

線スペクトロメトリー

野口 正安

セイコー・イーザーアンドジー(株)

270-2222 千葉県松戸市高塚新田 563

Ge 検出器を用いる 線スペクトロメトリーの過去 20 年間の変遷と最近の技術的進展について述べた。検出器は高純度 Ge になり、大型化は一層進んだ。マルチチャンネル分析器はパーソナルコンピュータと一体化する傾向が益々強くなり、デジタル MCA も現れた。

Key Words : gamma ray, HPGe detector, energy resolution, peak efficiency, radiation damage, active reset, ballistic deficit, ADC, digital MCA, spectrum analysis software

過去 20 年間におけるこの分野の最も著しい技術的進展は高純度 Ge(以下、HPGe と記す) 検出器、次いでマルチチャンネル分析器(以下、MCA と記す)とパソコン(以下、PC と記す)によるスペクトル解析であろう。いずれもハードおよびソフトの両面において、急速な進歩を遂げている一般の半導体技術およびデジタル技術に負うところが大きい。現在、線スペクトロメトリーに用いられる検出器としては、HPGe 検出器がほとんどであり、NaI(Tl)シンチレーション検出器や化合物半導体検出器(CaTe, HgI₂ など)は限られた目的にのみ使用されている。そのため、ここでは、主に HPGe 検出器と周辺機器およびスペクトル解析について過去 20 年の変遷と現状について紹介することとする。なお、HPGe 検出器開発の歴史、その特性などについては文献 1) に詳しい解説があるので参照されたい。

1) Ge 半導体検出器

1960 年代の中頃に 線用の半導体検出器としてリチウムドリフト型の Ge(Li)が製造・市販されるようになり、ほぼ 20 年間にわたって 線スペクトロメトリーに広く使われてきた。しかし、液体チツリによって常時冷却しなければならない不便さや製造方法の複雑さと歩留まりの悪さ等の欠点もあって、1980 年代中頃には大手メーカは

Ge(Li)の製造を中止した。Ge(Li)の素材に較べて不純物濃度が 2 桁ほど低い HPGe が 1970 年に開発²⁾されてから、今日までの技術的進展とその普及³⁾はめざましく、現在では Ge(Li)はほとんど HPGe に置き換えられた。その移行に伴って以下に述べるような技術的進展がみられた。注)2001 年 3 月現在、国内でおよそ 3,000 台、全世界では 20,000 台以上⁶⁾と推定される。

1.1) 検出効率およびエネルギー分解能

1972 年に Llacer³⁾が発表した同軸型 HPGe 検出器は、2.4cc および 5.6cc の小さなものであった。1980 年代後半以降、Ge 結晶の精製技術の向上によって大きな Ge 単結晶が製造できるようになり、最近では直径が 10.5cm の大きな結晶をつくることも可能⁶⁾となった。そのため、相対効率(3" × 3" NaI シンチレータのピーク効率との比)が 200% ぐらいの極めて大きな同軸型 HPGe 検出器も市販されるようになった。Ge(Li)の時代では相対効率は 10~20% 程度であったが、現在一般的に使われる HPGe 検出器は 20~50% 程度である。しかし結晶が大きくなるほど、不純物濃度をさらに低くする必要がある。図 1 は、同軸型 HPGe 結晶における空乏電圧⁴⁾(結晶内部の全領域を空乏層にするのに必要な印加電圧)が 3000V あるいは 4000V の場合、結晶の直径と不純物濃度の関係を示したものである。

実際の検出器では、電荷収集時間を短くし、収集効率を十分に高くするため、漏れ電流を抑えてこれ以上の電圧を印加しなければならない。そのため、大きな HPGe 直径の検出器では 10^{10} cm^{-3} 以下の不純物濃度が要求される。

その間、エネルギー分解能も向上し、相対効率が 20～50% 程度の一般的な同軸型検出器で 1332.5keV ピークの半値幅は 1.7～2.0keV の範囲であり、さらにピーク形状の対称性もよくなった。比較的小型の同軸型 HPGe 検出器では、1332.5keV に対する最も高い分解能は 1.6keV 程度のものもあり、この値は理論的な限界値 (Fano 係数を 0.1 とする) の 1.5keV に極めて近い値である。しかし、電荷収集の不完全な大型検出器またはウェル型検出器、あるいは低エネルギー領域におけるエネルギー分解能の向上は今後とも期待できるであろう。

