

Silicon Drift Detector (SDD) の PIXE への応用 — 基本的性能評価と定量分析への応用 —

世良耕一郎¹、後藤祥子²、細川貴子²、齋藤義弘²

¹ 岩手医科大学医歯薬総合研究所高エネルギー医学研究部門 (サイクロترونセンター)
020-0603 岩手県滝沢市留が森 348-58

² 日本アイソトープ協会仁科記念サイクロترونセンター
020-0603 岩手県滝沢市留が森 348-58

1 はじめに

現在まで PIXE には、X 線スペクトロメトリにおいて高性能を発揮する Si(Li) 検出器が広く使われていた。しかし Si(Li) はその形式に応じ、常時液体窒素温度に保つ必要があるもの、また使用の数時間前に液体窒素を供給する必要があるものがあり、いずれも液体窒素温度への冷却が必要である。前者の場合維持に手間と経費を要し、後者の場合でも即日の分析が難しいなど、その使用には多くの制限があった。そのため近年、液体窒素冷却を必要としない X 線用検出器が普及している。それらは CZT¹、CdTe、Si-PIN²、そして silicon drift detector (SDD) 等である。前二者は本来 γ 線用検出器のため高エネルギー領域の検出効率が高いという長所を持つが、常温で使用可能ということは = 価電子帯と伝導帯間のバンドギャップが大きい = エネルギー分解能が悪い、ということである。それに対し後二者はバンドギャップの小さい Si 半導体を使用し分解能が良く、ペルチェ素子による冷却を行うため液体窒素冷却が不要である。Si-PIN は PIXE に応用されているが、空乏層が薄く高エネルギー領域における検出効率が低いという短所がある。そのためこれらの検出器は補助的に使用されることが多かった。

SDD は良いエネルギー分解能と、低エネルギー領域における良い検出効率を持つが、やはり空乏層が薄く (最大 1 mm) 高エネルギー領域における検出効率が低い。しかし γ 線に対する感度も低く、空乏層内での γ 線のコンプトン散乱に伴う反跳電子の生成確率が低いため、高エネルギー領域におけるバックグラウンドが低いことが期待され、試料の組成や測定条件によっては S/N 比がむしろ改善されることもあり得る。期待される SDD の長所は、1) 液体窒素冷却不要で扱いやすく、デューワー不要のため軽量・コンパクトでありターゲット回りの設置が自由にできること、2) エネルギー分解能がよく、低エネルギー領域における検出効率が高いこと、そして 3) 静電容量が Si(Li) よりも小さいため高計数率に耐えること、などである。

本研究においては、まず SDD の基本性能をチェックし性能を評価する。次に検出効率の測定を行い、種々の標準試料、及び生物試料・地球科学試料など実試料の定量分析への応用が試みられ、保証値や真空 PIXE の結果と比較することによりその精度の確認が行われる。

2 実験条件

2.1 SDD の仕様

本研究で使用された SDD は HHSUS-1194S S-VTX-60EX、Hitachi High Technologies Science America, Inc. (19865 Nordhoff Street, Northridge, CA 91324, USA) 製である。メーカーによる仕様は以下のとおりである。① 空乏層の厚さ：1 mm、② Be 窓の厚さ：8 μm 、③ 検出部の重量：900 g。

Fig. 1 に検出器と電源部の写真を示す。電源部の中には、高圧電源、ペルチェ素子冷却制御回路、プリアンプが組み込まれている。また digital processor (DSP) が電源部に組み込まれており、パソコン一台でスペクトル取得が可能であるが、本研究においてはそれを用いずプリアンプからのアナログ出力を通常用いているアンプ (ORTEC SPECTROSCOPY AMPLIFIER -672) で増幅し、またこれも通常使用されている多重波高分析器 (PGT Quantum MCA-8000, & 4000) を用いてスペクトル採取を行った。純粋に検出器の性能を比較する目的のためである。

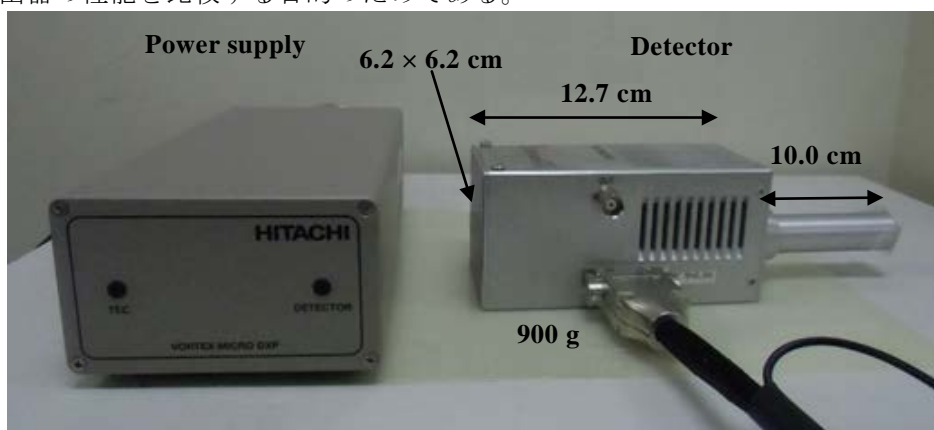


Fig. 1 A photograph of the detector and the power supply.

2.2 照射・測定条件

島津製作所小型サイクロトロンより引き出された 2.9 MeV の陽子ビームは、2 組の三連 Q magnet、steering magnet などその位置・形状を調整した後真空散乱槽に導入され、さらに真空散乱槽を通過後 bending magnet により 45° 下方に偏向され、内径 5 mm の graphite collimator 及び 7.5 mm 厚 polyimide (Kapton) フォイルを通して大気中に導入される。2.9 MeV 陽子ビームは、Kapton フォイル中、空気中での energy loss により、ターゲット上では 2.45 MeV となる。ビーム電流は吸収体付の場合でも試料の損傷を抑えるために 2 nA 以下に抑えられ、吸収体なしの条件では散乱陽子線の影響を抑えるため 0.1 nA 以下に調整された。

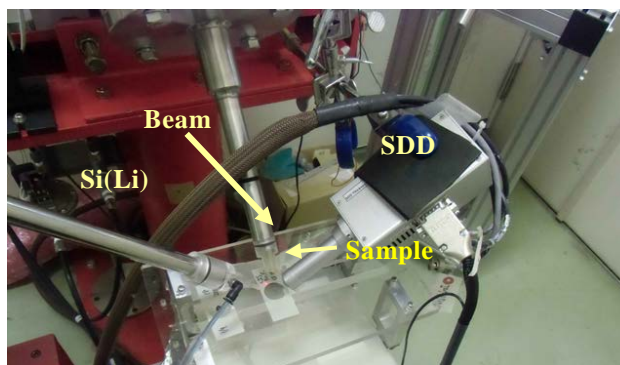


Fig. 2 A photograph showing the measurement and detection conditions around a target of an in-air measurement system.

我々の大気 PIXE システムには、常時 2 台の Si(Li)検出器が備えられているが（配置図は参考文献 3-Fig. 1 参照）、SDD は重元素用 Si(Li)検出器を一時的に外し、その位置に設置された。Fig. 2 にターゲット回りの配置写真を示す。

3 SDD の基本性能の測定

まず、SDD の基本性能の測定を行った。上述のように、従来の Si(Li)との比較を同条件で行うために DSP は用いず、pre-amplifier からのアナログ出力を直接 spectroscopy amplifier に入れ、外付け波高分析器 (PGT 社) においてスペクトル測定が行われた。上述のように従来の Si(Li)や Ge 検出器は液体窒素温度で使用される。バンドギャップが 1 eV 以下であるため、常温では暗電流が流れてしまい測定不能となるからである。SDD も同様に常温では使用できないが、保管時は常温に保たれており、使用時にペルチェ素子の電源を入れ急速に冷却することにより 2 分以内に測定可能となる。しかし、常時冷却状態にある Si(Li)でも、高電圧投入後はピーク位置がドリフトすることが確認されており、高電圧投入後のピーク位置変動は、5.89 keV の X 線に対し 15 分間で 13 eV にも達する場合がある。急速冷却を行う SDD の場合、電源投入後どの程度の時間が経過すればピーク位置の変動が無視可能となるか、興味を持たれる点である。

Fig. 3 に、電源投入後（ペルチェ素子・高電圧・pre-amplifier 全ての電源がこの後投入される）の時間経過とともに ^{55}Fe からの 5.89 keV Mn K-X α 線位置の変動を、測定可能となる 80 秒後を始点とし 80 秒おきに示す。（最初の 80 秒間は測定システムに赤ランプが点灯し、80 秒後にそれが緑ランプに変わり測定可能となる。測定時間を 60 秒とし、データ収集時間を 20 秒としている。）スペクトル解析には我々の解析プログラム SAPIX⁴ が用いられ、図の誤差棒は非線形最小二乗法（修正 Marquardt 法）fitting 時の誤差行列から求めたピーク位置に対する誤差を示す。

