



高速読み出しフォトンカウンティング 2次元検出器の単結晶測定及び テンダーX線領域への応用

柳原 邦俊¹, 中江 保一¹, 佐久間 保孝¹, 三楠 聡¹, 作村 拓人¹, 小野田 浩宜², 梅名 泰史²
1 株式会社リガク, 2 名古屋大学シンクロトロン光研究センター

キーワード：フォトンカウンティング, 2次元X線検出器, ファインスライス測定, テンダーX線

1. 測定実施日

2022年5月25日 BL2S1 (1シフト)
2022年11月29-30日 BL6N1 (3シフト)

2. 概要

単結晶試料の超ファインスライス測定をおこなうため、高速フォトンカウンティング型2D検出器をもちいて実験をした。高フレームレートおよびそれを積算したデータのどちらも、通常の低フレームレート測定とほぼ同等の結果が得られた。また、別の高速フォトンカウンティング型2次元検出器において、1.75~2.2 keVのテンダーX線を検出することができ、テンダーX線を使った高速画像測定の可能性を示した。

3. 背景と研究目的

X線ポンプ・プローブ法やX線光子相関分光法(XPCS)をはじめとして、短時間スケールでの現象をとらえるために非常に高速なX線検出器が求められている。そのような要求に応えるために、私達は高速読み出しのできるフォトンカウンティング型2次元検出器XSPA-500kを開発した^[1]。XSPA-500kはフレームレート56 kfpsでデットタイムなしの連続露光が可能という特長を持っている。高速測定は非常に短い時間の現象を明らかにできるだけではなく、データを任意の枚数積算することで、一度の測定で異なるフレームレートのデータを得ることができる利点もある。特にX線照射による試料の損耗が影響する単結晶構造解析などでは、後者のメリットが大きい。しかしながら、高速検出器を使用した超ファインスライスの単結晶測定は実施例が少なく、実験的検証が不足している。加えて、高強度のX線を入れたときの高速連続露光時にダブルカウントが生じてしまいカウントに誤差が生じるといった問題もある^[2]。本研究は、高フレームレートの撮影を単結晶構造解析に適用し、検出器に実装されたダブルカウント抑制機能が正常に働いているかどうか実証実験をおこなった。

また、最近ではエネルギーが1~4 keVのテンダーX線領域に注目が集まっている。次世代放射光施設を中心に、高輝度なテンダーX線をもちいた高速かつ高空間分解能の測定が求められている。しかしながら、現状、テンダーX線領域を測定できる高速フォトンカウンティング型2次元検出器はほとんど存在しない。既存のテンダー領域に対応した検出器の多くは、積分型であり信号分離やダイナミックレンジなどで少なからず問題を抱えている。フォトンカウンティング型で高速測定可能な2D検出器であれば、それらの問題を解決でき、次世代放射光をもちいた高強度、高速の測定に有利だと考えている。本研究では、ノイズとX線信号の分離に優れた高速フォトンカウンティング型2D検出器を試作し、テンダーX線が検出できるかどうかの基礎評価をおこなった。

4. 実験内容

4.1 高速フォトンカウンティング型2次元検出器をもちいた単結晶測定

実験はあいちシンクロトロンセンターの BL2S1 (名古屋大学) を使用した。X 線の波長は 1.12 Å、測定試料にはリゾチーム単結晶を使用した。ω 軸のみを 100 ms/deg の速度で動かしながら、それぞれ 0.5 deg/frame と 0.005 deg/frame になるように連続露光で撮影をした。さらに 0.005 deg/frame で撮影した画像を 100 枚ごとに積算し、0.5 deg/frame のデータを追加で作成した。得られたデータをそれぞれ構造解析し、 R_{int} をもちいてデータの質を比較した。

4.2 テンダーX 線領域への応用

テンダー領域で実験するため、あいちシンクロトロンセンター BL6N1: 軟 X 線 XAFS・光電子分光 I を使用した。放射光のダイレクトビームを InSb (111) で単色化し、検出面に入射させた。X 線検出器とビームラインのチャンバーは ICF フランジで接続し、接続部の圧力を変えることで入射強度を調整した。X 線のエネルギーは 1.75~2.2 keV の範囲で可変させ、検出器でエネルギースキャン (ThScan) をおこなった。得られた積分プロファイルの形状から、テンダーX 線が検出できているか確かめた。

5. 結果および考察

5.1 高速フォトンカウンティング型 2 次元検出器をもちいた単結晶測定

Table 1. に各 Outer shell (Å) の R_{int} をそれぞれ示した。ダブルカウントしていれば、100 枚積算した 0.5 deg/frame の方が積算していない 0.5 deg/frame の結果よりも悪くなるはずである。本実験では、両者あまり変化は見られないことから、ダブルカウントが抑制できていることがわかった。全体的に R_{int} が低いのは測定した ω の範囲が 0~180° と狭いためであり、実験条件を変えることで改善できると考えている。