1.2) HPGe 検出器の種類と特性

nタイプおよびpタイプ同軸型HPGe : 精製後の HPGe 結晶に残る微量の不純物によって、Ge 結晶は p 型と n 型に分類される。アクセプター (Al) 濃度がドナー (P) 濃度より高い結晶が p 型 Ge 結晶、その逆が n 型 Ge 結晶である。エネルギー分解能など検出器の基本的な性能に関しては両者に差は無いが、次に述べる検出器電極構造の違いによって低エネルギー光子に対する検出効率において大きな違いが生じる。

図 2 に示す同軸型検出器では結晶の外側表面に高電圧 (HV) 印加電極が、結晶中心部分に空けた細い穴に信号電極がつけられる。半導体の整流特性によって、結晶内部に電場をつくるためには逆バイアスになるように HV を印加しなければならない。すなわち、図 2(A) の p 型結晶の検出器では結晶外側の表面に n^+ 電極をつくって正の HV を印加し、図 2(B) の n 型結晶の検出器では結晶外側表面に p^+ 電極をつくって負の HV を印加する。現在の HPGe 検出器では、 n^+ 電極を作るには金属リチウムを Ge 結晶の表面に蒸着または電着して熱拡散 (250～300、5～10 分) し、 p^+ 電極を作るにはボロンイオンを

40keV 程度に加速して注入する方法が使われている。リチウム拡散によって生成する n^+ 電極の厚さはおよそ 0.5～1.0mm、ボロンイオン注入によって生成する p^+ 電極の厚さは 0.3 μm 程度である。図 2(A) の検出器では、100keV 程度以下の低エネルギー光子は n^+ 不感層において減弱し、ピーク検出効率が低下する。検出器エンドキャップにアルミニウムの入射窓 (厚さ 1mm 程度) をもつ通常の p 型 HPGe 検出器のピーク効率は、図 3 の A に示されるように、80keV 程度以下で急激に低下する。一方、図 2(B) の n 型 HPGe 検出器 (名称はメーカーごとに異なるので、ここでは n 型 HPGe という) では、薄い不感層 (0.3 μm) とベリリウムなど低原子番号の物質 (最近では、炭素繊維の複合材も使われている) からできている入射窓 (厚さ 0.5mm 程度) のため減弱が小さく、3keV 程度以下まで測定可能である (図 3 の B)。

放射線損傷 : Ge 結晶は高速中性子に照射されると正孔の捕獲中心となる欠陥ができ、エネルギー分解能が劣化する。中性子束が $10^8 \sim 10^{10} \text{ n/cm}^2$ において、n 型 HPGe は同じ大きさの p 型 HPGe に較べて数倍から数 10 倍 (結晶サイズに依る) の耐性がある⁷⁾。n 型 HPGe の場合は結晶外側表面の p^+ 電極に負電圧が印加されており、正孔が電極へ移動する距離が短いので捕獲される確率が小さいため、と説明されている。

放射線損傷によって性能が劣化した HPGe 結晶は、100 前後、数 10 時間のアニーリング処理を行うことによって、エネルギー分解能が回復する^{8, 9)}。そして、n 型 HPGe では、 n^+ 層 (中心電極) におけるリチウムの拡散によるピーク効率の減少も極めて僅かである。

ウェル型HPGe : 直径の大きな Ge 結晶の製造が可能になったため、図 2(C) に示すウェル (井戸) 型の検出器が実用化されるようになった。現在市販されているウェル型 Ge 検出器の有感部の容積は 100～500 cm^3 で、試料を挿入するウェルは 10～16mm 程度、深さ 35～40mm 程度

である。数 cm^3 の小さな容積の試料に対しては、幾何学的効率が 4 に近い条件で測定することができる。ウェルから光子が入射する部分は厚さ $0.3\ \mu\text{m}$ 程度の p^+ 層と 1mm 程度のアルミニウムであるから、 $50\sim 100\text{keV}$ 程度の低エネルギー光子に対しては 90% 以上のピーク効率で測定することが可能である。それより高いエネルギーの光子に対しても、幾何学的効率がよいため、同じ相対効率を持つ同軸型検出器の最短位置での測定に較べて数倍以上の高いピーク効率をもつ(図 3 の C 参照)。エネルギー分解能は、構造上の理由によって、 $2.0\sim 2.3\text{keV}$ と同軸型検出器に較べてやや悪い。

