレータを搭載した結果。

APD の種類	樹脂窓あり	樹脂窓なし
APD の動作条件	$-35^\circ\text{C} \cdot +400 \text{ V}$	$-35^\circ\text{C} \cdot +383 \text{ V}$
APD 増幅率	160 ± 20	180 ± 20
シンチレータ形状(mm)	$\phi 3 \times 2$	$\phi 3 \times 2$
実験で観測された シンチレーション光のピーク位置(ch)	105	176
シミュレーションによる シンチレーション光のピーク位置 (photons)	210	348
時間分解能 (ns、FWHM)	0.60	0.50

APD 形状・シンチレータ形状の影響

表 3.3 に APD(受光径：3 mm、樹脂窓あり)に 4 種類の異なる形状のシンチレータを搭載した結果、表 3.4 に APD(受光面サイズ：5×5 mm²、樹脂窓あり)に 4 種類の異なる形状のシンチレータを搭載した結果をまとめた。それぞれ同じ動作温度と逆バイアス電圧で比較し、φ3 mm APD の場合は-35°C・+400 V、5×5 mm² APD の場合は-35°C・+370 V であった。5.9 keV X 線で別途測定した APD 増幅率は両方の場合で同程度に調整することができて、160±20 倍であった。プロトタイプ検出器による測定結果とシミュレーションによる結果をまとめた。シンチレーション光のピーク位置は

φ3 mm APD の場合： 5×5 mm² ×¹2 mm < φ3 mm ×¹2 mm < φ2 mm ×¹2 mm
 5×5 mm² APD の場合：5×5 mm² ×¹5 mm < 5×5 mm² ×¹2 mm < φ3 mm ×¹2 mm
 となった。この関係はシミュレーションで示唆されたシンチレータからの光漏れの大小関係と同様の結果が得られた。時間分解能は 3.1.2 項で調べた波高が高いほど時間分解能が向上した結果と同様の傾向を示し、シンチレータの寸法が同じならば 5×5 mm² APD の場合は φ3 mm APD の場合を下回る値となった。これは APD の時定数の差によるものと考えられる。図 3.15 に φ3 mm ×¹2 mm シンチレータを搭載した 5×5 mm² APD のパルス波形を示す。このパルス幅(FWHM)は 8 ns となり、φ3 mm APD のパルス幅 3 ns (FWHM、図 3.10 参照)に比べ拡大した。同様に立下り時間も延び、時間分解能に影響したと考えられる。

表 3.3：APD(受光径：3 mm、樹脂窓あり)に 3 種類の異なる形状のシンチレータを搭載した結果。

APD は全て-35°C・+400 V で動作させて測定した。

シンチレータ形状 (mm)	5×5× ¹ 2	φ3× ¹ 2	φ2× ¹ 2
実験で観測された シンチレーション光のピーク位置(ch)	62	105	124
シミュレーションによる シンチレーション光のピーク位置 (photons)	115	210	263
実験で観測された 時間分解能 (ns、FWHM)	0.77	0.60	0.58

表 3.4 : APD(受光サイズ : $5 \times 5 \text{ mm}^2$ 、樹脂窓あり)に 3 種類の異なる形状のシンチレータを搭載した結果。

APD は全て $-35^\circ\text{C} \cdot +370 \text{ V}$ で動作させて測定した。

シンチレータ形状 (mm)	$5 \times 5 \times 5$	$5 \times 5 \times 2$	$\phi 3 \times 2$
実験で観測されたシンチレーション光のピーク位置(ch)	147	158	197
シミュレーションによるシンチレーション光のピーク位置 (photons)	278	275	299
実験で観測された時間分解能 (ns、 FWHM)	1.26	0.95	0.73

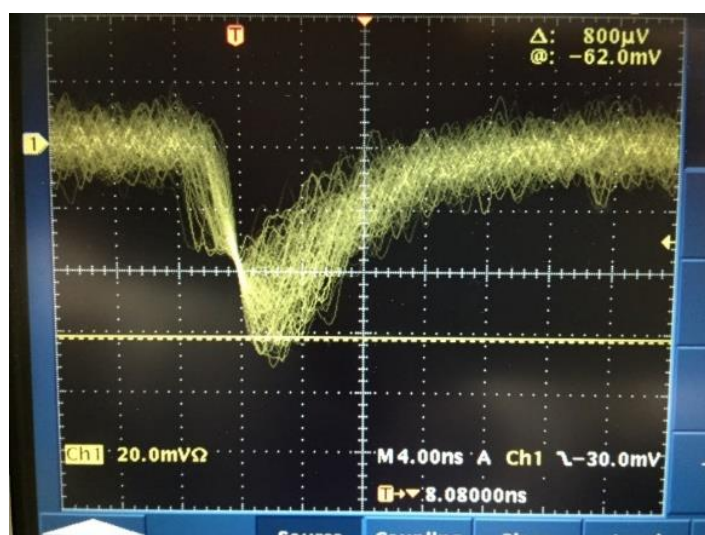


図 3.15 : シンチレータ ($\phi 3 \times 2 \text{ mm}$) を搭載した $5 \times 5 \text{ mm}^2$ APD のパルス波形。パルスインバータにより反転させた波形を示した。

3.2 Ni-61 放射核共鳴前方散乱実験へのプロトタイプ検出器の応用

本プロトタイプ検出器が応用実験においても有効な時間スペクトル測定ができるか確認するため、Ni-61 の放射核共鳴前方散乱実験を行った。本実験は I. Sergueev らによって報告された Ni-61 放射光核共鳴前方散乱実験[3.3]を参考にした。この実験で使用された検出器はスタック型 Si-APD 検出器である。この検出器は厚さ $20 \mu\text{m}$ の Si-APD を 16 個使用して、X 線ビームに対して傾けることにより有効な厚さを増した配置を取ったものである。検出効率 10%、時間分解

能は 0.5 ns だったと報告されている。

Ni-61 の放射核共鳴前方散乱実験は SPring-8 の核共鳴実験ビームライン BL09XU にて行った(課題番号：2015B1378)。放射光核共鳴前方散乱では、放射光照射によって励起された原子核から放出され、その寿命に従って減衰する核共鳴散乱線の時間スペクトルを観測する。実験時の電子バンチ運転モード(Aモード)ではバンチ間隔は 23.6 ns で Ni-61 の半減期：5.34 ns より長い。実験配置を図 3.16 に示す。アンジュレータから発生した放射光は Si(333) 二結晶分光器により 67.41 keV に単色化した。スリット： $\sqrt{0.4 \text{ mm} \times \text{H}2 \text{ mm}}$ により整形した X 線ビームは、厚さ 3 mm のアルミ箔によって 1 次光のみを減衰した。このビームが試料に照射されて核共鳴散乱線と非共鳴散乱線（トムソン散乱線・蛍光 X 線など核外電子由来の X 線）が発生する。試料を透過した X 線は二つの Si(642) 結晶からなる高分解能モノクロメータにより非核共鳴散乱線をできる限り除くように、さらにエネルギー幅を絞って単色化される。このモノクロメータのエネルギー幅は 380 meV と評価された。ビーム強度はビーム透過型フォトダイオードによって測定した。本実験で核共鳴前方散乱を測定するのに用いた検出器は 2.2.1 項で説明したプロトタイプ検出器である。検出器の真空容器がアルミ製だったため、実験時には、その外側を鉛板で覆い散乱線によるノイズを低減した。

プロトタイプ検出器より後段の時間分光装置は 3.1.2 項と同様の構成である。TAC(ORTEC 567)、MCA(EG&G 7700)は BL09XU の装置を使用した。CFD の V_{th} は -35 mV とした。TAC のスタート信号には CFD の出力、ストップ信号には SPring-8 蓄積リングの高周波加速空洞によるタイミング同期信号を入力した(分周器：17K66A を使用)。

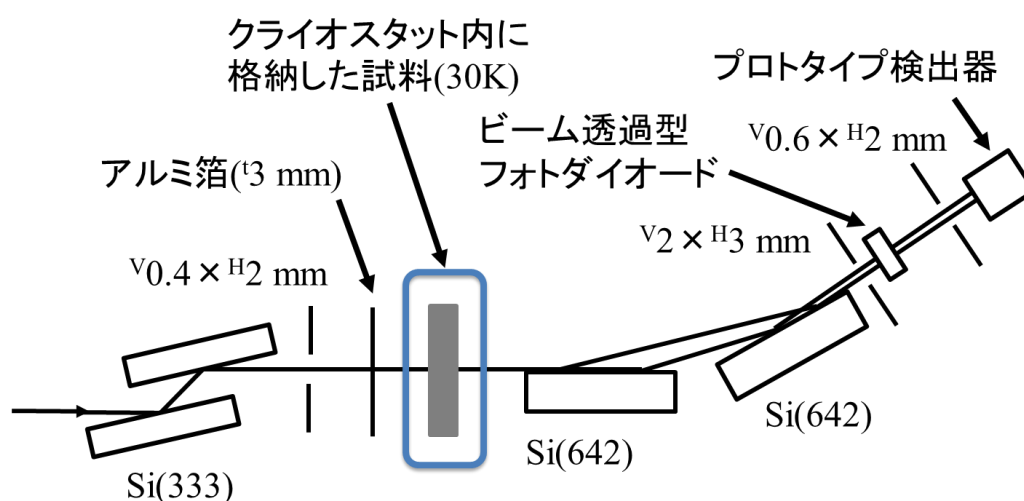


図 3.16 : SPring-8 BL09XU にて実施したプロトタイプ検出器による放射光核共鳴前方散乱実験のセットアップ。

試料は Ni 箔と $\text{Ni}_{86}\text{V}_{14}$ 合金を用いた。これらの試料中の Ni-61 濃縮度は 86.2% である。すべての試料は図 3.17 の写真に示すようにクライオスタットに格納されたサンプルホルダーにカプトンフィルムで固定した。試料を冷却することで核共鳴の確率を増やすことができるため、本測定では 30 K まで冷却した。Ni 箔は厚さ 450 μm と 200 μm の 2 種とした。 $\text{Ni}_{86}\text{V}_{14}$ 合金は厚さ 420 μm だった。

