

# ガス電子増幅フォイルを用いた 文化財調査用X線検出器の開発

犬塚 将英

## 1. はじめに

文化財保存科学の研究分野では、次のような2つの重要な研究課題があると言える。文化財を構成する材料と製作技法を科学的に解明すること。そして文化財を活用し、さらに次世代へ伝えていくためのより良い保存環境を追求することである。より良い保存環境を検討する際には、対象となる文化財を構成する物質の同定は必要不可欠であることから、上述の2点はお互いに密接な関係があることは言うまでもない。

しかし文化財の調査では、試料採取が許されず、非破壊・非接触を大前提とした手法を要求されるケースが多いことから、X線を用いた調査方法は保存科学の歴史の中で重要な役割を担ってきた<sup>1)</sup>。そして近年ではX線CTを用いた木材の年輪年代測定など、新しい調査方法も開発されて活用されている<sup>2)</sup>。一方、X線透過撮影やX線回折のような従来から利用されてきた方法については改良の余地が残されていると考えられる。

X線透過撮影による調査は、保存科学のみならず、絵画の技法や彫刻、工芸の構造などを明らかにするために、美術史などの他の研究分野でも重要な役割を果たしてきた。近年の調査事例では、例えば、京都・東寺観智院五大虚空蔵菩薩像<sup>3)</sup>や岩手・中尊寺金色堂諸像<sup>4)</sup>の構造・技法を明らかにするための調査が挙げられる。特に後者では、従来金色堂中央と左右仏壇上に安置されていた諸仏の移動が指摘されてきたが、像安置当初の組み合わせの妥当案を客観的に提示することができたのは、X線透過撮影による調査結果が大きな役割を果たした<sup>5)</sup>。また、やはりX線透過撮影によって像内納入品の存在が明らかになったことが、新出の大日如来像が運慶の作である可能性が高いことを示すための成果に繋がった<sup>6)</sup>。

このように、X線透過撮影による成果には枚挙に暇がないが、さらに近年になって、これまで主に医療分野で利用されてきたイメージング・プレートを使用したX線透過撮影も文化財調査へ適用されるようになってきた<sup>7)</sup>。従来のX線フィルムを使った撮影と比較すると、広いダイナミック・レンジを有すること、デジタル化された画像データを得られるので補正や画像処理が可能であることなどの特長を持っている。イメージング・プレートを使用した調査として、江戸から明治にかけて作られた科学技術資料の調査<sup>8)</sup>や琉球漆器の現地調査<sup>9)</sup>の結果などが報告されている。

X線回折を利用した結晶構造の解析も、文化財調査において重要な位置を占めてきた。『保存科学第1号』では既に江本義理先生によりその調査手法が紹介されており<sup>10)</sup>、その後も文化財を構成する材質、腐食生成物、絵画の顔料の特定などに関する様々な報告が発表されている<sup>11-13)</sup>。さらに最近では、ポータブルなX線回折装置の開発やそれらを使った現地調査の報告も現れはじめている<sup>14,15)</sup>。

以上のように、X線透過撮影とX線回折を用いた調査は保存科学や美術史の分野で多くの業績を残している。しかし、現地調査を余儀なくされる文化財も多いことから、可搬な測定装置の必要性は今後さらに高まっていくだろう。このような状況から、文化財の調査に携わる研究者

が調査目的に合致した新しい検出器を独自で開発することに意義があると考えられる。そして新しい検出器には、動作原理や使用方法がシンプルであることが要求され、さらに安価であることが望ましい。

ここ数年で素粒子・原子核物理の分野などを中心に開発研究が進んでいるガス電子増幅フォイルを利用することにより、簡便、安価かつポータブルなX線検出器を製作できる可能性がある。本報告では、ガス電子増幅フォイルを用いたX線検出器の文化財研究への適用の可能性について検討した結果について述べる。最初にガス電子増幅フォイルの動作原理、国内における開発状況などをまとめた後に、ガス電子増幅フォイルを用いた2種類の検出器を紹介する。これらの検出器は既に設計が終了し、現在(2005年12月)は製作段階にある。そして2006年1月にプロトタイプ検出器が完成する予定である。