低エネルギー光子用 HPGe : 100keV 以下の低エネルギー光子のみを高いエネルギー分解能で測定するには、図 2(D) に示されるように、結晶(光子入射面)直径が $10\sim 50\text{mm}$ 程度で厚さが $5\sim 20\text{mm}$ の小型の HPGe 検出器が使われる。検出器の静電容量が小さいほどノイズは低くなるので、結晶の面積が小さい検出器ほどエネルギー分解能が高くなる。上記の直径の検出器では、 5.9keV に対するエネルギー分解能は $150\sim 500\text{eV}$ 程度で、直径が小さいほど高分解能である。検出器の構造としては結晶外側が p^+ 電極のプレーナ形あるいは半同軸形であり、光子入射窓にはベリリウムが使われる。その厚さ ($25\sim 500\ \mu\text{m}$) は入射窓の直径に制約を受け、検出可能な最低のエネルギーは入射窓厚によって決まる。中・高エネルギーでは結晶のサイズにも依るが、図 3 の D に示されるように、ピーク効率(同図では、幾何学的効率は含まない)はエネルギーが高くなると急激に減少する。

多結晶型 HPGe : このタイプの検出器は、核反応やイメージングなど放射線の入射位置や方向の情報が必要な種々の実験や測定に用いられる。一つのクライオスタット内に複数個の HPGe 結晶を配置したアレイ型検出器あるいは一つの大きな HPGe 単結晶を分割したセグメント構造をもつ検出器がつけられる。セグメント構造型検出器の例⁵⁾として図 2(E) に示したものは

単一の Ge 結晶を 12 分割した検出器で、各セグメントからの信号はそれぞれ独立でありながら、同じ特性を持つパルス信号を取り出すことができる。エネルギー分解能は、通常と同軸型検出器に較べてやや劣る。

1.3) クライオスタット、電気冷却、他

検出器の遮へいを容易にする点から、プリアンプの形状がクライオスタットとほぼ同じ直径のストリーム(スリムライン)形のものが多くなった。また、コールドフィンガーのところで着脱して、In-Situ 測定など目的に応じて種々の液体チツソ容器と組み合わせて使用できるものもある。環境試料など低レベル放射能の測定には、バックグラウンドを低減させるため、クライオスタットの材料(アルミなど)に含まれる天然の放射性物質を特別に吟味して作られるものもある。

近年、液体チツソを用いず、電気式冷却装置によって検出器を冷却する方式^{10,11)} のものが増えつつある。冷媒のガス(ヘリウムなど)を圧縮するコンプレッサを用いるためマイクロフォニックノイズが問題となるが、最近の装置では、エネルギー分解能への影響はほとんどないが、または 10% 程度以下の劣化で済むようである。冷却装置は長期間の安定動作が必要とされるが、その点でも信頼性が高まった。

2) 増幅器

前置増幅器および主増幅器においては、エネルギー分解能を高めることと高い計数率におけるスループットの改善はお互いに相反するところがある。

2.1) 前置増幅器: 初段に冷却 FET を用いる電荷有感型前置増幅器において、検出器の電荷信号をテールパルス(通常、時定数は $40\sim 50\ \mu\text{s}$) に変換する抵抗フィードバック方式では、抵抗(R)が高い(テールの減衰時定数が長い)ほどエネルギー分解能は高くなるが、高い計数率ではテールパルスの積み重なりによって出力電圧が飽和してスループットが低下する。そこで、 $R =$ (ステップパルス)の場合に出力電圧

が設定電圧(V_s)に達したとき、リセット信号を出して出力電圧をゼロレベルにリセットするアクティブリセット方式が使われる。その方法として、発光ダイオードからの光パルスを FET ゲート入力に照射してリセットする方式^{12,13)}およびトランジスタ回路によってリセットする方式^{14,15)}(図 4)がある。前者では、FET ゲートと非接触であるためノイズレベルが低く、低エネルギー光子を高いエネルギー分解能で測定する場合に適しており、後者では抵抗フィードバック方式に較べてスルーブットが 4~6 倍ほど改善されるので、高い計数率の測定に適している。