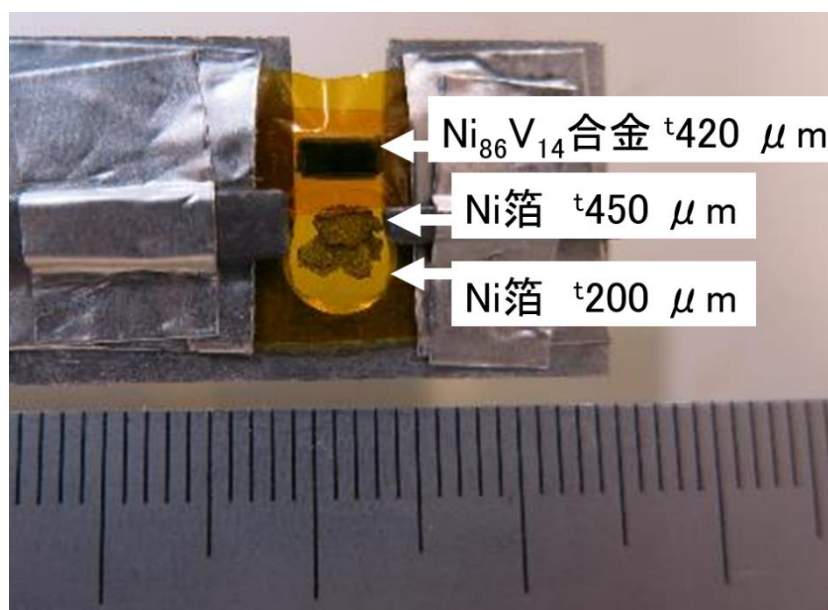


図 3.17 : サンプルホルダーに搭載された試料。

測定時には、プロトタイプ検出器は動作温度 $-31.3 \pm 0.1^\circ\text{C}$ 、バイアス電圧 +382 V であった。プロトタイプ検出器によって観測された Ni 箔 ($t=450 \mu\text{m}$) の非核共鳴散乱線の時間スペクトルを図 3.18 に示す。このとき高分解能モノクロメータのエネルギーを 0.8 eV だけ核共鳴エネルギーより低くして測定した。非核共鳴ピークのタイミングを 0 ns に選んだ。この時間分解能 $\Delta T(\text{FWHM})$ は 0.56 ns となり、測定時の時間分解能はこの値で見積もられる。

核共鳴散乱線の時間スペクトル測定では非核共鳴散乱線のタイミング(スペクトルでは 0 ns) から 5 ns まで遅れた領域の計数を測定回路(CFD)により排除した。排除した非核共鳴の最高計数率は、 $\text{Ni}_{86}\text{V}_{14}$ 合金 ($t=420 \mu\text{m}$) の非核共鳴の場合に 2.7 Mcps であったため、検出器のダイナミックレンジの上限からは十分低い。1 つの試料について核共鳴散乱エネルギーに合わせたときと非核共鳴での計数の差

を取り、正味の核共鳴前方散乱時間スペクトルを求めた。図 3.19 は Ni 箔($450 \mu\text{m}$)の場合に取得した核共鳴エネルギーでの時間スペクトル (赤線) と、非核共鳴での時間スペクトル (黒線) である。この場合、核共鳴エネルギーでは計数率 1 cps が得られた。同様に非核共鳴では、計数率は 0.09 cps であった。Ni₈₆V₁₄ 合金($420 \mu\text{m}$)の核共鳴の場合に最大の計数率 2 cps が得られた。

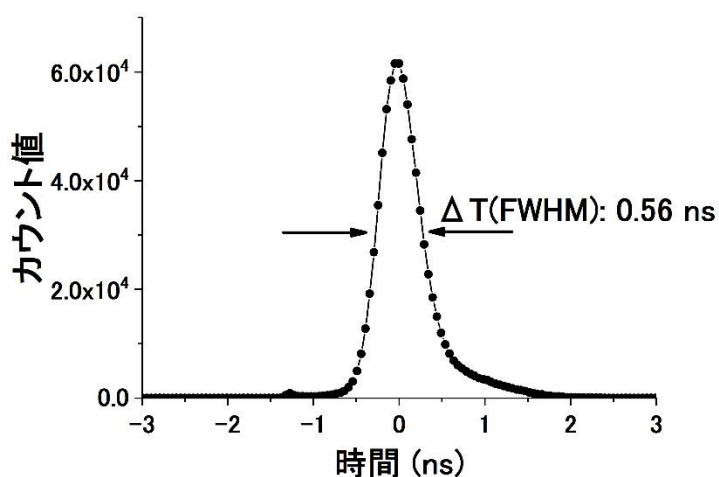


図 3.18 : 非共鳴散乱線の時間スペクトル。

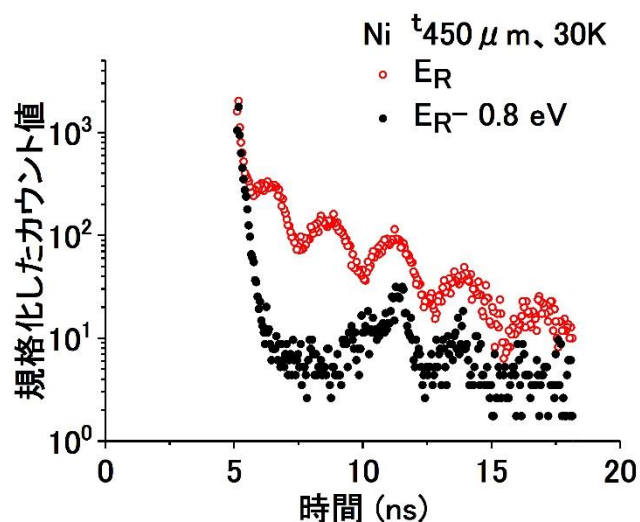


図 3.19 : Ni 箔($450 \mu\text{m}$)の核共鳴散乱前方散乱時間スペクトル。
赤線 : 核共鳴エネルギー(E_R)の場合、
黒線 : 非核共鳴エネルギー($E_R - 0.8 \text{ eV}$)の場合。

Ni 箔(${}^t200\ \mu\text{m}$)と Ni 箔(${}^t450\ \mu\text{m}$)、Ni₈₆V₁₄ 合金の核共鳴前方散乱時間スペクトルをそれぞれ図 3.20、図 3.21、図 3.22 に示す。これらは [3.6]の式(3)を基にした関数によってフィットした。フィット関数 $f(t)$ は次式で表される。

$$f(t) = \frac{a}{\tau} \exp(-t/\tau) J_1^2(\sqrt{bt}) + c \quad (3.3)$$

右辺は Ni-61 の寿命(7.7 ns)を単位とした時間 τ : $\tau = t/7.7$ の関数である。 J_1 は第一種ベッセル関数である。 a は強度、 b は試料の厚さ、 c はバックグラウンド (定数) である。この計算過程では試料の厚さがガウス関数型で分布すると仮定し、5成分のフィット関数 $f(t)$ を適用した。

フィットした結果、測定したスペクトルが試料の厚さに応じた時間構造の差を反映していたことが確認できた。また、核共鳴の確率を意味する無反跳分率値をそれぞれ、Ni 箔(${}^t200\ \mu\text{m}$) : 0.20、Ni 箔(${}^t450\ \mu\text{m}$) : 0.17、Ni₈₆V₁₄ 合金(${}^t420\ \mu\text{m}$) : 0.16 を得た。Ni 箔(${}^t200\ \mu\text{m}$)の結果以外は[3.3]の値(0.16)に近い妥当な値を得ることができた。Ni 箔(${}^t200\ \mu\text{m}$)ではピークの数が少ないため正しくフィットできていなかった可能性がある。

本測定によりプロトタイプ検出器でも核共鳴前方散乱時間スペクトルを取得できることが示された。一方で核共鳴散乱線の出力計数率は 1 cps にとどまった。実用化のためには検出効率の向上が望まれる。

