

2001 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

CsI(Li), CsI(K) 및 CsI(Rb) 섬광체의 감마선 검출특성
Gamma Ray Detection Characteristics of CsI(Li), CsI(K)
and CsI(Rb) Scintillators

이우교, 김용균, 정종은, 문병수
한국원자력연구소
대전시 유성구 덕진동 150
도시홍
부경대학교
부산광역시 남구 대연3동 599-1
강희동
경북대학교
대구광역시 북구 산격동 1370

요 약

CsI에 알칼리 금속인 Li, K, Rb를 활성제로 첨가하여 CsI(Li), CsI(K) 및 CsI(Rb) 단결정을 Czochralski방법으로 육성하였다. ^{137}Cs (0.662 MeV)에 대한 CsI(Li:0.2 mole%) 섬광체의 에너지 분해능은 14.5 %이었고 CsI(K:0.5 mole%) 섬광체는 15.9 %이었으며 CsI(Rb:1.5 mole%) 섬광체는 17.0 %이었다. 이들 CsI(Li), CsI(K) 및 CsI(Rb) 섬광체의 γ 선 에너지에 대한 에너지 교정곡선은 선형적 이었다. 일정비율 시간분석법(CFT:constant-fraction timing method)으로 측정된 CsI(Li:0.2 mole%), CsI(K:0.5 mole%) 및 CsI(Rb:1.5 mole%) 섬광체의 시간 분해능은 각각 9.0 ns, 14.7 ns 및 9.7 ns이었다. CsI(Li:0.2 mole%), CsI(K:0.5 mole%) 및 CsI(Rb:1.5 mole%) 섬광체의 형광감쇠시간은 빠른 성분과 느린 성분으로 나타났으며 그 값들은 각각 $\tau_1 = 41.2$ ns, $\tau_2 = 483$ ns, $\tau_1 = 47.2$ ns, $\tau_2 = 417$ ns 및 $\tau_1 = 41.3$ ns, $\tau_2 = 553$ ns이었다. 그리고 CsI(Li:0.2 mole%), CsI(K:0.5 mole%) 및 CsI(Rb:1.5 mole%) 섬광체의 인광감쇠시간은 각각 0.51 s, 0.57 s 및 0.56 s이었다.

Abstract

CsI single crystals doped with lithium, potassium or rubidium were grown by using Czochralski method at Ar gas atmosphere. The energy resolutions of CsI(Li:0.2 mole%), CsI(K:0.5 mole%) and CsI(Rb:1.5 mole%) scintillators were 14.5 %, 15.9 % and 17.0 % for ^{137}Cs (0.662 MeV), respectively. The energy calibration curves of CsI(Li), CsI(K) and CsI(Rb) scintillators were linear for γ -ray energy.

The time resolutions of CsI(Li:0.2 mole%), CsI(K:0.5 mole%) and CsI(Rb:1.5 mole%) scintillators measured by CFT(constant-fraction timing method) were 9.0 ns, 14.7 ns and 9.7 ns, respectively. The fluorescence decay times of CsI(Li:0.2 mole%) scintillator had a fast component and slow one of $\tau_1 = 41.2$ ns and $\tau_2 = 483$ ns, respectively. The fluorescence decay times of CsI(K:0.5 mole%) scintillator were $\tau_1 = 47.2$ ns and $\tau_2 = 417$ ns. And the fluorescence decay times of CsI(Rb:1.5 mole%) scintillator were $\tau_1 = 41.3$ ns and $\tau_2 = 553$ ns. The phosphorescence decay times of CsI(Li:0.2 mole%), CsI(K:0.5 mole%) and CsI(Rb:1.5 mole%) scintillators were 0.51 s, 0.57 s and 0.56 s, respectively.

1. 서 론

방사선이 조사되었을 때 빛을 발하는 물질을 섬광체라 한다. 섬광체의 종류는 고체(solid), 액체(liquid) 및 기체(gaseous) 섬광체로 나눌 수 있고, 고체 섬광체는 유기 섬광체(organic scintillator)와 무기 섬광체(inorganic scintillator)로 나눈다. 일반적으로 유기 섬광체는 밀도가 1에 가깝고 유효원자번호가 5 ~ 6정도이며, 형광 감쇠시간이 매우 짧아 분해시간이 좋은 것이 특징이다. 무기 섬광체는 밀도와 유효원자번호가 크고 발광효율이 크지만, 형광 감쇠시간이 유기 섬광체에 비하여 길기 때문에 분해시간이 길다.

Hofstadter가 처음으로 NaI(Tl) 섬광체를 발견[1]한 이후, 여러 가지 종류의 섬광 검출기들은 핵 및 고에너지 물리학[2], 우주물리학[3], 핵의학[4,5], 응용과학과 응용공학 등[6,7] 많은 분야에서 사용되고 있다. 그러나 NaI(Tl) 섬광체는 광수율은 크지만, 잔광성이 있고 충격에 약하며 더욱이 흡습성이 있기 때문에 섬광체를 밀봉해야하고, 유효원자번호($Z_{\text{eff}}=51$)가 작으므로 검출기를 소형으로 만들 수 없는 단점이 있다.

CsI 단결정[8]의 섬광체 특성은 NaI(Tl)과 거의 같은 시기에 발견되었고, 활성제로 thallium을 첨가한 CsI(Tl)[9,10]은 밀도와 유효원자번호가 크고 radiation length가 짧으며, 지금까지 알려져 있는 섬광체 중에서 단위체적당 γ 선 검출효율과 단위에너지당 광수율이 가장 큰 것 중의 하나로 방사선 검출기로 여러 분야에 많이 이용되어 왔다.

그러나 CsI(Tl) 섬광체는 형광감쇠시간(약 $1\mu\text{s}$)과 인광감쇠시간(4.1 s)이 길고 radiation hardness가 약하므로 고에너지의 방사선을 측정하거나 γ 선이나 X선의 방출이 10^7 개/s 이상의 고선량을 이용하는 분야에서는 사용이 제한되어왔다. Kubota 등[11]은 활성제를 첨가하지 않은 CsI(pure) 단결정의 자외선 발광 영역(약 305 nm)에서 매우 짧은 형광감쇠시간(약 10 ns)을 발견하였다. 또한 CsI(pure)는 radiation hardness가 크다. 이는 열량계, 방사선 이용 의료기기인 X선 CT(Computer Tomography)와 PET(Positron Emission Tomography) 등에서 요구되는 조건, 즉 밀도와 radiation hardness가 크며, 형광감쇠 시간이 짧고, 우수한 시간 분해능 등을 만족한다.

이 점에서 CsI(pure) 단결정의 자외선 발광(intrinsic ultraviolet luminescence)[12,13]은 섬광체 연구분야에서 관심의 대상이 되어 자외선 발광에 대한 연구가 계속되어 왔다.

그러나 CsI(pure)의 광수율은 NaI(Tl)의 1 ~ 4 %정도이다[14]. CsI(pure)와 같이 방사선 손상을 적게 받고 형광감쇠특성이 좋으면서 광수율이 CsI(pure) 보다 높은 CsI를 기초로 한 섬광체를 개발하기 위한 연구가 활발하게 진행되고 있다. A. V. Gektin 등[15]은 CsI에 CsBr을 혼합한 새로운 섬광체의 개발에 관한 연구를 하였고, A. V. Gektin과 N. V. Shiran 등[16]은 CsBr을 첨가한 CsI 단결정의 자외선 발광 특성을 넓은 온도영역에서 연구하였다. A. N. Belsky 등[17]은 CsI에 동족원소를 활성제로 첨가하여 육성한 단결정들의 자외선 발광 특성을 연구하였다. 그리고 L. P. Smol'skaya 등[18]은 Cs_2CO_3 를 첨가하여 CsI- CO_3 단결정을 연구하였다.

