

## BaCl<sub>2</sub> 결정의 섬광특성

도시홍\* · 김정인\*\*† · 김홍주\*\* · 강희동\*\* · 김성환\*\*\* · 오문영\*\*\*\*

### Scintillation properties of BaCl<sub>2</sub> crystal

Sih-Hong Doh\*, Jungin Kim\*\*†, Hongjoo Kim\*\*, Heedong Kang\*\*,  
Sunghwan Kim\*\*\*, and Moon-Young Oh\*\*\*\*

#### Abstract

BaCl<sub>2</sub> crystals were grown by using the Czochralski method, and their scintillation properties were measured. The emission spectrum was located in the range of 370~450 nm, peaking at about 400 nm. The fluorescence decay time was approximately 75.9 ns for 662 keV  $\gamma$ -rays excitation. The energy resolution was about 24.4 % for <sup>137</sup>Cs 662 keV  $\gamma$ -rays, and the  $\alpha/\beta$  ratio to  $\alpha$  particles from a <sup>210</sup>Po 5.4 MeV was about 0.25.

**Key Words :** barium chloride, Czochralski method, energy resolution, fluorescence decay time, scintillator

## 1. 서 론

섬광단결정은 방사선 의학, 핵물리학, 고에너지 물리학 등의 발전에 지대한 영향을 미쳐 왔으며, 현재까지 많은 종류의 섬광단결정들이 연구·개발되어 실용화 되어 왔다<sup>[1-5]</sup>. 섬광단결정은 방사선 검출효율이 높고, 형광감쇠시간이 짧은 것이 여러 가지 응용분야에서 유리하다. 대부분의 응용분야에서 요구하는 “이상적인” 섬광단결정은 밀도와 원자번호가 크고, 광출력이 크고, after glow가 없으며 형광감쇠시간이 짧아야 한다. 그리고, 형광의 파장이 광전자 증배관(혹은 광다이오드)의 스펙트럼과 일치하여야 함은 물론 기계적으로 견고하고, radiation hardness가 크고, 그리고 가격이 낮아야 한다. 그러나 섬광단결정은 제각기 장단점이 있어 한 가지 섬광물질이 모든 응용분야에 이상적으로 사용될 수는 없다.

알칼리토금속 할라이드 결정들은 알칼리금속 할라이드 결정인 NaI(Tl), CsI(Tl)<sup>[6,7]</sup> 등에 비하여 일반적으로 광출력은 낮지만 열적 안정성, 화학적 안정성 및 내방사성 특성이 우수한 것으로 알려져 있으며<sup>[8]</sup>, 현재 SrCl<sub>2</sub>, BaF<sub>2</sub>, CaF<sub>2</sub> 및 BaCl<sub>2</sub> 등 알칼리토금속 할라이드 섬광체의 특성연구가 진행되어 오고 있다<sup>[9-11]</sup>.

본 연구에서는 BaCl<sub>2</sub> 결정을 Czochralski 방법으로 육성하였다. 그리고, 육성한 결정의 발광스펙트럼, 형광감쇠시간,  $\alpha/\beta$  비 및  $\gamma$ -선에 대한 에너지분해능 등 섬광특성을 평가하였다.

## 2. 실험

### 2.1. BaCl<sub>2</sub> 결정 육성

본 실험에서는 Czochralski 방법으로 BaCl<sub>2</sub> 결정을 육성하였다. BaCl<sub>2</sub> 분말은 흡습성이 있으므로 실험하는 동안에 공기로부터 유입된 불순물(H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub> 등)과 BaCl<sub>2</sub> 분말에 포함되어 있는 음이온 불순물 등을 제거하기 위하여 원료분말을 온도 80 °C, 10<sup>-2</sup> torr의 진공속에서 5시간 동안 건조시킨 후 용융하였다.