## 2. ガス電子増幅フォイル (GEM)

### 2-1. ガス電子増幅フォイルとは

ガス電子増幅フォイル(Gas Electron Multiplier foil, 以下GEMと略す)は、ヨーロッパ原子核研究機構(CERN)で発明された電子増幅器である<sup>16)</sup>。図1左の顕微鏡写真にあるように、GEMとは高い耐熱性と機械強度、低い誘電率を有する高分子フィルムであるポリイミド・フィルムの両面を銅で被覆し、 $\phi 50\mu\text{m}$ 程度の孔が $100\mu\text{m}$ 程度のピッチで開けられている構造をしている。増幅ガス中に設置したGEMの両銅電極に数百V程度の電圧をかけると、図1右のように、孔の中には急勾配の電場が生じ、ここを電子が通過するときに電子の雪崩が発生して信号が増幅される、というのがGEMの動作原理である。信号増幅器としてGEMを用いる主な利点は以下の通りである：

- ・物質量が少ない検出器の製作が可能である。
- ・増幅と信号読み出しを行なう部分を分離して、検出器のデザインが可能である。
- ・多層構造で信号を増幅することができる<sup>17)</sup>。このためワイヤーを用いたガス検出器と比較すると、測定の条件にあったダイナミック・レンジに柔軟に対応でき、低電圧で使用可能となり、放電の確率を低く抑えることができる。
- ・半導体検出器と比較すると、安価であり、大面積への拡張が容易である。

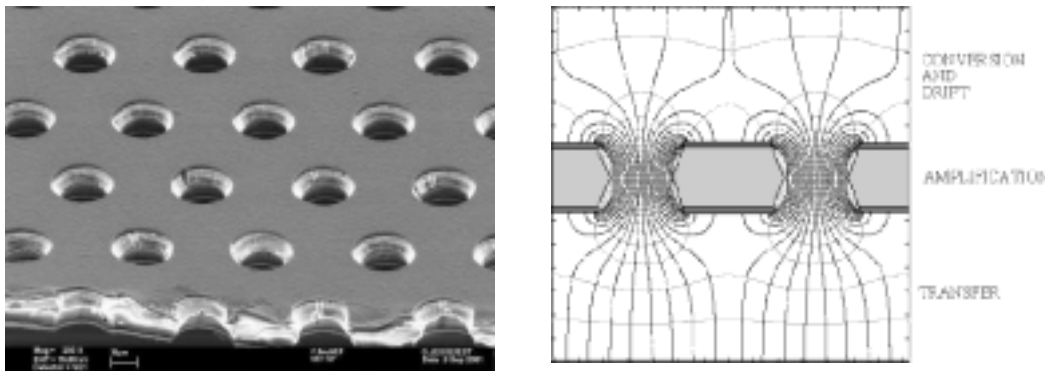


図1 GEMの顕微鏡写真(左)と電圧をかけたときの電気力線(右)

最近のGEMに関する開発の状況と適用例は参考文献<sup>18)</sup>にまとめられている。適用例としては、素粒子・原子核実験における荷電粒子飛跡検出器<sup>19)</sup>，電子識別装置<sup>20)</sup>などが挙げられ，宇宙物理の分野ではGEMを用いたX線の偏光計の開発などが行なわれている<sup>21)</sup>。さらに，物理の研究分野のみならず，スウェーデンの医療機関では放射線治療用のビームモニターへの応用も進められている<sup>22)</sup>。

このように，GEMを用いた検出器開発は様々な分野で進められている。ところが，GEMの構造自体は極めてシンプルであるにもかかわらず，これまでCERNを除くと，GEMを製作しようという試みはほとんど行なわれてこなかった。しかし，東京大学大学院理学系研究科附属原子核科学研究センター(東大CNS)のグループは，測上マイクロ株式会社との共同研究により，プラズマ・エッチングを用いた国内でのGEMの製作に成功した<sup>23)</sup>。図2の断面写真に見られるように，プラズマ・エッチングを用いて製作すると，GEMの孔は円筒状のストレートな形状となり，高い電子収集率とチャージアップの減少が期待できる。さらに，理化学研究所のグループが開発したレーザー・エッチングを利用した製作も行なわれている<sup>24)</sup>。