본 연구에서는 Czochralski법으로 순도 99.999 %의 CsI(Aldrich)분말에 알카리금속 lithium, potassium 및 rubidium을 활성제로 첨가하여 CsI(Li), CsI(K) 및 CsI(Rb) 단결정들을 육성하였다.

그리고 육성한 CsI(Li), CsI(K) 및 CsI(Rb) 단결정들의 γ 선에 대한 파고스펙트럼을 파고분석법으로 측정하여, γ 선의 에너지에 대한 에너지 분해능, 에너지 교정곡선 등을 구하였다. 또한 CsI(Li), CsI(K) 및 CsI(Rb) 섬광체들의 시간 특성을 알기 위하여 형광감쇠시간, 시간 분해능 및 인광감쇠시간 등을 구하였다.

2. 실험

본 연구에서는 여러 가지 CsI 단결정들을 Czochralski 방법[19]으로 육성하였다. Czochralski 방법은 결정성장에서 가장 널리 사용되는 방법중의 하나이다. 출발 물질은 순도 99.999 %의 CsI(Aldrich)분말을 사용하였고, 그리고 활성제로는 Li(Aldrich, 99.999 %), KI(Aldrich, 99.999 %) 및 RbI(Aldrich, 99.9 %)를 각각 적당량(mole%) 첨가하였다.

섬광체의 광출력은 섬광체의 크기와 모양에 따라 다르다[20]. 본 실험에서는 γ 선 파고 스펙트럼을 측정하기 위해 시편을 직경 10 mm, 높이 20 mm의 원통형으로 제작하였다.

밀면은 광전자 증배관과 시편의 직접적인 접촉을 피하고 습기로부터 시편을 보호하기 위하여 식품 포장용 랩(염화비닐수지, LLD-PE)으로 1회 감았다. 이 랩의 광투과율의 감소는 200~800 nm 사이에서 약 2 %정도였다. γ 선 에너지 스펙트럼은 펄스파고 분석법으로 측정하였고, 고전압 전원은 3120 (CANBERRA), 주증폭기는 TC245(TENNELEC), MCA card는 SIERRA MICROFAST MCA 그리고 광전자 증배관은 R374(HAMAMATSU)를 사용하였다. 에너지 분해능, 시간분해능 등에 사용한 γ 선원은 $^{137}\text{Cs}(10 \mu\text{Ci})$, $^{54}\text{Mn}(1 \mu\text{Ci})$ 및 $^{22}\text{Na}(1 \mu\text{Ci})$ 을 사용하였다.

그림 1은 섬광체 검출기의 시간분해능을 측정하기 위한 일정비율시간분석법[21] 회로도이다. 플라스틱 검출기는 펄스성형이 빠르므로 기준 시간을 만들기 위해서 사용하였다. 플라스틱 검출기의 다이노드(dynode)에서 나온 신호는 Fast-Filter-Amp에 입력되고, 다시 출력된 신호는 Constant-Fraction-Discriminator에 입력하였다. 시간분석법에 의해서 출력된 신호는 TAC(Time to Amplitude Converters)의 start에 입력시켰다. CsI 검출기의 다이노드에서 나온 신호는 플라스틱 검출기와 동일하게 하여 TAC의 stop에 입력하였다. 그리고 CsI 검출기의 양극(anode)에서 나온 신호는 전치증폭기를 거친 후 주증폭기에 입력하고, 주증폭기에서 나온 신호는 T-SCA(Time Single Channel Analyzers)에 입력하고, 그 출력 신호는 BNC Tee connector를 사용하여 하나는 Linear-Gate의 Gate신호로 하였으며, TAC의 출력신호는 Linear-Gate의 linear신호로 입력하였다. 그리고 출력은 MCA에 입력하여 스펙트럼을 측정하였다. T-SCA에서 나온 또 다른 하나는 다른 Linear-Gate-Stretcher의 Gate신호로 입력하고, 여기서 나온 신호는 MCA에 입력하여, ^{22}Na 의 붕괴에서 양전자 소멸로 인하여 발생한 에너지(0.511 MeV)를 관찰하면서 T-SCA로 조정할 수 있도록 하였다. CsI를 기초로 한 섬광체의 형광 감쇠시간은 oscilloscope(LeCroy 9350AM, 500 MHz)를 사용하여 측정하였고 인광감쇠곡선은 Fluorescence 분광계(HITACHI F-4500)를 이용하여 측정하였다.

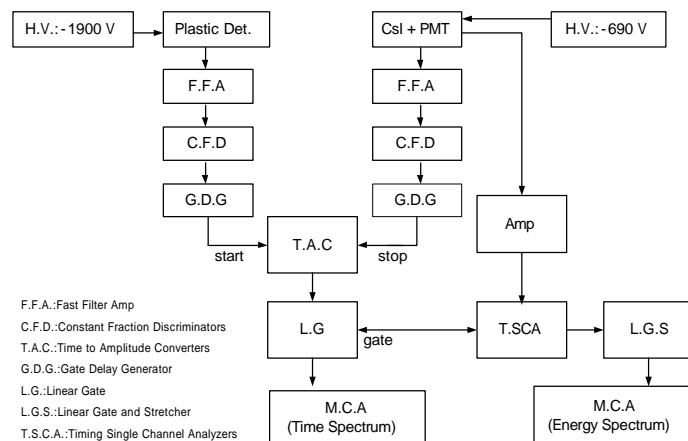


Fig. 1. Block diagram of the electric system used to measure the time resolution.

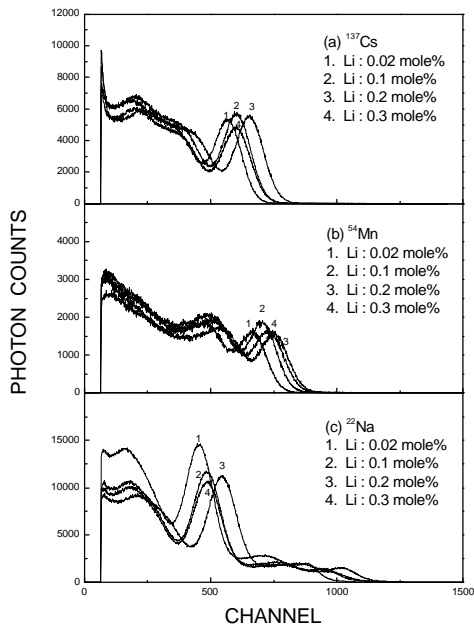


Fig. 2. Pulse height spectra of the CsI(Li) scintillators to (a) ^{137}Cs , (b) ^{54}Mn and (c) ^{22}Na gamma radiations.