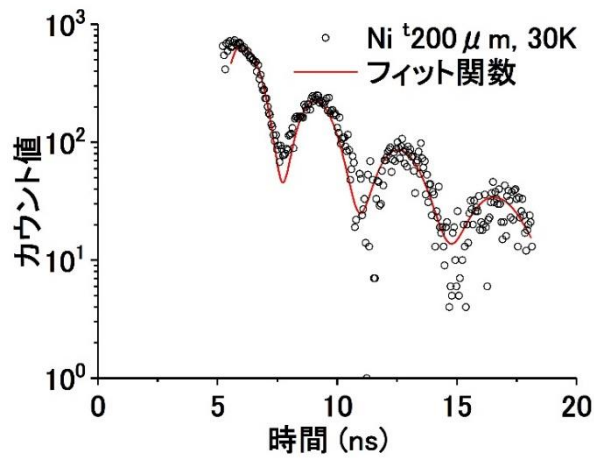


図 3.20 : Ni 箔($^{200}\mu\text{m}$)の核共鳴散乱前方散乱時間スペクトル。

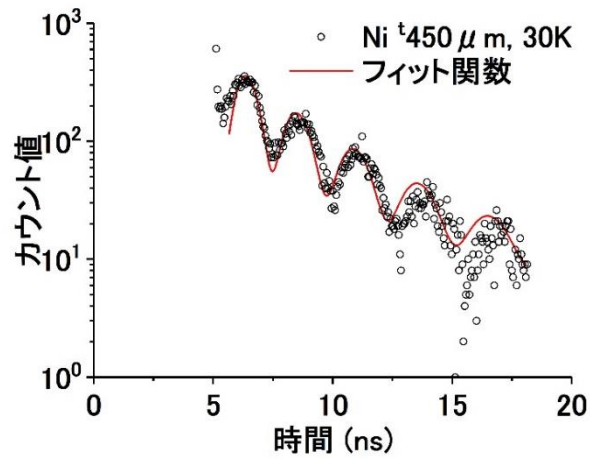


図 3.21 : Ni 箔($^{450}\mu\text{m}$)の核共鳴散乱前方散乱時間スペクトル。

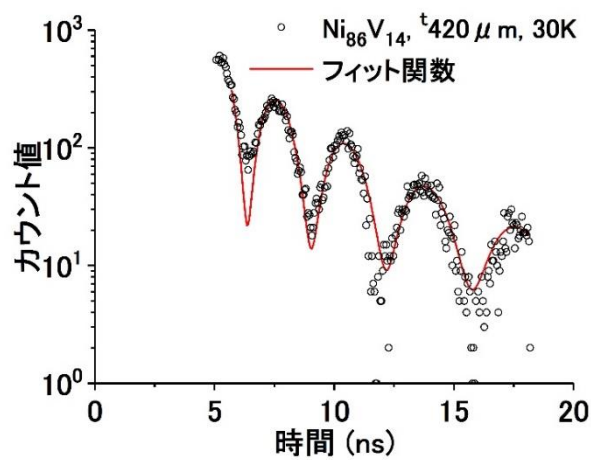


図 3.22 : $\text{Ni}_{86}\text{V}_{14}$ 合金($^{420}\mu\text{m}$)の核共鳴散乱前方散乱時間スペクトル。

3.3 MPPC シンチレーション検出器の特性評価

3.1 節で評価したシンチレーション検出器の受光素子に使用した比例モード Si-APD は APD 増幅率の上限が 200 倍程度であることに対して、ガイガーモード Si-APD は 10^5 倍以上の増幅率が得られる。それぞれの特性の違いを比較するため、ガイガーモード Si-APD である MPPC (Multi-Pixel Photon Counter) を用いたシンチレーション検出器を比例モード Si-APD を使う APD シンチレーション検出器とは別に製作した。本節ではこの MPPC シンチレーション検出器によって波高分布、時間スペクトル、計数率曲線を PFBL-14A において取得し、3.1 節の結果と比較した。

実験に使用した MPPC シンチレーション検出器は、比例モード Si-APD の場合に使用したのと同じ EJ-256 シンチレータ (Eljen 社、鉛添加量：5%、 $\phi 3 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$) と MPPC (浜松ホトニクス社、S13082-025CS、受光サイズ： $3 \times 3 \text{ mm}^2$ 、ピクセルサイズ： $25 \mu\text{m}$ 、樹脂窓あり) によって構成した (図 3.23)。2.2.2 項と同様に MPPC およびシンチレータを真空容器内に固定し、ペルチェ素子とペルチェ・コントローラ (セルシステム社、TDC-1020A) によって温度制御を行った。白金抵抗体は APD を固定する銅板の先端部に開けられた穴にねじで固定した。

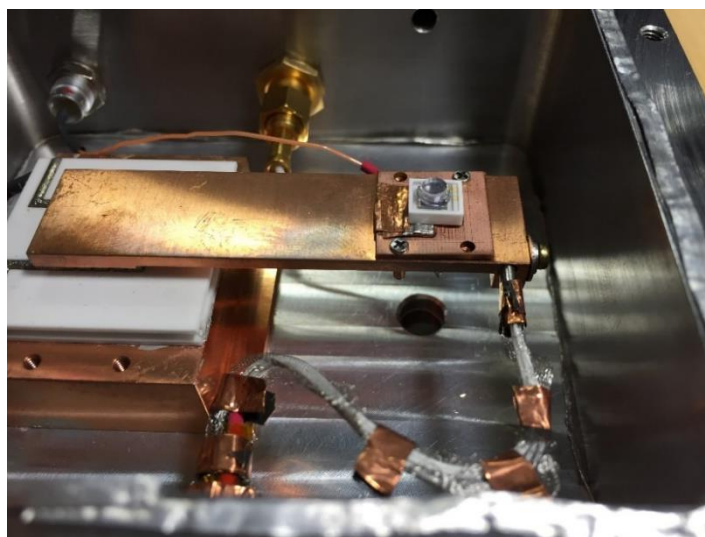


図 3.23 : MPPC シンチレーション検出器の写真。測定時にシンチレータを覆ったテフロンテープ (反射材) は取り除いて撮影した。

波高分布測定方法は 3.1.1 項で説明したものと同様である。ただし、MPPC の増幅率が大きいため、感度の低い電荷積分型プリアンプ (Canberra, 2005、感度：

22.7 mV/pC)を採用し、主増幅器(ORTEC572)のゲイン設定値を Fain gain : 1.0、Corse gain : 50 のように変更した。図 3.24 は MPPC の動作温度 -25°C ・逆バイアス電圧 $+54.0\text{ V}$ で測定した 67.41 keV X 線ビーム照射時の波高分布である。この MPPC の推奨動作電圧は動作温度 $+25^{\circ}\text{C}$ において $V_r = +55.45\text{ V}$ である[3.7]。低チャンネル側の信号には、くし状のピークが現れた。これらは光子 1 個、2 個、3 個などによる信号が、高い増幅率でピークとして分離されたもので、MPPC に特徴的なスペクトル形状である。MPPC の増幅率は 1 ピクセルが 1 フォトンを検出して発生したパルスの電荷量を素電荷で割った値で定義される。隣り合うピークの間隔は 1 光電子による出力電荷量に相当し、次式から測定時の MPPC の増幅率を見積もった[3.8]。

$$\text{MPPC の増幅率} = \frac{2 \text{ つのピーク間のチャンネル幅} \times \text{ADC 変換量}}{\text{素電荷}} \quad (3.4)$$

図 3.24 の 7 点のピークにガウス関数フィットを行い、ピーク間の平均チャンネル幅を $6.6 \pm 0.4\text{ ch}$ と求めた。ADC 変換量 8.6 fC/ch ($10\text{ V}/1024\text{ ch} \div 22.7\text{ mV/pC} \div 50$) と素電荷 $1.602 \times 10^{-19}\text{ C}$ より、増幅率は 3.5×10^5 と計算できる。浜松ホトニクスが評価した増幅率 4.0×10^5 ($V_r = +55.45\text{ V}$ 、 25°C) [3.7] と同程度の値を得る動作条件であったことを確認した。図 3.24 の波高分布ではピーク対バックグラウンド比は 8.0 ± 0.5 となった。検出効率は $8.4 \pm 0.1\%$ であった。

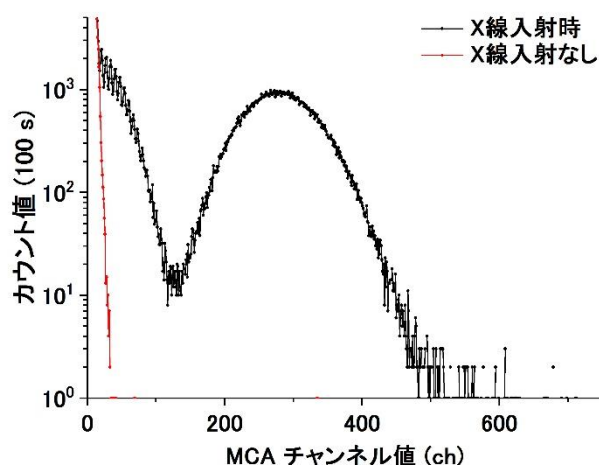


図 3.24 : 67.41 keV X 線照射時の MPPC シンチレーション検出器の波高分布。黒線 : X 線入射時、赤線 : X 線入射なし。動作温度 -25°C 、逆バイアス電圧 $+54\text{ V}$ 。

