

CsI(Tl) 방사선센서의 제작 및 분광특성 연구

경기대학교 자연과학부

권수일 · 신동호

실험실에서 성장시킨 CsI(Tl)섬광체를 이용하여 검출기를 설계 제작하고 분광 및 출력특성을 조사하여 핵분광과 진단방사선센서로서의 응용가능성을 타진해 보았다. CsI(Tl)단결정은 수직 Bridgman성장장치를 이용하여 지름 11mm, 몰농도 0.001mol%로 성장시키었다. 이 단결정을 광다이오드를 이용하여 방사선 센서로 제작한 후, ²²Na, ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co 표준감마선원에 대한 에너지 분해능을 각각 측정하였으며 진단 X선 영역에 대한 출력특성도 측정하였다. ²²Na의 0.511 MeV 의 경우13.2%, ¹³⁷Cs의 0.662 MeV의 경우 8.3%, 그리고 ⁶⁰Co의 1.17 MeV와 1.332 MeV에 대해서는 각각 6.7%와 5.1%의 에너지 분해능을 얻었다. 또한 관전압 60kVp, 80kVp, 100kVp, 120kVp 에 대하여 5mAs부터 80mAs 까지 진단 X선영역에 대한 출력 선형성을 확인하였다.

중심단어 : CsI(Tl)섬광체, 방사선센서, 광다이오드, 에너지분해능, 선형성

서 론

CsI섬광체 결정은 섬광체 NaI(Tl), BGO 결정에 비해 검출기 섬광체로 유리한 장점을 가지고 있다. NaI(Tl)은 높은 광수율과 짧은 감쇠시간(decay time)을 갖고 있으나 조해성(潮解性:hygroscopic)이 심하고 충격에 약한 것이 단점이다[1]. BGO는 큰 원자번호에 기인하는 높은 저지능(stopping power)과 물리 화학적으로 안전된 장점을 갖고 있으나, 가공이 어렵고 광수율(light yield)이 낮은 것이 단점으로 지적되고 있다.

CsI는 큰 원자번호(Cs:Z=55, I:Z=53)에 기인하여 소형의 검출기로도 고에너지의 방사선을 검출할 수 있는 높은 저지능(stopping power, CsI:1.85cm, NaI:2.59cm)을 가지며 물리적으로 안정하며 조해성도 심하지 않을 뿐 아니라 높은 광수율(52,000photons/MeV)도 갖는다. 또한 실리콘 광 다이오드를 사용할 경우 광전증배관 보다 5배 가량 높은 양자효율의 검출기를 만들 수 있으며 자기장에서도 사용 가능한 이점도 가지고 있다[2].

본 연구에서는 방사선센서로 사용할 CsI(Tl)단결정을 자

체 제작한 Bridgman단결정 성장장치를 이용하여 성장시켰다[3]. 현재 순수한 CsI의 섬광 효율을 높이기 위해 첨가하는 활성제(activator)로 효율이 가장 좋은 것으로 알려진 Tl을 첨가하여 CsI(Tl)단결정을 성장시켜 검출기를 제작하고 분광 및 출력특성을 조사하였다[4],[5]. 그리고 여기서 얻은 단결정을 광다이오드를 이용하여 방사선센서를 제작 한 후 ²²Na, ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co의 γ 표준선원에 대한 에너지 분해능을 측정하고, 진단 X선 영역에 대한 출력특성을 측정하여 방사선센서로서의 일반적 응용 가능성을 조사하였다.

재료 및 방법

1. 시료의 준비

CsI(Tl) 단결정 성장을 위한 시료는 Aldrich Chemical Co.의 분말형 99.9%의 CsI와 99.999%의 Tl을 0.001mole%로 잘 혼합하여 사용하였다. 시료를 넣기 위한 석영도가니는 내경 12 mm, 두께 2 mm, 순도 99.9%의 석영관을 가공하여 제작하였다. Bridgman 성장로의 경우 씨앗결정(seed crystal)을 사용하지 않기 때문에 석영관의 한쪽 끝부분을 약 45°의 각도로 뾰족하게 막은 후 시료를 넣고 진공 밀봉(10⁻³ torr)을 한 후 끝부분을 고리모양으로 만들어 사용하였다.

이 논문은 2002년 1월 15일 접수하여 2002년 3월 4일 채택되었음.

이 논문은 1999학년도 경기대학교 해외파견 연구비지원에 의해 연구되었음.