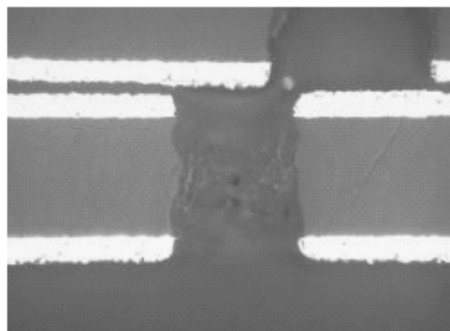


図2 プラズマ・エッチングを用いて製作したGEMの断面写真

## 2-2. GEMを用いたX線検出器の例

ここでは，東大CNSで製作されたX線検出器の例を紹介する<sup>23)</sup>。孔の径は $70\mu\text{m}$ でピッチは $140\mu\text{m}$ であり， $10\text{cm}\times 10\text{cm}$ の面積を持つGEMを使用した。図3の検出器の概念図に描かれているように，チャンパー内にGEMを間隔が $2\text{mm}$ になるように2または3段に重ねて設置した。GEMへの電圧は図3中のHV2から抵抗分割をして供給した。最上段のGEMの $3\text{mm}$ 上流にはポリイミド・フォイルの片面を銅で被覆したフォイル(ドリフト板)を配置し，HV1から電圧を供給した。HV2の電位はHV1の電位よりも $600\text{V}$ 高くしておき，GEMとドリフト板間のドリフト領域で発生した電子がGEMの方へ移動できるようにした。2または3段のGEMにより雪崩現象を起こした電子は， $15\text{mm}\times 15\text{mm}$ の読み出しパッドに到達する。読み出しパッドに誘起された電荷は前段増幅回路を経た後でCAMACシステムのADCモジュールによりデジタル変換されて，コンピューター上に記録された。

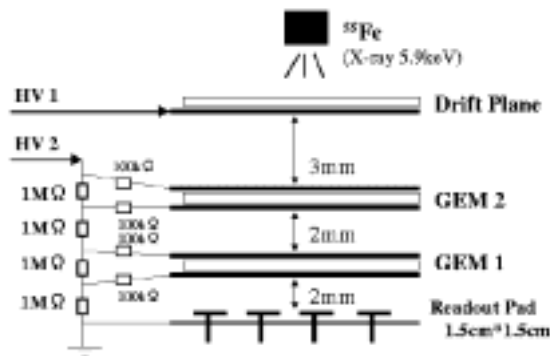


図3 GEMを用いた検出器の例<sup>23)</sup>

信号源としては図3にあるように、5.9keVのX線を照射する放射線源( $^{55}\text{Fe}$ )を用いた。チャンパー内は50cc/minの流速でアルゴンの混合ガス(Ar(90%)-CH<sub>4</sub>(10%)またはAr(70%)-CO<sub>2</sub>(30%))を循環させた。ドリフト領域中で光電効果が起こった場合、散乱された電子の二次散乱により、30eV程度の電子が約200個発生する<sup>25)</sup>。これらの電子がGEMへ移動し、2または3段のGEMにより増幅される。図4に2種類のアルゴン混合ガスを用いた時の信号の分布を示す。いずれの場合も5.9keVに相当する鋭いピークとエスケープ・ピーク(光電効果が起こった時、L殻電子がK殻へ移行する際に生じる光子が観測にかからず、このエネルギー準位差の分だけエネルギーが小さく測定された場合のピーク)が観測されており、検出器が正しく動作していたことが確認された。これらの結果から、検出器の増幅率に変換すると図5のようになった。図5では、一枚あたりのGEMに供給する電圧の大きさに対して、増幅率がどのように変化するかを示してある。アルゴンガス中でGEMを3段に重ねて使用した場合には、個々のGEMに300から400V程度の電圧を供給することにより約10000倍の増幅率を得られることがわかった。