PF リング・マルチバンチ運転モードの 67.41 keV パルス X 線に対して、3.1.2 項と同様の時間分光システムとハッチ内セットアップで時間スペクトル測定を行った。MPPC の APD 増幅率を考慮して、比例モード APD の場合よりも増幅率の低い高周波アンプ (Philips scientific、6954、増幅率:100 倍、帯域 100 kHz~1.8 GHz)により図 3.25 のようなパルス波形が観測された。X 線ビーム入射ありの波高は 350 mV、ビーム入射なしでは 80 mV となり、信号対雑音比は 4 となった。パルス幅 (FWHM) は 20 ns であった。

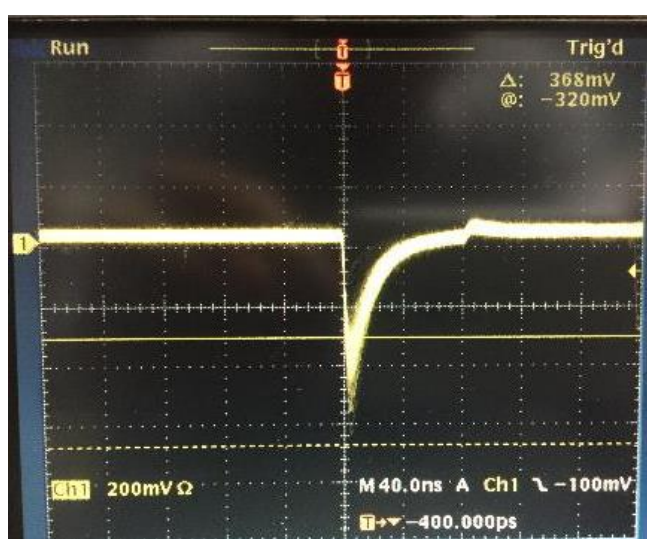


図 3.25 : 67.41 keV X 線入射時の MPPC シンチレーション検出器によるパルス波形。インバータにより反転させた波形を示した。

図 3.26 に MPPC シンチレーション検出器の時間スペクトルを、比較用の APD シンチレーション検出器の場合のスペクトルと共に示す。APD シンチレーション検出器のスペクトルは図 3.11 の測定データを MPPC シンチレーション検出器のスペクトルを基準に、チャンネル値当たりの最大カウント値で規格化してプロットしたスペクトルである。MPPC シンチレーション検出器の時間分解能は $0.41 \pm 0.06 \text{ ns}$ となり MPPC の高い増幅率によって比例モード Si-APD によって得られた値より良好な結果が得られた。しかし MPPC シンチレーション検出器ではスレッシュホールド電圧では取り除けなかった雑音ピークがピークより遅れたタイミングで現れた。そのため高めのスレッシュホールド電圧 $V_{th} = -90 \text{ mV}$ に設定して時間スペクトルを測定した。この場合でもピークの後尾に現れた雑音は比例モード Si-APD より目立ち、指数関数フィットによって計数が 1 まで減る時間を計算した結果、APD シンチレーション検出器のプロトタイプ検出器では 3.1 ns、MPPC

シンチレーション検出器は 5.3 ns となり約 2 ns 拡大していた。

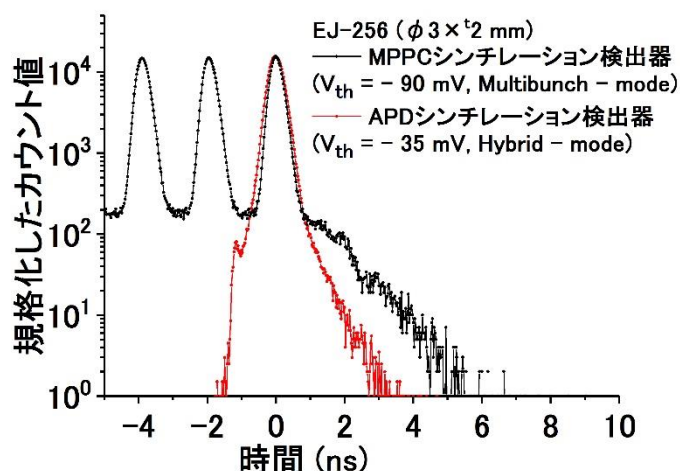


図 3.26 : 67.41 keV X 線照射時の MPPC シンチレーション検出器による時間スペクトル (黒点) と APD シンチレーション検出器による時間スペクトル(赤点)。

計数率測定を 3.1.3 項と同様に行い、3.1.3 項で示した結果と比較したものが図 3.27 である。MPPC シンチレーション検出器の場合には入射 X 線光子数レート 10^6 cps 付近から数え落としが増加し、 $(2.7 \pm 0.1) \times 10^7$ cps を超えると入射光子数レートを増やしても出力計数率は減少した。最大出力計数率は入射光子数レート : $(2.7 \pm 0.1) \times 10^7$ photons/s の場合に 1.36 Mcps が得られた。

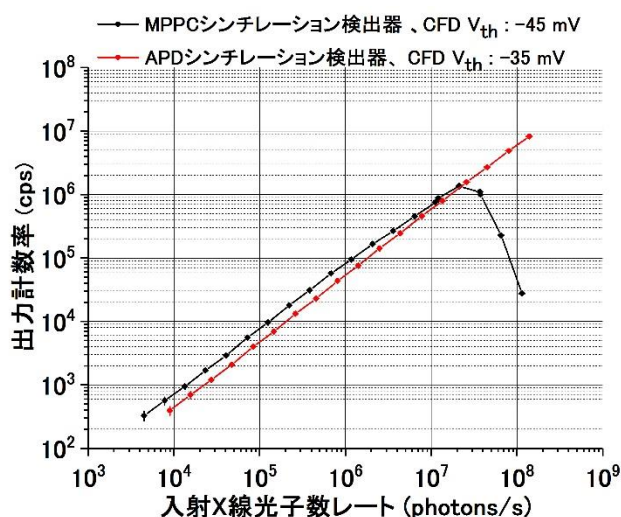


図 3.27 : 67.41 keV X 線照射時の MPPC シンチレーション検出器による入射 X 線光子数レートに対する出力計数率(黒点)と APD シンチレーション検出器による出力計数率(赤点)。

第3章の参考文献

- [3.1] 岸本俊二, "BL-14A 単結晶構造解析・検出器開発ステーション",
http://pfwww.kek.jp/users_info/station_spec/bl14/bl14a.html (cited: 2016-10-11).
- [3.2] Canberra industries inc., Spectroscopy preamplifier Model 2001/2001A Operator's Manual.
- [3.3] I. Sergueev, A.I. Chumakov, T.H. Deschaux Beaume-Dang, R. Rüffer, C. Strohm, and U. van Bürcck, "Nuclear forward scattering for high energy mössbauer transitions", Phys. Rev. Lett. **99** (2007) 097601.
- [3.4] D.P. Siddons, U. Bergmann, and J. B. Hastings, "Time-dependent polarization in Mössbauer experiments with synchrotron radiation: suppression of electronic scattering", Phys. Rev. Lett. **70** (1993) 359.
- [3.5] 浜松ホトニクス社, S8664-3839(X) 成績表, (2014).
- [3.6] U. van Brück, D.P. Siddons, J.B. Hastings, U. Bergmann, and R. Hollatz, "Nuclear forward scattering of synchrotron radiation", Phys. Rev. B **46** (1992) 6207.
- [3.7] 浜松ホトニクス社, 検査成績表 TypeNo 3×3-25UM SAMPLE LCT5 Serial No.1.
- [3.8] 浜松ホトニクス社, "光半導体素子ハンドブック:第3章", (2015).p.65.