Fig. 3 の結果から、測定可能となる 80 秒後の最初の結果は 2 eV 以上の差異を示しているが、電源投入後 160 秒経過した後のピーク変動は ± 0.45 eV 以内に収まり、エネルギー分解能（5.89 keV に対し約 135 eV）と比較しほぼ無視できる範囲内の変動であることが確認できた。

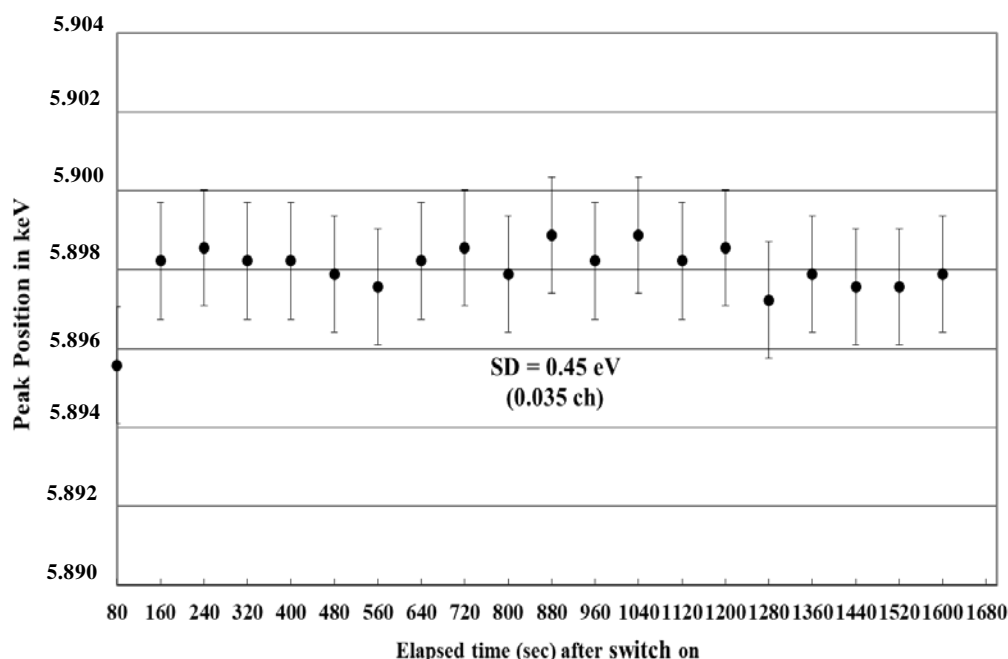


Fig. 3 Fluctuation of the peak position as a function of the elapsed time after switching on the power.

次に放射線検出器の最も重要な基本性能であるエネルギー分解能の変動が調べられた。測定は上述のピーク位置変動の測定と同時に行われ、 ^{55}Fe からの 5.89 keV Mn K-X 線ピークの幅を SAPIX による fitting により求めたもので、誤差棒は同様にピーク幅 (FWHM) に対する誤差行列から求めた誤差である。後述のようにエネルギー分解能は amplifier の時定数に依存し変わるが、これらの測定は時定数を 6 μs に設定して行われた。Fig. 4 にその結果を示すが、エネルギー分解能は 130.3 から 136.6 eV の範囲であり、多少の変動が観測されたが満足すべき物だった。

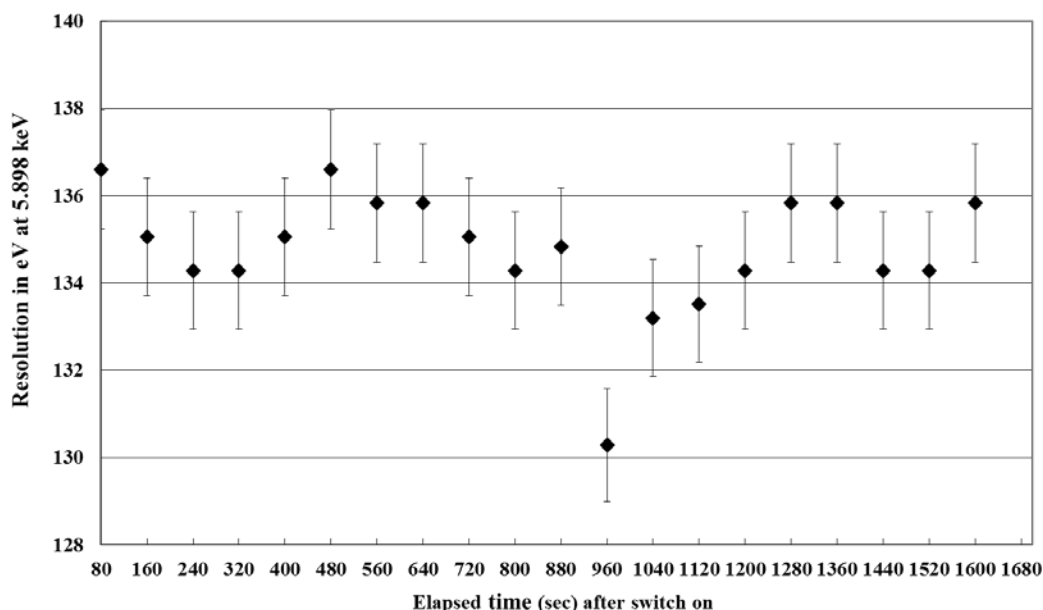
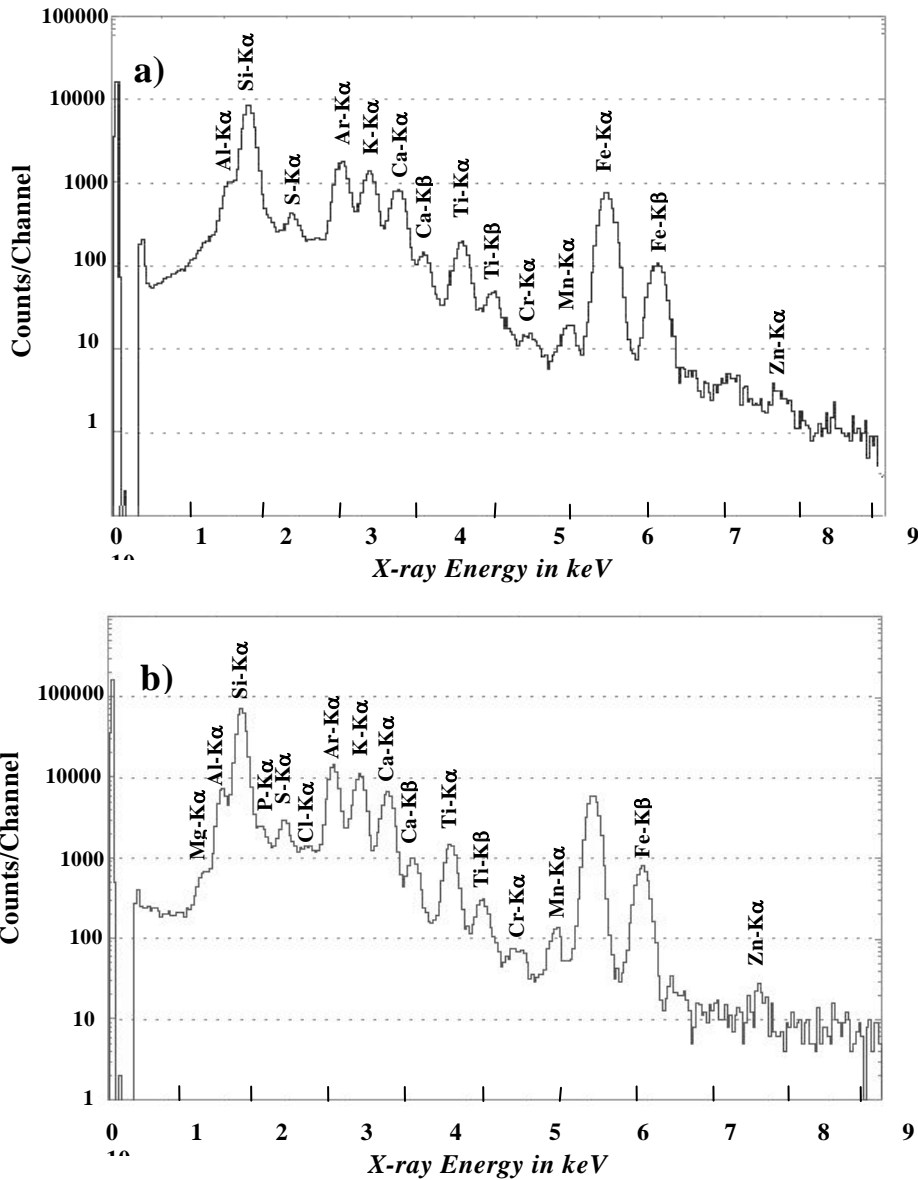


Fig. 4 Variation in the energy resolution after switching on the power.

