

Synthesis and Spectroscopic Properties of Cerium Doped Lanthanum Fluoride Nanoparticles

이준형, 김재우, 서덕봉, 김현진

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

junlee@kari.re.kr

1. 서론

최근 일본에서의 원전사고는 원자력 시설의 안정성 확보가 얼마나 중요한 요인이지를 다시 한번 일깨워 주었다. 방사성 물질에 대한 검출-감시는 원전시설, 사용후핵연료를 비롯한 방사성폐기물 수송, 저장, 및 처분시설, 병원, 가속기 등 방사선 관련 시설의 안정성 확보를 위하여 매우 중요하다. 기존에 사용되던 감마선 검출방법은 Sodium iodide나 Lanthanum halide와 같은 무기 단결정 섬광체가 보편적으로 사용되어져 왔다.⁽¹⁾⁽²⁾ 그러나 이러한 방법은 단결정을 성장시키기 어렵고 비용이 많이 들어 대량 사용에 어려움이 있었다. 또한 습기나 충격에 약한 단점이 있어 장소 및 용도 등에 제한이 있는 것으로 알려져 있다. 이러한 관점에서, 최근에 연구되어지고 있는 방법 중 한 가지는 나노입자를 이용한 섬광체의 개발이다. 이것은 나노입자의 합성이 단결정을 성장시키는 것에 비해 상대적으로 쉬울 뿐 아니라, 고분자에 분산되어 나노복합 섬광체로 사용되는 경우 상대적으로 저렴한 가격에 넓은 검출 면적을 확보 할 수 있다는 장점을 가지고 있다. 또한 습기나 충격에 강하여 일본 원전사고의 원인이었던 해일이나 지진에 강한 섬광체의 개발이 가능하다. 고분자 나노복합 섬광체 제조의 전단계로서 본 연구에서는, 새로운 감마선 검출 섬광체로 알려져 있는 Cerium이 도핑된 LaF_3 나노입자를 합성하고 도핑이온의 농도 변화에 따라 입자의 구조와 분광학적 특성이 어떻게 변화되는지 살펴보았다.⁽³⁻⁵⁾

2. 실험방법

$\text{LaF}_3(\text{Ce})$ 나노입자는 다음과 같이 수열합성법(thermal hydrolysis)을 사용하여 제조되었다. $\text{LaCl}_3 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ (2.82 g)을 30 mL의 증류수에 용해시킨 후, Ce 도핑농도를 차별화하기 위해 $\text{CeCl}_3 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 를 각각 1.14 g, 3.42 g, 및 6.84 g 을 용해시킨 용액을 각각 첨가한다. 이어서 NH_4F (0.88 g,

10 mL)을 10분에 걸쳐 첨가한 후 적절한 온도(~ 50 °C 이상)에서 적당한 시간동안 교반시킨다. 이후 상온에서 원심분리를 통해서 침전물을 얻어낸다. 이때 얻어낸 침전물은 3회에 걸쳐 증류수와 에탄올로 세척하였다. 제조된 나노입자는 전자투시현미경(TEM: Transmission Electron Microscopy), XRD(X-ray Diffraction Spectrometer) 및 형광분석기(Fluorescence Spectrometer)를 이용하여 각각 입도와 형상 및 성분, 형광특성을 분석하였다.

3. 실험결과

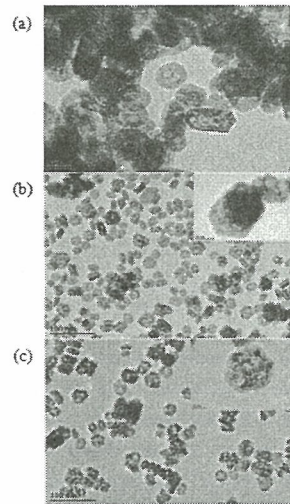


Fig. 1. TEM images of the LaF_3 nanoparticles doped with (a) 5 wt% Ce^{3+} (b) 15 wt% Ce^{3+} (c) 30 wt% Ce^{3+} .