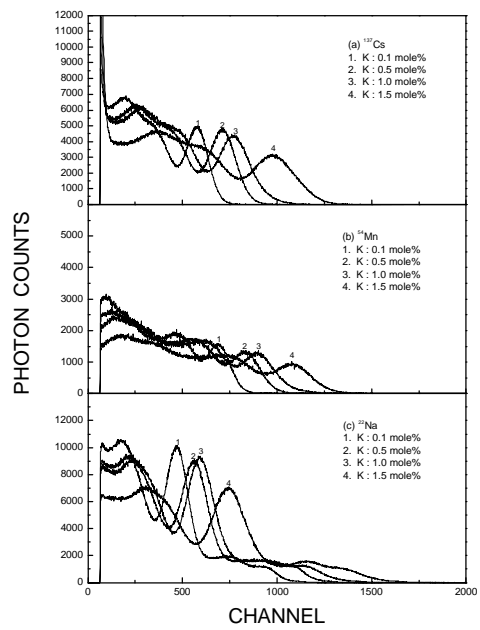


Fig. 3. Pulse height spectra of the CsI(K) scintillators to (a) ^{137}Cs , (b) ^{54}Mn and (c) ^{22}Na gamma radiations.

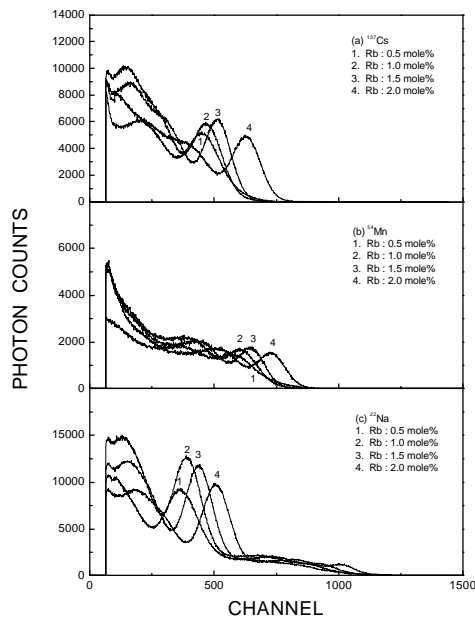


Fig. 4. Pulse height spectra of the CsI(Rb) scintillators to (a) ^{137}Cs , (b) ^{54}Mn and (c) ^{22}Na gamma radiations.

Table 1. Energy resolutions and relative light outputs obtained from CsI(Li) scintillators.

Energy (MeV)		0.511	0.662	0.835	1.275
Li 0.02 mole%	Relative light output	0.69	0.86	1.02	1.35
	Resolution (%)	19.9	15.2	12.3	8.2
Li 0.1 mole%	Relative light output	0.74	0.92	1.08	1.45
	Resolution (%)	19.3	15.2	12.0	8.1
Li 0.2 mole%	Relative light output	0.83	1	1.15	1.56
	Resolution (%)	17.7	14.5	11.4	7.9
Li 0.3 mole%	Relative light output	0.74	0.92	1.12	1.48
	Resolution (%)	19.6	15.4	12.3	8.7
Measurement condition	Coarse gain : 5, Fine gain : 0.6, Shaping Time : 3 μ s, HV : -690 V				

Table 2. Energy resolutions and relative light outputs obtained from CsI(K) scintillators.

Energy (MeV)		0.511	0.662	0.835	1.275
K 0.1 mole%	Relative light output	0.67	0.81	0.97	1.33
	Resolution (%)	20.6	16.3	13.0	8.8
K 0.5 mole%	Relative light output	0.81	1	1.18	1.54
	Resolution (%)	19.6	15.9	13.2	9.4
K 1.0 mole%	Relative light output	0.83	1.09	1.27	1.62
	Resolution (%)	19.1	16.8	13.3	10.0
K 1.5 mole%	Relative light output	1.19	1.39	1.52	2.06
	Resolution (%)	19.3	18.0	13.1	9.9
Measurement condition	Coarse gain : 5, Fine gain : 0.6, Shaping Time : 3 μ s, HV : -690 V				

Table 3. Energy resolutions and relative light outputs obtained from CsI(Rb) scintillators.

Energy (MeV)		0.511	0.662	0.835	1.275
Rb 0.5 mole%	Relative light output	0.72	0.89	1.15	-
	Resolution (%)	28.7	22.1	17.4	-
Rb 1.0 mole%	Relative light output	0.76	0.92	1.19	1.71
	Resolution (%)	23.4	19.5	14.5	10.1
Rb 1.5 mole%	Relative light output	0.85	1	1.26	1.81
	Resolution (%)	21.1	17.0	13.0	8.7
Rb 2.0 mole%	Relative light output	0.98	1.26	1.42	1.97
	Resolution (%)	22.6	18.0	13.7	9.5
Measurement condition	Coarse gain : 5, Fine gain : 0.6, Shaping Time : 3 μ s, HV : -690 V				

3. 결과 및 논의

3.1. 파고 스펙트럼과 에너지 분해능

본 연구에서 활성제들의 농도를 여러 가지로 변화시켜 제작한 CsI(Li), CsI(K) 및 CsI(Rb) 섬광체들의 ^{137}Cs , ^{54}Mn 및 ^{22}Na γ 선에 대한 파고 스펙트럼은 그림 2, 그림 3 및 그림 4와 같다. 측정 시 검출기에 걸어준 바이어스 전압은 -690 V이었고, 주증폭기의 펄스성형시간은 3 μs 로 하였다.

표 1은 활성제 Li를 0.02, 0.1, 0.2 및 0.3 mole% 첨가한 CsI(Li) 섬광체들의 ^{137}Cs , ^{54}Mn 및 ^{22}Na γ 선에 대한 그림 2의 파고 스펙트럼으로부터 구한 에너지 분해능과 상대광출력을 나타내었다. 상대광출력은 에너지 분해능이 가장 좋은 섬광체의 ^{137}Cs (0.662 MeV)에 대한 광출력(photopeak channel)을 기준으로 하여 나타내었다. 활성제 Li의 농도를 증가할수록 에너지 분해능과 상대 광출력은 향상하였으며, Li 농도가 0.2 mole%일 때 가장 좋았다. 그리고 0.3 mole%부터는 에너지 분해능과 상대 광출력은 저하되었다. Li 농도가 0.2 mole%의 경우 ^{137}Cs (0.662 MeV)에 대한 에너지 분해능은 14.5 %이었고, ^{54}Mn (0.835 MeV)에 대한 에너지 분해능은 11.4 %이었다. 그리고 ^{22}Na 의 붕괴에서 양전자 소멸로 인하여 발생한 에너지(0.511 MeV)에 대한 분해능은 17.7 %이었고, ^{22}Na 딸핵종에서 방출하는 에너지(1.275 MeV)에 대한 분해능은 7.9 %이었다.

표 2는 활성제 K를 0.1, 0.5, 1.0 및 1.5 mole% 첨가한 경우 ^{137}Cs , ^{54}Mn 및 ^{22}Na γ 선에 대한 에너지 분해능과 상대광출력을 나타내었다. K를 0.5 mole% 첨가하였을 때, 에너지 분해능이 가장 좋았으며 ^{137}Cs (0.662 MeV)에 대한 에너지 분해능은 15.9 %이었고, ^{54}Mn (0.835 MeV)에 대한 에너지 분해능은 13.2 %이었다. 그리고 ^{22}Na 의 0.511 MeV와 1.275 MeV γ 선에 대한 에너지 분해능은 각각 19.6 %와 9.4 %이었다. 그리고 상대 광출력은 K의 농도가 증가할수록 향상되었다.