三番目として、多量の散乱陽子線が検出器に入射する条件下における最適な測定条件が調べられた。一般的に SDD は Si(Li)と比較し空乏層 (半導体検出器の有感部) が薄く (最大 1mm ほど)、高エネルギー領域における検出効率の低さが短所となる。しかし低エネルギー領域においては Si(Li)と同等以上の性能を発揮することが期待されるため、2 検出器同時測定システム¹¹においては吸収体を外した低エネルギー領域用の検出器として用いることが有利であり、その場合吸収体を外すため多数の散乱陽子線が入射する条件下での高性能の維持が前提条件となる。散乱陽子線が生み出す巨大なパルスが存在する条件下での X 線の測定には、その影響を減じるために時定数を短く設定する必要があるが、Si(Li)の場合にはそれによるエネルギー分解能の低下が問題となっていた。それに対し、静電容量が Si(Li)よりも小さい SDD においては、短い時定数においても分解能の低下が抑えられることが期待される。

Fig. 5 には、Al、Si などを多量に含む土壌試料を吸収体なし、多量の散乱陽子線が入射する条件下で得られたスペクトルを示す。ビーム電流は pileup などの artifact を抑えるため 0.1 μA 以下に調整された。Fig. 5-a が、散乱線を除去した状況下では最もエネルギー分解能が良い結果となった 6 μs に時定数を設定し測定を行ったもの、Fig. 5-b が時定数を 1 μs に設定し測定を行ったものである。前者の場合、散乱線による巨大なパルスの影響で分解能の低下が観られ、Al と Si のピークが明確には分離されていない、それに対し後者のスペクトルでは両者が明確に分離され、6 μs の時定数では明確なピークとして認識できなかった Mg-K X 線のピークも認められるなど、大幅な改善が確認された。時定数 1 μs の条件下でのエネルギー分解能は、Fe-K α X 線 (6.4 keV) において 140 eV 以下と、散乱陽子線の影響をあまり受けにくい結果となった。



Figs. 5 The X-ray spectra at low energies obtained by irradiating a soil sample with a 2.45-MeV proton beam with many Rutherford-scattered protons injected into the detector. The time constant of amplifier was set at 6 μ sec (a) and 1 μ sec (b), respectively.

3 結果

最初に、低エネルギー領域における SDD 検出器の感度が調べられた。Fig. 6 には、土壌成分を多く含むダスト試料を 2.45 MeV 陽子ビームで照射し、吸収体を着けずに得られたスペクトルを示す。既存の Si(Li)検出器では、低エネルギー領域におけるバックグラウンドが高く、先端に何も付けず測定を行うと Al、Si のピークも測定不能であった⁵。そのため、先端に装着する真空キャップを設計・製作することにより S/N 比を格段に改善でき Si までの X 線の測定が可能となった。Si(Li)で得られた、先端キャップ on/off 時のスペクトルを Fig. 7 に比較して示す。しかし Fig. 6 に観られるように、SDD の場合に

はそのままの状態でも Mg のピークまで明確に測定可能であった。低エネルギー領域における感度向上の理由は、時定数を小さくしたことで散乱陽子線の影響が抑えられたこと、低エネルギー領域における検出効率が高いことに加え、後述（「4 議論」に記述）のように Si(Li) と比べ大きなピークに付随する tail function の寄与が小さく、低エネルギー側でのバックグラウンドが低く抑えられることなどが要因と思われる。

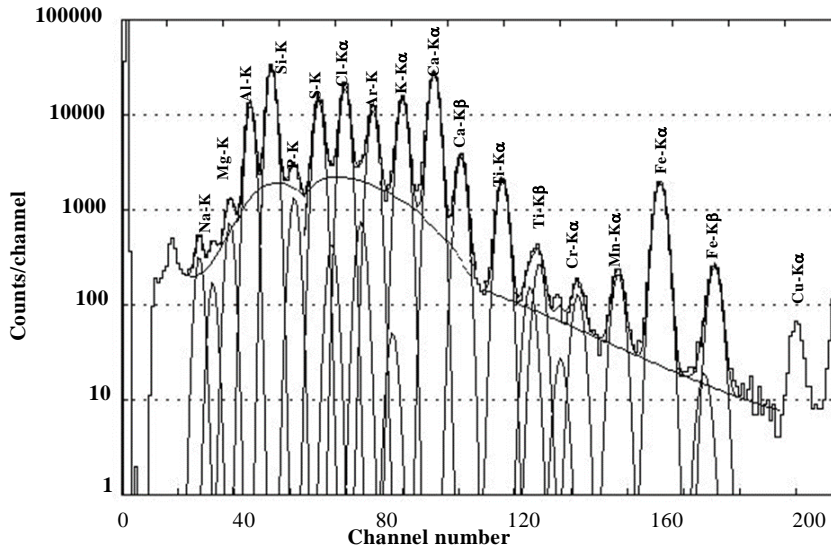


Fig. 6 The spectra obtained from measuring a dust with an SDD with no absorber or cap used.

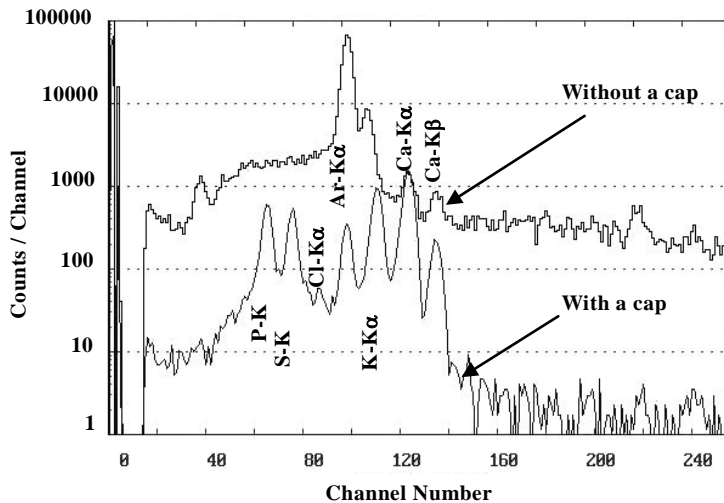


Fig. 7 Effect of a cap at the tip of a detector on the spectra obtained with a Si(Li) detector in in-air PIXE system.

次に高エネルギー領域における感度が検討された。上述のように SDD の空乏層は薄いため、高エネルギー領域における検出効率そのものは Si(Li) に劣るが、その差がそのまま感度の違いとはならない。高エネルギー領域におけるバックグラウンドの主成分は、(試料の成分などの実験条件に強く影響を受けるが) 高エネルギー γ 線が空乏層内で作り出すコンプトン散乱の反跳電子スペクトルである。空乏層が薄ければ、 γ 線による空乏層内でのコンプトン散乱確率も低くなるため、Na、Fなどを多く含み多量の γ 線が発生する試料などの場合、むしろ S/N 比が改善され感度が良くなることも考えられる。

Fig. 8 に焼却灰の標準試料 BCR City-Incineration-Waste Ash からの X 線を 300 μm Mylar 吸収体を装着し SDD で測定することにより得られたスペクトルを示す。2.45 MeV 陽子ビームの飛程はプラスチック中で 100 μm 以下であり、散乱陽子線は 300 μm Mylar 吸収体で完全に止めることができる。そのため時定数は 6 μs に設定された。重元素に対する保証値は与えられていないが、我々の真空 PIXE を用いた測定では 2.7 mg/g の Sn と、400 $\mu\text{g/g}$ の Ba が含まれていることが確認されている。この時の測定時間は 10 分ほどであるが、Cd も加えこれらの重元素のピークが明確に観測されている。高エネルギー領域におけるバックグラウンドも低く、測定時間を長めにとればこれらの重元素の分析も十分に可能であることが確認できた。