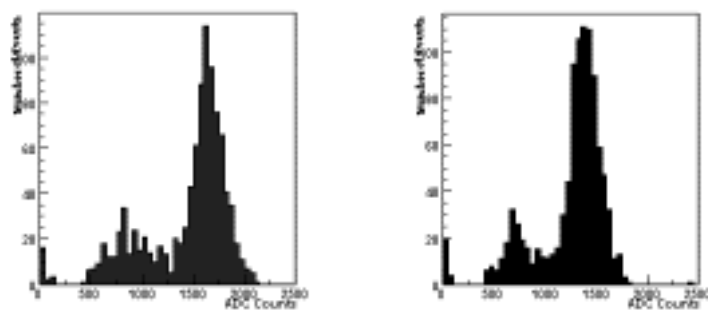


図4 GEM検出器から得られた信号分布<sup>23)</sup>  
左がAr(90%)-CH<sub>4</sub>(10%)、右がAr(70%)-CO<sub>2</sub>(30%)を循環させた場合の結果である。

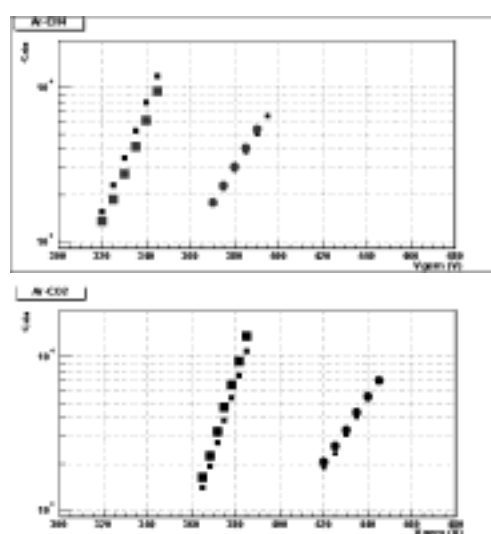


図5 GEMに供給した電圧に対する増幅率の測定結果

### 3. 文化財調査のための検出器の設計

2-2ではGEMを利用した簡単な検出器(図3)の例を紹介した。この検出器を出発点とし、以下に示すようにさらに改良を加えて、文化財調査のためのX線透過撮影用検出器とX線回折用検出器を設計した。

#### 3-1. X線透過撮影用検出器

図3で紹介した検出器で用いられた検出器の読み出しパッドをさらに小さくして並べれば、2次元のイメージングが可能な検出器が実現できる可能性がある。実際にCERNでは、8.0keVのX線源を用いてコウモリの透過撮影に成功している<sup>26)</sup>。

しかし、医療機関で使用されているレントゲン撮影と同様に、文化財の場合も透過撮影により調査を行なう場合、典型的には100keV程度のX線管球が使用されている<sup>7-9)</sup>。

増幅ガス中におけるX線の吸収長のエネルギー依存性は図6のようになる。図6からわかる通り、アルゴンを用いた場合の100keVにおける吸収長は30mにも達してしまい、現実的な大きさの検出器を製作するのは不可能である。一方、より重い希ガスであるクリプトンやキセノンの場合には、100keVにおける吸収長はそれぞれ5mと1mである。クリプトンとキセノンはともにGEM検出器の増幅ガスとして既にその実験結果が報告されているが<sup>27,28)</sup>、価格がより安価であり、しかも100keV程度のX線を光電効果によって吸収する能力が高いキセノンを使用することにした(クエンチャー・ガスとしてCO<sub>2</sub>を10%混合させる)。計算によるとキセノンを用いた場合には、5cmのドリフト領域があれば100keVのX線の約5%を検出することができるので、可搬な大きさのX線透過撮影用検出器を製作することが可能となる。

