井戸型半導体検出器の二、三の性能†

甲田善生, 河島達郎

名古屋工業技術試験所

名古屋市北区平手町 1 丁目

1974 年 5 月 30 日 受理

1. はじめに

半導体検出器の分解能が優れていることは周知の事実であるが、従来 Ge の大きな結晶を作りにくかったので、微量の γ 線の測定には不利^{1),2)}だとされてきた。ところが、結晶作成の技術が向上するとともに、しだいに大型の Ge(Li) 結晶ができるようになり、さらに最近では 10mm ϕ 以上の試料穴をもつ、実用的な井戸型の Ge(Li) 半導体検出器が出現し、これまでの低効率という常識がくつがえされた。

半導体検出器の高い分解能と高効率を兼ね備えた井戸型の Ge(Li) 半導体検出器は、最近各方面で問題にされている微量 γ 線の測定に力を発揮すると考えられるので、新着の機器について、これまで当所で使用してきたほぼ同じ大きさの井戸型の NaI(Tl) 検出器と比較³⁾して測定した二、三の性能について報告する。

2. 実験装置および RI

a) 井戸型半導体検出器

63cm³ の有効体積をもつ同軸型の Ge(Li) 検出器で、軸方向に 10.3 ϕ × 55mm の井戸型の試料穴を備える、Philips 社製 APY 58 型。34l の液体窒素を入れるジュワービンと前置増幅器 (56056/01 DC 型) を付した垂直型の低温槽 (CRY 201 型) を付属している。

波高分析器は 4096 チャンネルの磁気記憶部をもつ Canberra 工業社の 8100 型で、X-Y レコーダー (Hewlett Packard 社製 7004B 型)、テレタイプ (Teletype 社製 ASR 33 型)、テープパンチャー (Facit 社製 4070 型) に接続して使用される。

b) 井戸型 NaI(Tl) 検出器

44 ϕ × 50mm の NaI(Tl) 結晶に 14 ϕ × 39mm の試料穴をあけた井戸型のもので、有効体積 67.5cm³。

富士電機 (旧神戸工業) 製 SG-78W 型。

波高分析器は 400 チャンネルの磁気記憶部をもつ同社製 AN-400 型。パラレルプリンター (青葉精機製

DP-7 型) に接続。

自然放射能の遮へいには、いずれも 10cm の鉛レンガを用いた。

c) 使用線源

キュリー数既知の低濃度試料の作成には、⁶⁰Co と ¹³⁷Cs の 2 種の RI を用いたが、いずれも IAEA 製低レベル濃度標準品で、濃度の全誤差は $\pm 2\%$ 以内。

その他の線源は、中性子照射によって作られた標準試料およびアイソトープ協会から購入した精製 RI を用いた。

3. 実験結果および考察

3.1 井戸型 Ge(Li) と NaI(Tl) 検出器の計数効率の比較

γ 線源として ¹⁴⁴Ce (134 keV), ⁵¹Cr (320 keV), ¹²⁴Sb (603 keV), ⁴⁶Sc (889, 1, 120 keV), ⁶⁰Co (1, 173, 1, 332 keV) を用い、これらの RI 溶液の少量を口紙の小片にしみ込ませ、10mm ϕ のポリエチレン管を用いて手製した小試験管に収めて線源試料とした。これらの試料を両検出器の井戸内に入れ、目的とする光電ピークの計数が 10,000 カウント以上になるよう注意して測定した。

測定結果はそれぞれの光電ピーク部の計数を単位時間あたりの計数率に直し、Ge(Li) と NaI(Tl) の相対的な比較を行なった。結果を Fig. 1 に示す。

Fig. 1 から Ge(Li)/NaI(Tl) の計数効率比は、320 keV の ⁵¹Cr の γ 線を最低とし、それより γ 線エネルギーが高くなっても低くなっても Ge(Li) の相対的な効率はしだいに高くなり、1 MeV 以上の部分では NaI(Tl) と同等以上の効率を示した。また、相対効率

† Some Abilities of Well Type Semiconductor Detectors. Yoshio KODA and Tatsuro KAWASHIMA: Government Industrial Research Institute, Nagoya; Hirate-machi, Kita-ku, Nagoya.

Fig. 1 Relative counting efficiency of 63 cm³ well type Ge(Li) and 67.5 cm³ well type NaI(Tl) detectors.

