

臭化タリウム半導体検出器

人見 啓太郎¹, 石井 慶造²

Hitomi Keitaro

Ishii Keizo

γ 線の計測にはゲルマニウム (Ge) 半導体検出器やヨウ化ナトリウム (NaI : Tl) シンチレーション検出器が広く使用されている。Ge 半導体検出器は非常に高いエネルギー分解能を持つが、液体窒素温度への冷却が必要である。NaI : Tl シンチレーション検出器は室温で動作し、安価に大体積の検出器が得られるが、エネルギー分解能が低い。このように既存の検出器には一長一短があるため、室温で動作し、エネルギー分解能が高く、高検出効率を示す γ 線検出器の開発が求められてきた。

近年、高いエネルギー分解能を示す臭化ランタン (LaBr₃ : Ce) シンチレータが開発され、662 keV の γ 線に対して 2.8% FWHM (full width at half maximum) のエネルギー分解能が得られている¹⁾。しかしながら、シンチレーション検出器は γ 線のエネルギーをシンチレータ中で光に変換し、その後、光検出器を用いて電気信号を得るといった間接変換型の検出器であるためにそのエネルギー分解能には限界がある。半導体検出器は入射 γ 線によりそのエネルギーに比例した数の電子正孔対が半導体中に生成され、その電荷の収集により電気信号を得るといった直接変換型の検出器であるためにそのエネルギー分解能が高い。また、半導体検出器は電極構造、信号処理方法を工夫することにより、高い精度で γ 線の相互作用位置を決定することができる。Ge 半導体検出器は禁止帯幅が 0.67 eV と狭い

ために室温においては熱励起による暗電流が大きいため冷却が必要となる。化合物半導体は元素の組合せによって禁止帯幅が決定されるので、広い禁止帯幅を持つ材料を選択することにより、室温で動作する半導体検出器を構成することができる。室温で動作する半導体検出器材料には、1) 室温動作に十分な禁止帯幅、2) 高い γ 線吸収効率を得るための、高い原子番号と密度、3) 高い電荷収集を得るための高い担体移動度-寿命時間積が求められる。このような条件を満たす材料としてテルル化カドミウム (CdTe) が研究され市販品が広く利用されるに至っている²⁾。CdTe は室温動作が可能であるが、冷却により特性が改善し、-40°Cにおいて 662 keV の γ 線に対して 0.3% FWHM のエネルギー分解能を示している³⁾。また、米国を中心に CdTe と ZnTe の混晶である CdZnTe (CZT) 検出器が精力的に研究されており、室温において 662 keV の γ 線に対して 0.5% FWHM のエネルギー分解能を持ち、コンプトンイメージングが可能な検出器が開発されている⁴⁾。CdTe 検出器は室温付近で動作し、エネルギー分解能も良好であるが、高エネルギー γ 線に対して検出効率が低いことや、非常に高価であることなどが欠点となっている。

臭化タリウム (TlBr) は構成原子の原子番号が高く (Tl : 81, Br : 35)、密度も鉄の密度 (7.874 g/cm³) と同程度の 7.56 g/cm³ と非常に高いために、 γ 線の吸収効率が非常に高い半導体材料である。TlBr 検出器の γ 線吸収効率は、

*放射能測定・除染技術等に関する調査検討専門委員会

γ 線吸収効率が高いことで知られるゲルマニウム酸ビスマス (BGO) シンチレータのそれを若干上回るまでに高い。TlBr 結晶の禁止帯幅は 2.68 eV と広く、室温における TlBr 結晶の抵抗率は $\sim 10^{10} \Omega\text{cm}$ 程度である⁵⁾。TlBr 結晶の移動度-寿命時間積は素材を純化することにより改善され、現在では電子、正孔共に CdTe 結晶に匹敵する値が報告されている⁶⁾。表 1 は CdTe と TlBr の物性値の比較である。TlBr は優れた特性を持っているにも関わらず、ポラリゼーションと呼ばれる検出器特性の経時劣化のために実用化が進まなかった。近年、電極材料として TI を採用することにより、特性劣化が抑制されることが見いだされたために、実用化が現実的になってきている^{7,8)}。TlBr 結晶は赤外線の透過率が高いために光学結晶として古くから知られており、TlI との混晶である KRS-5 と呼ばれる結晶は赤外分光装置の ATR プリズムとして広く市販されているため⁹⁾、TlBr 検出器は工業的に大量生産できる可能性がある。また、TlBr 結晶の融点は 460℃ と低いために結晶育成が容易で、低コストで検出器が製作できる可能性がある。

半導体検出器材料としての TlBr 結晶は石英管中で帯溶融法によって育成される^{5,6)}。市販の TlBr 素材を帯域精製法により純化することにより、高純度の TlBr 結晶が得られる。TlBr 結晶は比較的柔らかいためワイヤーソーによる切り出し、結晶表面の研磨が容易に行える。結晶表面に TI 等の電極材料を真空蒸着法により形成することにより検出器を製作することができる。TlBr 結晶は高い電荷輸送特性を持っているため、15 mm と非常に厚い検出器も製作され、良好な動作が

報告されている¹⁰⁾。TlBr 検出器の詳細については筆者らのレビュー論文を参照されたい¹¹⁾。

図 1 はピクセル型 TlBr 検出器から得られた ¹³⁷Cs スペクトルである。スペクトルの測定に使用した TlBr 結晶は厚さ 4.36 mm である。TlBr 結晶の 1 面全面に電極を形成しカソードとし、カソードに対向する面に 1 mm×1 mm のピクセル電極 4 個とガード電極を形成してある。検出器の印加電圧は 500 V であり、室温で測定を行った。カソード、ピクセルアノード 1 つに電荷有感型前置増幅器を接続し、出力波形をデジタル化によりコンピュータに取り込み波形処理を行いスペクトルを得た。カソードと