2.2) 主増幅器：一般的な増幅器としてはガウス型の波形整形パルスが用いられるが、擬似三角波形のパルス波形整形によってノイズレベルが 8%ほど低い結果が得られる。高い計数率の測定においてスルーブットを高めるため小さなシェーピング時定数を用いると、波形整形において積分が十分でないため、弾道欠損⁴⁾(ballistic deficit)が生じてエネルギー分解能が悪くなる。大きな Ge 結晶、かつ小さな時定数で高エネルギー線を測定する場合、電荷収集時間のばらつき(200~700ns)によって生じるパルス立上がり時間の変動がその影響(電荷収集効果)を受けやすい。ゲーテッドインテグレータ(gated integrator ;GI)波形整形ではフィードバックに積分回路を入れ、信号が十分積分されたときにゲートでパルスをリセットする。そのため、小さなシェーピングタイム()で測定する場合でも、弾道欠損が除かれて分解能(FWHM)の劣化が少なくなる¹⁵⁾(図 5 参照)。

その他に、ベースラインレストアラー、パイルアップ除去回路、自動ポールゼロ調整などにおいて性能・機能の改善がみられる。

3) マルチチャンネル分析器(MCA)

ADC :以前はクロック周波数が 100MHz 以下の Wilkinson 型 ADC が主流であったが、逐次近似(比較)型 ADC の直線性^{注)}が向上したため、現在では主に後者の ADC が使われるようにな

った。例えば、変換ゲイン 16kch(14bit)で変換速度 8 μ s(一定)程度のもが普通(特に速いものでは 2 μ s 以下)であり、これは Wilkinson 型 ADC の 400MHz 以上の速度に匹敵する。内蔵マイクロプロセッサによるデジタルスタビライザを持つものもあり、例えば 16kch でピーク中心に対して ADC ゲイン変動とゼロシフトを 0.1ch 以下で安定化することができる。

注) 積分非直線性 $\pm 0.025\%$ 、微分非直線性 $\pm 1\%$

データメモリー :PC など一般に使われる半導体メモリーが大容量、高速、さらに低価格になったため、一般の MCA でもデータメモリー容量は 8~64k ch (2^{32} カウント/ch)と大きくなった。通常、一つの線スペクトルの測定に使うチャンネル数(フルスケール)としては 4kch で十分であり、大きな容量のデータメモリーは複数個のスペクトルの測定と比較・演算、マルチパラメータ測定などに使われる。

多様な機能と形態 :現在の MCA を PC およびソフトウェアと離して考えることはできないが、主としてハードウェアの形状と機能から大まかに次のように分類することができる。A) MCA 機能を全て含み、専用の筐体に収めた一体構造のスタンドアローン型、B) アナログ・デジタル変換器(ADC)とデータメモリーが NIM モジュール型の MCA、C) 基本的な MCA 機能を一枚の PC ボードに組み込み、他は全て PC を用いる PC ベース MCA。従来、タイプ A) の MCA では、PC はスペクトル解析のみに使われる周辺機器の一つとして使われていたが、現在では増幅器、HV、MCA の制御を PC によって行なうものも多い。タイプ B) と C) はここ 10 数年来増えてきたタイプの MCA である¹⁶⁾が、近年は、スペクトル解析はもとより MCA の制御を含む全ての操作を PC で行なうものが増えてきた。いずれのタイプの MCA も PC への依存度は益々高くなり、MCA としての機能や操作性はソフトウェア(ファームウェアを含む)に大きく依存するようになった。操作のほとんどをマウスによって行なうものが多いが、中

