Si(Li) X線検出器で観測される特性X線のテイルスペクトル

永井清一郎, 大上俊光, 荻原光彦, 岡 万里子, 島 邦博, 三雲 昂

筑波大学加速器センター

305 茨城県新治郡桜村

1983年9月26日 受理

2つの異なるSi(Li)半導体検出器を用いて1.25~5.9keVの特性X線のエネルギースペクトルを測定し,特性X線のピークに伴うテイルスペクトルについて考察した。テイルスペクトル強度のX線エネルギーに対する依存性は,本質的にシリコン吸収係数のX線エネルギー依存性に由来しており,テイルスペクトル強度はシリコンK吸収端エネルギーを境として急激に変化することを確認した。また,検出器の違いによってテイルスペクトルの強度および形が異なることが分かった。テイル発生 of 的要因として,従来挙げられている光電子やオージェ電子の不感層での部分的なエネルギーの損失の効果の他に,本論文では,拡散するキャリアが検出器表面で捕獲される効果に着目してモデル計算を行った結果,観測されたテイルの強度のX線エネルギー依存性,異なる検出器間の相違が定性的に合致し,テイル発生にとってこの効果が重要な役割を果たしていることが判明した。

Key Words: characteristic X-ray, tail spectrum, lithium drifted silicon X-ray detector, carrier diffusion effect

1. 序 論

半導体検出器を用いて単色X線のエネルギースペクトルを検出すると,低エネルギー(数keV)のX線ではピークの低エネルギー側にテイルを引くことが知られている。Shimaら¹⁾は,テイル生成の一因を,不感層と有感層の境界近辺でX線が吸収されて生じる光電子およびオージェ電子のエネルギーの一部が,不感層で消費されることに求めて計算を行った結果,部分的にこの寄与があることを指摘した。本論文では,他に考えられる要因として,拡散するキャリアの一部が検出器表面で捕獲されることに注目してモデル計算を行い,測定されるテイルスペクトルに,どの程度この効果が寄与しているかを検討することを目的とする。

実験は2台のSi(Li)検出器により,1.25~5.9keVの種々のKX線に伴うテイルスペクトルを観測した。拡散するキャリアの一部が表面に到達するためにテイルが生じるという考え方は,高純度ゲルマニウム(HPGe)検出器で見られるテイルについてGoulding²⁾やLlacerら³⁾が指摘し解析しているが,今回,新たに,Si(Li)検出器について,モデル計算を行った。

2. 実 験

Fig. 1に測定の配置を示す。検出器はORTEC社製AL-30(検出器①)と,PGT社製LS-80(検出器②)の2機種である。円環状の線源⁵⁵Feから放出されるマ

ンガンのKX線を試料に照射し,試料から放出される蛍光X線(KX線)を検出した。用いた試料,形状,検出したX線エネルギーをTable 1に示す。大気中のアルゴンが発生する蛍光X線を除去し,試料の特性X線の収量を高めるために,Fig. 1に示すように,検出器ヘッド,線源,試料をアクリル製の真空槽の中に設置して測定を行った。

Table 1 Samples and energies of detected KX-rays emitted from the sample elements

Element	X-ray energy(keV)		Sample
	K _α	K _β	
Mg	1.25	1.30	Mg (Evaporated)
Al	1.49	1.56	Al (Evaporated)
Si	1.74	1.84	Si (Crystal)
P	2.01	2.14	P (Powder)
S	2.31	2.46	S (Powder)
Cl	2.62	2.82	NaCl (Crystal)
K	3.31	3.59	KBr (Crystal)
Ca	3.69	4.01	CaF ₂ (Powder)
Ti	4.51	4.93	Ti (Plate)
Cr	5.41	5.95	* ⁵⁴ Mn
Mn	5.90	6.49	* ⁵⁵ Fe

* For the detection of Cr K and Mn KX-rays, radioisotopes ⁵⁴Mn and ⁵⁵Fe are placed at the sample position.

Fig. 1 Experimental arrangement. Sample is irradiated with Mn KX-rays emitted from annular source of ^{55}Fe . Characteristic X-rays emitted from the sample are detected with a Si(Li) X-ray detector.