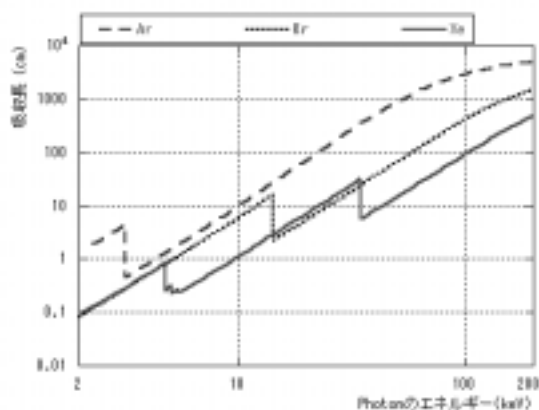


図6 増幅ガス中におけるX線の吸収長のエネルギー依存性

しかし、図3と同様にしたままドリフト板をGEMから5cm離す構造にするだけでは問題が生じる。ドリフト板からGEMまでの等電位面が平行にならないため、得られる2次元画像が歪んだものになる恐れがあるからである。この問題を回避するために、既に他の実験で実績があるように<sup>29)</sup>、電場の整形を目的とした基板(フィールド・ケージ)をドリフト領域の側面に設置する。

以上のことから考慮した上で、図7の概念図に示したようなX線検出器を製作することにした。既に設計は終了しており、林栄精器機において製作が行なわれている。読み出しパッド

に関しては、10mm\*10mm, 1.1mm\*1.1mm, 0.6mm\*0.6mmの3通りの大きさをテストできる基板を製作し評価を行なう予定である。

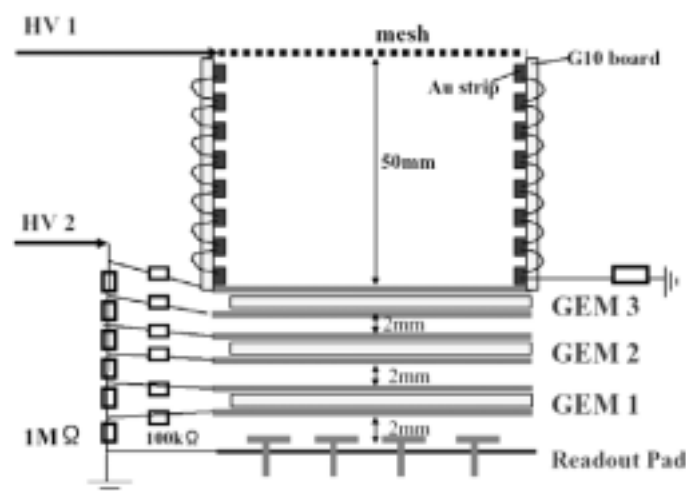


図7 X線透過撮影用検出器の概念図

### 3-2. X線回折用検出器

文化財を構成する材質、腐食生成物、絵画の顔料の特定などを目的として、X線回折を利用した結晶構造の解析は文化財調査法の中でも重要な役割を担ってきた。試料の結晶面の間隔を  $d$  とすると、波長  $\lambda$  のX線を入射角  $\theta$  で照射した場合、以下のBraggの条件式を満たした時に散乱角が  $\theta$  方向でX線は強め合う<sup>30)</sup>：

$$n\lambda = 2d \cdot \sin \theta$$

X線回折を利用した調査方法には大きく分けて2種類存在する。ひとつ目は、決まった位置(散乱角  $\theta$  を固定)に検出器を設置し、白色X線を照射してエネルギー・スペクトル解析を行なう方法である<sup>15)</sup>。しかしGEM検出器では、図4で示したエネルギー分布からもわかるように、5.9keVでのエネルギー分解能が20%程度であることから、エネルギー分散型のX線回折用検出器として用いるのは適当ではない。よって、本報では、単色X線源( $\lambda$ を固定)の入射角を変化させて、散乱X線が強め合う角度を調べる  $\theta - 2\theta$  スキャン法のための検出器開発を考えていく。