통신저자 : 권수일, 경기도 수원시 팔달구 이의동 산94-6
경기대학교 자연과학부
Tel : 031-249-9618
E-mail : sikwon@kuic.kyonggi.ac.kr

2. 단결정 성장

사용된 수직 Bridgman 단결정 성장장치의 구조는 크게 시료가 진공 봉입된 석영도가니를 전기로(electric furnace) 속으로 내려주는 하강기어장치와, 시료를 가열하여 녹여주는 가열장치, 그리고 정밀온도제어장치 세 부분으로 구분된다. 하강기어장치는 D.C. 15V, 5rpm의 소형저속기어모터와 감속기어를 이용하여 시간당 1 mm에서 10 mm까지 속도를 변화시킬 수 있다.

전기가열장치는 내화벽돌 안에 지름 50 mm, 길이 300 mm의 원통모양의 구멍을 파서 지름 1.5 mm의 칸탈열선을 이용하였다. 이 전기로는 정밀자동온도 조절 장치와 Pt-type의 열전쌍(thermocouple)을 연결하여 결정성장시간동안 일정한 온도 $621 \pm 1^\circ\text{C}$ 를 유지하게 하였다.

성장된 CsI(Tl)단결정의 직경은 11 mm로 센서에 알맞은 크기인 길이 11 mm 절단 가공하여 사용하였다(Fig. 1).

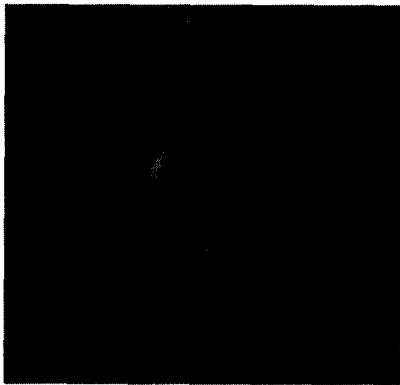


Fig. 1. CsI(Tl) single crystal(height:11mm, diameter:11mm).

3. 섬광센서의 제작

CsI(Tl)의 다이오드창과의 접촉면은 매우 좋은 광학적 표면 상태를 요구하므로 결정표면 연마시에 결정이 갖는 약간의 조해성을 이용하여 알코올에 젖은 종이를 사용하여 광택 처리하였다. 또한 CsI(Tl)에서 외부로 방출되는 빛의 손실을 극소화하기 위하여 광다이오드의 창과의 접촉면을 제외한 모든 면을 30 μm 의 Al_2O_3 분말과 아세톤을 섞어 거칠게 표면처리를 하였다. 반사체는 시중에서 구하기 쉽고 사용이 편리한 테프론 테잎을 감아서 반사면을 형성시켰다. 센서제작에 사용된 광다이오드는 두 가지로 핵분광용으로는 10 mm \times 10 mm 크기의 Hamamatsu의 S3590-01를 사용하였으며, 진단X선 방사선 센서용으로는 8 mm \times 6 mm 크기의 SHARP BS520을 사용하였다.

가공된 CsI(Tl)단결정을 광다이오드에 접합시켜 센서를 제작할 때 입사창과 단결정의 굴절을 차이에 의한 빛의 손실을 줄여 빛이 투과 효과를 최대한으로 높여 주기 위하여 광다이오드창과 CsI(Tl)단결정 사이에 투명한 실리콘 광학구리스(silicon optical grease : 굴절을 $n=1.14$)로 중간 어울림층을 형성시켜 주었다(Fig. 2).

광다이오드를 이용한 방사선센서의 제작은 크기 120 mm \times 80 mm \times 120 mm, 두께 6 mm의 알루미늄 상자에 애벌증폭기(preamplifier)와 광다이오드를 함께 설치하였다. 상자의 위쪽부분은 20 mm 직경의 원형 창을 만들고 알루미늄박(Aluminum foil)으로 씌워 주었다.