그리고 활성제 Rb를 0.5, 1.0, 1.5 및 2.0 mole% 첨가한 CsI(Rb) 단결정의 ^{137}Cs , ^{54}Mn 및 ^{22}Na γ 선에 대한 에너지 분해능과 상대 광출력은 표 3과 같다. 에너지 분해능은 Rb를 1.5 mole% 첨가하였을 때 가장 좋았으며 ^{137}Cs , ^{54}Mn 및 ^{22}Na γ 선에 대한 에너지 분해능은 각각 17.0 %, 13.0 % 및 21.1 %와 8.7 %이었다. Rb를 0.2 mole% 첨가한 CsI(Rb) 검출기의 ^{22}Na 의 γ 선 에너지(1.275 MeV)에 광붕괴의 강도는 작아서 Compton edge와 구별되지 않아 에너지 분해능을 구할 수 없었다. Rb의 농도가 증가할수록 상대 광출력은 향상되었다.

그림 5는 Li를 0.02, 0.1, 0.2 및 0.3 mole% 첨가한 CsI(Li) 검출기의 γ 선 에너지에 대한 에너지 분해능을 나타낸다. 측정에너지 범위 0.511 ~1.275 MeV 사이에서 에너지 분해능은 γ 선의 에너지에 대하여 선형적이었으며, 그 기울기들의 범위는 -0.89~-0.96 사이이었다. 그리고 에너지 분해능이 가장 좋은 Li를 0.2 mole% 첨가한 CsI(Li) 검출기의 γ 선 에너지에 대한 에너지 분해능 사이의 관계식은 $\ln(FWHM\%) = -0.89 \ln E + 2.28$ 이었다.

그리고 γ 선 에너지에 대한 CsI(K) 검출기의 에너지 분해능은 그림 6과 같다. 0.511~1.275 MeV의 측정에너지 범위에서 직선의 기울기는 -0.73~-0.93이었으며 첨가한 K의 mole%에 대해 큰 변화가 없었다. 그리고 K를 0.5 mole% 첨가한 경우 γ 선 에너지에 대한 에너지 분해능 사이의 관계식은 $\ln(FWHM\%) = -0.80 \ln E + 2.44$ 이었다.

또한 CsI(Rb) 검출기의 에너지 분해능은 그림 7과 같다. 측정에너지 범위 0.511~1.275 MeV 사이의 에너지 영역에서 직선의 기울기는 -0.95 ~-1.02사이이었다. 그리고 Rb를 1.5 mole% 첨가한 CsI(Rb) 검출기의 γ 선 에너지에 대한 에너지 분해능 사이의 관계식은 $\ln(FWHM\%) = -0.98 \ln E + 2.40$ 이었다.

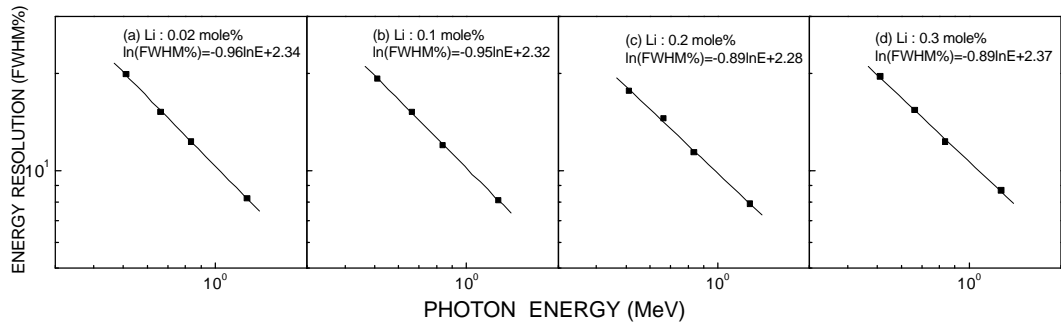


Fig. 5. Energy resolution of CsI(Li) scintillators as a function of energy.

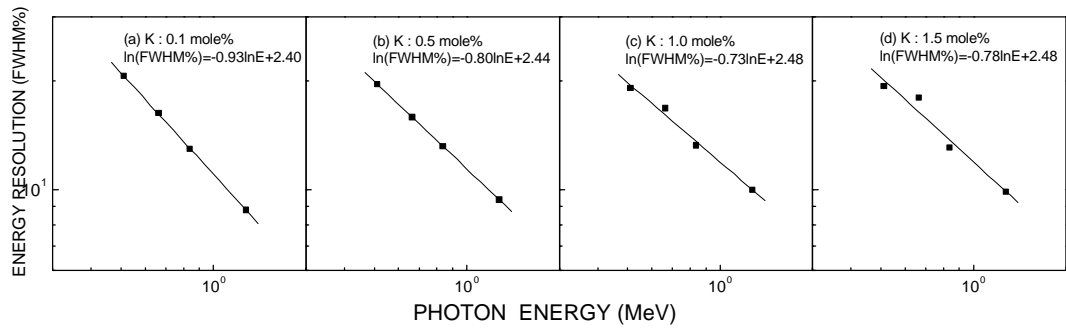


Fig. 6. Energy resolution of CsI(K) scintillators as a function of energy.

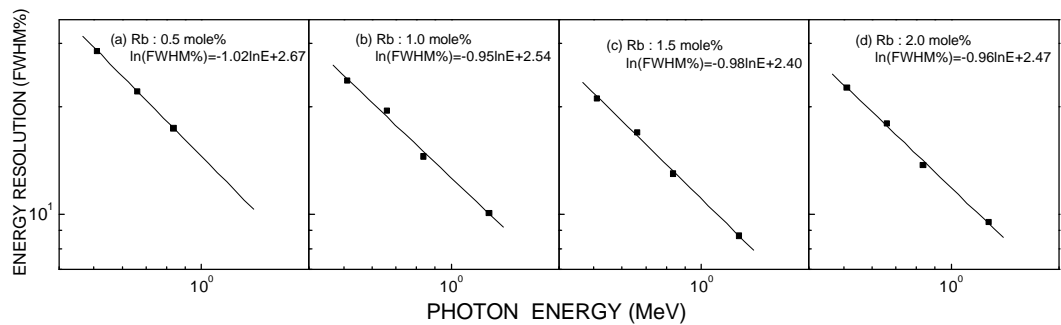


Fig. 7. Energy resolution of CsI(Rb) scintillators as a function of energy.

3.2. 에너지 교정곡선

그림 8은 그림 2의 파고스펙트럼으로부터 구한 CsI(Li) 섬광체의 에너지 교정곡선이다. 활성제 Li의 농도가 0.02, 0.1, 0.2 및 0.3 mole%일 때, 에너지 교정곡선들의 기울기는 거의 유사하였으며, 기울기의 크기는 1.57~1.79 사이이었다. 그리고 Li를 0.2 mole% 첨가한 경우 섬광체의 에너지 교정곡선은 $E_{\gamma}=1.60(ch.)-378$ 이었다.

CsI(K) 검출기의 에너지 교정곡선은 그림 9와 같으며 에너지 교정곡선의 기울기 범위는 1.23~1.48 사이였다. 그리고 K를 0.5 mole% 첨가한 CsI(K) 검출기의 에너지 교정곡선은 $E_{\gamma}=1.48(ch.)-381$ 이었다.

또한 CsI(Rb) 검출기의 Rb의 농도에 따른 에너지 교정곡선은 그림 10과 같으며, 에너지 교정곡선의 기울기 범위는 1.46~1.54 사이였다. 그리고 Rb를 1.5 mole% 첨가한 CsI(Rb) 검출기의 에너지 교정곡선은 $E_{\gamma}=1.51(ch.)-142$ 이었으며, 이들의 선형성은 매우 좋았다.