$\theta - 2\theta$  スキャン法では、X線の入射角とSi-PIN検出器などの散乱X線を検出する測定器の方向を等しくするように制御しなければならないため、機械的な構造が複雑にならざるを得ない。しかし、GEMを用いると幾何学的な検出領域の広い検出器への拡張が容易であることから、検出器部を固定することが可能となる。よって駆動部分を減らすことができるので機械的な構造が簡略化され、さらに調査の対象となる文化財を損傷してしまうなどの事故が発生する確率を軽減することができる。

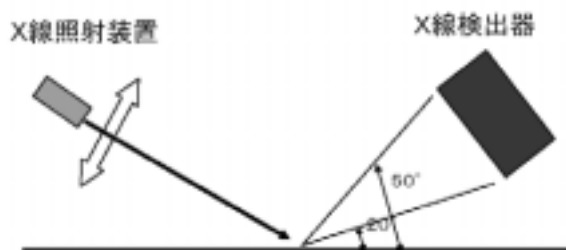


図8 GEMを用いたX線回折用検出器

図8を用いて、検出器に求められる仕様を検討してみた：

- ・結晶構造の特定に必須である $20^\circ$ から $50^\circ$ の領域をカバーする。
- ・可搬型検出器開発を念頭に置いているため、測定系全体が大きすぎないようにしたい。よって試料から検出器までの距離を20cmとする。
- ・結晶構造を特定するためには、 $\theta$ の分解能を $0.01^\circ$ 程度にする必要がある。検出器までの距離を20cmとした場合に、検出器に求められる位置分解能は約 $35\mu\text{m}$ である。このため、読み出し部分のストリップ、パッドまたはピクセルのサイズとして $100\mu\text{m}$ 程度の基板が必要となる。
- ・入射X線の波長は典型的な結晶面の間隔と同程度が望ましい。エネルギーに換算すると約5 keV程度であることから、用いる増幅ガスはアルゴンが適当である。

以上4点を考慮した結果、読み出し部分を除いた検出器の基本的な構造は図3と同様なものとすることにした。ただし、 $\theta$ 方向の測定が重要であることから、GEMの面積は $10\text{cm} \times 10\text{cm}$ ではなく、 $10\text{cm} \times 3\text{cm}$ とすることにより検出器全体の大きさをよりコンパクトにする。このようなチャンバーをサイエナジー㈱にて現在製作中である。

読み出し部分については、現在のところ以下の2つの方法を検討中である：

- ・AJAT社の製品であるCd-Te CMOSセンサーはX線の2次元画像を $100\mu\text{m}$ 程度の分解能で捕らえることができる。またWindows用のソフトウェアも製品に含まれており、PC上でリアルタイムの2次元画像を簡単に得られる利点もある。このセンサーを読み出し部分として検出器に設置すれば即座に調査に必要なデータが得られるだろう。しかし、このセンサーは非常に高額であるため、最初に次の方法を試してみることにした。
- ・ $10\text{cm} \times 3\text{cm}$ の読み出し基板に図9のようなストリップ状のパッドを印刷する。各ストリップの両端は隣接するストリップとチップ状の抵抗素子で接続する。基板中の両端にあるストリップには読み出し用のピンをたてて、両側で観測される電荷の非対称性からX線の入射位置を特定する。チップ抵抗で接続することによる制限から、ストリップのピッチは $0.7\text{mm}$ とした。

最初に2番目の方法に基づいて基板の作成をした後で、コリメーターで充分小さく絞った $^{55}\text{Fe}$ からのX線を用いることにより、この読み出し方法の評価を行なう予定である。