表 1 CdTe と TlBr の物性値

	TlBr	CdTe
原子番号	81, 35	48, 52
密度 (g/cm ³)	7.56	5.85
禁止帯幅 (eV)	2.68	1.44
抵抗率 (Ωcm)	$\sim 10^{10}$	10^9
$\mu\tau_e$ (cm ² /V)	$\sim 10^{-3}$	3×10^{-3}
$\mu\tau_h$ (cm ² /V)	$\sim 10^{-4}$	2×10^{-4}
融点 (°C)	460	1,092

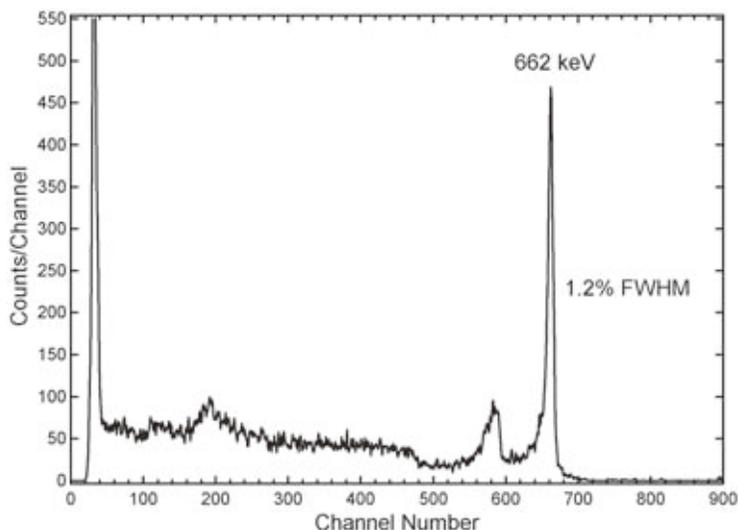


図 1 TlBr 検出器から得られた ¹³⁷Cs γ 線スペクトル

アノードの信号比 (C/A 比) を利用して検出器内で相互作用 1 回だけの事象 (1 ピクセルイベント) を抽出した。さらに, C/A 比を用いて γ 線の相互作用深さを決定し, アノード信号の深さ補正を行った。図から分かるように TlBr 検出器は室温において, 1.2% FWHM と高いエネルギー分解能を示した。TlBr は光電吸収断面積が大きいために高いピーク対コンプトン比が得られている。ピクセル型の TlBr 検出器は検出器内での γ 線の相互作用位置を 3 次元で決定することができるため, 複数回相互作用事象を抽出することにより入射 γ 線のコンプトンイメージングを行うことが可能である。

TlBr 検出器は室温で動作し, 高検出効率, 高分解能を持ち, γ 線相互作用位置を高い精度で決定できるために, 次世代の γ 線スペクトロメータ・イメージャーとして大変有望である。

参考文献

- 1) Van Loef, E.V.D., Dorenbos, P., Van Eijk, C.W.E., Krämer, K., and Güdel, H.U., High-energy-resolution scintillator: Ce³⁺ activated LaBr₃, *Appl. Phys. Lett.*, **79**, 1573–1575 (2001)
- 2) <http://www.acrorad.co.jp>
- 3) Takahashi, T., Watanabe, S., Kouda, M., Sato, G., Okada, Y., Kubo, S., Kuroda, Y., Onishi, M., and Ohno, R., High-resolution CdTe detector and applications to imaging devices, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **48**, 287–291 (2001)
- 4) Zhang, F., Herman, C., He, Z., De Geronimo, G., Vernon, E., and Fried, J., Characterization of the H3D ASIC readout system and 6.0 cm³ 3-D position sensitive CdZnTe detectors, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **59**, 236–242 (2012)
- 5) Hitomi, K., Murayama, T., Shoji, T., Suehiro, T., and Hiratate, Y., Improved spectrometric characteristics of thallium bromide nuclear radiation detectors, *Nucl. Instru. Meth. A*, **428**, 372–378 (1999)
- 6) Hitomi, K., Onodera, T., and Shoji, T., Influence of zone purification process on TlBr crystals for radiation detector fabrication, *Nucl. Instru. Meth. A*, **579**, 153–156 (2007)
- 7) Hitomi, K., Shoji, T., and Niizeki, Y., A method for suppressing polarization phenomena in TlBr detectors, *Nucl. Instru. Meth. A*, **585**, 102–104 (2008)
- 8) Hitomi, K., Kikuchi, Y., Shoji, T., and Ishii, K., Polarization phenomena in TlBr detectors, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **56**, 1859–1862 (2009)
- 9) <http://www.oken.co.jp>
- 10) Kim, H., Cirignano, L., Churilov, A., Ciampi, G., Higgins, W., Olschner, F., and Shah, K., Thallium bromide and thallium bromide gamma ray spectrometer development, *IEEE Nucl. Sci. Sym. Conf. Rec.*, 1783–1788 (2009)
- 11) Hitomi, K., Shoji, T. and Ishii, K., Advances in TlBr detector development, *J. Cryst. Growth*, **379**, 93–98 (2013)

(¹東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター,
²東北大学大学院工学研究科
量子エネルギー工学専攻)