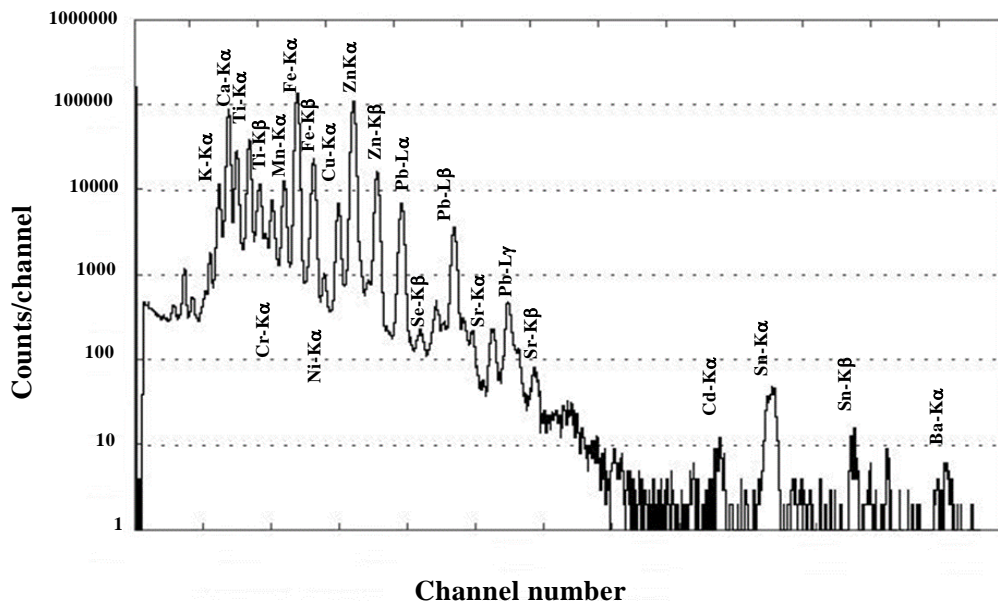


Fig.8 The spectrum obtained from measuring “BCR City-Waste-Incineration ash”, where a 300- μm -thick Mylar was used as an X-ray absorber.

次のステップとして、SDD 検出器の定量分析への応用の可能性が検討された。そのためにはまず検出効率の測定が前提となる。検出効率の測定は、以前に確立された方法⁶により、化合物の結晶粉末と原子吸光用標準液を用いて行われた。Table 1 に、検出効率測定のために用いられた試料の一覧を示す。検出効率曲線は、検出効率を決定する 5 つのパラメータ (Be 窓の厚さ、不感層の厚さ、空乏層の厚さ、Au 電極の厚さ、表面の氷膜の厚さ) の測定値に対する parameter fitting により行われ⁴、決定された検出効率の各特性 X 線エネルギーに対する値は、定量計算プログラム KEI⁴ が引用する data file に自動的に書き込まれる。Fig. 9 に、300 μm Mylar 吸収体 on/off 時の SPEX-XSTC-13 (標準液) 測定の際のスペクトルを比較して示す。(Se-K α X 線収量で規格化が行われている。) この試料は多くの遷移元素と重元素を含み、中～高エネルギー領域の検出効率測定のために用いられた。

過去に大気 PIXE システム専用 Si(Li) の検出効率の測定も行われたが、大気システムでは空気による吸収を固有の検出効率と切り離すことが難しく、それを含む形で検出効率曲線の測定が行われた。今回も同様に幾何学的配置を固定し、空気による吸収も検出効率曲線の中に取り込む形で曲線が求められた。Fig. 10 にその結果を示す。図中には以前に測定された大気システム専用 Si(Li) (No.3) の検出効率曲線も比較して示されているが、低エネルギー側で SDD がかなり低い検出効率を示している。しかし固有の検出効率が低いわけではなく、SSD 検出器のヘッドの径が大気システムの No.3 Si(Li) と比べてかなり大きく、実質的な air path (ターゲットと検出器窓の間の距離) が 1.5 cm と、Si(Li) の場合の 1.5 倍になったことによるものである。また高エネルギー領域での相対的に低い検出効率は、Si(Li) よりも薄い空乏層による。

Table 1 Chemical compounds and standard solutions used to determine the detection efficiencies.

Chemical compounds	Na ₂ SO ₄ , Na ₂ SO ₃ , MgSO ₄ , KCl, KMn, NiSO ₄ , AgCl, CoCl ₂ , MgCl ₂ (for low energies) CdCl ₂ , KI, BaS, BaCl ₂ (for high energies)
Standard solutions	XSTC-8, XSTC-13 (SPEX) (for high energies)

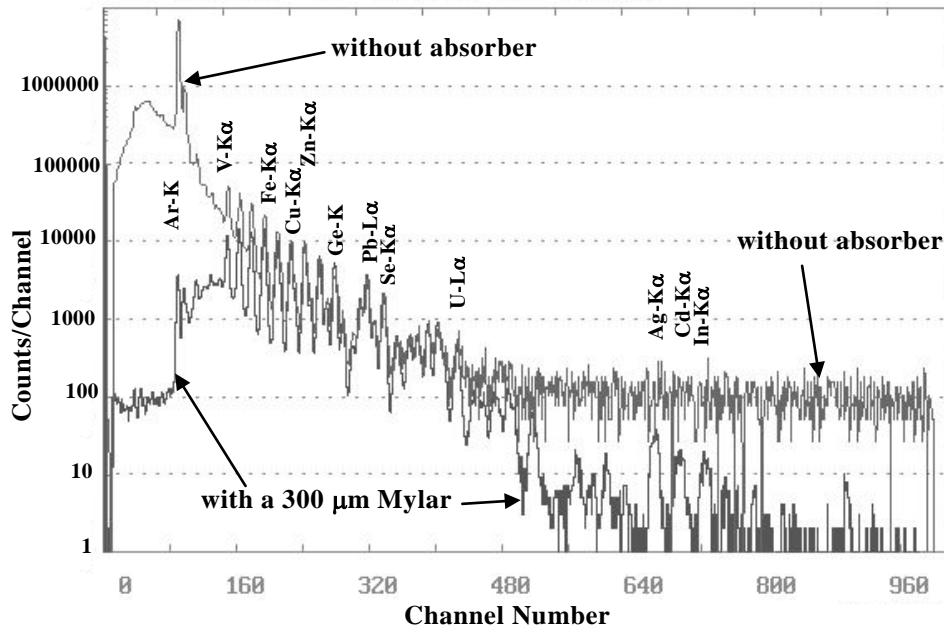


Fig. 9 The spectra obtained from measuring SPEX XSTC-13 with and without an X-ray absorber, where the two spectra were normalized with the peak yields of Se-Kα.

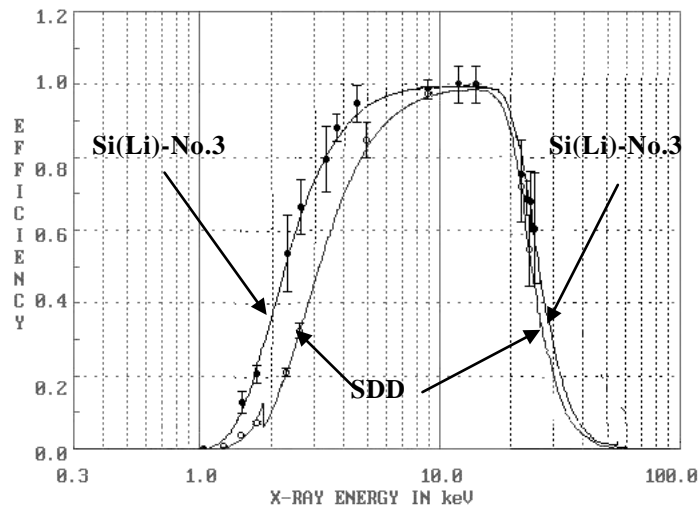


Fig. 10 Experimentally determined efficiency curve of the SDD.

このようにして定量分析の準備が整い、SSD 検出器は定量分析に供せられた。まず、保証値の与えられている標準試料に対し定量分析が試みられた。最初に、軽元素に対する分析精度・感度確認の目的で“GBW Tibet Soil”の測定が行われたが、そのスペクトルを Fig. 11 に示す。この標準試料は Fe までの軽・中元素を多く含み、図のように吸収体を用いずに保証値が与えられている全元素の測定が可能である。図中に認められるように、先端キャップを用いない測定において、Mg のピークが明確に観察されている。次に重元素まで含む“BCR City-Waste-Incineration Ash”の測定を試みた。Fig. 8 に観られるようにこの試料は Cd、Sn、Ba などの重元素を含むが保証値は与えられておらず、保証値の与えられている Pb (L-X 線で分析) までの比較を行った。

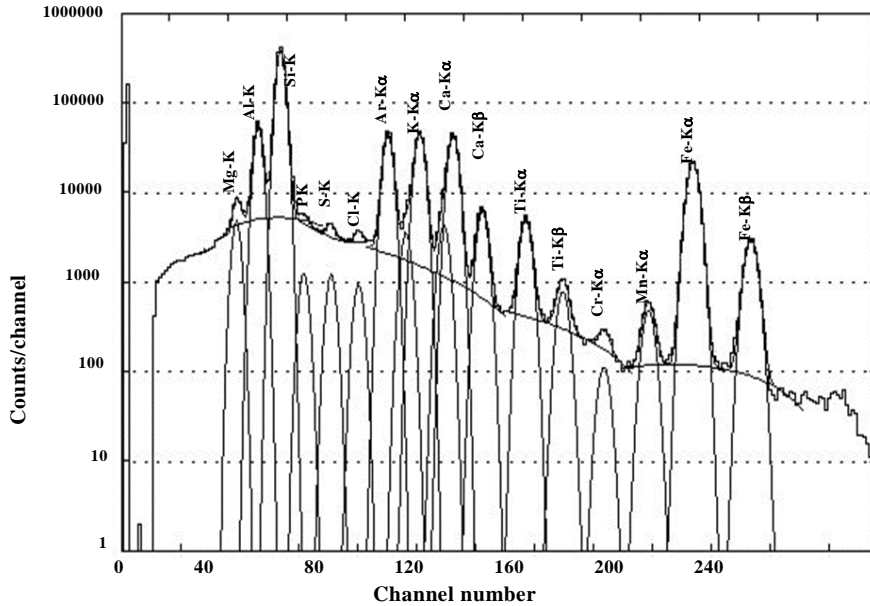


Fig. 11 Spectra obtained from measuring “GBW Tibet Soil” without an X-ray absorber.