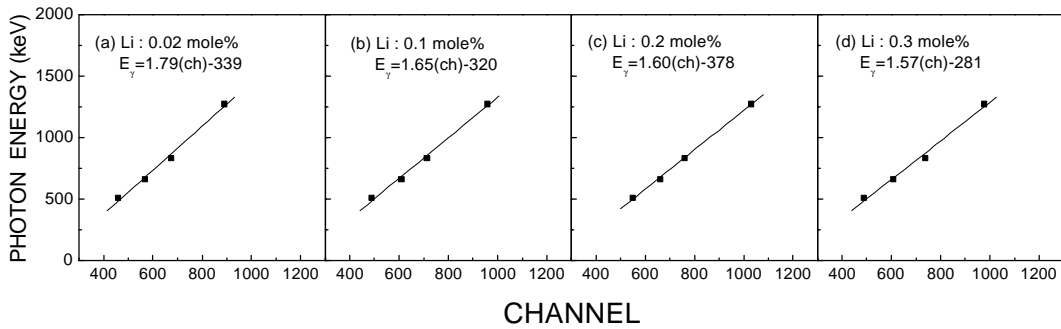


Fig. 8. Energy calibration curves for CsI(Li) scintillators.

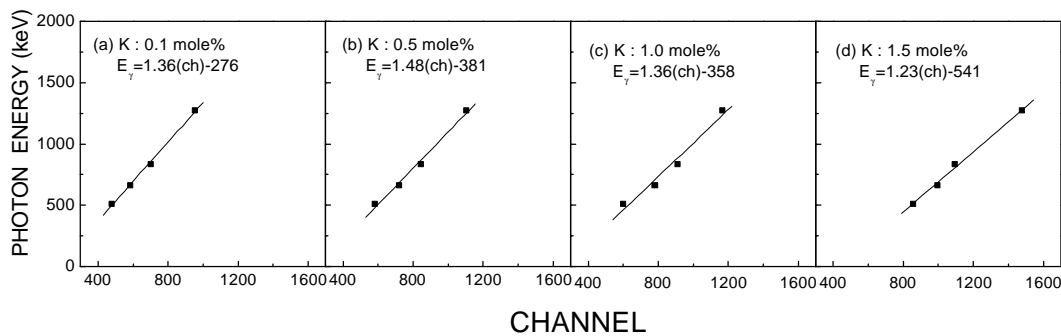


Fig. 9. Energy calibration curves for CsI(K) scintillators.

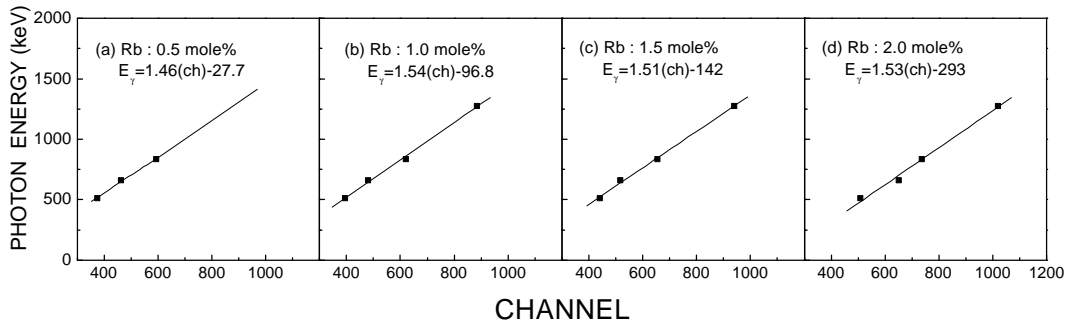


Fig. 10. Energy calibration curves for CsI(Rb) scintillators.

3.3. 시간분해능

본 실험에서 육성한 CsI(Li), CsI(K) 및 CsI(Rb) 섬광체의 시간 분해능은 일정비율 시간 분석법 (CFT; constant-fraction time method)을 사용하여 측정하였으며 Fast-Filter-Amp의 미분 시정수 (D)를 100 ns, 적분 시정수(I)를 100 ns로 하였고 1 채널당 시간은 0.488 ns이었다.

그림 11은 Li를 활성제로 첨가한 CsI(Li) 섬광체들의 시간스펙트럼과 시간 분해능이다. 시간 분해능은 Li를 0.02 mole% 첨가하였을 때, 가장 좋게 나타났으며 약 7.9 ns이었다.

그림 12는 K를 활성제로 첨가한 CsI(K) 섬광체들의 시간스펙트럼이다. 시간 분해능은 K를 0.1 mole% 첨가하였을 때, 약 11.6 ns로 가장 좋았으며, K의 농도를 증가할수록 시간 분해능은 저하하였다.

그리고 Rb를 활성제로 첨가한 CsI(Rb) 섬광체들의 시간스펙트럼은 그림 13과 같다. 첨가한 Rb 농도 0.5~2.0 mole% 범위 내에서 시간 분해능의 변화는 8.8~10.7 ns로서 큰 변화는 없었다.

3.4. 형광 및 인광특성

잔광(after glow)은 발광의 자극 에너지 공급(X(γ)선, 하전입자 등)을 중단한 후의 발광을 의미하며, 발광현상은 그 기구(mechanism)에 의해 형광(fluorescence)과 인광(phosphorescence)으로 구별된다. 형광과정은 몇 가지 방법에 따라 특정물질들이 여기된 후 매우 짧은 시간($\sim 10^{-8}$ s) 동안

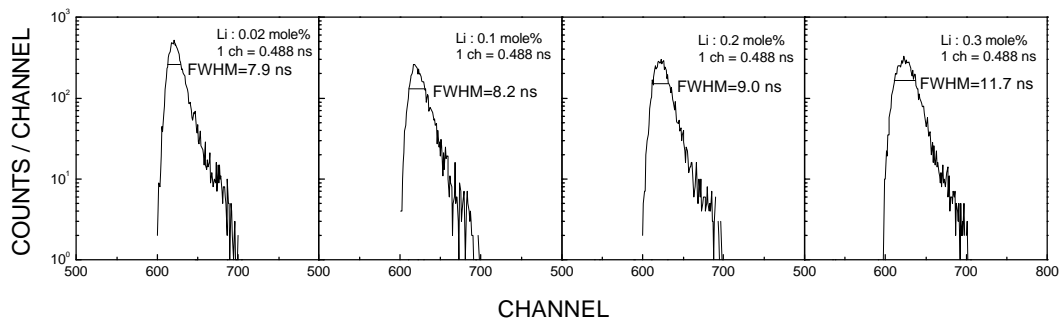


Fig. 11. Time spectra measured with CsI(Li) scintillators for 0.511 MeV γ -rays from ^{22}Na .