Table. 1 各 Outer shell (Å) における R_{int} (*) は 0.005 deg/frame を 100 枚積算した

Outer shell (Å)	Osillation (deg/frame)		
	0.005	0.5(*)	0.5
3.18-3.0	0.065	0.063	0.060
2.95~2.8	0.066	0.070	0.065
2.72~2.6	0.066	0.093	0.071
2.60~2.5	0.074	0.075	0.062
2.49~2.4	0.080	0.080	0.067
2.38~2.3	0.094	0.088	0.087
2.27~2.2	0.114	0.121	0.122
2.16~2.1	0.119	0.174	0.141
2.05~2.0	0.175	0.183	0.129
1.94~1.9	0.184	0.258	0.152
1.84~1.8	0.363	0.646	0.326
1.73~1.7	0.370	0.845	0.690
1.63~1.6	2.369	2.963	1.537

5.2 テンダーX 線領域への応用

Fig. 1 に得られた積分プロファイルを示す。横軸が入射 X 線のエネルギーに対応するパルスの波高値、縦軸は強度 (フォトン数) を表している。なお、強度は比較のために最大強度で規格化した。X 線が正常に検出できていれば、立ち下がりがある程度急になり、その立ち下がり位置が入射エネルギーに対して線形になるはずである。50~80 div. の強度が高い範囲は、熱雑音に起因するノイズである。いずれの

エネルギーでもノイズより高エネルギー側（右側）に急な立ち下がりが確認できた。これは、検出器が入射 X 線に対してある程度のエネルギー分解能を有していることを意味している。また、入射 X 線のエネルギーが高くなるにつれて、立ち下がり位置が右側にシフトした。Fig. 2 に入射 X 線のエネルギーに対する立ち下がり位置の関係を示す。差し込みの図は得られた X 線画像であり、光学系によるものと思われる縞模様が観測できた。1.75～2.2 keV の範囲で線形になっており、テンダー領域においても入射 X 線のエネルギーと信号の波高値 (Gain) の直線性が担保されていることがわかる。Fig. 1 のノイズ幅と Fig. 2 の直線の外挿から検出できるエネルギー下限を見積もると、およそ 1 keV となった。

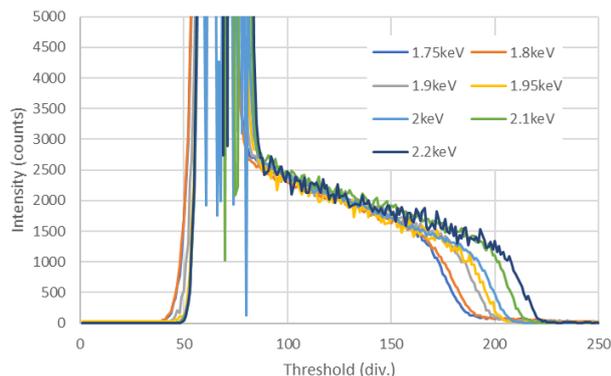


Fig. 1 積分プロファイル

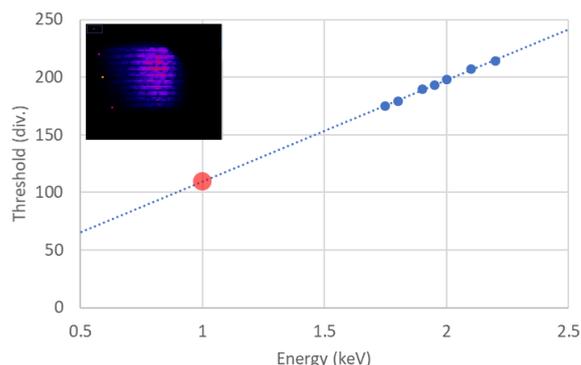


Fig. 2 入射エネルギーに対する波高値 (Gain) の線形性

6. 今後の課題

単結晶測定では、測定条件によっては高角度側の Completeness が十分な値ではなかった。これは試料の格子距離に合わせて検出器を最適な位置へ移動させることや検出面の大きな検出器 (XSPA-1M) をもちいることで改善可能だと考えている。

テンダー-X 線領域の実験においてはエネルギー 1.75 keV 以下においても同様の検証が必要である。また、本実験ではダイレクトビームの強度が高すぎるため、数え落としやカウンターの飽和を引き起こした。そのため、入射強度に対する計数率の線形性や検出効率のエネルギー依存性については求めることができなかった。詳細なデータを得るためには、さらに低エネルギーのビームラインで入射 X 線強度を細かく調整する必要がある。今後は、前述した基礎評価を進めるとともに、テンダー-X 線イメージングなどに使用できるかどうか実験的検証をおこなっていききたい。

7. 参考文献

1. Y. Nakaye et al., *Journal of Synchrotron Radiation* **28**, 439-447 (2021)
2. J. Moller et al., *Journal of Synchrotron Radiation* **26**, 1705-1715 (2019)