にはタッチパネル式の CRT 画面で操作するものやオシロスコプの機能を内蔵するものもある。

デジタル MCA :近年、サンプリングデジタルオシロスコプと同じ技術によって、変換時間がナノ秒オーダの超高速フラッシュ型 ADC を用いて前置増幅器の出力パルス波形を直接デジタル化することが可能となった。そのため、パルス波形情報によって、検出器内部の過程を反映する測定が可能となった¹⁷⁾。その応用の一つがデジタル信号プロセッサ(DSP)を用いるデジタル MCA である。前置増幅器のパルス波形は直接デジタル化され、さらに、パラメータを最適条件に設定できるデジタルフィルタによって、最良の S/N をもつカスプ形に波形整形される。図 6 は市販されているデジタル MCA に内蔵するデジタルオシロスコプで示されたパルス波形の例である。その他のパルス処理(ポールゼロ、ベースライン調整、ゲイン微調整など)も全てマイクロプロセッサによってデジタル的に行なわれる。このように、従来のアナログ処理方式に比較して、高計数率におけるスループットが向上し、エネルギー分解能および安定性がかなり改善される¹⁸⁾。デジタル処理はこれからも一層高速化されることを考えると、今後の MCA の一つ方向として期待できるものである。

小型化・ポータブル化も一層進み、手の平に載るほどの超小型ながら他の MCA と同等あるいはそれ以上の機能と性能を持つ MCA もあり、ポータブル型 HPGe 検出器と組み合わせて In-situ 測定などに有効に使われる。市販品の中には、上記のデジタル MCA で、HV や増幅器を内蔵しているものもある。

ネットワーク化 :1990年代以降、PCの発展によって分散処理の有効性が再確認され、さらにネットワーク対応の周辺機器や通信回線などの通信方式も急速に発展した。そのような背景を基盤として、複数台の測定装置をもつ組織・事業所内においては、Ethernetによる

LANで結んだネットワークMCAと周辺機器(プリンタ等)を遠隔制御するシステムが普及しはじめた。

4) スペクトル解析ソフトウェア

PCの性能向上 :過去10年ぐらいの最も大きな変化は、PCの性能が飛躍的に向上したこと、およびOSがDOSからWindowsへ変わったことである。それに伴ってスペクトル処理もマルチタスク、マルチウィンドウで実行でき、処理の迅速化およびグラフィックス表示による視覚化が進行した。また、RAM およびハードディスクの大容量化によって、プログラムやデータファイルに数量的な制限がなくなったこともソフトウェアの高機能化・多様化を一層助長する結果をもたらした。

市販ソフト :以前は主に研究者・技術者がFORTRAN や BASIC 言語で自ら作成した解析ソフトが使われていたが、近年は C 言語や VB 言語を用いて開発された PC ベースの市販ソフトウェアが多く使われるようになった。スペクトル解析の基本的な処理(ピーク探索、エネルギー校正・効率校正、ピーク定量解析、核種同定、報告書作成など)に関しては従来と大きな違いはないが、関数フィッティング法による多ピーク同時解析、容積線源における自己吸収の補正、カスケード線のサム効果の補正、スペクトルの3D表示などが追加されるようになった。

また近年、PC を用いたモンテカルロ計算の線スペクトロメトリーへの応用¹⁹⁾が注目されつつある。これからの線スペクトロメトリーの傾向として、スペクトル解析や効率校正などの計算に応用されることが多くなるであろう。

総じて、現在の一般的な線スペクトロメトリーではコンピュータによる自動化が高度に進み、専門的な知識や判断は不要になりつつあるが、その反面、ブラックボックス化に伴う弊害がないとはいえない。

謝辞

デジタル MCA のパルス波形を測定して頂いたセイコーEG&G 社の水井雅之氏、

HPGe 検出器に関する最新の情報を提供して頂いた Perkinelmer(旧 EG&G ORTEC)社の Pat Sangsingkeow 氏に感謝いたします。

参考文献

ここ 10 年ぐらいの全体的な動向としては、ハード・ソフト共に研究レベルから機器メーカーの製品開発に移行した傾向が強いので、ここでは下記の文献以外に数社 (EG&G ORTEC、CANBERRA、PGT、APTEC、AMPTEC)の製品カタログの記載内容に多く依存した。