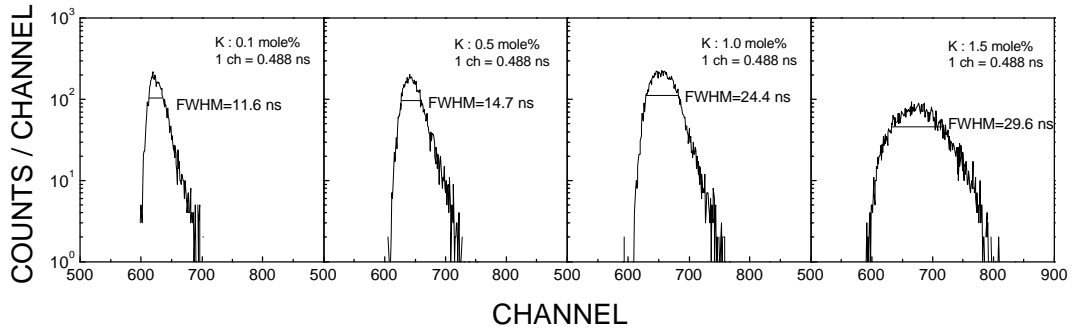


Fig. 12. Time spectra measured with CsI(K) scintillators for 0.511 MeV γ -rays from ^{22}Na .

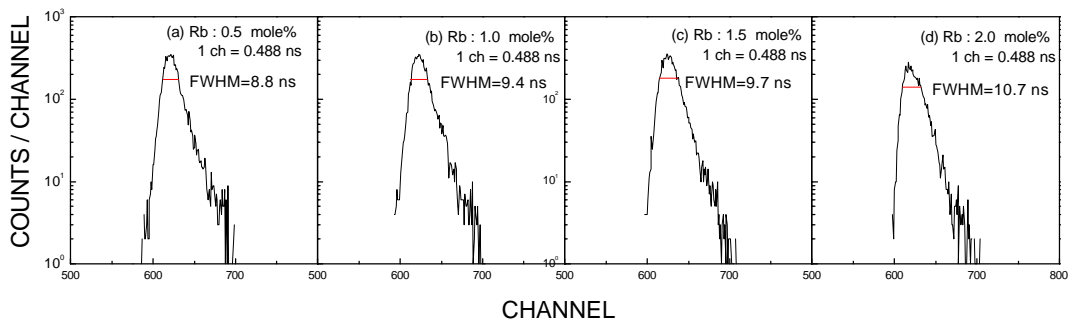


Fig. 13. Time spectra measured with CsI(Rb) scintillators for 0.511 MeV γ -rays from ^{22}Na .

에 나타나는 가시광의 即發放出(prompt emission) 현상을 말한다. 그리고 인광은 형광보다 파장이 긴 광의 방출이며 동시에 일반적으로 그 특성시간이 더욱 길다. 그리고 인광특성은 출발물질의 순도, 활성제의 종류와 농도 및 결정육성 방법 등에 의존한다[11,22].

그림 14는 Li를 0.02, 0.1, 0.2 및 0.3 mole% 첨가한 CsI(Li) 검출기의 형광감쇠곡선을 나타낸 것이다. 제작한 CsI(Li) 검출기의 형광감쇠시간은 이 점광펄스곡선에 자연대수를 취하여 직선이 되는 부분에 1차함수 형태로 최소자승법 fitting하여 구하였다. 형광감쇠곡선은 빠른 감쇠성분(τ_1)과 느린 감쇠성분(τ_2)으로 구성되어있었다. 그림 14에서 보는바와 같이 Li의 농도가 증가함에 따라 CsI(Li) 검출기의 빠른 감쇠성분(τ_1)은 38.6 ns ~ 43.1 ns로 거의 일정하였고, 느린 감쇠성분(τ_2)은 373 ns에서 433 ns로 증가하는 경향을 나타내었다.

그림 15는 K를 0.1, 0.5, 1.0 및 1.5 mole% 첨가한 CsI(K) 검출기의 형광감쇠곡선을 나타낸 것이다. 그림 15에서 보는바와 같이 K의 농도가 0.1 mole%에서 1.5 mole%로 증가함에 따라 CsI(K) 검출기의 빠른 감쇠성분(τ_1)은 36.8 ns에서 51.4 ns로 약간 증가하였다. 그러나 느린 감쇠성분(τ_2)은 515 ns에서 292 ns로 감소하였다.

그리고 Rb를 활성제로 0.5, 1.0, 1.5 및 2.0 mole% 첨가한 CsI(Rb) 검출기의 형광감쇠곡선은 그

림 16에 나타내었다. 그림 16에서 보는바와 같이 Rb의 농도가 0.5 mole%에서 2.0 mole%로 증가함에 따라 CsI(Rb) 검출기의 빠른 감쇠성분(τ_1)은 36.6 ns ~ 43.1 ns로 거의 일정하였고, 느린 감쇠성분(τ_2)은 893 ns에서 633 ns로 감소하는 경향을 나타내었다.

그림 14, 15 및 16에서 알 수 있듯이 빠른 감쇠성분은 본 실험에서 첨가한 활성제의 종류(Li, K 및 Rb)에 관계없이 큰 변화가 없었고, 느린 감쇠성분은 활성제의 농도가 증가함에 따라 감소하는 경향을 나타내었다.

본 연구에서 육성한 CsI(Li), CsI(K) 및 CsI(Rb) 단결정들은 방사선 조사 후 인광을 나타내었다. 그림 17은 Li를 0.02, 0.1, 0.2 및 0.3 mole% 첨가한 CsI(Li) 섬광체의 인광감쇠시간을 측정한 인광 감쇠곡선이다. 그림 17에서 보는 바와 같이 활성제 Li를 0.02 mole%에서 0.2 mole%까지 첨가한 CsI(Li) 섬광체의 인광감쇠시간은 빠른 성분($\tau_1 \cong 0.5$ s)만 나타났으며 그 값은 일정하였다. 그러나 Li의 농도가 0.3 mole%에서의 인광 감쇠시간은 빠른 감쇠성분(τ_1)과 느린 감쇠성분(τ_2)으로 나타났고 그 값은 각각 0.53 s 및 17.00 s였다. 그리고 K와 Rb를 활성제로 첨가한 CsI(K)와 CsI(Rb) 섬광체들의 인광감쇠곡선은 그림 18에 나타내었으며, 인광감쇠시간은 K와 Rb의 농도에 관계없이 한가지 성분만 나타났고, 그 값은 각각 0.57 s 및 0.56 s 정도로 일정하였다.

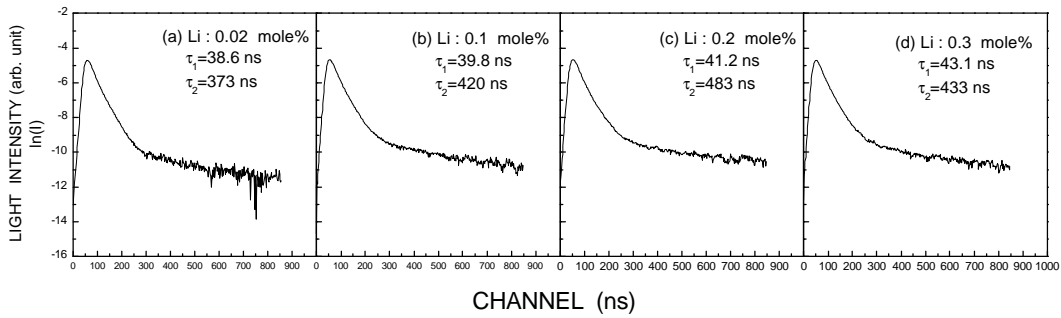


Fig. 14. Fluorescence decay curves for CsI(Li) scintillators.