결정 육성시 BaCl<sub>2</sub>의 증발을 막기 위하여 챔버 내 아르곤기체의 압력을 1.5기압으로 유지하였으며, 성장계면의 온도변화를 최소로 하기 위하여 백금도가니 외부에 석영관, 알루미늄관 및 알루미늄 뚜껑으로 감싸

\*부경대학교 물리학과(Department of Physics, Pukyong National University)

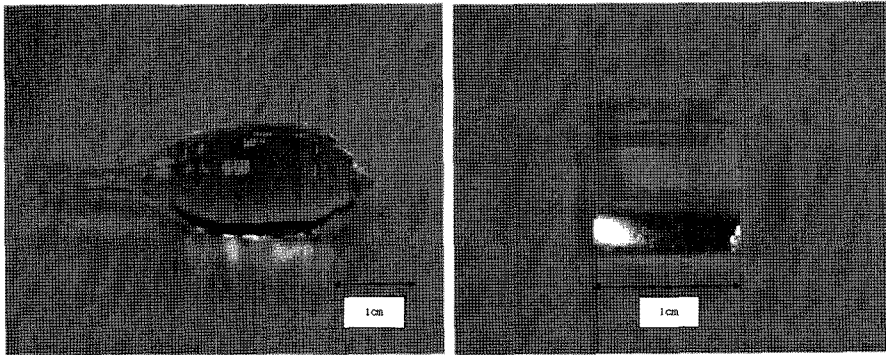
\*\*경북대학교 물리학과(Department of Physics, Kyungpook National University)

\*\*\*대구보건대학 방사선과(Department of Radiologic Technology, Daegu Health College)

\*\*\*\*동아대학교의료원(Department of Radiology, Donga University Hospital)

†Corresponding author: kimsh@mail.thc.ac.kr

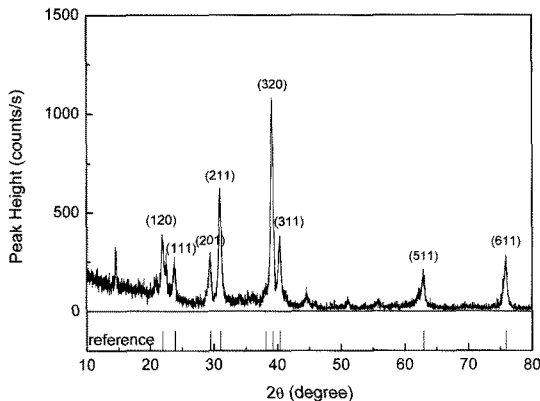
(Received : December 12, 2007, Revised : January 21, March 12, 2008, Accepted : April 10, 2008)

(a) 육성한 BaCl<sub>2</sub> 결정(b) 1×1×0.5 cm<sup>3</sup>로 절단한 후 연마한 BaCl<sub>2</sub> 결정그림 1. Czochralski 법으로 육성한 BaCl<sub>2</sub> 섬광 결정Fig. 1. Photograph of the BaCl<sub>2</sub> crystal grown by the Czochralski method.

서 결정성장계면 주위의 온도 기울기를 적게 하였다. 인상속도와 결정회전속도는 육성하는 결정의 지름에 따라 다르지만 본 실험에서는 각각 3 mm/h 및 20 rpm으로 하였다. 결정의 직경은 온도로 제어하였으며, 백금도가니 직경의 1/2정도로 하였다. 또한 결정성장 초기에 결함의 전파방지와 결정성장 축으로의 성장을 유도하기 위해 목을 만들었다.

그림 1(a)는 본 실험에서 육성한 BaCl<sub>2</sub> 결정 사진이며, 육성한 결정의 크기는 직경 16 mm, 길이 30 mm이었다. 그림 1(b)는 육성한 결정의 섬광특성을 평가하기 위하여 1×1×0.5 cm<sup>3</sup>로 절단한 후 연마한 BaCl<sub>2</sub> 결정 사진이다.

BaCl<sub>2</sub> 결정은 결정구조가 온도에 의존하며, 고온에서는 Fm3m 공간군에 속하는 입방정계 구조를 가지지만, 저온에서는 Pnam의 사방정계 구조를 가지는 것으로 알려져 있다<sup>[12]</sup>. 그림 2는 본 실험에서 육성한

그림 2. 육성한 BaCl<sub>2</sub> 결정의 X-선 회절 패턴Fig. 2. X-ray diffraction pattern of the BaCl<sub>2</sub> crystal.