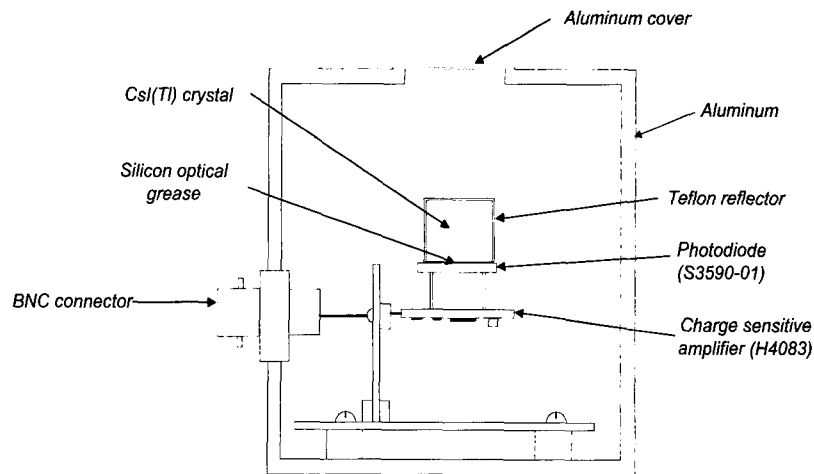


Fig 2. Structure of CsI(Tl) photodiode radiation sensor.

4. 분광특성 측정

CsI(Tl)방사선센서의 분광특성을 측정하기 위해 두께 50mm 납벽돌로 크기 350 mm×350 mm×450 mm의 차폐공간을 만들어 바탕방사선(background radiation)을 차폐시켰다. 검출기와 방사선원의 사이는 50 mm이었다. 주증폭기의 펄스형성시간은 2μs 이었으며, 스펙트럼 측정시 600 sec 동안 펄스를 누적시켰다. MCA는 Canberra사의 4096ch. series 35-plus를 사용하였다(Fig. 3).

5. 선형특성 측정

CsI(Tl) 섬광체를 5×4×1 mm의 작은 크기로 절단하여 광다이오드표면과 접촉하는 부분만을 투명면마를 하였고 나머지 부분은 거칠게 가공한 후 테프론 테이프로 반사막을 형성시켰다. 가공된 섬광체는 광다이오드의 창과 광학적실리콘구리스를 이용하여 어울림층을 형성하였고 에폭시를 이용하여 외부에서 오는 빛을 차단하였다. 다이오드는 SHARP의 BS520(8×6 mm)을 사용하였다(Fig. 4).

제작된 검출기로부터 나오는 신호검출에는 이온화함용미소전위계(Capintec 192, USA)를 사용하였다. 진단용 X선 조사장치는 동아 X선 기계의 DXG325R(120kVp, 300 mA)를 사용하였으며, 조사면은 10×10 cm, X선 초점부터 검출기 표면까지의 거리는 100 cm로 하였다. 관전압 60 kVp, 80 kVp, 100 kVp, 120 kVp 에 대하여 각각 관전류

mAs를 5 mAs, 10 mAs, 20 mAs, 40 mAs, 80 mAs로 변화 시켰을 때 출력 특성을 측정하였다.

결과 및 고찰

Bridgman 결정성장로를 이용하여 크기 지름 11 mm, 길이 11 mm의 투명성이 우수한 CsI(Tl)단결정섬광체를 얻을 수 있었다. 성장시킨 결정의 단결정 상태를 알아보기 위하여 X-ray Diffraction을 측정하였다. XRD실험에서 X선의 파장은 λ는 1.5406 Å이고 θ의 값이 38.33°, 44.54°, 64.85° 인 곳에서 피크들이 나타났으며 이것들에 대한 Bragg평면의 d값들은 1.242, 1.098, 0.851로 나타났다. 이는 단순입방(simple cubic)결정구조의 (321)면, (411)면, (521)면의 d값 보다 약 0.02 만큼씩 이동(shift)된 값과 잘 일치하는 것으로 나타났다. 분석결과 단순입방의 단결정 구조를 차지하고 있는 것으로 확인되었다.

광다이오드의 창과 접촉하는 결정 바닥면의 처리는 연마제를 사용했을 경우 CsI(Tl) 결정의 무른 특성 때문에 좋은 결과를 얻을 수 없었으나 조해성을 이용하여 알코올로 처리 했을 때 좋은 투명성을 얻을 수 있었다. 그 외의 결정표면은 거칠게 확산반사 처리해주었는데 이는 섬광체에서 발생한 빛이 광다이오드로 진입할 때 높은 굴절율로 인해 많은 양의 빛이 섬광체로 되돌아 가게 되는데 이러

