

二次元 X 線検出器 MSGC の開発

谷 森 達

京都大学大学院理学研究科 教授

1. 新しいガス比例検出器 MSGC の必要性

今日、X 線イメージングはフィルムの時代が終わり、イメージングプレート、CCD などデジタル画像検出器へと変貌している。しかしこれら X 線画像検出器は、各画素で X 線のエネルギー強度を蓄積しその強度分布画像を得る積分型であり、X 線のエネルギーや時間情報などは失われ、精度やダイナミックレンジなどに制限が残る。一方、シンチレータやガス計数管などのパルス検出器は個々の X 線の時間、エネルギー情報の記録とその高速デジタル処理が出来る。そのため最近注目を集めている時分割測定では、その高速応答を生かし過渡現象の測定に威力を発揮している。しかし、積分型装置のような制度の高い画像をえることは従来の MWPC では全く不可能なことであった。今後期待される X 線検出器は、高画質デジタル画像と共に微分型検出器の特徴を兼ね備えたものであり、物質相のダイナミカルな変化、例えば結晶の光反応性、タンパク質の形態変化などを直接とらえられるものである。

我々はワイヤーの代わりに微細加工技術により基板上に微小比例計数装置を形成する MicroStrip Gas Chamber (MSGC) を発展させ、大型放射光で動作可能な高計数率、 $100\mu\text{m}$ 以下の位置分解能による高画質、さらに高速応答が可能な X 線画像検出器を開発した。またこの装置を用い、時間情報と位置情報を組み合わせた 3 次元情報を使用する新しい X 線解析法を開拓した。

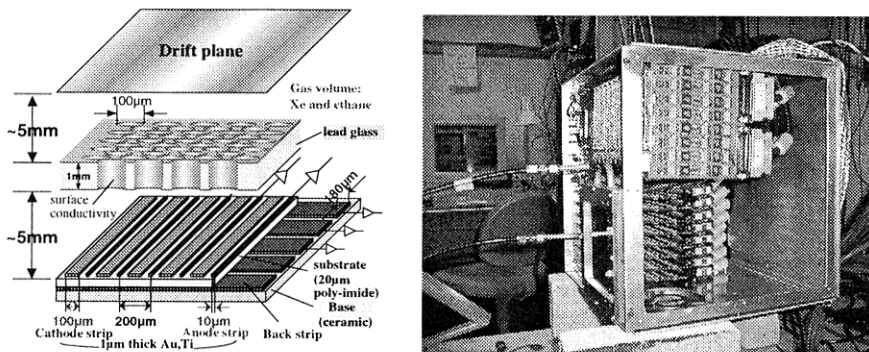


図 1: キャピラリプレートを前段増幅器とした MSGC の構造図 (左) とプリアンプ群と一体にアセンブリした 10cm 角 MSGC 検出器 (右)、

2. MSGC の原理と構造

MSGC は、信号線としてワイヤーの代わりに、微細加工技術によるストリップを用いたワイヤレス型ガス比例計数管であり、1988 年、A.Oed によって考案された [1]。この検出器の構造は、図 1 に示すように基板 (Substrate) 上に数十 μm 幅のアノード、カソード電極を形成し、MWPC と同様な構造に形成したものである。 $200\mu\text{m}$ という電極間隔により $60\mu\text{m}$ 程度の位置分解能 (RMS) が得られ、さらに MWPC の 1000 倍以上の高計数率が実現できる。ドリフト層は、アルゴンもしくはゼノンのような希ガスをベースとして、エタンを 20 ~ 30% 混合したもので満たされ、比例計数管を形成する。

我々は 91 年から独自に、LSI を実装する Multi-Chip-Module (MCM) 技術を用いて、MSGC の開発を続けている [2, 3]。この特徴は、図 1 にあるように基板に厚さ約 $20\mu\text{m}$ のポリイミド薄膜を用い、その下層にアノードと直交するバックストリップ電極を形成している事である。このバックストリップに誘起する信号を使うことにより 2 次元座標の読み出しが可能になる初めてのものではあった [2, 3, 4, 5, 6]。このように MSGC は MWPC に比べ非常に優れた特性を持つが、一方でアノードでの増幅作用による正イオンが電極付近の基板に付着し、ゲインの低下を引き起こしてしまう難点がある。我々はポリイミドの表面に有機チタニウムをコーティングして、表面抵抗を調整した。さらに導

電性キャピラリープレート (Capillary Plate: CP) を用いた前段増幅器を開発し、MSGC と CP を組み合わせることで、MSGC の利得を押えながら使用することに成功した [7, 8]。このような開発をもとに製作した 10cm 角 2 次元 MSGC を図 1 に示す。