BaCl<sub>2</sub> 결정의 격자 상수와 결정구조를 확인하기 위하여 XRD (PHILIPS Co, X'Pert-MPD System)로 측정된 X-선 회절상이다. 회절무늬는 (111), (120), (201), (211), (320), (311), (511) 및 (611)면 등에서 피크가 나타났으며, 측정된 Miller지수(hkl)값들은 JCPDS 카드의 값과 잘 일치하였다. 육성한 BaCl<sub>2</sub>결정은 Pnam 공간군에 속하였으며, 격자상수는 a=7.87 Å, b=9.43 Å, 및 c=4.73 Å이었다.

## 2.2. 시편제작 및 측정

본 실험에서는  $\gamma$ -선 파고스펙트럼을 측정하기 위해 시편을 그림 1(b)와 같이 1×1×0.5 cm<sup>3</sup>로 절단하였다. 그리고 BaCl<sub>2</sub> 결정은 흡습성이 있으므로 실리콘 오일에 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (입자크기 0.02  $\mu$ m)분말을 섞은 후 polishing cloth (Buehler, No. 40-7218)위에서 시편의 모든 면을 연마하였다. 그리고, 입사방사선에 의해 섬광 결정 내에서 발생한 빛을 광전자증배관에 집속시키고, 광 손실을 최대한 막기 위하여  $\gamma$ -선 에너지스펙트럼 측정용 시편의 옆면과 뒷면은 polytetrafluoroethylene (PTFE) 테이프를 반사체로 사용하여 감았다.

육성한 섬광 결정의 발광스펙트럼은 그림 3에서 보는 바와 같이 레이저 분광 장치를 이용하여 측정하였다. 여기광원으로는 Nd:YAG 레이저(Spectron Sys. SL802G)를 사용하였다. 상온에서의 상대적인 광출력과 형광감쇠시간은 그림 4에서 보는 바와 같이 SbCs 광전자증배관(Electron Tube Ltd., 9208B)을 사용한 펄스높이 분석장치(pulse height analysis system)로 측정하였다. 광전자 증배관에서 나온 신호는 직접 제작한 증폭기( $\times 10$ )를 사용하여 증폭한 후 400 MHz FADC (flash analog to digital converter)를 거친 후 분석하였

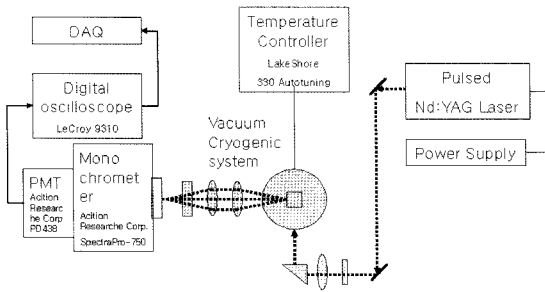


그림 3. 레이저 분광분석 시스템의 개략도  
Fig. 3. Block diagram of laser spectroscopy system.

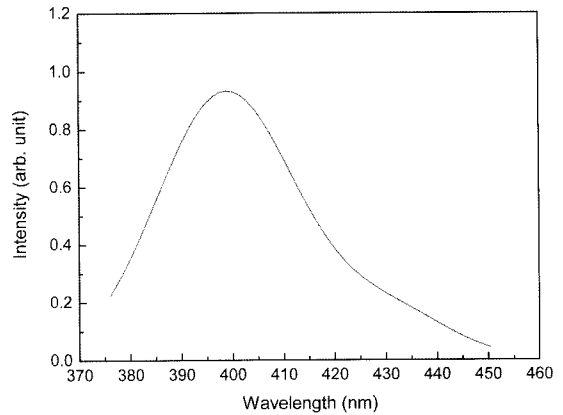


그림 5. 실온에서 측정한 BaCl<sub>2</sub> 섬광 결정의 발광스펙트럼  
Fig. 5. Emission spectrum of BaCl<sub>2</sub> crystal at room temperature.