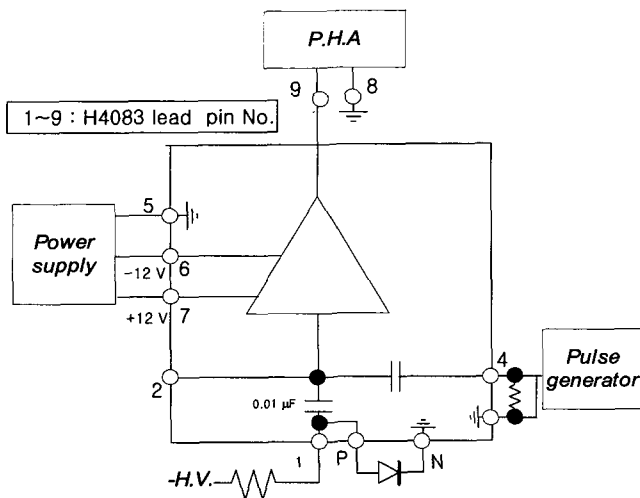


Fig. 3. Block diagram of H4083 preamplifier and photodiode detector.

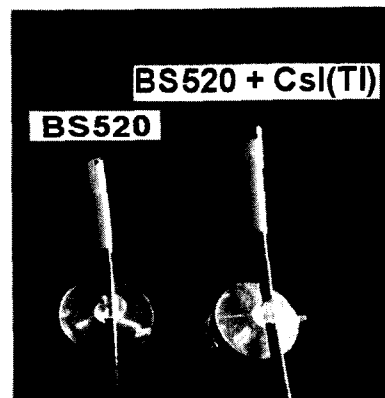
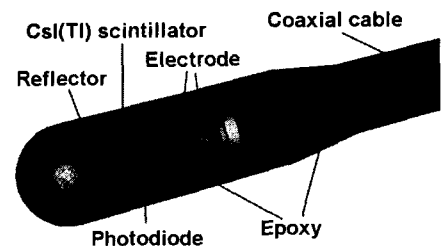


Fig. 4. CsI/BS520 diode radiation sensor.

한 빛들을 가능한 소모되지 않고 임계각내의 출구면으로 되돌아 가게 하기 위해서 이다. 광출력은 섬광체방사선센서의 특성에 중요한 영향을 미치기 때문이다.

성장시킨 단결정을 광다이오드에 접합하여 센서를 제작한 후 ^{22}Na , ^{137}Cs , ^{60}Co 의 표준 감마선 에너지에 대한 선형성을 측정하여 Fig. 5에 나타내었다. 1.33MeV 영역까지의 감마선

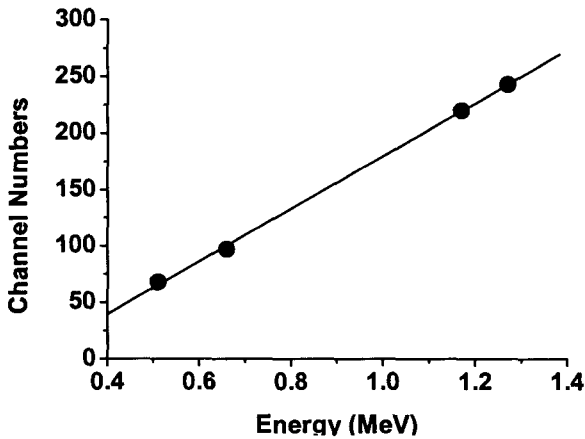


Fig. 5. Energy calibration curve of CsI(Tl) radiation sensor (S3590-01)

에 대한 에너지-채널간의 선형성이 잘 유지됨을 확인할 수 있었다.

Fig. 6에 광다이오드를 이용해 제작한 검출기의 표준 감마선원들에 대한 에너지 스펙트럼을 나타내었다. ^{22}Na 스펙트럼에서 0.511MeV 피이크는 ^{22}Na 의 붕괴에서 양전자의 소멸시 생기는 감마선에 기인한다. 이에 비하여 1.275MeV 피이크는 ^{22}Na 의 딸핵에서 방출되는 감마선이다. ^{22}Na 의 0.511 MeV 에너지 피이크에서는 13.2% , 1.274 MeV 에너지 피이크에 대해서는 4.9%의 에너지분해능을 얻었다. ^{137}Cs 의 0.662 MeV의 에너지 피이크에 대해 8.3%의 에너지분해능을 또한 ^{60}Co 에 1.173 MeV와 1.332 MeV의 에너지 피이크에서는 각각 6.7%와 5.1%의 에너지분해능을 얻었다.