IP や CCD と同様の高画質デジタル画像を MSGC で得るには毎秒百万事象以上の X 線光子情報をリアルタイムに処理するデータ処理装置が必要となる。従来 MWPC に用いられたアナログ的手法では処理出来ない。微分型画像検出器の開発の最重要点は、膨大な情報を高速且つ高画質デジタル処理方法の開発であり、これを実現しないと MSGC の実用化は意味がない。我々は、1 千チャンネル以上の信号を LSI を用いてデジタル化し、FPGA を用いて座標変換をパイプライン処理で実現することで、小型で、高速な回路システムを開発した [9, 5]。システムは 9U-VME ボード 6 枚で構成され、毎秒 3 百万事象の連続処理を実現した。この能力は IP と同等の画像を毎秒数十枚リアルタイムで処理することに匹敵する。

3. MSGC による新しい画像解析

この性能を生かして我々は全く新しい X 線構造解析法、連続回転写真法 (Continuous Rotation Photograph Method) を 9 開発した [7, 10]。まず MSGC は計数型検出器であるため、ブラッグ反射の位置の強度が X 線数個の非常に弱い斑点から 10^6 個以上の強い斑点まで高精度で得られる。さらに各 X 線の光子の到達時間は、結晶を連続的に回転させながら測定した場合、同時に試料の回転角を示し、各回折斑点の ω 分布が得られる。MSGC の時間分解能は 100ns 以下なので、0.001 度以下で測定出来る。これにより原理的には、試料結晶を半回転させるだけで全ての ω に対する情報が得られ、結晶構造解析が可能となる。さらに MSGC の優れた時間分解能を用いることによって、回折斑点が現れる部分の条件のうち、結晶の回転角に厳しい条件を果たすことができるため、斑点の積分強度を求める時に、他の散乱 X 線などのノイズの影響をかなり小さくすることができる。これは X 線イメージをフレーム単位で得る積分型検出器 (IP や CCD など) では実現困難な芸当である。このような特性から試料結晶への X 線照射量は、10 分の 1 以下に削減出来る。

以下に、この連続回転写真法を使ったいくつかの有機物単結晶に対する測定結果を示す。X 線発生源として管球を使用し、モリブデンの $K\alpha$ 線 (17.5keV) を選び、測定試料として表 1 にある通りの 2 種の既知試料と、1 種の未知試料を用いた。測定は X 線ビームの入射に対してサンプルを連続的に回転させ、その回折斑点を MSGC により取り込むだけである。

得られた酒石酸水素アンモニウムの回転写真 (360 度積分) を図 3 に示す。図では、各格子点の分離が難しく、また散乱 X 線などによるノイズも全体の領域で積分され、弱い反射点の測定が困難なように見える。しかし時間情報より、2 次元画像に時間軸を加えた 3 次元分布では、各々の反射点が明確に識別できる。

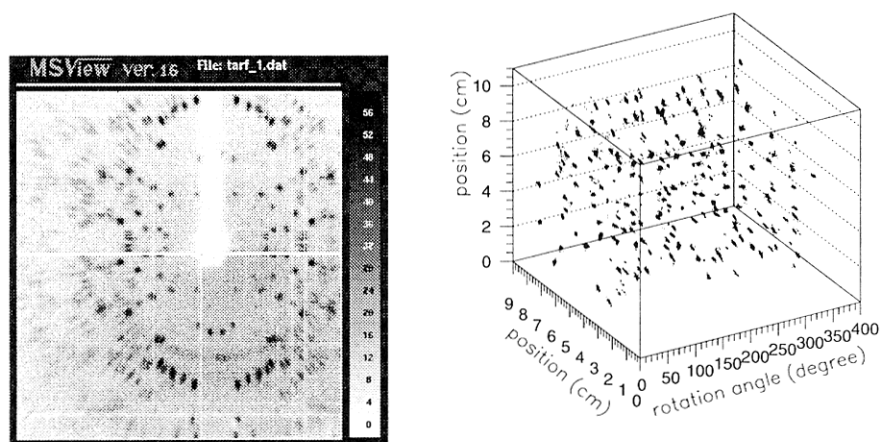


図 2: 酒石酸単結晶の X 線回転写真 360 度分を MSGC で撮った画像 (左)、および CRP 法を使って、回折斑点のイメージを、イメージ × 試料の回転角の 3 次元空間上に展開した図 (右)。

一例として、図 3(a) に、回折斑点を位置×回転角空間上に配置したものを示す。これらの回折斑点の現れた位置、及び回転角 (= 時間) の 3 次元データから、各斑点の逆格子空間上の位置変換を計算し、指数付けを行ない、各指数の積分強度を求めれば、結晶構造解析に必要な材料、いわゆる I_{hkl} が揃うことになる。実際にこの CRP 法を適用し、得られた I_{hkl} から直接法により結晶構造を求めた結果を、表 1 に示す。

比較的簡単な構造を持つ酒石酸水素アンモニウムの結晶構造は、僅か 2 秒の測定で得られたデータにより求めた [11]。最近、Spring8 の X 線ビームを用いて同様の結晶構造解析の実験を行なった。結果は現在解析中であるが、酒石酸水素アンモニウムで約 0.3 秒という結果を得ている。

試料名	分子式	結晶径	R 因子	測定時間
酒石酸 *	$C_4H_9NO_6$	1.0mm	7.9%	2.1 秒
Cobaloxim	$C_{20}H_{37}CoN_6O_4$	1mm	10.2%	10 秒
(未知試料)	$C_{25}H_{26}O_4$	0.4mm	9.8%	300 秒