- 1) 坂井英次 : 高純度ゲルマニウム検出器、Isotope news, No.340, 10月号, 8-12(1982)
- 2) Baertsch, R. D. and Hall, R. N., IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-17(3), 235(1970)
- 3) Llacer, J. : "PLANAR AND COAXIAL HIGH PURITY GERMANIUM RADIATION DETECTORS", Nucl. Instr. Methods, 98, 259(1972)
- 4) Knoll, G.F. : "RADIATION DETECTION AND MEASUREMENT", 2nd ed., John Wiley & Sons, Inc., NewYork
- 5) Sangsingkeow, P. : "Recent developments in HPGe material and Detectors for gamma-ray spectroscopy", EG&G ORTEC Technical Report, ORTEC Home Page
- 6) Private communication from P. Sangsingkeow, EG&G ORTEC
- 7) Pehl, R. H., Madden, N. W., Elliott, J. H, Raudorf, T. W., Trammell, R. C., and Darken, Jr. L. S., IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-26, No.1, 321(1979)
- 8) Kraner, H. W., Pehl, R.H and Haller, E. E. : "FAST NEUTRON RADIATION DAMAGE OF HIGH-PURITY GERMANIUM DETECTORS", IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-22, No.1, 149(1975)
- 9) Raudorf, T. W., Trammell, R. C., and Wagner, S. : "PERFORMANCE OF REVERSE ELECTRODE HPGE COAXIAL DETECTORS AFTER LIGHT DAMAGE BY FAST NEUTRONS", IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-31, No.1, 253(1984)
- 10) Sakai, E., Murakami, Y., and Nakatani, H., IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-29, No.1, 760(1982)
- 11) Stone, R. E., Barkley, V. A., and Fleming, J. A., : "Performance of a Gamma-Ray and X-Ray Spectrometer Utilizing Germanium and Si(Li) Detectors Cooled by a Closed-Cycle Cryogenic Mechanical Refrigerator", IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-33, No.1, 299(1986)
- 12) Goulding, F. S., Walton, J. T., and Malone, D. F., Nucl. Instr. Methods, 71, 273(1969)
- 13) Landis, D. A., Goulding, F. S., Pehl, R. H., and Walton, J.T., IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-18, No.1, 115(1971)
- 14) Landis, D. A., Cork, C. P. Madden, N. W., and Goulding, F. S. : "TRANSISTOR RESET PREAMPLIFIER FOR HIGH RATE HIGH RESOLUTION SPECTROSCOPY", IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-29, No.1, 619(1982)
- 15) Britton, C. L., Becker, T. H., Paulus, T. J., and Trammell, R. C. : "Characteristics of High-Rate Energy Spectroscopy System Using HPGe Coaxial Detectors and Time-Variant Filters, IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-31, No.1, 455(1984)
- 16) 岡村 勉夫、野口正安 : 最近のマルチチャンネル・アナライザ、原子力工業、第 31 巻 12 号(1985)
- 17) 高橋浩之 : デジタル放射線信号処理、放射線、vol.22, No.2, 6(1996)
- 18) Vo, D. T., Russo, P. A., and Sampson, T. E. : "Comparisons Between Digital Gamma-Ray Spectrometer (DSPEC) and Standard Nuclear Instrumentation Methods (NIM) System" , Los Alamos National Laboratory report LA-13393-MS (October, 1997)

19) CANBERRA Technical information, 例えば,
 "Model S574 LabSOCS Calibration Software"