통상적인 X선 촬영시 사용하는 촬영범위내에서 관전압 60, 80, 100, 120 kVp 각각에 대하여 관전류 mAs를 5, 10, 20, 40, 80 mAs로 변화시키면서 측정하여 Fig. 8에 나타나 있다. 관전류값의 증가에 따라 출력 신호값이 선형적으로 증가하였고 kVp값의 증가함에 따라 출력신호의 증가율도 증가됨을 알 수 있었다.

감마선 에너지분해능과 진단영역의 X선에 대해 제작된

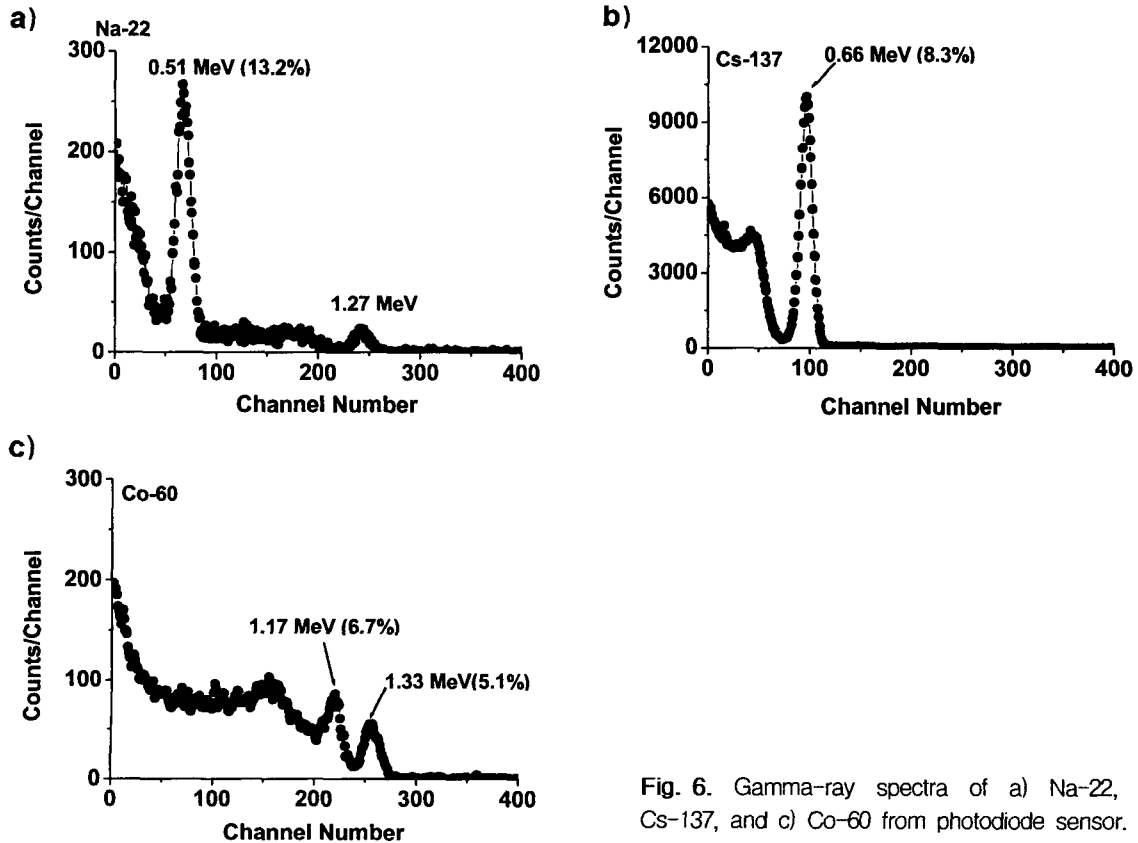
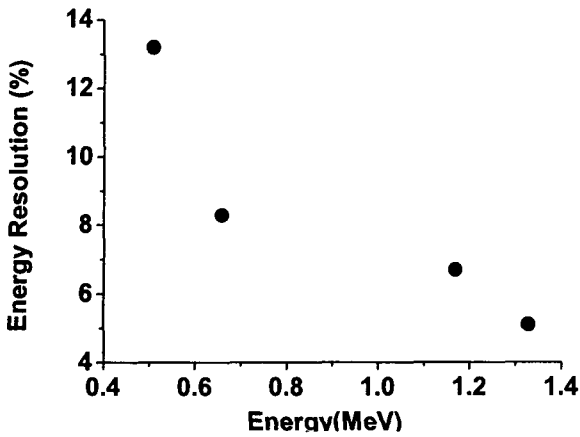


Fig. 6. Gamma-ray spectra of a) Na-22, b) Cs-137, and c) Co-60 from photodiode sensor.