으며, 트리거(trigger)는 FPGA (field programmable gate array) 칩을 사용하였고, 입력된 신호는 ROOT package<sup>[13]</sup>를 이용하여 분석하였다. 실험에 사용한  $\gamma$ -선 원은 <sup>60</sup>Co(1 $\mu$ Ci), <sup>57</sup>Co(1 $\mu$ Ci), <sup>133</sup>Ba(1 $\mu$ Ci), <sup>109</sup>Cd(1 $\mu$ Ci), <sup>137</sup>Cs(10 $\mu$ Ci), <sup>54</sup>Mn(1 $\mu$ Ci) 및 <sup>22</sup>Na(1 $\mu$ Ci)이었다.

### 3. 결과 및 논의

#### 3.1. 발광스펙트럼

그림 5는 상온에서 측정한 BaCl<sub>2</sub>결정의 발광스펙트럼이다. BaCl<sub>2</sub>결정의 발광현상은 여기된 전자의 비방사 천이에 따른 엑시톤 준위에서의 엑시톤 천이에 기인하며<sup>[12]</sup>, 그림 5에서 보는 바와 같이 발광강도가 매우 약하게 나타났다. 여기광의 파장을 355 nm로 하였을 때 상온에서의 발광스펙트럼의 파장범위는 약 360~450 nm이었고, 중심파장은 약 400 nm이었다.

#### 3.2. 형광감쇠시간

그림 6은 실온에서 측정한 BaCl<sub>2</sub> 섬광 결정의 <sup>137</sup>Cs  $\gamma$ -선에 대한 형광감쇠곡선이다. 측정된 BaCl<sub>2</sub> 섬광 결정의 형광감쇠곡선은 단일 성분이었으며, 감쇠시간은

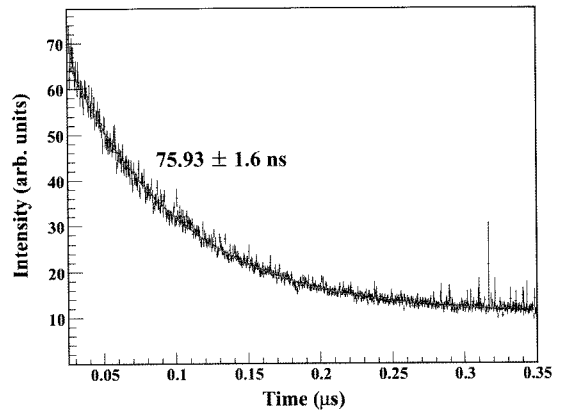


그림 6. <sup>137</sup>Cs 662 keV  $\gamma$ -선으로 여기 시킨 BaCl<sub>2</sub> 섬광 결정의 형광감쇠곡선  
Fig. 6. Fluorescence decay time spectrum of BaCl<sub>2</sub> excited with 662 keV  $\gamma$ -rays from a <sup>137</sup>Cs source.

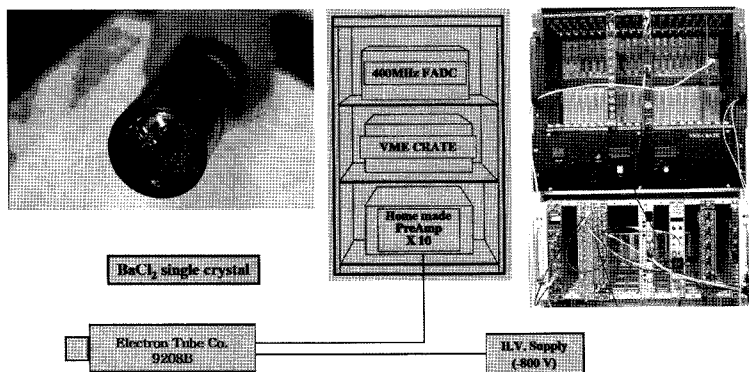


그림 4.  $\gamma$ -선 분광분석 시스템  
Fig. 4.  $\gamma$ -ray spectroscopy system.