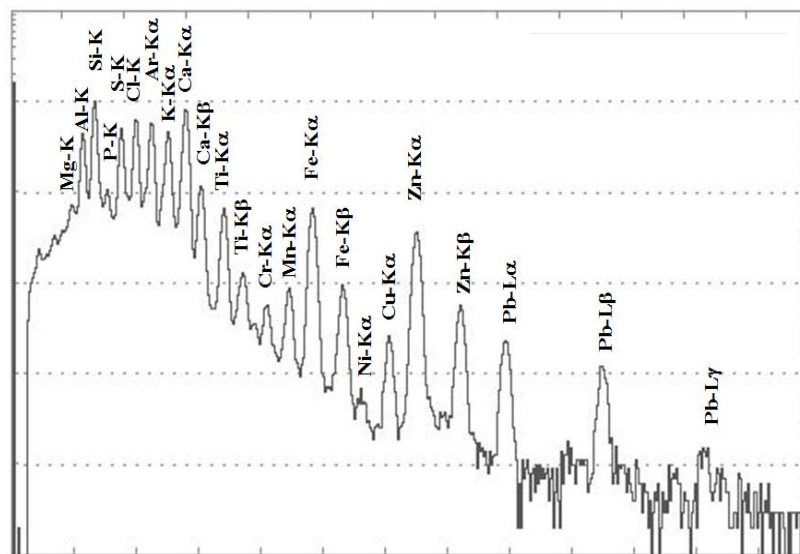


Fig. 12 The spectrum obtained from irradiating “BCR City-Waste-Incineration ash” with a proton beam without an X-ray absorber.

Fig. 13 には Tibet Soil の分析結果を示す。検出効率が 1 に近い Fe で規格化を行い、軽元素の定量分析精度を確認した。ここで Na の大きな保証値とのずれは、大気における Na の極端に低い検出効率に由来するものであり、大気システムにおいては Na の検出は難しいことがわかる。一方 Cr の不一致に関しては、このエネルギー領域では検出効率も安定しており、保証値の方に問題がある可能性がある。他の元素に関しては、満足すべき保証値との一致が見られた。

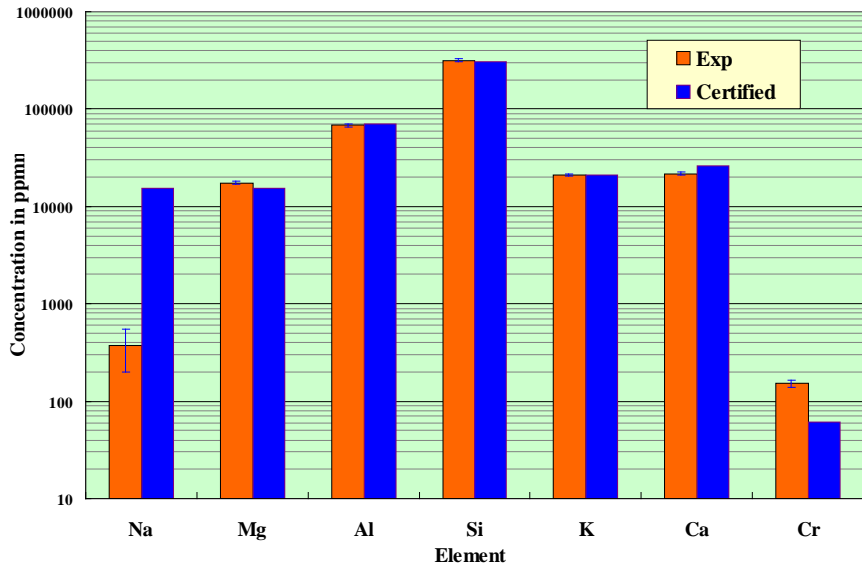


Fig. 13 The results of the analysis of “GBW Tibet Soil”, with the results compared to the certified values.

Fig. 14 には City Incineration Ash の結果を示す。この標準試料に関しては、過去に何度となく Si(Li) を用いて真空・大気 PIXE での測定が行われているが、粒度も揃い均一性も良く、常に保証値との良い一致が再現されている。今回 SDD においても、Mg から Pb に至るまで保証値との一致は良く、Tibet Soil において差異が認められた Cr についても良い結果が得られている。この結果から、低・中エネルギー領域における定量分析精度の高さが確認できた。

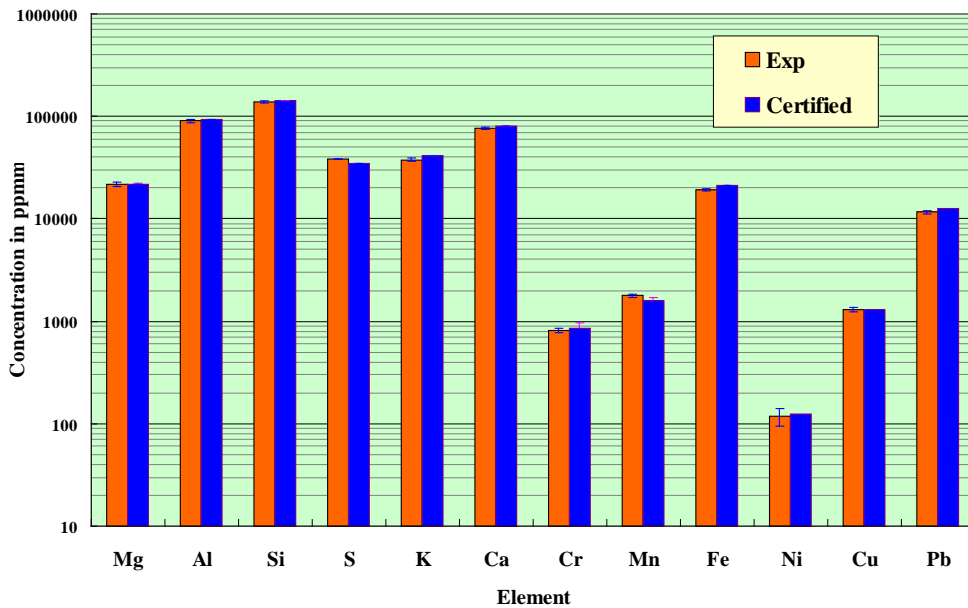


Fig. 14 The results of the analysis of “BCR City Incineration Waste Ash” with the results compared to the certified values.