다이오드방사선센서들이 우수한 분해능과 출력 선형성을 유지한 것은 Fig. 9에서와 같이 S3590-01광다이오드와 BS520 광다이오드 검출기의 감도파장이 CsI(Tl)의 최대 방출빛띠(emission spectrum)파장인 560nm 영역과 모두 잘 일치하기 때문인 것으로 해석된다. 이러한 섬광체의 최대 방출파장과 광다이오드의 최대감도파장의 일치하는 광자대 전자발생의 양자효율을 크게 하여 방사선 센서의 분해능과 효율을 증가시켜 출력특성을 개선시켜 준 것으로 생각된다.

Fig. 7. Energy resolutions of photodiode sensor.

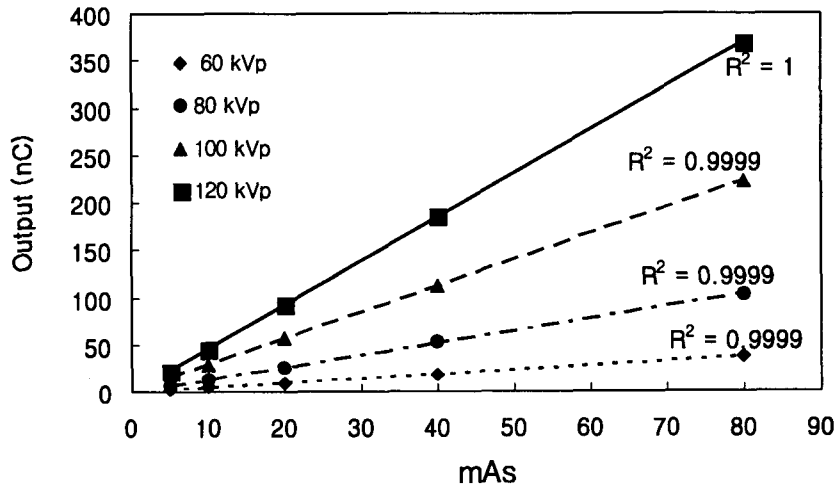


Fig. 8. Output as a function of tube current.

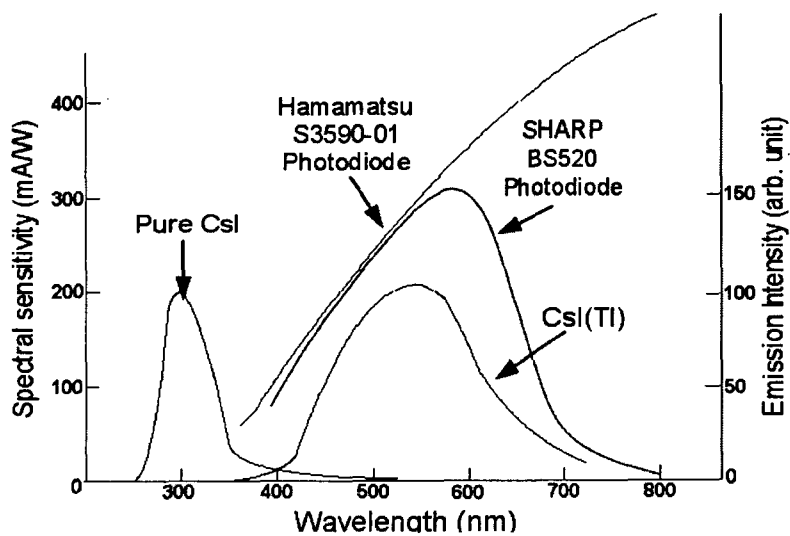


Fig. 9. A comparison of the spectral sensitivity with emission intensity for pure CsI/CsI(Tl) scintillators and two photodiodes.

결 론

Bridgman 단결정성장로를 이용하여 성장시킨 CsI(Tl) 섬광체 단결정은 방사선 섬광센서용으로 활용될 수 있는 가능성을 갖고 있음을 확인할 수 있었다.