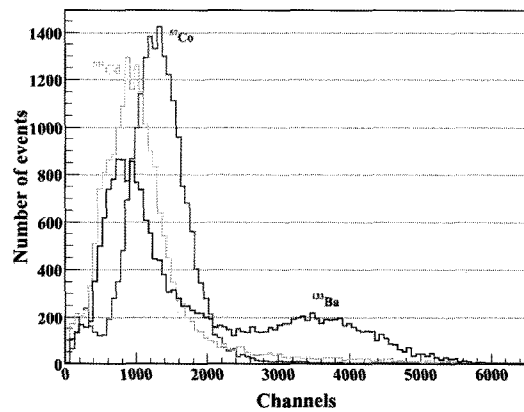
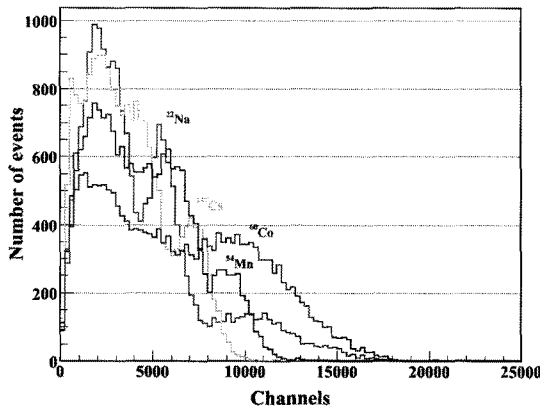


그림 7. <sup>60</sup>Co, <sup>57</sup>Co, <sup>133</sup>Ba, <sup>109</sup>Cd, <sup>137</sup>Cs, <sup>54</sup>Mn 및 <sup>22</sup>Na  $\gamma$ -선으로 여기시킨 BaCl<sub>2</sub> 섬광 결정의 파고스펙트럼  
 Fig. 7. Pulse height spectra of BaCl<sub>2</sub> scintillator under <sup>60</sup>Co, <sup>57</sup>Co, <sup>133</sup>Ba, <sup>109</sup>Cd, <sup>137</sup>Cs, <sup>54</sup>Mn and <sup>22</sup>Na  $\gamma$ -ray excitation.

75.9 ns이었다.

3.3. 파고스펙트럼과 에너지분해능

그림 7은 제작한 BaCl<sub>2</sub> 섬광 결정의 <sup>60</sup>Co, <sup>57</sup>Co, <sup>133</sup>Ba, <sup>109</sup>Cd, <sup>137</sup>Cs, <sup>54</sup>Mn 및 <sup>22</sup>Na  $\gamma$ -선에 대한 파고스펙트럼이다. <sup>137</sup>Cs의 662 keV  $\gamma$ -선에 대한 에너지분해능은 24.4%이었다. 이때 광전자증배관의 인가전압은 -800 V, 주증폭기의 펄스형성시간은 3  $\mu$ s이었으며, 증폭이득은 5이었다. 그림 8은 BaCl<sub>2</sub>와 CsI(pure)의 <sup>137</sup>Cs의 662 keV  $\gamma$ -선에 대한 파고스펙트럼이다.

파고스펙트럼의 모양은 섬광체 구성물질의 특성(유효원자번호, 밀도 등)과 섬광특성(광출력 등), 검출기의 크기 등에 따라 다르게 나타나지만 일반적으로 광전봉우리, 콤프턴에지, 콤프턴 연속대 등으로 구성되며, 광전봉우리의 위치가 섬광체 검출기의 상대적인 광출력

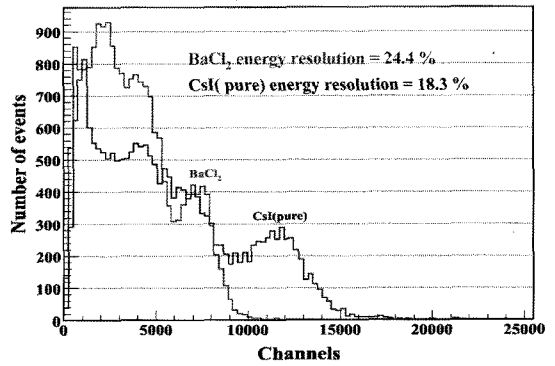


그림 8. <sup>137</sup>Cs 662 keV  $\gamma$ -선으로 여기시킨 BaCl<sub>2</sub> 및 CsI(pure) 섬광 결정의 상대적 광출력  
 Fig. 8. Relative light yield of BaCl<sub>2</sub> with CsI(pure) for <sup>137</sup>Cs 662 keV  $\gamma$ -ray excitation.