が最低の 320 keV でも、NaI(Tl) に比べて 60% の効率を示すので、井戸型の Ge(Li) 検出器は同型の NaI(Tl) に比べて実用的にはほとんど遜色のない効率であると判断される。

このことは、これまで大型の NaI(Tl) 検出器と同じ計数を得るためには、Ge(Li) は 60~600¹⁾ 倍の時間を要するといった状態から大きく変化したことになる。

3.2 試料を Ge(Li) 検出器の井戸内に置いた場合と検出器上に置いた場合の計数効率の比較

これまでに普及している端窓型 Ge(Li) 検出器とこの井戸型検出器の計数効率の比較をする目的で、まず簡略に、この検出器の井戸内に試料管を置いた場合と、井戸の穴の上に厚さ 0.55 mm の透明プラスチック板を置いて穴をふさぎ、その上に直接試料管をのせた場合の計数効率を比較した。放射線試料としては上記の 3.1 に使用したものを用いた。結果を Fig. 2 に示す。

Fig. 2 から、500 keV 以下のエネルギーの γ 線では、エネルギーが低いほど井戸内で計数すると効率が高くなるが、500 keV 以上では約 9 倍というほとんど一定の倍率の効率を示す。

この結果は、Ge(Li) 検出器では Ge 結晶を真空の低温槽内に保存する必要から、結晶と外壁の間には一定の距離をおく必要があり、さらに外壁そのものも真空の圧に耐えるためにあまり薄くできないため、端窓型では NaI(Tl) ほど計数効率の高い構造のものを作りにくいことが考えられるし、そのほか、井戸型では井戸の直径が全体の大きさに比べて小さいので、この部分の管壁を比較的薄くできる利点がある。事実、この Ge(Li) 検出器の外壁は 2 mm Al であるが、井戸の壁は 0.5 mm Al に過ぎない。したがって、この型の

Fig. 2 Counting efficiency of Ge(Li) detector in well compared with on head.

検出器で低エネルギー部の効率が高いのは、端窓型と井戸型の Ge(Li) 検出器の頭部の構造により Fig. 2 の結果がえられたものと思われる。

3.3 検出限界の測定

IAEA の濃度標準溶液をメスフラスコを用いて希釈し、マイクロビペットで ⁶⁰Co については 1.1, 2.9, 11.5, 34.6 pCi, ¹³⁷Cs については 0.8, 3.3, 9.8, 32.7 pCi の溶液をそれぞれポリエチレン製小容器に封入して試料を作った。

測定時間は実用的な見地から 1 試料 50 分間と定めたが、測定結果の確認のためにさらに長時間、あるいは短時間の測定も行なった。

検出限界は、目的とするピークの高さがその付近の BG の平均の高さ (N_B) より $+3\sqrt{N_B}$ 以上の高さになったものという判定基準を用いた。結果を Fig. 3 (a), (b) に示す。

井戸型の Ge(Li) 検出器で井戸の中に試料を入れた場合、50 分間測定での検出限界は、⁶⁰Co, ¹³⁷Cs とともに約 1 pCi であった。NaI(Tl) では同一条件で測定した結果、⁶⁰Co, ¹³⁷Cs とともに約 10 pCi であった。

Cooper⁴⁾ によれば、Ge(Li) γ 線波高分析器の検出限界は次式で表わされる。

$$D_m(E_1) = \frac{A_m}{\epsilon(E_1) \cdot f_1 \cdot t} \{ [2bR(E_1) \{ \bar{B}_{C_2}(E_1) + \bar{B}_N(E_1) \} + A_m^2/4]^{1/2} + A_m/2 \}$$

ここに

$D_m(E_1)$: エネルギー E_1 の γ 線の最低検出壊変率

A_m : 検出限界値に必要な信頼度で、許容誤差率の逆数で表わす。結果に 10% の誤差が

a) Detection limits with Ge(Li) detector.
(counting time 3000 sec)

b) Detection limits with NaI(Tl) detector.
(counting time 3000 sec)

Fig. 3

許される場合には10, 100%の誤差が許されるときは1で, ふつうはこの間の数で表わす。

$\epsilon(E_1)$: エネルギー E_1 の γ 線に対する計数効率

f_1 : この γ 線の放出割合

t : 測定時間

b : 分解能を掛けるとピーク部分のチャンネル数が出てくる係数で, ピーク部分とし

て1/10 値幅 (FW 0.1M) をとる場合は約2である。

$R(E_1)$: そのエネルギーでの分解能を率で表わしたもの

$\bar{B}_{C_2}(E_1)$: 第2の γ 線によるコンプトン散乱の E_1 なるエネルギー部分での高さ

$\bar{B}_N(E_1)$: そのエネルギーでの BG

この式から, 3・1 ならびに 3・2 で述べた計数効率が検出限界を低くするための最も大きな要素であることが理解できる。式のうえでは測定時間も同じ役目をするように見えるが, 時間 t の延長はそれに比例して $\bar{B}_{C_2}(E_1) + \bar{B}_N(E_1)$ を増大させるので, 結局のところ検出限界はおおよそ $1/\sqrt{t}$ に比例して小さくなるにとどまる。