현 단계에서 CsI(Tl) 섬광체의 방출파장과 일치되는 광다이오드들이 점차적으로 개발되면서 결정성장시 불순물의 도입을 줄이고 순도 높은 섬광체 결정을 성장시킬 수 있다면 방사선센서로서의 특성은 더욱 개선될 수 있을 것으로 생각된다.

광다이오드를 이용한 방사선센서의 경우 고전압을 걸어줄 필요가 없으며, 자기장의 영향을 받지 않아 자기장의 영향을 받는 곳이나, 크기의 제한이 따르는 환경에서의 전자지를 이용한 휴대용 소형 방사선검출기로 활용이 가능할 것으로 본다. 특히 의료용의 경우 최근 진단 핵의학분야에서 구조-기능적 영상기기로 연구개발 되고 있는 MRI/SPECT 용으로도 활용될 수 있을 것으로 사료된다.

참 고 문 헌

1. Grassmann H., Lorenz E., Moser H.G.: Properties of CsI(Tl)-renaissance of an old scintillation material. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* 228: 323-326 (1985)
2. Viesti G., Prete G., Fabris D., Hagel K., Nebbia G., Menchaca-Rocha A.: The response of a CsI(Tl) scintillator with photodiode readout to light particles and heavy ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* A252:75-79 (1986)
3. Brice J.C.: *Crystal Growth Processes*. John Wiley and Sons, NewYork. (1986)
1. Knoll G.F.: *Radiation Detection and Measurement*. John Wiley & Sons, Inc. (1989)
4. Holl I., Lorenz E., Mageras G.: A measurement of the light yield of common inorganic scintillators. *IEEE Transactions on Nuclear Science* 35(1):105-109 (1988)
5. Sakai E.A.: Recent measurements on scintillator-photodetector system. *IEEE Transactions on Nuclear Science* NS-3:418-422 (1987)
6. Valeatine J.D., Wehe D.K., Knoll G.F., Mess C.E.: Temperature dependence of CsI(Tl) absolute scintillation yield. *IEEE Transactions on Nuclear Science* 40(4):1267-1274 (1993)
7. Guo Z.Y., Lynen U., Sann H., Traumann W., Trockel R.: Photodiode readout and pulse shape analysis of CsI(Tl) scintillator signals. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* A260:120-123 (1987)
8. Schotanus P., Kamermans R., Dorenbos P.: Scintillation characteristics of pure and Tl-doped CsI crystals. *IEEE Transactions on Nuclear Science* 37(2): 177-182 (1990)
9. Grassmann H., Lorenz E., Moser H.G., Vogel H.: Results from a CsI(Tl) test calorimeter with photodiode readout between 1 and 20 GeV. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* A235: 319-325 (1985)
10. Grassmann H., Moser H.G., Dietl H., Eigen G., Fonseca V., Lorenz E., Mageras G.: Improvements in photodiode readout for small CsI(Tl) crystals. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* A234:122-124 (1985)
11. Kubota A., Sakuragi S., Hashimoto S., Ruan J.: A new scintillation material: pure CsI with 10 ns decay time. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* A268 :275-277 (1988)
12. Bebek C.: A cesium Iodide calorimeter with photodiode readout for CLEO II. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* A265:258-265 (1988)

A Study on the Fabrication of CsI(Tl) Radiation Sensor and its Spectroscopic Characteristics

Soo-Il Kwon, Dong Ho Shin

Department of Physics, Kyonggi University

CsI(Tl) single crystal was grown in a Bridgman growing apparatus, which has the diameter of 11 mm and the mole ratio of 0.001 mol%. Radiation sensors were made with CsI(Tl) crystal and two photodiodes, and measured spectroscopic characteristics and linearity for gamma-ray and X-ray. The energy resolution of CsI(Tl) radiation sensor has been measured with ^{22}Na , ^{137}Cs and ^{60}Co gamma standard sources. Also output linearity of CsI(Tl) sensor was measured for diagnostic radiation region. The energy resolutions of CsI(Tl) radiation sensor for 0.511MeV gamma-ray from Na-22 source, 0.662MeV from Cs-137 source, and 1.17MeV and 1.332MeV from Co-60 source were 13.2%, 8.3%, 6.7%, and 5.1% respectively. Also the output linearity up to 80mAs current for 60kVp, 80kVp, 100kVp, 120kVp tube voltages has been studied.

Keyword : CsI(Tl) scintillator, radiation sensor, photodiode, energy resolution, linearity