에 비해한다. 그림 8에서 BaCl<sub>2</sub>와 CsI(pure)의 광전봉우리 채널을 비교하여 구한 BaCl<sub>2</sub> 결정의 상대적 광출력은 CsI(pure)의 약 61%이었다. 에너지분해능(R)은 많은 요소에 의해 영향을 받지만, 광출력(Y)에 대하여 다음과 같은 상관관계를 가진다.

$$R \propto 1/\sqrt{Y}$$

즉, 광출력이 클수록 에너지분해능이 향상되며, 그림 8에서 보는 바와 같이 <sup>137</sup>Cs 662 keV  $\gamma$ -선에 대하여 BaCl<sub>2</sub> 섬광체의 에너지 분해능은 24.4%로 CsI(pure)의 에너지분해능에 비하여 낮게 나타났다.

3.4.  $\alpha/\beta$  비

그림 9는 <sup>210</sup>Po의 5.3 MeV  $\alpha$  입자와 <sup>137</sup>Cs 662 keV

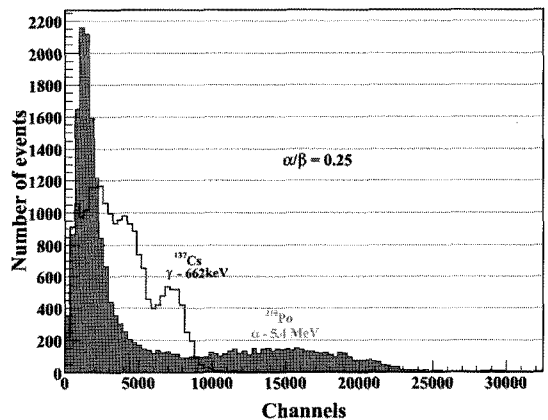


그림 9. <sup>137</sup>Cs의  $\gamma$ -선과 <sup>210</sup>Po  $\alpha$  입자에 대한 BaCl<sub>2</sub> 섬광 결정의 파고스펙트럼  
 Fig. 9. Pulse height spectra of BaCl<sub>2</sub> scintillator for  $\gamma$ -rays from <sup>137</sup>Cs and  $\alpha$  particles from <sup>210</sup>Po.

$\gamma$ -선에 대한 파고스펙트럼이며, 이 붕우리의 위치로부터  $\alpha/\beta$  비를 구하였다.  $\alpha/\beta$  비는  $\alpha$ 입자의 에너지와 같은 에너지를 가진  $\gamma$ -선에 대한 광전붕우리 위치와  $\alpha$  입자의 붕우리 위치의 비로 정의한다. 일반적으로 검출기의 에너지 척도는  $\gamma$ -선원으로 측정하므로  $\alpha/\gamma$  비로 표현해야 하지만,  $\gamma$ -선이 검출기 내의 전자와 상호작용하므로  $\alpha/\beta$  비로도 표현한다<sup>[4]</sup>. 본 실험에서 측정한 <sup>210</sup>Po 5.4 MeV  $\alpha$  입자에 대한  $\alpha/\beta$  비는 0.25이었다. 이것은 입사된  $\alpha$  입자 에너지의 약 25 %만 빛을 내게 되고 나머지 75 %는 비방사선이함을 의미한다. 이러한 현상이 일어나는 이유는  $\alpha$  입자의 비적에 따른 높은 이온화 밀도에 의한 방사선손상으로 인해 quenching이 일어나게 되고 그 결과 섬광효율(scintillation efficiency)이 낮아지기 때문이다.