* 酒石酸アンモニウム

表 1: CRP 法を用いた迅速構造解析の結果

4. 今後の展開

我々は MSGC を用いて、本当の意味での時分割 X 線結晶構造解析測定が可能であることを鮮明に示すことが出来た。ただ MSGC は、放電による破壊問題が残っている。実用化するには、MSGC より安定で単純な構造を持つ検出器が必要と思われる。その実現の可能性の高い装置として 12 年度に Micro Pixel Gas Chamber (MPGC) の開発を開始した。

MSGC の欠点である細い電極を使わずに、量産性に優れた微細加工技術を用いた検出器として Micro Pixel Gas Chamber (MPGC) の開発に今年度成功した。図?? にその構造を示す。陽極を柱として製作するのが特徴であり、陽極は直径 $50\mu\text{m}$ 、長さ $100\mu\text{m}$ 程度の銅の小柱である。そのまわりを陰極が囲んでいる。電場は陽極柱に集中するので、比例計数管のワイヤと同様に高電界を得ることが出来、陰極は、MSGC と異なり周長が大きく電界は低くなり、放電がおきにくい。陽極柱も太いため、放電で破壊されることはない。3cm 角 MPGC では MSGC より 10 倍以上高い利得で安定することを確認した。高計数率もピクセル化することで MSGC の 10 倍以上向上している。他の利点として普通のプリント基板製造技術で製作されている。このため開発期間が短く、30cm 角まで大型化が可能で、低コストである。13 年度に 10cm 角 MPGC が完成し、MSGC の回路を取り付け、実際に X 線構造解析を行なう予定いる。

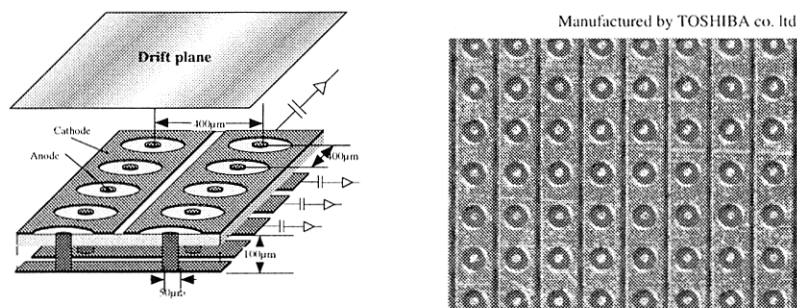


図 3: MPGC の構造と試作された 3cm 角 MPGC の全体と拡大写真。

さらに MPGC の高性能を生かすために、回路系の改良を行ない、低電力化、3 倍以上の高速化、さらには座標演算回路と検出器の一体化を 13 年度に実現する。これにより、移動性に優れ、放射光でも十分性能が発揮できる超迅速 X 線結晶構造解析装置を 13 年度に実現する。この MPGC は、30cm

角以上の大面積測定をも可能であり、蛋白質のような巨大分子の超迅速 X 線結晶構造解析測定をも可能にする。このように結晶構造解析測定に革命をもたらす可能性があると考え、早急に開発を進めて行く。

参考文献

- [1] A.Oed: Nucl. Instr. and Meth. **A263** (1988) 351.
- [2] T.Nagae *et al.*: Nucl. Instr. and Meth. **A323** (1992) 236.
- [3] T.Tanimori *et al.*: Nucl. Instr. and Meth. **A381** (1996) 280.
- [4] A.Ochi *et al.*: Nucl. Instr. and Meth. **A392** (1997) 124.
- [5] T.Tanimori *et al.*: Journal of Synchrotron Radiation **5**, Part3 (1998) 256
- [6] Y.Nishi *et al.*: Journal of Synchrotron Radiation **5**, Part3 (1998) 857
- [7] T.Tanimori *et al.*: Nucl. Instr. and Meth. **A436** (1999) 188.
- [8] Y.Nishi *et al.*: Proc. SPIE **3774** (1999) 87.
- [9] A.Ochi *et al.*: Journal of Synchrotron Radiation **5**, Part3 (1998) 1119
- [10] A.Ochi *et al.*: Proc. SPIE **3774** (1999) 76.
- [11] A.Ochi *et al.*: to appear in Nucl. Instr. and Meth.A.

和文の発表文献

1. “ワイヤレスガス検出器による時分割 X 線画像解析”
谷森 達、越智 敦彦、西 勇二
日本物理学会誌、 **Vol.55, No.6**, 420-426, (1999)
2. “微細加工技術を用いた放射線検出器の開発”
越智 敦彦、谷森 達、西 勇二、青木 俊介、西 泰朗
放射線、 **Vol.25, No.1**, 3-14, (1999)
3. “MicroStrip Gas Chamber が切り開く新たな X 線画像解析法”
谷森 達、西 勇二、青木 俊介、越智 敦彦、西 泰朗
日本放射光学会誌、 **Vol.11, No.2**, 137-145, (1998).