標準試料で信頼性のある重元素の保証値が与えられているものが少ないため、高エネルギー領域における定量精度の確認は実試料の分析に委ねることとした。Fig. 15には、土壌成分を多く含むダスト試料のスペクトルを示す。図中には 300 μm Mylar 吸収体を用いて得られたスペクトルと、吸収体なしで得られたスペクトルが、Fe-K β の収量で規格化され比較されている。後者のスペクトルには、Mg-K α ピークが明確に識別されている。

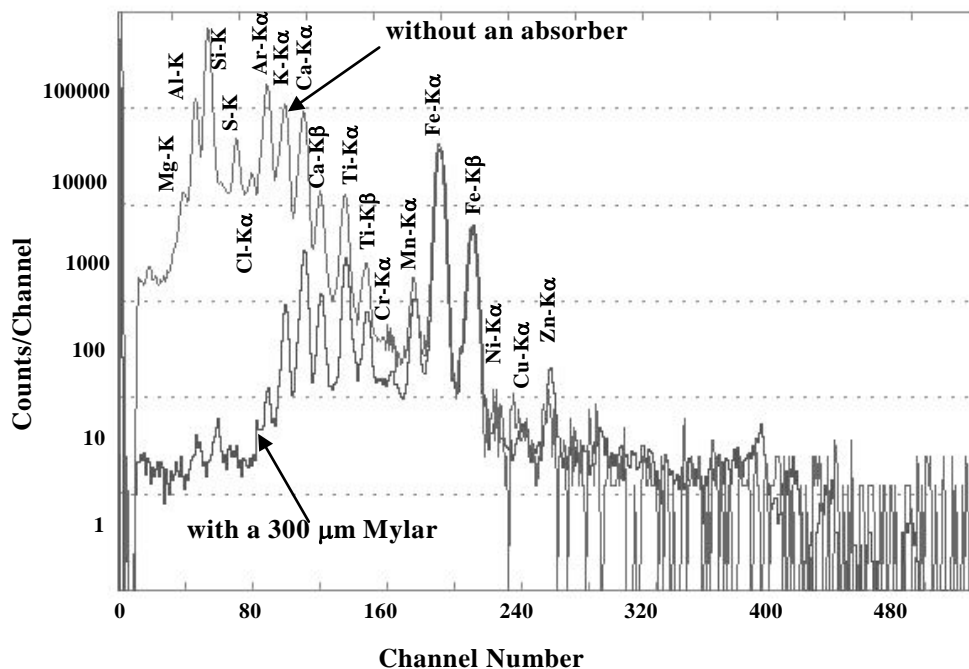


Fig. 15 Spectra obtained from measuring a practical dust sample with and without an X-ray absorber, where the two spectra were normalized with the peak yields of Fe-K β .

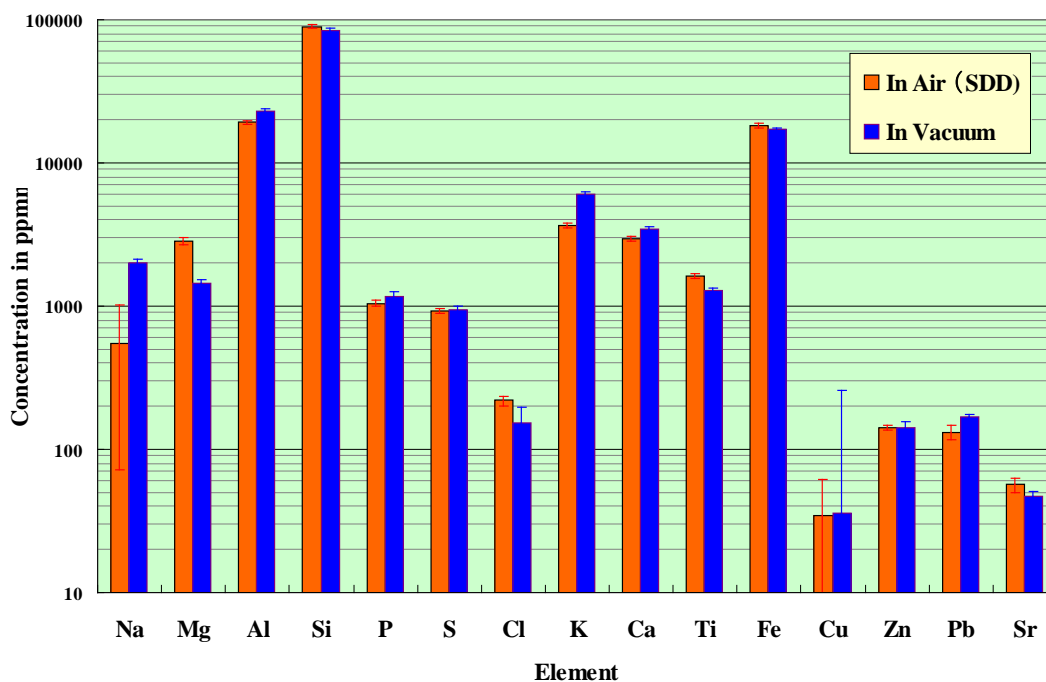


Fig. 16 The results of the analysis of a practical dust sample with the results compared to those obtained by in-vacuum PIXE.

その分析結果は、真空 PIXE システムで求められた結果と比較され、Fig. 16 に示されている。多くの元素が良い一致を見せているが、Na、Mg、Cl の一致は良くない。それに加え K、Ca が真空 PIXE と比べ低い値を示している。K、Ca の低値の理由は空気中の Ar の吸収端の影響と思われる、その補正が必要であることが分かる。Air path を完全に固定すれば、その効果の補正は十分に可能である。

さらに SDD は生物試料の定量分析に応用された。通常、生物試料に対しては In の内部標準（一部 Ag か Y）が用いられ、In は重元素であるため、それに対する検出効率が不正確であれば全元素の定量結果に影響を与える結果となる。そのため、高エネルギー領域における検出効率の精度のチェックにも有効である。Fig. 17、18 にラット血清試料の SDD 検出器で得られたスペクトルと、定量分析の結果をそれぞれ示す。Fig. 17 中には、同一試料に対し真空 PIXE システムの検出器 1 で得られたスペクトルも比較して示されており、いずれも 300 μm -Mylar 吸収体が装着されている。740 ch 近辺の In-K α ピークは、100 $\mu\text{g}/\text{mL}$ になるように試料に加えられた In 内部標準のものである。Fig. 18 の結果を見ると、K、Fe、Cu 以外は真空 PIXE システムで得られた値とおおむね一致している。そのことから、24 keV を超える In-K α の領域まで、Fig. 10 で示される検出効率曲線の信頼性が高いことが確認された。K が低値を示すのは空気中 Ar の K 吸収端の影響であり、Fe、Cu に関しては、真空 PIXE システムでの分析後数カ月が経過していたことから、コンタミが生じた可能性が考えられる。

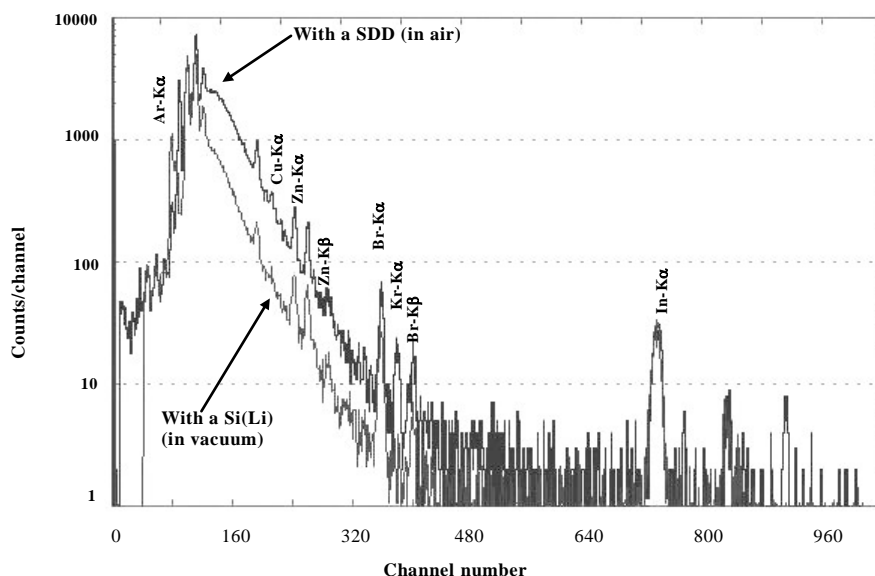


Fig. 17 Spectra obtained from measuring rat serum without an X-ray absorber, with the spectrum obtained by an in-vacuum system also shown, where the two spectra were normalized with the peak yields of In-K α , which was added to the sample as an internal-standard element.

最後に SDD 検出器は、真空中での測定が不可能なオイル試料の分析に応用された。Fig. 19 にはオイル標準液試料 (CONSTAN S-12) を 2.45 MeV 陽子ビームで照射し、300 μm -Mylar 吸収体を装着し得られたスペクトルを示す。オイル試料は大気環境の分野において分析の需要が近年増加傾向にあり、大気中での高精度・高感度分析技術の確立が望まれる。特に Zn、Mo などが注目元素となることが多い。我々はオイル試料に対し、定量分析のための無標準法を確立しているが^{7,8}、本研究のテーマは SDD 検出器の応用であるため本標準試料に含まれる Ag で規格化を行い他の元素の値を求め、それぞれの保証値に対する比で定量分析精度を評価することにした。Fig. 20 にその結果を示す。オイル試料は乾燥しないためターゲット内での自己吸収など不確定要素が多く、高精度の定量分析が難しい試料であるが、保証値との不一致は最大 6%ほどであり、十分な精度での定量分析が可能であることが確認された。