Fig. 3 Schematic view of the procedure to separate the areas of tail, K_α peak and K_β peak. K_α and K_β peaks are approximated with Gaussian distribution.

Fig. 2 Observed energy spectra of KX-rays. Figs. (a) and (b) are the spectra obtained with the detector ① ORTEC and ② PGT, respectively. Tail spectra are seen to change remarkably at the Si K absorption edge energy (1.84 keV).

3. 実験結果

測定したX線スペクトルをFig. 2(a)(b)に示す。(a)は検出器①、(b)は検出器②によるスペクトルである。(a)(b)両方において、マグネシウム、シリコンのスペクトルにはテイルがほとんど見えず、リンのスペクトルには大きなテイルが生じ、さらに試料の原子番号の増加に伴い、テイルスペクトルの強度が減少していることが分かる。2つの検出器間の相違をリンのKX線に伴うテイルスペクトルで比較すると、検出器①では滑らかにバックグラウンドにつながるテイルが生じるのに対し、検出器②では、1つのピークが存在しているようなテイルスペクトルを呈している。

テイルの強度を評価するために、テイルの計数 N_t と、ガウス分布と考えられるピークの計数 N_p の比 N_t/N_p を求めた。Fig. 3に示すように、得られたスペクトル(縦軸は対数目盛)からバックグラウンドを縦軸が線型目盛で台形として近似してこれを除去し、残

Fig. 4 Dependence of tail to peak count ratio N_t/N_p on X-ray energy. Symbols $\circ$ and $\triangle$ show the data of the detector ① and ②, respectively. The solid line and the dashed line indicate the N_t/N_p values calculated with $d=0.052 \mu\text{m}$ and $0.094 \mu\text{m}$, respectively, of eq. (1) in the text.

りの部分の中で K_{α} X線成分と K_{β} X線成分をガウス分布で近似し、最後に残った部分をテイルの成分 N_t とした。 K_{β} の K_{α} に対する比は小さいうえ、 K_{β} に伴うテイルの大部分は K_{α} スペクトルの中に隠れてしまうので、観測されたテイルは K_{α} X線に伴うものと考え、 $N_t/N_p = N_t/N_{K\alpha}$ ($N_{K\alpha}$ は K_{α} ピーク計数) とした。このようにして求めたテイルの K_{α} X線ピークに対する比 N_t/N_p を蛍光 X線のエネルギーに対してプロットしたのが Fig. 4 である。

4. 考 察

4.1 テイル生成の X線エネルギー依存性と部分的不感層

N_t/N_p の比を表す Fig. 4 は、X線エネルギーの増加に伴い、比が小さくなること、シリコン K 吸収端エネルギー 1.84 keV でギャップがあることを示している。これらの傾向は、検出器表面に部分的な不感層があるというモデルを設定すると説明し得る。すなわち、検出器表面にある、厚さ d の部分的な不感層内で吸収された X線の信号は、テイルスペクトルとして計数され、部分的な不感層を透過して有感（真性）領域で吸収された X線の信号はピークの部分として計数されると考えると、テイルのピークに対する強度比 N_t/N_p は、 μ を

シリコンにおける X線の吸収係数とすると、

$$N_t/N_p = (1 - e^{-\mu d}) / e^{-\mu d} \quad (1)$$

で表される。

測定された N_t/N_p 比に適合し得る d の最確値は検出器①については $0.052 \mu\text{m}$ 、②については $0.094 \mu\text{m}$ となり、これを式(1)に代入したものが Fig. 4 の実線（検出器①）および破線（検出器②）である。1.25～5.9 keV の X線エネルギーの領域で測定された N_t/N_p 比が式(1)で近似できるということは、不完全な集電を行うシリコン層の厚さが、X線エネルギーによらず、検出器によって異なる値をとることを示している。