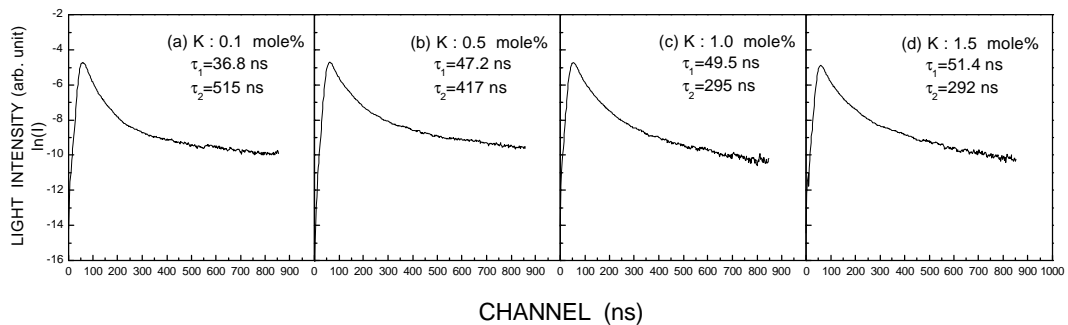


Fig. 15. Fluorescence decay curves for CsI(K) scintillators.

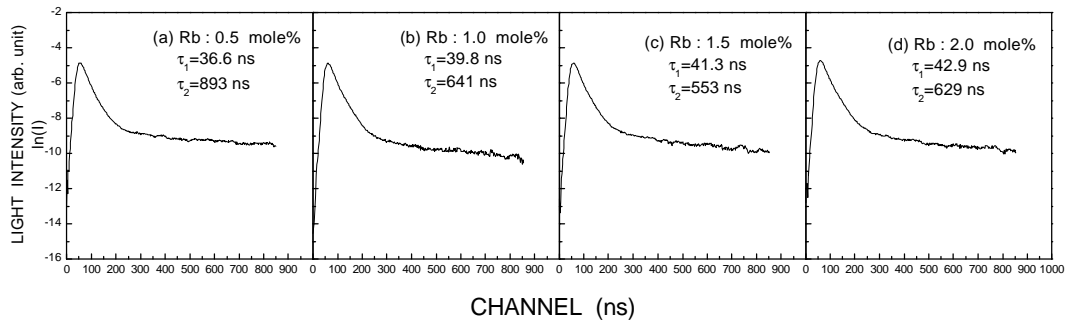


Fig. 16. Fluorescence decay curves for CsI(Rb) scintillators.

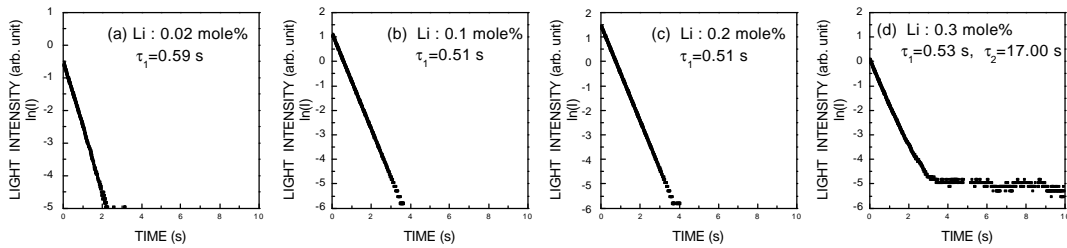


Fig. 17. Phosphorescence decay curves for CsI(Li) single crystals.

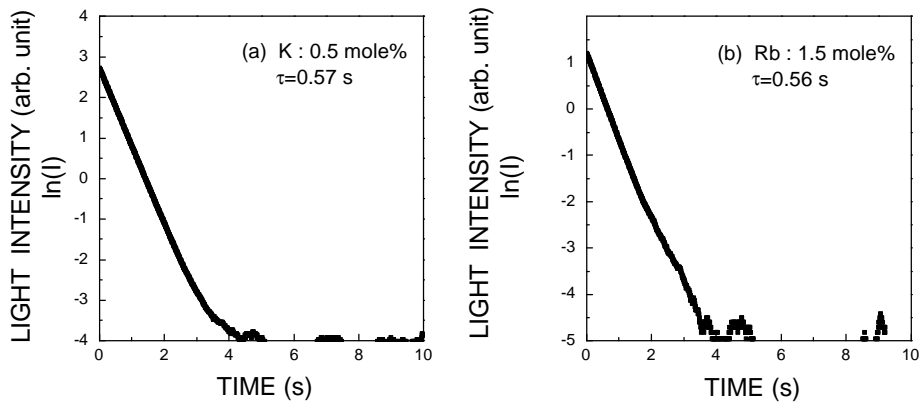


Fig. 18. Phosphorescence decay curves for (a) CsI(K) and (b) CsI(Rb) single crystals.

4. 결론

본 연구에서는 활성제로 알칼리족 원소인 Li^+ , K^+ 혹은 Rb^+ 이온을 첨가한 $\text{CsI}(\text{Li})$, $\text{CsI}(\text{K})$ 및 $\text{CsI}(\text{Rb})$ 단결정들을 Czochralski방법으로 육성하였다. 육성한 단결정들의 섬광 특성과 시간 특성을 측정 비교하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

(1) 활성제로 첨가시킨 lithium의 농도가 0.02, 0.1, 0.2 및 0.3 mole%인 $\text{CsI}(\text{Li})$ 섬광체들의 ^{137}Cs γ 선(0.662 MeV)에 에너지 분해능은 각각 15.2, 15.2, 14.5 및 15.4 %이었고 ^{54}Mn γ 선(0.835 MeV)에 대한 에너지 분해능은 각각 12.3, 12.0, 11.4 및 12.3 %이었으며 ^{22}Na 의 양전자 소멸로 인한 0.511 MeV에 대한 에너지 분해능은 각각 19.9, 19.3, 17.7 및 19.6 %이었고 1.275 MeV에 대한 에너지 분해능은 각각 8.2, 8.1, 7.9 및 8.7 %이었다.

(2) potassium을 0.1, 0.5, 1.0 및 1.5 mole% 첨가시킨 $\text{CsI}(\text{K})$ 섬광체의 γ 선에 대한 에너지 분해능은 potassium을 0.5 mole% 첨가시켰었을 때 가장 좋았으며 ^{137}Cs (0.662 MeV)에 대한 것은 15.9 % ^{54}Mn (0.835 MeV)에 대한 것은 13.2 % ^{22}Na 의 0.511 MeV와 1.275 MeV에 대한 것은 각각 19.6 %와 9.4 %이었다.

(3) rubidium을 0.5, 1.0, 1.5 및 2.0 mole% 첨가시킨 $\text{CsI}(\text{Rb})$ 섬광체의 γ 선에 대한 에너지 분해능은 rubidium을 1.5 mole% 첨가시켰었을 때 가장 좋았으며 ^{137}Cs (0.662 MeV)에 대한 것은 17.0 % ^{54}Mn (0.835 MeV)에 대한 것은 13.0 % ^{22}Na 의 0.511 MeV와 1.275 MeV에 대한 것은 각각 21.1 %와 8.7 %이었다.