また、安価かつ十分な位置分解能が得られる他の読み出し方法の可能性についても同時に検討していきたいと考えている。

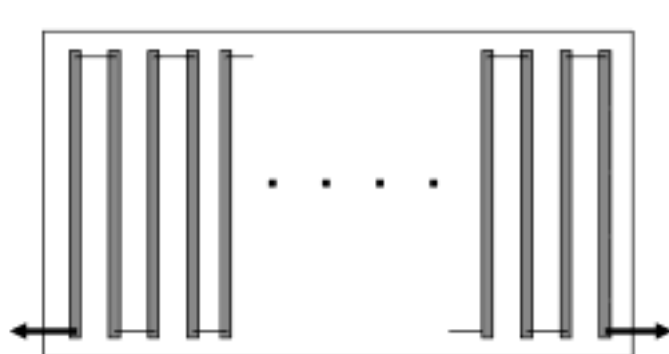


図9 X線回折用検出器の信号読み出しのためのテスト基板

#### 4. まとめ

文化財の調査では、試料採取が許されず、非破壊・非接触を大前提とした手法を要求されるケースが多いことから、X線透過撮影やX線回折などの調査方法は保存科学の歴史の中で重要な役割を担ってきた。しかし、現地調査を余儀なくされる文化財も多いことから、可搬な測定装置の必要性は今後さらに高まっていくと考えられる。

筆者はガス電子増幅フォイル(GEM)を利用すると、簡便、安価かつポータブルなX線検出器を独自で製作できる可能性に着目した。本報では、GEMを用いたX線透過撮影用検出器とX線回折用検出器について説明をした。これらの検出器は既に設計が終了し、現在(2005年12月)は製作段階にある。2006年1月を予定しているプロトタイプの検出器が完成後に、これらの検出器の性能評価を行なう予定である。

#### 謝辞

本研究は平成17年度文部科学省科学研究費補助金若手研究(A)「文化財の透過撮影および材質調査を目的とした新しいX線検出器の開発」によるものです。

東京文化財研究所協力調整官・三浦定俊氏をはじめとして、保存科学部・早川泰弘氏、国際文化財保存修復協力センター・朽津信明氏、情報調整室・皿井舞氏、そして東京芸術大学・松島朝秀氏にはX線を用いた文化財調査に関しまして、大変有益なご助言と情報をいただきました。

本研究の技術面の根幹を成すGEM検出器開発の多くの部分は、前職の東大CNS・浜垣研究室に所属していた時に習得したものです。また、理化学研究所・研究員の玉川徹氏からは有益な情報などを得ることができました。

林栄精器(株)の坂井和彦氏、星屋博一氏、近野和夫氏、そしてサイエナジー(株)の元田良一氏、越牟田聡氏、大津恭男氏には、検出器の設計と製作段階でご協力いただきました。

また、東京都立大学・李栄篤氏には実験の準備段階において多大なご協力をいただきました。ここに記して感謝致します。

#### 参考文献

- 1) 三浦定俊：『古美術を科学する』，廣済堂出版(2001)