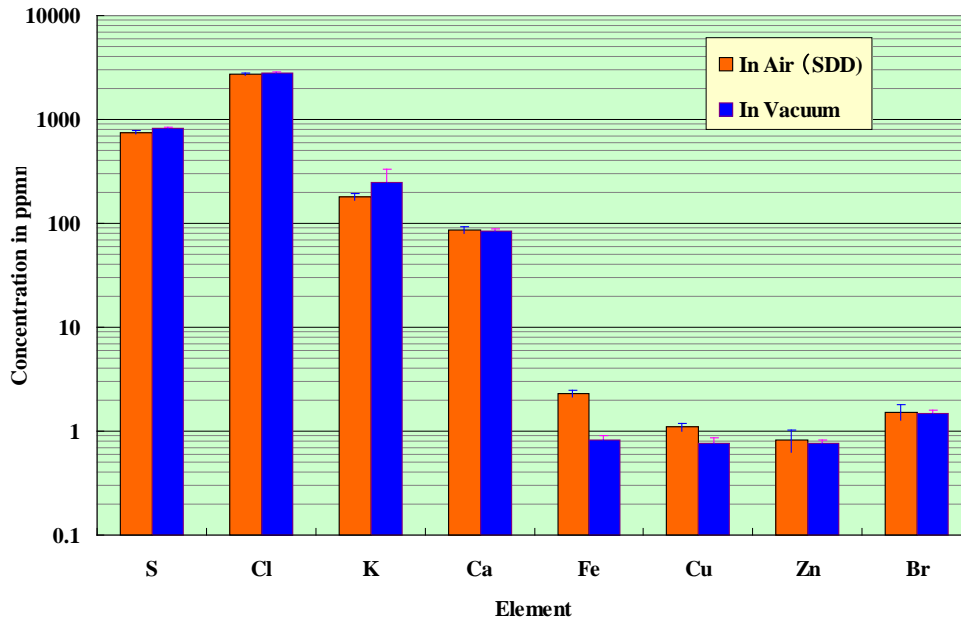


Fig. 18 The results of the analysis of rat serum, with the results compared to those obtained from an in-vacuum PIXE.

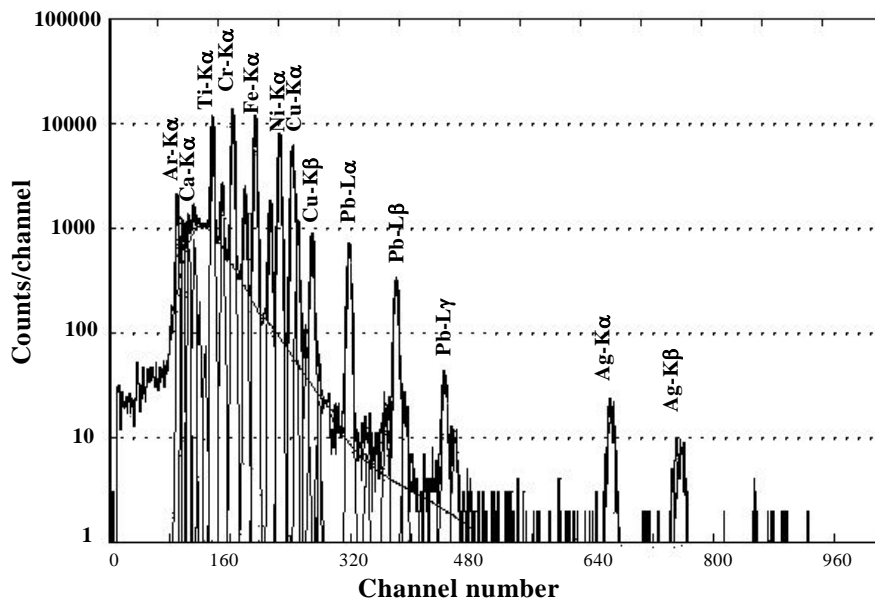


Fig. 19 The spectrum obtained by irradiating an oil standard (CONOSTAN S-12) with a proton beam in in-air PIXE, with 300 μ m-thick Mylar was used as an X-ray absorber.

4 議論

SDD 検出器の際立った長所は、液体窒素による冷却が不要という点にあり、Si(Li)と比較し取り扱いがはるかに容易である。我々の常日頃の経験から言えば、常時液体窒素温度に冷却されている Si(Li)でも、バイアス電圧 (~1 kV) を供給した後ピーク位置が安定するまでに 15 分ほど待たねばならず、その変動幅は 5.89 keV の Mn-K α X 線において 13 eV にもなる場合がある。その点、SDD 検出器は常に常温にあり、使用時 switch on 後にペルチェ素子による冷却開始~冷却後の高電圧投入~80 秒後に測定可能と、使用可能になるまでの時間が非常に短く、Fig. 2 に示されるように 160 秒後には、ピーク位置変

動はほぼ無視できるほどまでに安定する。思い立った直後から使用可能になり安定性も抜群であることは、SDD の大きな長所であろう。

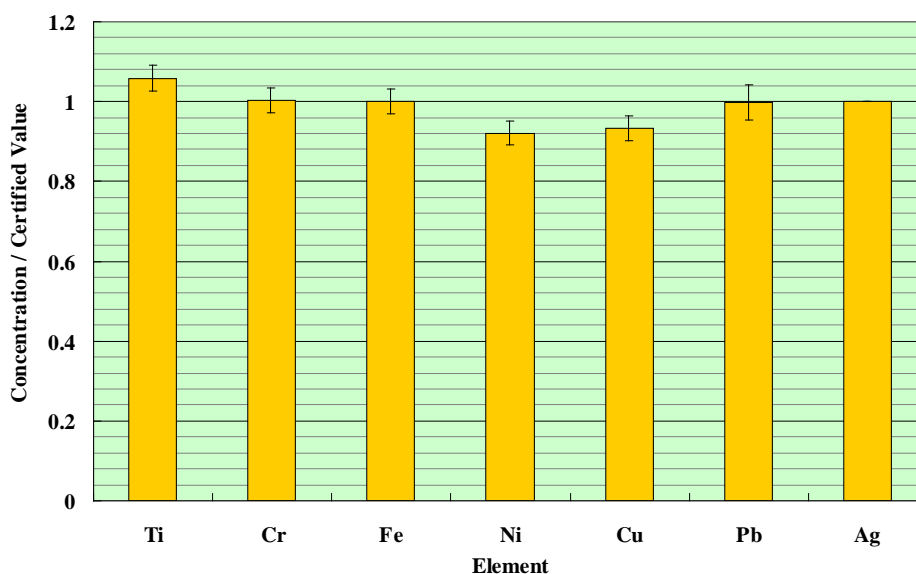
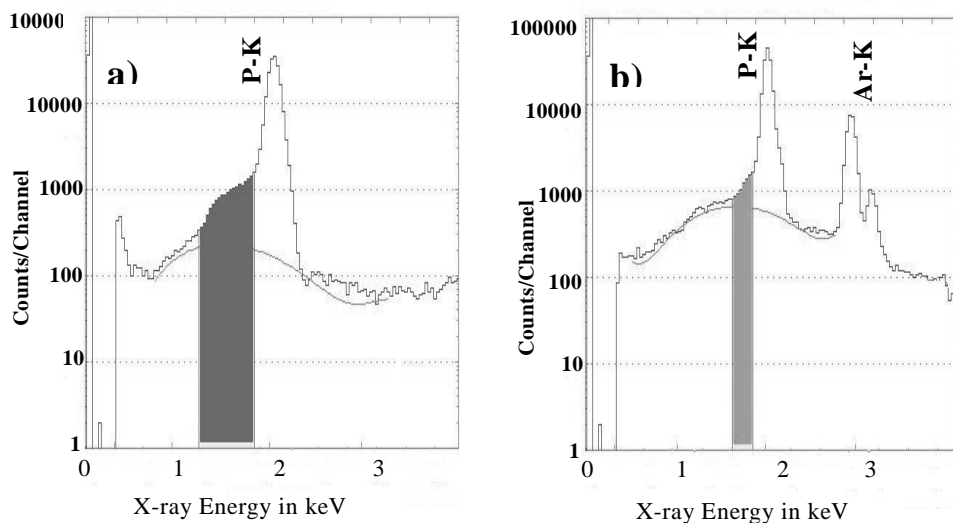


Fig. 20 The results of the analysis of an S-12 standard oil sample with an SDD with the elemental concentrations shown as the ratio relative to the certified values.