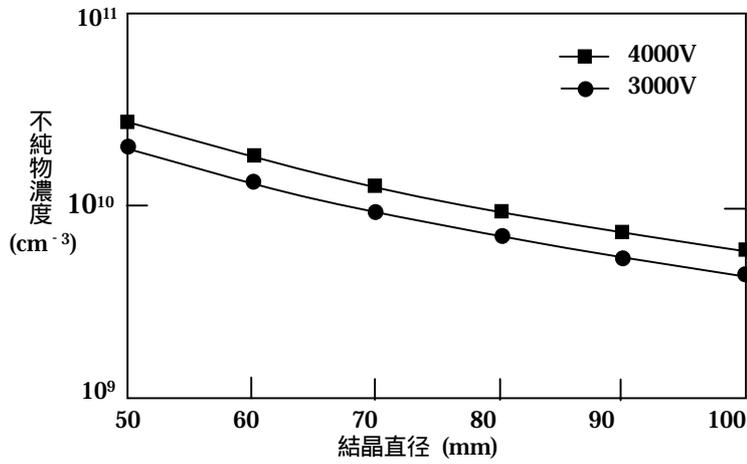


図1 HPGe 結晶の直径と必要とする不純物濃度の関係⁵⁾

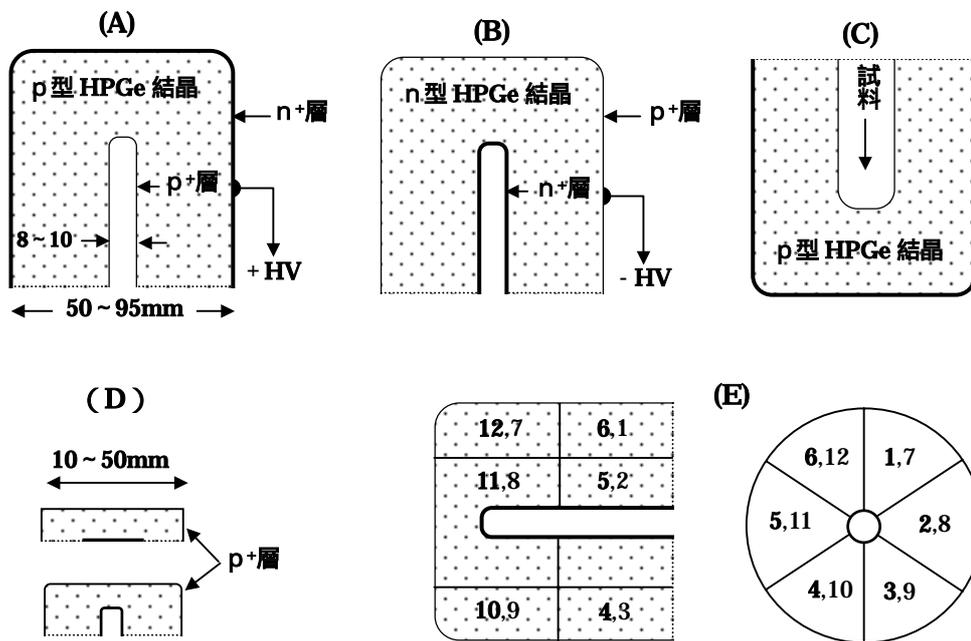


図2 HPGe 検出器のいろいろなタイプと構造(例) (A) p型 HPGe (B) n型 HPGe
 (C) ウェル型 HPGe (D) 低エネルギー光子用 HPGe (E) セグメント型 HPGe