4.2 キャリアの拡散によって生じるテイル

テイルスペクトル生成の原因の1つとして、序論で述べたように光電子およびオージェ電子のエネルギーの一部が不感層で消費されることによるという過程が指摘されているが、これによる寄与は観測されるテイル発生量の一部分であり、かつ計算された N_t/N_p 比は、Si(Li) 検出器の種類によらない¹⁾。上記の過程を補うものとして、X線の吸収によって生じたキャリアが熱的に拡散して検出器の表面で捕獲される過程が考えられる。この過程では、検出器により、キャリアの移動する真性領域にかかる電場の強さが異なるため、検出器によって N_t/N_p 比が異なる実験事実は説明できるはずである。以下に、キャリアの熱的拡散についての計算を試み、拡散の考え方から K_{α} X線およびテイルのエネルギースペクトルを求め、測定されたスペクトルと比較する。

Fig. 5 に検出器とそれにかかる電場を示す。使用した検出器は2台とも負のバイアス電圧を供給し、集電された電荷は検出器の背面から取り出すタイプである。Si(Li) の深さを表すために座標 x を図に示すようにとる。位置 x で X線が吸収された結果、伝導帯に励起された電子密度を $n(x, t)$ 、電場の強さを $E(x)$ とすると、

$$\frac{\partial n(x, t)}{\partial t} = D \frac{\partial^2 n(x, t)}{\partial x^2} - \xi E(x) \frac{\partial n(x, t)}{\partial x} \quad (2)$$

という拡散方程式が得られる。ここに D は拡散定数、 ξ は移動度を表し、時刻 t は、X線の吸収された時点をもって $t=0$ とする。 $E(x)$ は、不感層の厚さ程度の領域では一定であると考え、また検出器の両端では電子密度 $n(x, t)$ が 0 であるという境界条件

$$n(0, t) = n(d_0, t) = 0 \quad (3)$$

Fig. 5 Schematic view of Si(Li) detector. X-rays are absorbed at the point x and part of the generated carriers diffuse into the surface while drifting under the applied electric field.

を設定する。ここで d_0 は検出器の有効深さである。Caywood ら⁴⁾は今回とはタイプの異なる光検出器におけるキャリアの拡散効果を計算しているが、今回の検出器とは初期条件が異なる。すなわち今回の初期条件は、検出器内の $x=x_0$ で1個のX線が吸収され、次式で表されるように N_0 個の伝導帯電子が励起されると考える。

$$n(x, 0) = N_0 \delta(x - x_0) \quad (4)$$

条件(3)、(4)の下で式(2)を解き $n(x, t)$ を求出し、電場 E での伝導帯電子の流れ $i(x, t)$ が

$$i(x, t) = \xi E n(x, t) - D \frac{\partial n(x, t)}{\partial x} \quad (5)$$

と表されることから、検出器表面 ($x=0$) に流れ込む電子の数 Q を求めると

$$Q = N_0 \exp(-qEx_0/kT) \quad (6)$$

となる。ここで q は電子の電荷、 T は絶対温度、 k はボルツマン定数である。表面に流れ込む電子がすべて表面で捕獲される場合、検出器背面で収集されるキャリア (電子) の収集効率 $\eta(x)$ は

$$\eta(x) = 1 - \exp(-qEx/kT) \quad (7)$$

となる。Fig. 6 に $\eta(x)$ が x の関数として示されている。図はX線の吸収される位置 x が深くなるとキャリアの収集効率が1に近づくことを示している。

検出器から出る電気信号の大きさは、キャリア (電子) の収集効率 $\eta(x)$ に比例しているから、X線が吸

Fig. 6 Carrier collection efficiency as a function of penetration depth x , calculated under the carrier diffusion model.

Fig. 7 Calculated energy spectra of $K\alpha$ X-rays.