第 4 章 放射光核共鳴散乱実験のための高性能化

4.1 HfO₂ ナノ粒子添加プラスチックシンチレータを用いた APD シンチレーション検出器

4.1.1 HfO₂ ナノ粒子添加プラスチックシンチレータ

重元素添加プラスチックシンチレータの固有検出効率は、その重元素添加量と共に増大する。本研究のプロトタイプ検出器には鉛添加量 5wt% の鉛添加プラスチックシンチレータを使用した。5wt% を超える鉛含有量のシンチレータは市販されていない。その理由は、鉛添加量の増大と共に、発光量が減るためである。EJ-256 の鉛添加量と発光量の関係を表 4.1 に示す。鉛添加量の増大と共に発光量が減少し、10wt% の場合は 5wt% の約 64% となっている。

表 4.1 : EJ-256 の鉛添加量と発光量の関係。[1.19][1.20]を参考に作成した。

鉛添加量(wt%)	発光量(photons/MeV)
2	7800
5	5200
10	3300

これに対し、発光量の減少を抑えつつ、重元素添加量を増やし、かつ高速発光のシンチレータとして、重元素酸化物ナノ粒子を添加したプラスチックシンチレータ開発の共同研究を東北大学と行っている[4.1]。ナノ粒子として重元素酸化物を高速発光するプラスチックシンチレータに添加することによって X 線の吸収量を増やすこと、シンチレータ中でナノ粒子として分散させることによって、シンチレーション光がシンチレータ内部でも透過しやすくする狙いがある。入射光の波長程度、またはそれより大きい球形粒子によって起こる弾性散乱をミー散乱と呼ぶ。この影響を抑えるため、シンチレーション光の波長より小さい径百ナノメートル以下のナノ粒子として重元素酸化物を添加することを目指す。本節では HfO₂ ナノ粒子添加プラスチックシンチレータの製作について報告する。ハフニウムは原子番号 72 の重元素であり、Hf-K 吸収端エネルギーが 65.35 keV である。本研究で使用する HfO₂ ナノ粒子添加プラスチックシンチレータの HfO₂

ナノ粒子の合成方法は超臨界水熱合成法である。超臨界水熱合成方法とは超臨界水を利用した合成方法である。超臨界水とは臨界点 374°C、22.1 MPa を超えた状態の水で無極性となっており、同じく無極性な有機溶媒と混ざりやすく反応性も高い。この性質を利用して粒子の合成と同時に有機修飾を施すことにより、有機修飾金属酸化物ナノ粒子を得る[4.2]。

製作した HfO₂ ナノ粒子添加プラスチックシンチレータ (HfO₂ 添加量 10wt%、φ 3 mm × 1 mm、HfO₂-PLS) の写真を図 4.1 に示す。有機蛍光体は b-PBD(C₂₄H₂₂N₂O、2-(4-ter-butylphenyl)-1,3,4-oxadiazole)、母材はポリスチレンである。有機修飾剤は 3-フェニルプロピオン酸(C₉H₁₀O₂、3-Phenylpropionic acid)を使用した。



図 4.1 : 新しく製作した HfO₂ ナノ粒子添加プラスチックシンチレータ (HfO₂ 添加量 10wt%、φ 3 mm × 1 mm) の写真。

4.1.2 HfO₂ ナノ粒子添加プラスチックシンチレータ搭載 APD シンチレーション検出器の特性評価

実験では、本論文 2.2.1 項で述べたプロトタイプ検出器において、シンチレータを EJ-256 から前項 4.1.1 で説明した HfO₂-PLS に交換して評価した。比較のため厚みが同程度の EJ-256 シンチレータ (鉛添加量 5wt%、φ 3 mm × 1 mm) を搭載した場合も測定した。PF BL-14A において、3.1.1 項、3.1.2 項に述べた測定方法と同様な方法で波高分布測定と時間スペクトル測定 (マルチバンチモード運転) を行った。入射 X 線エネルギーはニッケル 61 の放射光核共鳴散乱を想定した 67.41 keV と Hf-K 吸収端エネルギーよりも低い 60.00 keV で測定した。図 4.2 に時間スペクトルを示す。シンチレータからの Hf-LX 線を Si-APD が直接検出することによるピーク強度が、入射 X 線エネルギー : 67.41 keV の場合に 60 keV と比べて約 6 倍増大した。この結果より時間スペクトル測定を行うような場合、HfO₂-PLS は Hf-K 吸収端 65.35 keV 以下の入射 X 線エネルギーにおいて使うべきと考えられる。

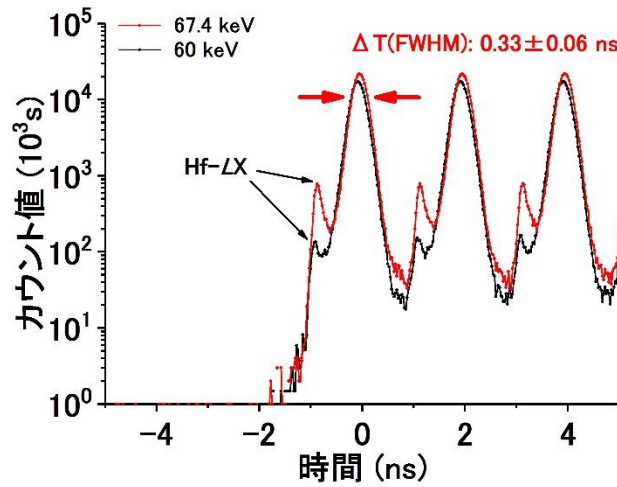


図 4.2: HfO₂ ナノ粒子添加プラスチックシンチレータを搭載した APD シンチレーション検出器の時間スペクトル。赤線：入射 X 線エネルギー 67.41 keV、黒線：入射 X 線エネルギー 60.0 keV。動作温度-33°C、逆バイアス電圧+382 V。

ヨウ素 127 の核共鳴エネルギーは 57.61 keV で Hf-LX 線の直接検出によるピークが目立たないため、ヨウ素 127 の核共鳴散乱実験を想定して入射 X 線エネルギー57.61 keV での測定を行った。図 4.3 に HfO₂-PLS を搭載した場合と EJ-256 シンチレータを搭載した場合の波高分布を示す。シンチレーション光のピーク位置は EJ-256 の場合に 149 ch、HfO₂ ナノ粒子添加プラスチックシンチレータに 173 ch となった。このピーク位置はシンチレータの発光量に比例するため、HfO₂-PLS は EJ-256 に比べ発光量が約 20% 増大したと考えられる。検出効率は EJ-256 が 7.2±0.1%、HfO₂-PLS では 5.8±0.1% であった。

HfO₂-PLS の固有検出効率を 2.1.1 項の EJ-256 と同様に計算した。酸化ハフニウムが 10wt% を占め、1 立方センチメートル当たりの炭素原子数と水素原子数の比が EJ-256 と同じならば、炭素の重量百分率は次式より 82.3% と計算され、水素の重量百分率は 7.7% となる。

$$90\text{wt}\% \times \frac{4.62 \times 12}{(4.62 \times 12 + 5.20)} = 82.3\text{wt}\%$$

以上の重量百分率と、X 線測定に用いた HfO₂-PLS の密度の測定値：1.13 g/cm³ と X 線がシンチレータ内を通過する距離：3 mm を仮定した場合、HfO₂-PLS と EJ-256 の検出効率の計算値を図 4.4 に示す。57.6 keV X 線の場合には HfO₂-PLS の固有検出効率は 9.1%、EJ-256 の固有検出効率：7.9% より上回った。実験で HfO₂-

PLS の検出効率が EJ-256 を下回った原因は、シンチレータ内の酸化ハフニウムが不均一に分布しており、X 線ビームが通過した領域では酸化ハフニウムの重量百分率が 10wt%より低かったためと考えている。上記の計算によると、酸化ハフニウム添加量が 6.2%の場合に実験値と同じ検出効率である 5.8%になった。

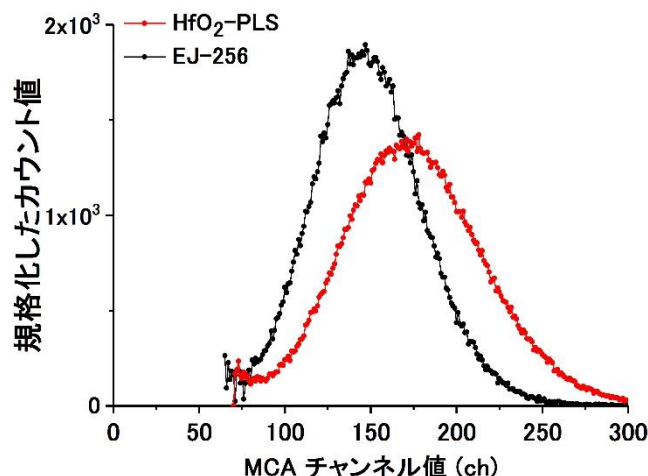


図 4.3 : HfO₂ ナノ粒子添加プラスチックシンチレータ (赤線) または鉛添加プラスチックシンチレータ EJ-256(黒線)を用いた APD シンチレーション検出器の波高分布。(57.6 keV X 線入射時、動作温度-34℃、逆バイアス電圧+382 V)。

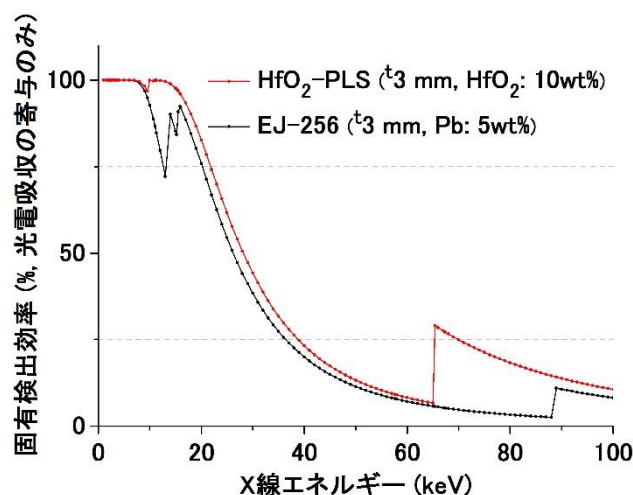


図 4.4 : HfO₂ ナノ粒子添加プラスチックシンチレータ (赤線) と鉛添加プラスチックシンチレータ EJ-256(黒線)の固有検出効率の計算値。2 つとも同じ X 線通過距離 : 3 mm を仮定して計算した。