- 2) 『文化遺産の世界 Volume 16 特集・年輪年代法』, 国際航業株式会社(2005)
- 3) 『重要美術品資料集成に関する研究』, 東京文化財研究所美術部報告書(2002)
- 4) 有賀祥隆: 中尊寺を中心とする奥州藤原文化圏の宗教彫像に関する調査研究, 科研費報告書(2003)
- 5) 浅井和春: 中尊寺彫像研究の現在, 佛教藝術, 277, 13-24(2004).
- 6) 山本勉: 新出の大日如来像と運慶, 東京国立博物館MUSEUM, No.589(2004)
- 7) 松島朝秀, 三浦定俊: 透過X線撮影におけるF C Rとフィルムの濃度特性の比較, 保存科学, 43, 17-24(2003)  
松島朝秀, 三浦定俊: 印刷用製版オルソフィルムRO-100とHSのエミシオグラフィ撮影用フィルムとしての特性, 保存科学, 44, 35-43(2004)
- 8) 三浦定俊, 松島朝秀: F C Rによるトヨタコレクションの調査, 保存科学, 44, 25-3(2004)
- 9) 室瀬和美: 浦添市美術館収蔵漆器資料の科学調査及び技術材料分析, よのつち浦添市文化部紀要創刊号, 124-138(2005).
- 10) 江本義理: X線分析法による文化財の材質研究, 保存科学, 1, 34-39(1964)
- 11) 佐野千絵, 朽津信明, 馬淵久夫: 東大寺南大門仁王像吽形の修復材料選定に関する基礎データ-木屎漆中の木屎の調査および錆漆中の錆の調査-, 保存科学, 33, 35-46, (1995)
- 12) 松田史郎, 青木繁夫: 高徳院国宝銅造阿弥陀如来坐像の表面に生成する腐食生成物の解析, 保存科学, 35, 1-20, (1997)
- 13) 秋山純子, 馬朝龍, 早川泰弘: 龍門石窟の彩色および風化生成物に関する研究, 保存科学, 41, 131-138, (2001)
- 14) 朽津信明: 古代地方寺院で用いられた彩色の特徴について, 第27回文化財保存修復学会要旨集, 19-20, (2005)
- 15) M.Uda: In situ characterization of ancient plaster and pigments on tomb walls in Egypt using energy dispersive X-ray diffraction and fluorescence, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 226, 75-82, (2004).
- 16) F.Sauli: GEM: A new concept for electron amplification in gas detectors, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 386, 531-534 (1997).
- 17) S.Bachmann, et al.: Charge amplification and transfer processes in the gas electron multiplier, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 438, 376-408 (1999).
- 18) F.Sauli: Development and applications of gas electron multiplier detectors, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 505, 195-198 (2003).
- 19) B.Ketzer: Micropattern gaseous detectors in the COMPASS TRACKER, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 494, 142-147 (2002).
- 20) A.Kozlov, et al.: Development of a triple GEM UV-photon detector operated in pure CF<sub>4</sub> for the PHENIX experiment, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 523 (2004) 345-354.
- 21) E.Costa, et al.: An efficient photoelectric X-ray polarimeter for the study of black holes and neutron stars, Nature 411, 662-665 (2001).
- 22) A.Brahme, et al.: Evaluation of a EM and CAT-based detector for radiation therapy beam monitoring, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 454, 136-141 (2000).
- 23) M.Inuzuka, et al.: Gas electron multiplier produced with the plasma etching method, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 525 (2004) 529-534.
- 24) T.Tamagawa, et al.: Development of Gas Electron Multiplier Foil with Laser Etching Technique, submitted to Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A.

- 25) F.Sauli: Principles of Operation of Multiwire Proportional and Drift Chambers, CERN 77-09 (1977).
- 26) S.Bachmann, et al.: High rate X-ray imaging using multi-GEM detectors with a novel readout design, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 478, 104-108 (2002).
- 27) A.Orthen, et al.: Gas gain and signal length measurements with a triple-GEM at different pressures of Ar-, Kr- and Xe-based gas mixtures, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 512 (2003) 476-487.
- 28) M.Li, et al.: Photon-counting digital radiography using high-pressure xenon filled detectors, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 471 (2991) 215-221.
- 29) Transition Radiation Detector, ALICE Technical Design Report, (2001).
- 30) カリテイ : 『新版・X線回折要論』, 松村源太郎訳, アグネ承風社, (1980).

キーワード : ガス電子増幅フォイル(Gas Electron Multiplier foil, GEM), X線透過撮影(X-ray radiography), X線回折(X-ray diffraction)

## Development of X-ray Detectors Using Gas Electron Multiplier Foil for Cultural Properties

Masahide INUZUKA

For investigation into cultural properties, X-ray radiography and material analysis using X-ray diffraction have played important roles in the field of conservation science of cultural properties. Moreover, the demand for *in situ* analysis will increase further. In this situation, it is valuable for conservation scientists to develop new X-ray detectors that are suitable for their own studies.

Gas Electron Multiplier foil (GEM) can be one of the powerful tools to develop a simple and portable detector at less cost. This article provides basic ideas about new X-ray detectors using GEMs for X-ray radiography filled with Xe-based mixture gas and for X-ray diffraction filled with Ar-based mixture gas.

The design and specifications for these detectors have already been fixed and these detectors are now under construction. After finishing the construction, the author plans to evaluate these detectors using a radio-isotope.