収された位置 x に依存する。したがって入射X線のエネルギーが $h\nu$ の場合、観測されるエネルギースペクトルでは、エネルギーが $\eta(x) \cdot h\nu$ から $\eta(x+\Delta x) \cdot h\nu$ の間に相当するチャンネルには $N_0 e^{-\mu x} \mu \Delta x$ だけ計数されることになる。観測されたテイル部分の計数 N_i が、 $\eta(x) < 95\%$ の場合に発生した電気信号であるとして上記の考え方に従って計算したX線スペクトルをFig. 7に示す。Fig. 7は入射X線のエネルギーに対して、発生するエネルギースペクトルを20チャンネルに分割した場合のスペクトルであり、雑音および統計的

な要素によるスペクトルの拡がりについては考慮していない。明らかにFig. 7はシリコンK吸収端を境にして N_i/N_p 比が変化し, かつ, X線エネルギーの増加に伴い N_i/N_p 比が減少する様子を呈しており, 測定された傾向と一致する。さらに, 今回使用した2台の検出器間でテイルのスペクトルの発生量が異なる結果が, 上記の考え方と定性的な合致を見ることを以下に示す。

前述したように, 式(1)を用いて, 実測された N_i/N_p 比に最適の部分的不感層の厚さは検出器①では $0.052\mu\text{m}$, 検出器②では $0.094\mu\text{m}$ であった。式(7)の x にこれらの値を代入し, $\eta(x) < 95\%$ の場合に発生した電気信号がテイルスペクトルを発生するという仮定, および $T=77\text{K}$ を使って E の値を算出すると, 検出器①では 3800V/cm , 検出器②では 2100V/cm となる。Fig. 7は $E=3800\text{V/cm}$ の場合のスペクトルが示されている。他方, 線源 ^{241}Am の放出する $14\sim 60\text{keV}$ の γ 線および Np LX線が真性領域で捕獲される効率を実測することにより, 検出器①②の真性領域の厚さを推定し, 印加したバイアス電圧をこの厚さで割ることによって得た電場の強さは, 検出器①では 7000V/cm , ②では 3300V/cm となり, 電場の強さの検出器間の大小関係は, N_i/N_p 比とキャリアの拡散の考え方で得られた値と定性的な一致が見られる。定量的な相違の原因として, モデル計算の粗さ, 導入した仮定の不確かさが挙げられるが, それ以上に重要なことは, 今回観測したテイルスペクトルの原因がすべてキャリアの拡散効果にあるとした場合に, モデル計算と観測値 N_i/N_p 比から算出される電場が, 実際に印加した電圧から計算した電場より高いということである。このことは, テイル発生の原因に, キャリアの拡散効果を補う, 他の項が存在すると考える方が妥当である。すなわち, すでに指摘されている光電子やオージェ電子のエネルギーが一部分不感層で消費されるためにテイルが生じるという要因に加え, キャリアの拡散効果はテイルの生成にとって重要な要因であると判断される。以下に, 今回のキャリアの拡散効果によるテイル生成が, 他の要因も含めた全体のテイル生成にとって, どの程度寄与しているかを見積もってみる。

式(7)において, 実測された $E=7000\text{V/cm}$ (検出器①), 3300V/cm (検出器②), および $T=77\text{K}$ を代入して $\eta(x)=95\%$ になる x の値を求めると検出器①では $x=0.028\mu\text{m}$, 検出器②では $x=0.060\mu\text{m}$ になる。他方, 式(1)において $N_i/N_p \ll 1$ では, $\mu d \sim N_i/N_p$ となり, d の最適値が検出器①では $0.052\mu\text{m}$,

②では $0.094\mu\text{m}$ であることを考慮すると, 実際に観測された N_i/N_p 比のうち, 拡散効果による寄与は, 検出器①の場合約50%, ②の場合約60%ということになる。モデル計算の粗さのため, これらの値がどの程度の精度をもっているかを推定することは困難であるが, Fig. 3において, テイルスペクトルが $K\alpha\text{X}$ 線ピークと識別できる不確かさを, $90\% < \eta(x) < 97\%$ の幅をもっている(電気信号の大きさが $\eta(x)$ に比例していることに注意)としても, 拡散効果による寄与は全体の40~60% (検出器①), 45~75% (検出器②)を占め, テイル生成にとって重要な役割を演じているといえる。

4.3 検出器によるテイル形状の違い

3章で述べたように, 観測されたテイルスペクトルの形状は同じ元素のKX線でも異なる。この原因は不明であり今後検討されるべき問題である。検出器の製造過程の違いによって, 表面から数 10nm (数 $100\text{\AA}$) 程度の領域で, 不純物濃度や酸化の状態の相違が生じ, これがテイルスペクトルの形状の相違に現れるのではないかと推定される。