図 4.5 に時間スペクトルを示す。0 ns に立つピークの時間分解能は、HfO₂-PLS では 0.34 ± 0.06 ns、EJ-256 シンチレータで 0.54 ± 0.06 ns が得られた。

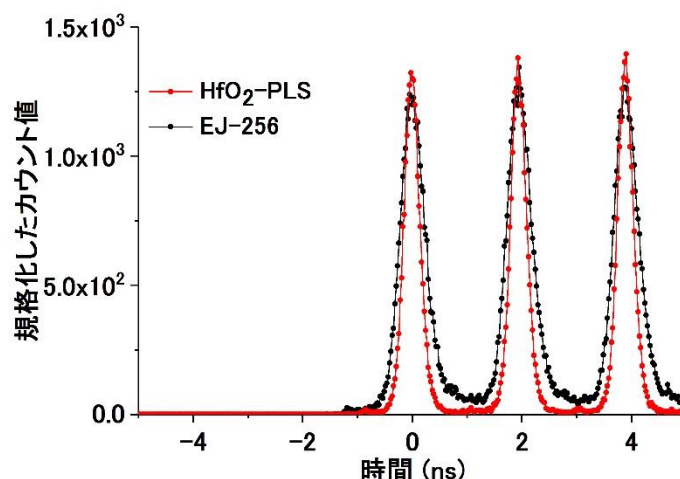


図 4.5 : 57.6 keV X 線入射時の APD シンチレーション検出器の時間スペクトル。赤線 : HfO₂ ナノ粒子添加プラスチックシンチレータ、黒線 : EJ-256。

HfO₂-PLS は EJ-256 より 0.2 ns 時間分解能が向上した。HfO₂-PLS は波高が約 20% 増大した動作条件であった。しかし、図 3.13 で示した EJ-256 の場合は、シンチレーション光信号の波高が 40% 増大しても 0.1 ns 以上の時間分解能の向上はなかったので、波高が大きかったことは時間分解能が改善された直接の原因と考えにくい。パルス波形に着目して HfO₂-PLS の時間分解能について検討した。図 4.6 にオシロスコープ (Tektronix、TDS6804B、周波数帯域 : 8 GHz) で観測した HfO₂-PLS と EJ-256 のパルス波形を示す。この波形はオシロスコープの機能により 512 個の波形を平均したものである。このパルス特性は表 4.2 の様に測定された。このパルスの立下り時間が HfO₂-PLS で 1.1 ns と EJ-256 の 1.6 ns と比較して短い値となった。この立下り時間が短くなったことによる時間ジッターの減少が時間分解能を改善したと考えられる。この立下り時間の違いは、EJ-256 が PPO と POPOP の 2 種類の蛍光体を使用していると考えられるのに対して、HfO₂-PLS の蛍光体は b-PBD の 1 成分であることによると考えている。シンチレーション光の立下り時間は X 線がシンチレータ中で相互作用してから、蛍光体が励起されるまでに要する時間で決まる。HfO₂-PLS ではエネルギー移動の段階数が少ない分、発光が速いと考えられる。

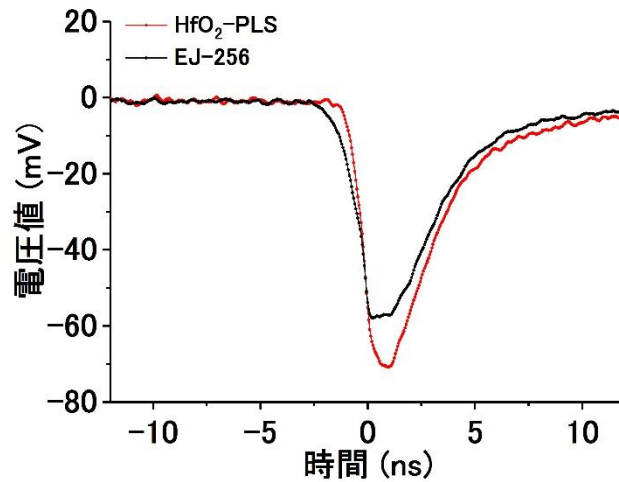


図 4.6 : HfO₂-PLS もしくは EJ-256 を搭載した APD シンチレーション検出器の出力パルス波形 (512 個の波形平均値)。赤線 : HfO₂-PLS、黒線 : EJ-256。

表 4.2 : HfO₂-PLS もしくは EJ-256 を搭載した APD シンチレーション検出器の出力パルス波形のパラメータ (512 個の波形平均値)。

波形のパラメータ	HfO ₂ -PLS	EJ-256
波高 (mV)	69±1	56±1
パルス幅 (ns、FWHM)	3.4±0.1	3.9±0.1
立ち上がり時間 (ns)	1.1±0.1	1.6±0.1

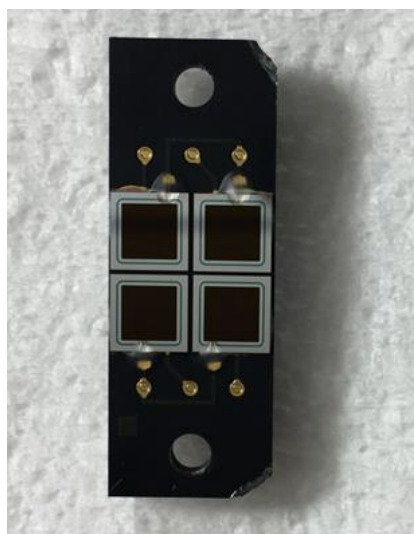
4.2 4-ch アレイ比例モード Si-APD を受光素子とした検出器

核共鳴前方散乱実験における検出効率を上げるために、シンチレータと Si-APD 素子を複数直列に並べる「アレイ化」により X 線がシンチレータ内を通過する距離を延ばす方法をテストした。4 チャンネル比例モード Si-APD を受光素子としたシンチレーション検出器 (4-ch 高速 APD シンチレーション検出器) を製作し、BL-14A にて特性評価を行った。

製作した検出器は、図 4.7 (a) に示す 4 素子 S8664 型 APD アレイ (浜松ホトニクス社、S8664-5041、樹脂窓なし、受光面 3×3 mm²) を 2 個並べ、そのうち直列 4 個に EJ-256 シンチレータ (Eljen 社、EJ-256、鉛添加量 : 5wt%、3×3 mm²×3 mm) を装着する 4-ch 高速 APD シンチレーション検出器である。この APD アレイ素子は 4 素子アレイ基板を上下に対向して配置すれば、3×3 mm² ×4=36 mm² の

有感面積を有する検出器となる。試料に近づけて立体角を大きくし、試料から散乱する核放射線を検出する放射光メスbauer吸収分光法にも応用が可能となる。

(a)



(b)

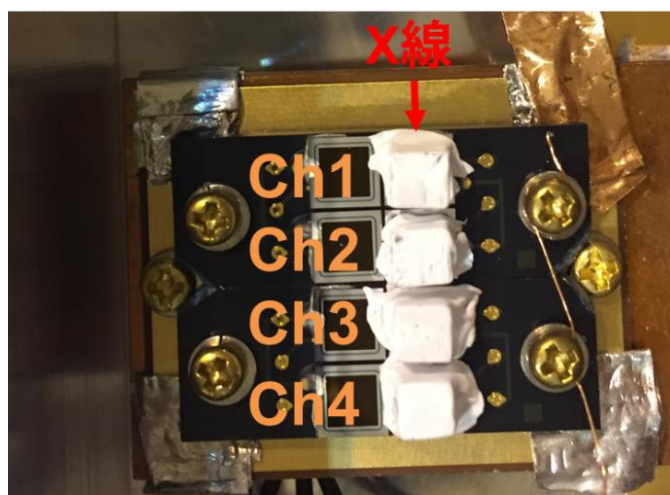


図 4.7 : (a) 4 素子 S8664 型 APD アレイの写真、 (b) EJ-256 シンチレータを装着して 4-ch 高速 APD シンチレーション検出器の内部に組み込んだ写真。Ch1～Ch4 の 4 つの素子から信号が取り出される。

この検出部を 3.3 節と同様に検出器を真空容器内に固定し、ペルチェ素子とペルチェ・コントローラ(セルシステム社、TDC-1020A)によって温度制御を行った。真空容器はステンレス製に変更した。白金抵抗体は APD を固定する銅板に空けられた穴にねじで固定した。図 4.7 (b)のように Ch1、Ch2、Ch3、Ch4 と標識した素子のそれぞれから LEMO 端子により信号を独立に取り出せるように配線した。バイアス電圧は単一の高圧電源から各素子に供給した。電圧源は ORTEC478 を使用した。温度計に流れる電流に起因する高周波ノイズを低減するため、APD 基板と接触するねじと真空容器の GND 端子を銅線で結び、接地経路を追加した。

検出器は放射光核共鳴前方散乱(イリジウム 193、共鳴準位 : 73.04 keV、半減期 : 6.09 ns)への応用を想定して、Ch1 から入射して 4 つのシンチレータを貫く