なお, Fig. 1 に示すごとく, 使用した Ge(Li) と NaI(Tl) 検出器では計数効率は多少, NaI(Tl) が優れているが, 後述するようにその分解能とコンプトン比に大差があるので, 結局のところ Ge(Li) が NaI(Tl) より約1桁検出限界が小さい結果が得られたものと推定することができる。

3・4 井戸型 Ge(Li) 検出器の絶対効率について

Ge(Li) 検出器の井戸内に試料を置いた場合の絶対効率 (absolute full energy peak efficiency) は ^{137}Cs (662 keV) については9.0% (0.090 counts/emitted photon) で, ^{60}Co の1,173 keV は3.4%, 1,332 keV は2.7%であった。

このほかのエネルギー部の絶対効率を測定するため半導体検出器のピーク効率の測定例⁹⁾としてとりあげられている ^{76}Se , ^{131}I を試用してみたが, これらの RI は多数の γ 線を放出するので, とくに ^{76}Se に見られるように, 井戸内に試料を置くと高エネルギー部の sum peak が著しく高くなり, 低エネルギー部の計数値は減少し, 絶対効率の測定としては信頼できる値を得ることができなかった。 ^{131}I についても同様な現象が観察された。これらの問題から井戸型検出器の絶対効率を測定するには, きわめて単純な壊変型をもった RI の標準体を選ぶ必要がある。

なお, 参考のためにその他の実測例を上げると, KCl 1 g を用いた測定では, 1,460 keV のピークの絶対効率は3.4%で, ^{144}Ce - ^{144}Pr の134 keV-695 keV の両ピークの相対比から前記の ^{137}Cs , ^{40}K の値を用いて134 keV のピーク効率を補外すると65%という値が得られた。

3.5 その他

Ge(Li) 検出器の分解能は、線源を検出器から約 10 cm 離して測った場合、 ^{60}Co の 1,332 keV のピークに対し半値幅が 2.8 keV (ピークエネルギーの 0.21%) であった。半値幅は計数速度が著しく大きくなると大きくなり、また室温が変わるとピーク位置が 1 チャンネル程度ずれて半値幅の値に影響を与えるのに、いまのところこれらの測定条件を十分改善しないふうな状態で測定しているので、さらにこれらの条件を整えれば、上記の値はもう少し改善される可能性も考えられる。

同じ方法で測定して、NaI(Tl) の分解能は ^{137}Cs の 662 keV のピークに対して 10.1% であったので、 ^{60}Co の 1,332 keV にこの率を掛けると半値幅は 134 keV となる。したがって、Ge(Li) 検出器は NaI(Tl) に比べ 48 倍の分解能があることになる。

光電ピーク/コンプトンの比は、Ge(Li) 検出器を用いる場合、 ^{60}Co の 1,332 keV のピークの高さをコンプトン領域の 1,040~1,096 keV の間の計数の平均値で割って求めた値で表わすと、Ge(Li) と NaI(Tl) ではコンプトン比に 1 桁近い差があるので、各種の放射線源が混合した試料中から特定の微量成分を検出するには、Ge(Li) のほうが著しく有力になる。

なお、参考のために Fig. 4 に BG スペクトルを示した。この値は遮へいしないときの値に比べると、10 cm 鉛による遮へいの結果、100 keV 付近で 1/150 に減少し、240 keV では 1/42 になり、それ以上の高エネルギー部では 1/30~1/50 程度に減少している。

液体窒素の消費量は 1.48 l/日を示し、検出部に簡単な保温を施すと数%の消費量減になったが、期待した

Fig. 4 Background spectra.
counting time: 30,000 sec
shield: Pb 10cm

ほどの減少は示さなかった。なお、検出器の井戸内の温度は室温より約 3°C 低い。

以上の諸データから、井戸型の Ge(Li) 検出器を用いる実際の微量放射能測定的能力については、おおよそその見当がつけられる。

文 献

- 1) H.F. Lucas, Jr, D.N. Edgington: *J. Radioanal. Chem.*, **15**, 467 (1973)
- 2) 広瀬昭夫, 石井大道: *Radioisotopes*, **21**, 70 (1972)
- 3) 岡村勉夫: 原子力工業, **20**, (5) 47 (1974)
- 4) J.A. Cooper: *Nucl. Instr. & Method.*, **82**, 273 (1970)
- 5) 小林久信: 原子力工業, **18**, (7) 75 (1972)