Figure 1은 각각 5 wt%, 15 wt%, 30 wt% Ce^{3+} 이 도핑되어 있는 LaF_3 나노 입자의 TEM 이미지를 보여주고 있다. 전체적으로 약 25 nm의 육각형 형상을 가지고 있으며 Ce^{3+} 의 농도가 증가함에 따라 육각형 형태의 구조가 증가하였다. Figure 2의 XRD 패턴은 기존의 알려진 참고문헌

의 LaF₃와 일치함을 확인 할 수 있었고 2θ=27.8°에서 가장 강한 피크 (111)를 나타내었다.⁽⁶⁾⁽⁷⁾

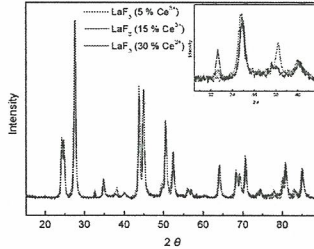


Fig. 2. XRD spectrums of the synthesized LaF₃(Ce) nanoparticles.

분광학적 특성을 살펴보면 257 nm에서 흡수과광을 나타내며 300 nm에서 방출하는 것을 확인 할 수 있었다. 특히, Ce³⁺의 농도가 증가함에 따라 340 nm에서의 방출과광의 강도가 증가하는 것을 확인 할 수 있었다. 이것은 Ce³⁺의 5d → 4f 전이에 의한 결과라고 예상된다.⁽⁸⁾⁽⁹⁾

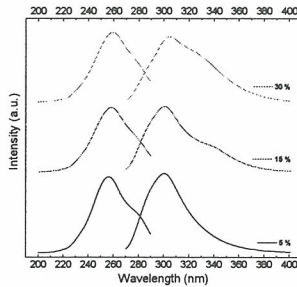


Fig. 3. (Left) Absorption spectra of LaF₃ doped with 5 wt%(black), 15 wt%(red), and 30 wt%(green) Ce³⁺ nanoparticles. (Right) Emission spectra following excitation at 257nm of LaF₃ doped with 5 wt%, 15 wt%, and 30 wt% Ce³⁺ nanoparticles.

4. 결론

본 연구를 통하여 수열합성을 통해 수용성 LaF₃(Ce) 나노입자를 성공적으로 합성하였고, Ce³⁺의 농도에 따라 나노입자를 합성하였다. TEM, XRD, UV-VIS, 및 형광측정 등 다양한 분석을 통하여 Ce 도핑농도의 증가가 란타넘 나노입자의 육각형 구조를 증가시키고 340 nm에서 방출과광의 강도를 증가시키는 것을 확인 하였다. 이러한 연구결과는 무기 섬광나노입자가 분산된 고분자 나노복합 섬광체 제조에 매우 중요한 결과로 대

면적이면서 유연하고 습기와 충격에 강한 감마선 검출기를 개발하는 도움이 될 것으로 판단된다.

5. 감사의 글

본 연구는 한국원자력연구원에서 주관하는 창의연구사업의 지원으로 수행되었습니다.

6. 참고문헌

- [1] E. V. D. van Loef, P. Dorenbos, C. W. E. van Eijk, K. W. Kramer, H. U. Gudel. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, **486**, 254-258, 2002.
- [2] E. V. D. van Loef, P. Dorenbos, C. W. E. van Eijk, K. W. Kramer, H. U. Gudel. Appl. Phys. Lett. **77**, 1467, 2000.
- [3] M. D. Birowosuto, P. Dorenbos, C. W. E. V. Eijk, K. W. Kramer, and H. U. Gudel, IEEE Trans. Nucl. Sci. **52**, 1114, 2005.
- [4] E. Radzhabov, Radiat. Eff. Defects Solids **158**, 203, 2003.
- [5] M. S. Zhang, J. Yu, W. C. Chen, and Z. Yin, Prog. Cryst. Growth Charact. Mater. **40**, 33, 2000.
- [6] W. Chen, J. Zhang, S. L. Westcott, A. G. Joly, J.-O. Malm, and J.-O. Bovin, J. Appl. Phys. **99**, 34302, 2006.
- [7] M. Yao, X. Zhang, L. Ma, W. Chen, A. G. Joly, J. Huang, and Q. Wang. J. Appl. Phys. **108**, 103104, 2010.
- [8] L. R. Elias, W. S. Heaps, and W. M. Yen. Phys. Rev. B-8, 4989-4995, 1973.
- [9] P. Dorenbos, C. W. E. v. Eijk, R. W. Hollander, and P. Schotanus, IEEE Trans. Nucl. Sci. **37**, 119, 1990.