さらに、感度と共に $X \cdot \gamma$ 線の最も基本的な半導体検出器の性能である「エネルギー分解能」に関しても、Fig. 3 でみられるように Si(Li) とほぼ同等の高性能を有している。Fig. 2 で示したピーク位置変動があるうちはエネルギー分解能も良い値にならないが、SDD の場合には電源投入後 160 秒後にはピーク位置・分解能も十分に安定する。図を見るとエネルギー分解能はほぼ 10 分周期のゆるやかな変動を見せており、これは外部機器からの何らかのノイズの影響であることを示している。そのため環境を整備することにより、さらに分解能は向上する可能性がある。また Fig. 4 で確認されたように、多数の散乱陽子線が入射するような条件下においても、時定数を短くすることによりその分解能への影響を抑えることができることも大きな長所である。

SDD 検出器の安定な高性能により、大気 PIXE における定量分析に有用であることが期待された。特に大気 PIXE においては低エネルギー領域におけるスペクトルの取得において高性能を示した。Fig. 7 に示すように、Si(Li) で低エネルギー領域のスペクトルを取得した場合非常に S/N 比が悪く、そのままでは Si 以下の軽元素測定が不可能であった。しかし Fig. 5-b、6、11、12、15 に示すように、SDD においては先端キャップの装着無しに Mg-K X 線まで明確に測定可能であった。これは Fig. 4 に示すように、静電容量が小さいため時定数を短くとれ散乱陽子線の影響を受けにくいこと、そのため低エネルギー領域におけるエネルギー分解能が良いことに加え、X 線ピークの response function⁹ の tail 成分が小さいことにもよる。少し高いエネルギー領域における大きなピークの tail function は低エネルギー領域に重なり合い、大きなバックグラウンドを形成し S/N 比を悪化させ、軽元素に対する感度を悪くする。Fig. 21-a に通常の Si(Li) の tail function を、21-b に SDD のそれを比較して示す。Si 半導体を用いた検出器においては、X 線エネルギーが Si の吸収端を超えると検出効率が不連続に上昇するが、一方では tail function の収量も増大する。P-K X 線は丁度 Si の吸収端を超えたエネルギーであり、Fig. 21-a のような大きな tail function の成分を作り、それが P より軽い元素に対する感度を悪化させる。しかし 21-b に見られるように、SDD の場合 tail function の成分は十分に小さく、そのため低エネルギー領域のバックグラウンドを大きくは増大させることがない。SDD の低エネルギー領域での軽元素検出感度の高さは、それらの要因が重畳し良い方向に働いているためである。



Figs. 21 Comparison of the yields of the tail function measured with a Si(Li) (in vacuum: a) and an SDD detectors (in-air: b).

このように SDD は小型軽量で液体窒素冷却も不要であり、Si(Li)と比べ扱いが簡単、ターゲット周りの設置の自由度も大きいという長所を持つが、それ以外の性能も Si(Li)にひけをとらず有用であることが確認できた。唯一の短所は高エネルギー領域における低い検出効率であるが、それはそのまま感度の低下につながるものではない。Fig. 8、18 に示されるように、15 keV 以上の領域におけるバックグラウンドが十分に低く、S/N 比が検出効率に比例して悪化するわけではないからである。高エネルギー領域における主なバックグラウンドは、高エネルギー γ 線が空乏層内でコンプトン散乱を生じ、その反跳電子の計測により生じる¹⁰。空乏層が薄ければコンプトン散乱の確率も低く、バックグラウンドは低下する。高エネルギー γ 線の発生確率は試料の成分に依存し、Na、F など即発 γ 線を多く発生する元素を多く含む試料の場合、高エネルギー領域のバックグラウンドが非常に高くなる。そのため、試料の組成によってはむしろ重元素に対する感度が良くなることも考えられる。S/N 比が良い場合、Fig. 8、18 に見られるように、Cd、Ag、In、Sn、Ba などの重元素も、測定時間をかければ十分に測定可能である。

我々は SDD を真空 PIXE システムに組み込み、固有の検出効率などの基本的性能を詳しく調べることを計画している。現在のところヘッドの長さが短く設置に制約があるが、25 cm 程度の長いものであれば、真空散乱槽への組み込みは容易である。我々は通常の試料に対しては、2 検出器同時測定システムにより Na から重元素までの測定を一時的に行っているが¹¹、鉱物試料・土壌試料など特定の元素が突出して存在する試料に対しては、通常の吸収体に加え「特殊吸収体」による重元素の高感度測定も合わせて行う必要があるため 2 回の測定が必要であった。SDD を真空システムに組み込めば、SDD に通常吸収体を、Si(Li) No.1 に特殊吸収体を装着し、一回の測定で全元素の高感度分析が可能となる。このように小型軽量で扱いが容易であることに加え、十分な高性能を誇る SDD は、PIXE 分析においても有用なツールになるものと期待される。

謝辞

本研究は日立ハイテクサイエンス・アメリカ社 (Hitachi High Technologies Science America, Inc. 19865 Nordhoff Street, Northridge, CA 91324, USA) の協力の元に行われました。感謝いたします。また共同利用の運営に携わる共著者以外の岩手医科大学サイクロトロンセンター、日本アイソトープ協会仁科記念サイクロトロンセンターのスタッフの方々に謝意を表します。

参考文献

1. M. D. Wilson, R. Cernik, H. Chen C. Hansson, K. Iniewski, L. L. Jones, P. Seller, and M. C. Vele, "Small Pixel CZT Detector for Hard X-Ray Spectroscopy.", *Nucl. Instr. Meth*, Vol.**652**, No.1, 158-161, (2010)
2. J. Inoue, S. Iwasaki, K. Murozono, K. Ishii and S. Matsuyama, "Use of Si-PIN Photodiode X-ray Detector for PIXE.", *Int'l Journal of PIXE*, Vol.**6**, No.1, 2, 147-153, (1996)
3. K. Sera, T. Sasaki, J. Itoh, Y. Saitoh, and S. Futatsugawa, "Simultaneous Measurement of Two Different Targets by Means of Vacuum and In-Air PIXE." *Int'l Journal of PIXE*, Vol.**18**-1,2, 1-12 (2008)
4. K. Sera, and S. Futatsugawa, "Personal Computer Aided Data Handling and Analysis for PIXE.", *Nucl. Instr. Meth*, B **109/110**, 99-104, (1996)
5. K. Sera, S. Goto, C. Takahashi, and Y. Saitoh, "Quantitative analysis with a two-detector measuring system in in-air PIXE. -design to improve detection sensitivity at low energies", *Int'l Journal of PIXE*, Vol.**23**-1,2, 55-67, (2013)
6. K. Sera, S. Futatsugawa, and K. Matsuda, "Determination of physical quantities for PIXE by means of PIXE 2 - Efficiency curve, *Int'l Journal of PIXE*, Vol. 4, 181-191, (1994)
7. K. Sera, S. Goto, C. Takahashi, and Y. Saitoh, "Quantitative Analysis of Untreated Oil Samples in In-Air PIXE.", *Int'l Journal of PIXE*, Vol.**20**-3, 4, 77-84, (2010)
8. 世良耕一郎、後藤祥子、高橋千衣子、齋藤義弘、寺崎一典、佐々木敏秋、齋藤勝美, "オイル試料に対する無標準定量法の開発 -大気 PIXE システムを用いて", NMCC 共同利用研究成果報文集, 第 16 巻, 256-265, (2010)
9. K. Sera and S. Futatsugawa, "Spectrum Analysis Taking Account of the Tail, Escape Functions and Sub-lines. (SAPIX version 4)", *Int'l Journal of PIXE*, Vol. **10**-3, 4, 101-114, (2000)
10. K. Ishii, H. Orihara, S. Iwasaki, K. Sera, S. Futatsugawa, and Y. Iwata, "Compton Tail Background Due to Sodium Element in Biological Samples.", *Int'l Journal of PIXE*, Vol. **4**, No.2,3, 137-145, (1994)
11. K. Sera, T. Yanagisawa, H. Tsunoda, S. Futatsugawa, S. Hatakeyama, Y. Saitoh, S. Suzuki and H. Orihara., "Bio-PIXE at the Takizawa facility (Bio-PIXE with a baby cyclotron)", *Int'l Journal of PIXE*, Vol. **2**, No.3, 325-330, (1992)

Use of a silicon drift detector (SDD) in the quantitative analysis of in-air PIXE

K. Sera¹, S. Goto², T. Hosokawa² and Y. Saitoh²

¹Cyclotron Research Center, Iwate Medical University
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0603, Japan

²Nishina Memorial Cyclotron Center, Japan Radioisotope Association
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0603, Japan

Abstract

In the present study, we used a silicon drift detector (SDD) for the quantitative analysis of in-air PIXE. First, we examined the basic performances of the detector. We found that the shift of the peak position was less than 0.45 eV, and the energy resolution was 130-136 eV at 5.98 keV. We then used the SDD for a quantitative analysis. Physical parameters, such as the X-ray production cross sections, values of the transmission of X-rays through absorbers and the detection efficiencies, which are required for quantification, were obtained theoretically and experimentally. We confirmed that many elements, from magnesium to barium, were able to be detected without using any special device. The results of the quantitative analyses of a few standard materials showed good agreement with the certified values. This method was also used to analyze practical samples, including bio-medical samples, and the results were in good agreement with the results obtained with in-vacuum PIXE.