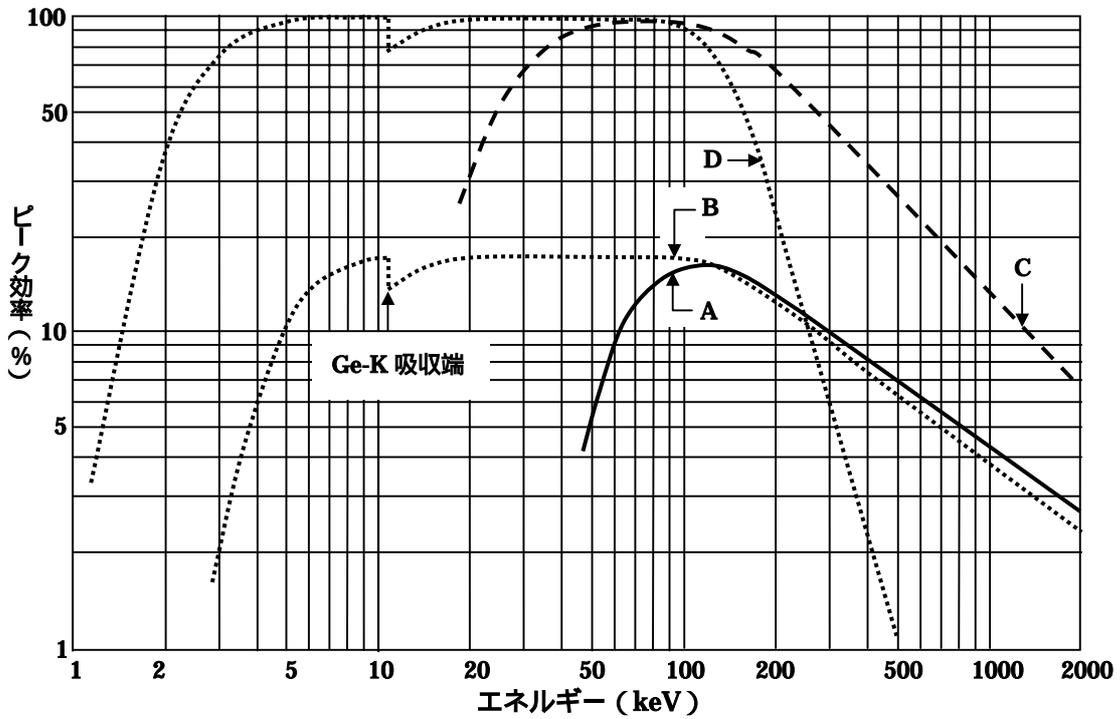


図3 いろいろなタイプの Ge 検出器のピーク効率 (例) A: p型 HPGe (REL 40%)
 B: n型 HPGe (REL 33%) C: ウェル型 HPGe D: 低エネルギー光子 HPGe
 A、B、Cのピーク効率は線源が最短位置における値、Dは幾何学的効率を含まない。

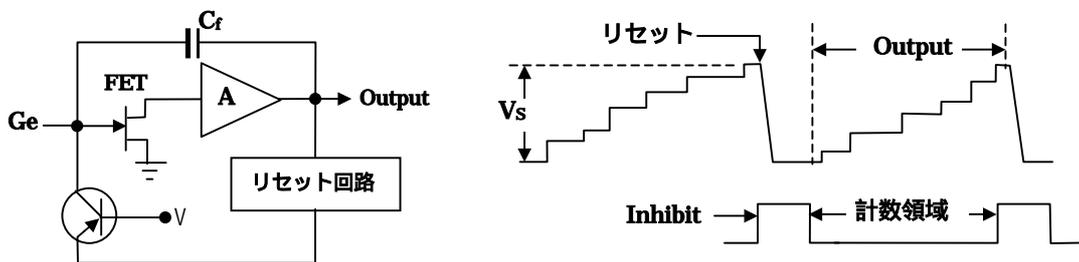


図4 トランジスタリセット前置増幅器の原理 (左) と出力波形 (右)

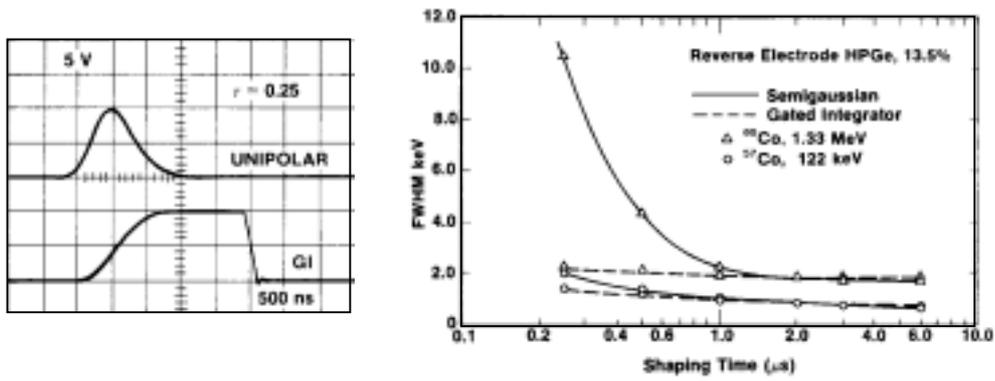


図5 (左) ガウス型およびGIパルス波形 (右) シェーピングタイムとFWHM

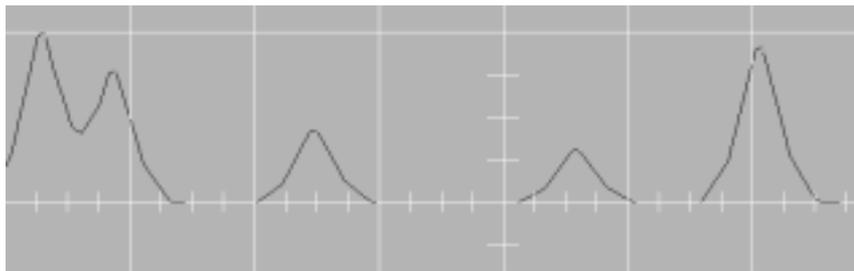


図6 デジタルMCAのカスポ型パルス波形の例(パラメータ: Risetime = 12 μs , Flattop = 1.3 μs , Cusp = 0.4 Tilt = -0.13)