方向に進行する X 線ビーム(73.04 keV、 ϕ 0.1 mm)を検出するよう配置した。波高分布測定方法は 3.1.1 項で説明したものと同様である。電荷積分型プリアンプ (Canberra 2001A、感度 2 V/pC) と主増幅器 (ORTEC 572、Fain gain : 1.0、Corse gain : 100) を使用した。図 4.8 は APD アレイの動作温度 -22°C ・逆バイアス電圧 -402 V に設定した X 線ビーム照射時の波高分布である。Ch1 と Ch2 のピーク位置は $120 \pm 2\text{ ch}$ 、Ch3 と Ch4 のピーク位置は $183 \pm 1\text{ ch}$ となり、同じ基板に配置された Ch1、Ch2 より、別の基板の Ch3、Ch4 で得られる波高が大きい結果となった。実用上は全てのチャンネルの波高が同程度であると調整しやすいので波高が同程度となるような逆バイアス電圧を調べた。その条件における各チャンネルのピーク位置、測定値と計算値の検出効率を表 4.3 に示す。検出効率の計算値は、光電吸収のみによる EJ-256(鉛添加量 : 5wt%) の固有検出効率を用いた。Ch1 より後段の場合には前段のシンチレータによる入射 X 線光子数の減衰をシンチレータの散乱を含む全吸収(9.9%)を考慮して計算した。各チャンネルのシンチレータを X 線が通過する距離は 3 mm を仮定した。各チャンネルの測定値は計算値を少し上回り、検出効率の総和は $16.5 \pm 0.4\%$ となった。

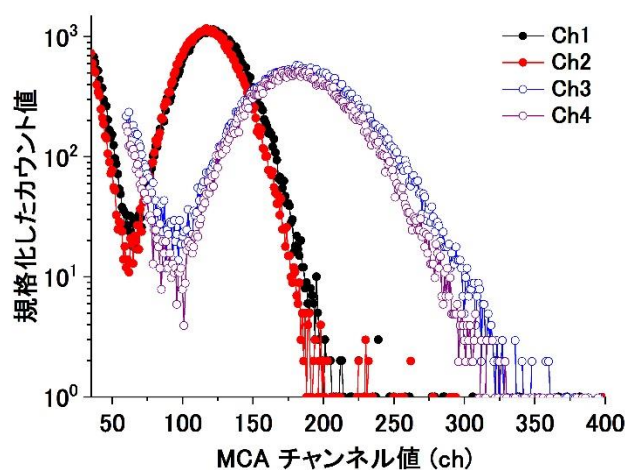


図 4.8 : 73.04 keV X 線を測定した 4-ch 高速 APD シンチレーション検出器の波高分布。全て動作温度 -22°C 、逆バイアス電圧 -402 V 。

表 4.3 : 4-ch 高速 APD シンチレーション検出器で取得した波高分布のシンチレーション信号のピーク位置、検出効率の測定値と計算値。
動作温度は全て -22°C 。

チャンネル番号 ・逆バイアス電圧値/ 検出効率の総和	ピーク位置 (ch)	検出効率 (%)	検出効率の 計算値 (%)
Ch1・ -406 V	180	4.6	4.2
Ch2・ -406 V	200	4.8	3.8
Ch3・ -402 V	184	3.9	3.4
Ch4・ -402 V	182	3.2	3.1
検出効率の総和		16.5 ± 0.4	14.5

PF リング・マルチバンチ運転モードの 73.04 keV パルス X 線 ($\phi 0.1\text{ mm}$) に対して、3.1.2 項と同様の時間分光システムで時間スペクトル測定を行った。すべてのチャンネルの場合に同じ高周波アンプ (KEYCOM 社、LNA12-4、増幅率: 60dB) を使用した。Ch1 の場合の出力パルス波形を図 4.9 に示す。パルス幅 4 ns (FWHM) の高速パルスが観測できた。表 4.3 と同じ逆バイアス電圧・温度の動作条件において Ch2、Ch3、Ch4 の場合でも同様のパルス波形が観測された。図 4.10 にバンチ先頭部のピーク位置を 0 ns とした Ch1 と Ch4 の時間スペクトルを示す。温度と逆バイアス電圧は、表 4.3 に示した波高が同程度となる条件に設定した。Ch1 の時間分解能 (FWHM) は 0.66 ns 、Ch4 では 0.51 ns となった。表 4.4 に各チャンネルのピーク位置、測定値と計算値の検出効率を示す。検出効率の総和は $15.8 \pm 0.4\%$ となり、イリジウム 193 の放射光核共鳴前方散乱において実用的な結果を得る見込みを得た。

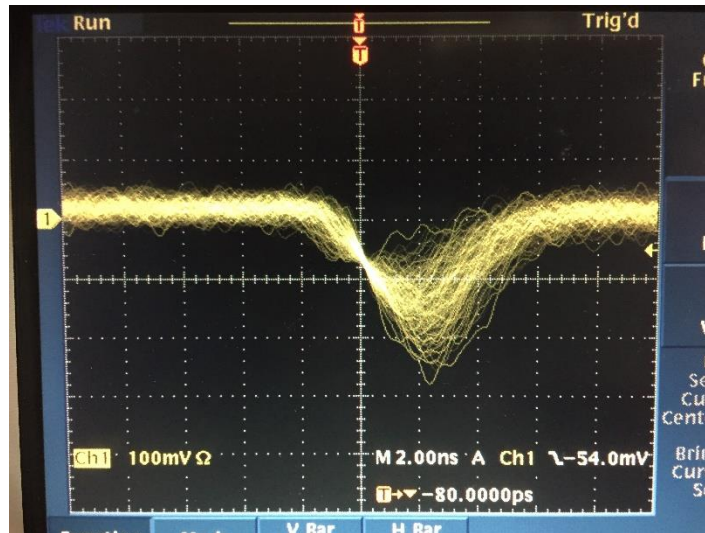


図 4.9 : Ch1 の 73.04 keV X 線照射時の 4-ch 高速 APD シンチレーション検出器によるパルス波形。動作温度 -22°C ・逆バイアス電圧 -406 V 。

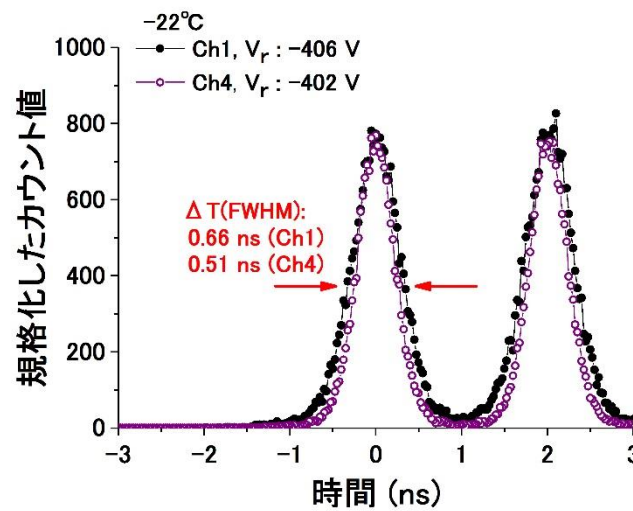


図 4.10 : Ch1 (黒点) と Ch4 (紫丸) の 4-ch 高速 APD シンチレーション検出器による時間スペクトル。

表 4.4 : 4-ch 高速 APD シンチレーション検出器による
時間分解能、検出効率の測定値と計算値。動作温度は全て -22°C 。

チャンネル番号 ・ 逆バイアス電圧値 ・ CFD のスレッシュホールド電圧値/ 検出効率の総和	時間分解能 (ns, FWHM) ± 0.05 ns	検出効率 (%)	検出効率の 計算値(%)
Ch1 ・ -406 V ・ -80 mV	0.66	4.6	4.2
Ch2 ・ -406 V ・ -90 mV	0.63	4.2	3.8
Ch3 ・ -402 V ・ -85 mV	0.53	3.8	3.4
Ch4 ・ -402 V ・ -80 mV	0.51	3.2	3.1
検出効率の総和		15.8 ± 0.4	14.5

第 4 章の参考文献

- [4.1] 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.* **104** (2014) 174104.
- [4.2] 平田智, "超臨界水熱合成を用いたハフニウムナノ粒子含有プラスチックシンチレータの作製及びそのX線検出特性評価", 修士学位論文, 東北大学.