(4) 일정비율시간분석법(CFT)으로 측정한 시간분해능은 CsI 에 lithium을 각각 0.02, 0.1, 0.2 및 0.3mole% 첨가시켰을 때 7.9 ns, 8.2 ns, 9.0 ns 및 11.7 ns이었다. potassium을 0.1, 0.5, 1.0 및 1.5 mole% 첨가시킨 $\text{CsI}(\text{K})$ 검출기의 시간 분해능은 각각 11.6 ns, 14.7 ns, 24.4 ns 및 29.6 ns로 농도가 증가함에 따라 시간분해능도 증가하였다. 그리고 rubidium을 0.5, 1.0, 1.5 및 2.0 mole% 첨가시킨 $\text{CsI}(\text{Rb})$ 검출기의 시간분해능은 8.8 ns, 9.4 ns, 9.7 ns 및 10.7 ns이었으며 농도에 관계없이 거의 일정하였다.

(5) storage digital oscilloscope로 측정한 형광감쇠상수는 활성제의 종류와 농도에 관계없이 빠른 성분(τ_1)과 느린 성분(τ_2)으로 나타났다. lithium을 0.02, 0.1, 0.2 및 0.3 mole% 첨가시킨 $\text{CsI}(\text{Li})$ 검출기의 형광감쇠상수는 빠른 성분(τ_1)이 각각 38.6 ns, 39.8 ns, 41.2 ns 및 43.1 ns이었고 느린 성분(τ_2)은 각각 373 ns, 420 ns, 483 ns 및 433 ns이었다. 빠른 감쇠성분은 활성제의 종류(Li, K 및 Rb)에 관계없이 큰 변화가 없었고, 느린 감쇠성분은 활성제의 농도가 증가함에 따라 감소하는 경향을 나타내었다.

(6) potassium을 0.1, 0.5, 1.0 및 1.5 mole% 첨가시킨 $\text{CsI}(\text{K})$ 검출기의 형광감쇠상수는 빠른 성분(τ_1)이 각각 36.8 ns, 47.2 ns, 49.5 ns 및 51.4 ns이었고 느린 성분(τ_2)은 각각 515 ns, 417 ns, 295 ns 및 292 ns이었다. 그리고 rubidium을 0.5, 1.0, 1.5 및 2.0 mole% 첨가시킨 $\text{CsI}(\text{Rb})$ 검출기의 형광감쇠상수는 빠른 성분(τ_1)이 각각 36.6 ns, 39.8 ns, 41.3 ns 및 42.9 ns이었고 느린 성분(τ_2)은 각각 893 ns, 641 ns, 552 ns 및 629 ns이었다.

(7) lithium을 첨가시킨 $\text{CsI}(\text{Li})$ 단결정의 인광감쇠상수는 0.2 mole%까지는 빠른 성분($\tau_1 \approx 0.5$ s) 하나만 나타났고 lithium을 0.3 mole% 첨가시킨 검출기의 인광감쇠상수는 빠른 성분($\tau_1 \approx 0.5$ s)과 느린 성분($\tau_2 \approx 17.0$ s)으로 나타났다. 그리고 potassium과 rubidium을 활성제로 첨가시킨 $\text{CsI}(\text{K})$ 와 $\text{CsI}(\text{Rb})$ 단결정들의 인광감쇠상수는 농도에 관계없이 한가지 성분으로 0.57 s 및 0.56 s 정도였다.

(8) 본 실험에서 알칼리금속을 첨가하여 육성한 $\text{CsI}(\text{Li})$, $\text{CsI}(\text{K})$ 및 $\text{CsI}(\text{Rb})$ 단결정의 에너지 분해능과 시간 특성은 활성제 Li, K 및 Rb의 농도가 각각 0.2 mole%, 0.5 mole%

및 1.5 mole%일 때 가장 좋았다.

이상에서와 같이 본 연구에서 제작한 CsI(Li), CsI(K) 및 CsI(Rb) 섬광체는 에너지 분해능이 다소 크지만, 형광감쇠시간이 짧고, 시간 분해능이 좋으며 인광감쇠시간이 짧으므로 방사선이 10^7 개/s 이상의 고선량을 이용하는 여러 가지 응용분야에 이용될 수 있다고 생각된다. 앞으로의 연구과제는 방사선에 대한 손상과 회복, 열형광 특성을 연구하는 것이 필요하다.

참 고 문 헌

- [1] R. Hofstadter, Phys. Rev. **74**, 100(1948).
- [2] G. David, E. Kistenev, S. Stoll, S. White, C. Woody, A. Bazilevsky, S. Belikov, S. Chernichenkov, A. denisov, Yu. Gilitzky, V. Kochetkov, Y. Melnikov, V. Onuchin, A. Semenov, V. Shelikhov and A. Soldatov, Trans. Nucl. Sci. **45**(3), 705(1998).
- [3] W. N. Johnson, J. E. Grove, B. F. Philips, J. P. Norris and A. A. Moiseev, Nucl. Sci. Symposium **1**, 27(1998).
- [4] A. Del Guerra, G. Di Domemico, M. Scandola and G. Zavattini, Nucl. Instr. meth. **A409**, 537(1998).
- [5] A. Saoudi and R. Lecomte, Trans. Nucl. Sci. **46**(3), 479(1999).
- [6] S. D. Chotoo, T. A. Devol and R. A. Fjeld, Trans. Nucl. Sci. **44**(4), 1630(1997).
- [7] V. V. Nagarkar, S. V. Tipnis, T. K. Gupta, S. R. Miller, V. B. Gaysinkiy, Y. Klugerman, M R. Squillante, G. Entine and W. W. Moses, Trans. Nucl. Sci. **46**(3), 232(1999).
- [8] R. Hofstadter, Nucleonics **6**(5), 70(1950).
- [9] R. Gwin and R. B. Murray, Phys. Rev. **131**(2), 501(1963).
- [10] R. Gwin and R. B. Murray, Phys. Rev. **131**(2), 508(1963).
- [11] S. Kubota, S. Sakuragi, S. Hashimoto and J. Ruan, Nucl. Instr. Meth. **A268**, 275(1988).
- [12] C. H. Chen, M. P. McChann and J. C. Wang, Solid State Commun. **61**, 559(1987).
- [13] S. Chernov and V. Gavrilov, Radiation Effects and Defects in Solids **135**, 333(1995).
- [14] M. Ishii and M. Kobayashi, Prog. Crystal Growth and Charact. Matter, **23**, 245(1992).
- [15] A. V. Gektin, A. I. Gorelov, V. I. Rykalin, V. I. Selivanov, N.V. Shiran and V. G. Vasil'chenko, Nucl. Instr. Meth. **A294**, 591(1990).
- [16] A. V. Gektin, N. V. Shiran, A. N. Belskey and A. N. Vasil'ev, Nucl. Tracks. Meas., **21**, 1, 11(1993).
- [17] A. N. Belsky, A. N. vasil'ev, V. V. Mikhailin, A. V. Gektin, N. V. Shiran, A. L. Rogalev and E. I. Zinin, Rev. Sci. Instrum. 806(1992).
- [18] L. P. Smol'skaya and T. A. Kolesnikova, Opt. Spectrosc. **79**(6), 871(1995).
- [19] B. C. Grabmaier, Trans. Nucl. Sci. **NS-31**(1), 372(1984).
- [20] Y. J. Wang, B. E. Patt, J. s. Iwanczyk, S. R. cherry and Y. Shao, Trans. Nucl. Sci. **42**(4), 601(1995).
- [21] G. F. Knoll, *Radiation detection and measurement*, John Willey & Sons, 559(1989).
- [22] B. K. Utts and S. E. Spagno, Trans. Nucl. Sci. **37**, 134(1990).