5. 結 論

2台のSi(Li)検出器を用いて観測した $1.25\sim 5.9\text{keV}$ のKX線スペクトルには, 低エネルギー側に, ピークに対して最大6%の強度のテイルスペクトルが生じ, テイルの強度およびスペクトルの形状は検出器によって異なることが分かった。数 keV のX線エネルギー領域において, 元素の同定を行ったり, X線計数の絶対値を求めたり, 特性X線を差し引いた残りの非特性X線の解析を行う場合, ここで得たテイルスペクトルの知識を十分に念頭におかなければならない。

テイルのピークに対する強度比 N_i/N_p から推定されたキャリア収集の不完全なシリコン層の厚さは, 検出器①では $0.052\mu\text{m}$, ②では $0.094\mu\text{m}$ である。テイル生成の原因の1つとして従来挙げられている, 不感層と有感層の境界近辺で生じた光電子やオージェ電子のエネルギーの一部が不感層で消費されるという過程に加え, 本論文では, キャリアが拡散しつつ移動するさい, キャリアの一部が検出器表面で捕獲されるという過程に注目してモデル計算を行った。得られた結果は, 観測された N_i/N_p 比のエネルギー依存性, 2台の検出器間の N_i/N_p 比の相違を定性的に説明することができ, キャリアの拡散効果がテイルスペクトル生成の重要な役割を演じていることが判明した。キャリ

アの拡散効果によるテイルの生成の、全体に対する寄与は、今回の検出器については、40~75%と推定される。

文 献

1) Shima, K., et al.: *Nucl. Instrum. and Meth-*

ods, **217**, 515 (1983)

2) Goulding, F.S.: *ibid.*, **142**, 213 (1977)

3) Llacer, J., et al.: *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **NS-24**, 53 (1977)

4) Caywood, J.M. and Mead, C.A.: *J. Phys. Chem. Solids*, **31**, 983 (1970)

Abstract

Low Energy Tail Spectra of Characteristic X-Rays Detected with a Si(Li) X-Ray Detector

Seichiro NAGAI, Toshimitsu OGAMI, Mitsuhiko OGIHARA,
Mariko OKA, Kunihiro SHIMA and Takashi MIKUMO

Tandem Accelerator Center, University of Tsukuba
Sakura-mura, Niihari-gun, Ibaraki Pref. 305

Characteristic X-ray spectra are inherently accompanied by the tail spectra in the low energy side when X-rays are detected with a semiconductor X-ray detector. The tail spectra of Mg, Al, Si, P, S, Cl, K, Ca, Ti, Cr and Mn KX-rays have been observed using two different Si(Li) X-ray detectors. An annular source of ^{55}Fe has been used to excite the Mg (1.25 keV) to Ti (4.5 keV) KX-rays, and ^{54}Mn and ^{56}Fe sources have been used for the detection of Cr (5.4 keV) and Mn (5.9 keV) KX-rays, respectively.

Observed intensity ratios of the tail area N_t to the Gaussian X-ray peak area N_p have exhibited to change remarkably at the Si-K adsorption edge energy 1.84 keV. When X-ray spectra detected with different Si(Li) detectors are compared at some specific characteristic X-ray, different values of N_t/N_p intensity ratios as well as different line shapes of tail spectra have been observed. Using a simple model, the thickness of Si layer which generates the tail spectrum has been estimated, i.e., the thicknesses are about 0.05 μm for one detector and 0.09 μm for the other detector.

The generation of the tail spectrum is known to be partially due to the escape effect of photoelectrons or Auger electrons from the intrinsic region. In this paper, in addition to the above effect, it is proposed that the carrier diffusion effect is also an important origin for the appearance of the tail spectrum. Model calculation has been performed for the carrier diffusion process, and comparison has been done between the calculation and the observed results with respect to the tail spectral line shape as well as N_t/N_p intensity ratio.

(Received September 26, 1983)