第5章 まとめ

5.1 研究の到達点

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線ビームを利用できるようになった。その後、高エネルギーX線領域の放射光利用研究が広がりを見せている。以前と比べ30 keVを超えるような高エネルギーX線領域でも高計数率測定が可能な検出器の重要性が増している。このような要求に応えるため、本研究では 10^8 cpsの高計数率X線測定を実現している比例モードSi-APD検出器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てきた。

市販の高速シンチレータ (EJ-256) と比例モードSi-APD (浜松ホトニクス S8664-3796(X)) 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。まず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 (+380 V)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により、67.41 keVの放射光X線を時間分解能 0.51 ± 0.06 ns、検出効率 $6.6 \pm 0.1\%$ で取得することに成功した。十分な信号波高を得るためにシンチレーション光の集光効率が十分となるようにシンチレータとAPDを組み合わせる必要があり、APDの樹脂窓を取り除くことが特に重要だった。このプロトタイプ検出器をNi-61(第一励起準位: 67.41 keV)の核共鳴前方散乱実験に応用して核共鳴散乱時間スペクトルの観測を行った。Ni金属箔の厚さに依存するダイナミカルビートの観測に成功し、スペクトル解析の結果から先行研究とほぼ一致する無反跳分率の値を確認することができた。時間分解能 (FWHM) は先行研究で使用された積層型APD検出器で得られた0.5 nsと同等だった。検出効率は積層型APD検出器の10%よりは小さかったものの、数個の素子アレイなどにより簡単に実用的な検出効率が得られる目処が立った。

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EJ-256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であるMPPC(浜松ホトニクス S13082-025CS)を受光素子とする2つの場合の計数率測定を行い、比例モードSi-APDの場合には最大8.2 Mcpsの出力計数率を得た。MPPCの場合には最大計数率が1.36 Mcpsに留まり、入射X線強度をさらに強くしても出力計数値が減る麻痺型の応答を示した。テ

ストできた入射ビーム強度が 1.4×10^8 photons/sまでという制約があったものの、計数率測定において比例モードSi-APDを受光素子としたシンチレーション検出器が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によって制限されたが、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。これはPMTを受光素子とする検出器の限界（ ~ 10 Mcps）も大きく上回る。

核共鳴散乱実験で要請される検出器の高感度化の試みとして、プロトタイプ検出器のシンチレータをEJ-256からHfO₂ナノ粒子添加プラスチックシンチレータに置き換えて評価を行なった。HfO₂ナノ粒子添加プラスチックシンチレータによるHf-K吸収端エネルギー(67.35 keV)以上での時間スペクトル測定では、APDが直接検出するHf-LX線によるピークの強度が増大し、Hf-K吸収端エネルギーより低いX線測定に使うべきであることが判明した。57.6 keVのX線時間スペクトル測定を行ったところ、HfO₂ナノ粒子添加プラスチックシンチレータによる時間分解能(FWHM) 0.34 nsが得られた。この値はEJ-256に比べて、30%以上も改善されており、2成分でなく単体の蛍光体を使ったことによる発光の高速化の結果と考えている。更に、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、 $3 \times 3 \text{ mm}^2 \times 13 \text{ mm}$ のEJ-256シンチレータを4個1列に配置した4-ch高速APDシンチレーション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 $3 \times 3 \text{ mm}^2$ であった。この検出器によってイリジウム193の核共鳴エネルギーである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、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 $15.8 \pm 0.4\%$ を得た。EJ-256を1個だけ使用する場合の4%と比べて4倍となり、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。

5.2 今後の展望

5.1の最後に述べたように本研究では、APDシンチレーション検出器の高性能化のため、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。HfO₂ナノ粒子プラスチックシンチレータを使った実験では、EJ-256よりも大きな発光量が得られ時間分解能もよい結果を得た。検出効率が予想より小さかった原因の解明など今後も改良と評価を継続する。また、時間スペクトル観測の際に現れたAPDで直接検出される蛍光X線の影響を考えると、シンチレータに含まれる重元素のK吸収端エネルギーによって使用するエネルギー領域を選ぶ必要がある。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で

ある。2) については、核共鳴前方散乱における検出効率を改善するため、シンチレータを4個1列に並べる試みだった。大きな立体角は、核共鳴散乱実験の場合、放射光メスバウアー吸収分光法での利用が期待される。今回製作した4素子アレイを使って立体角を大きくすることが可能である。4素子アレイ基板を上下に対向して配置すれば、 $3\times 3\text{ mm}^2\times 4$ 個で 36 mm^2 の受光面積を得ることができる。素子数を増やす場合は高速パルスを出力する高周波アンプの小型化や、さらに集積度を上げるためのASIC (Application specific IC) 製作が重要になる。

本研究のAPDシンチレーション検出器で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。そのため信号対雑音比は2程度の小さい値に留まったが、大きな信号対雑音比を得るためにA) 信号波高を上げること、B) 雑音レベルを下げる工夫が今後の開発に必要である。A)について、信号波高は時間分解能と関係あり(3.1.2項)、検出効率を損なわないためにも重要である。50 keV以下の低いエネルギーのX線測定の際には、とくに重要になる。発光量の大きな高速シンチレータの開発とさらに大きなAPD増幅率を得るために精密な温度制御によるSi-APDのより低い温度での作動を試す必要がある。ただし、式(2.11)に示唆されるように動作温度をさらに下げても暗電流の大幅な低減は見込めない。B)のためには、暗電流がより低くなるように設計されたSi-APDを採用すること、高周波アンプの雑音レベルを下げる必要がある。

高エネルギー領域での高輝度X線の利用は、放射光核共鳴散乱分野だけでなく放射光源の開発・高性能化に伴って今後も広がりを見せることは間違いない。高輝度放射光ビームを利用する研究を支える高性能検出器の開発への期待は大きい。そのような期待に応え新しい検出素子・信号取得方式や信号処理回路の開発を進める研究の一つとして、本研究の意義を認めていただければ幸いである。本研究を基礎にして今後さらに検出器の性能向上、高度化のための改良を継続する予定である。

本研究に関する発表

査読付き論文

1. K. Inoue, and S. Kishimoto, "Fast scintillation timing detector using proportional-mode avalanche photodiode for nuclear resonant scattering experiments in high-energy synchrotron X-ray region", Nucl. Instrum. and Methods A **806** (2016) 420.
2. K. Inoue, and S. Kishimoto, "Observation of 67 keV X-rays with a scintillation detector using proportional-mode silicon avalanche photodiode", AIP. Conf. Proc. **1741** (2016) 040032.

学会発表

(口頭発表)

1. 井上圭介、岸本俊二、春木理恵、依田芳卓、小林康浩、瀬戸誠、越水正典、錦戸文彦、「比例モード Si-APD シンチレーション検出器による Ni-61 核共鳴散乱測定」、第 77 回応用物理学会秋季学術講演会、放射線分科会、朱鷺メッセ、2016 年 9 月 13 日
2. 井上圭介、岸本俊二、春木理恵、越水正典、平田智之、錦戸文彦、「比例モード Si-APD を用いた HfO₂ ナノ粒子添加プラスチックシンチレータ搭載 X 線シンチレーション検出器」、第 63 回応用物理学会春季学術講演会、放射線分科会、東京工業大学大岡山キャンパス、2016 年 3 月 19 日
3. 井上圭介、岸本俊二、「比例モード Si-APD を用いたシンチレーション検出器の開発(3)」、第 76 回応用物理学会春季学術講演会、放射線分科会、名古屋国際会議場、2015 年 9 月 15 日
4. 井上圭介、岸本俊二、「比例モード Si-APD を用いたシンチレーション検出器の開発(2)」、第 62 回応用物理学会春季学術講演会、放射線分科会、東海大学湘南キャンパス、2015 年 3 月 14 日
5. 井上圭介、岸本俊二、「比例モード Si-APD を用いたシンチレーション検出器の開発」、第 61 回応用物理学会春季学術講演会、放射線分科会、青山学院大学、2014 年 3 月 20 日

(ポスター発表)

1. 井上圭介、岸本俊二、「4 チャンネル高速 APD シンチレーション検出器の開発」(8P010)、第 30 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、神戸芸術センター、2017 年 1 月 8 日

2. 井上圭介、岸本俊二、越水正典、錦戸文彦、「 HfO_2 ナノ粒子含有プラスチックシンチレータ搭載比例モード Si-APD 検出器の特性評価」(11P003)、第 29 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、東京大学柏の葉キャンパス駅前サテライト、2016 年 1 月 11 日

3. K. Inoue, S. Kishimoto and F. Nishikido " Observation of 67 keV X-rays with a scintillation detector using a proportional-mode APD ", The 12th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation (SRI2015), Marriott Marquis, New York, USA, July 8, 2015.

4. 井上圭介、岸本俊二、錦戸文彦、「比例モード APD シンチレーション検出器による 67 keV X 線の観測」(12P022)、第 28 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、立命館大学びわこ・くさつキャンパス、2015 年 1 月 12 日

謝辞

指導教官の岸本俊二教授(KEK・物構研、総研大)には、丁寧かつ熱心なご指導を賜りました。ここに謹んで感謝の意を表します。越水正典准教授(東北大)には実習に参加させていただいたことに加え、応用物理学会や実験などの折に触れ、貴重なご意見をいただきました。錦戸文彦研究員(量研機構)には Geant4 についてご教授いただきました。SPRING-8 実験にご助力いただいた、依田芳卓主幹研究員(JASRI)、小林康浩助教(京都大・原子炉)、瀬戸誠教授(京都大)には深くお礼申し上げます。橋本亮特任助教(KEK・物構研)と春木理恵研究員(KEK・物構研)からは、私の研究報告に対し有益な助言をいただきました。お礼申し上げます。