#### 4. 결 론

Czochralski 방법으로 BaCl<sub>2</sub> 섬광 결정을 육성하고, 섬광특성을 조사하였다. 발광 파장스펙트럼은 400 nm 부근의 근자외선 영역이었으며, <sup>137</sup>Cs의 662 keV  $\gamma$ -선에 대한 에너지분해능은 24.4 %이었으며, CsI(pure)에 비하여 상대적 광출력은 61 %이었다. 형광감쇠시간은 75.9 ns로 비교적 빠른 특성을 보였으며, 그리고 <sup>210</sup>Po 5.4 MeV  $\alpha$ 입자에 대한  $\alpha/\beta$  비율은 0.25이었다. BaCl<sub>2</sub> 섬광 결정은 빠른 감쇠시간특성을 가지므로, 고에너지 또는 핵물리 실험에서 원자핵 또는 입자의 에너지를 정확하게 측정하기 위한 방법 중 하나인 결정 섬광형 칼로리미터에 이용될 수 있으리라 기대된다.

#### 감사의 글

이 논문은 2006년도 부경대학교 연구년 교수지원에 의하여 연구되었음(PS-2006-012).

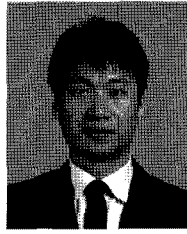
#### 참고 문헌

- [1] C. L. Melcher, M. A. Spurrier, L. Eriksson, M. Eriksson, M. Schmand, G. Givens, R. Terry, T. Homant, and R. Nutt, "Advanced in the scintillation performance of LSO:Ce single crystals", *IEEE Trans. on Nucl. Sci.*, vol. 50, no. 4, pp. 762-766, 2003.
- [2] M. Korzhik and P. Lecoq, "Search of new scintillation materials for nuclear medicine applications", *IEEE Trans. on Nucl. Sci.*, vol. 48, No. 3, pp. 628-631, 2001.
- [3] C. L. Melcher, "Perspective on the future development of new scintillators", *Nucl. Instr. Meth.*, vol. A537, pp. 6-14, 2005.
- [4] 강갑중, 도시홍, 이우교, 오문영, "CsI: X(X=Li<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Rb<sup>+</sup>) 단결정의 섬광특성", *센서학회지*, 제12권, 제1호, pp. 1-9, 2003.
- [5] 김종일, 정중현, 도시홍, 김성철, 김중환, "BGO:Eu 섬광체의 방사선 저항", *센서학회지*, 제6권, 제1호, pp. 16-23, 1997.
- [6] Y. chan, R. A. Partridge, C. W. Peck, W. Kollman, M. Richardson, K. Strauch, D. Aschman, *et. al.*, "Design and performance of a modularized NaI(Tl) detector", *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 25, no. 1, pp. 333-339, 1978.
- [7] P. Schotanus, R. Kamermans an P. Dorenbos, "Scintillation characteristics of pure and Tl-doped crystal", *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 37, no. 2, pp. 177-182, 1990.
- [8] P. A. Rodnyi, "Physical processes in inorganic scintillators", CRC Press, New York, p. 10, 1997.
- [9] L. H. Brixner and A. Ferretti, "Eu<sup>2+</sup> Fluorescence in BaCl<sub>2</sub>", *J. Sol. Stat. Chem.*, vol. 18, pp. 11-116, 1976.
- [10] P. A. Rodnyi, "Core-valence luminescence in scintillator", *Rad. Meas.*, vol. 38, pp. 343-352, 2004.
- [11] V. Tabakova, "Emission and decay time studies of Sn<sup>2+</sup> center in SrCl<sub>2</sub>", *J. Lumin.*, vol. 68, pp. 265-269, 1996.
- [12] K. G. Rajan and A. J. Lenus, "X-ray excited optical luminescence studies on the system BaXY(X,Y=F, Cl, Br, I)", *Pramana-J. Phys.*, vol. 65, no. 2, pp. 323-338, 2005.
- [13] R. Brun, A. Gheata, and M. Gheata, "The ROOT geometry package", *Nucl. Instr. Meth.*, vol. 502, pp. 676-680, 2003.
- [14] F. A. Danevich, V. V. Kobychyev, S. S. Nargony, D. V. Poda, V. I. Tretyak, S. S. Yurchenko, and Yu. G. Zdesenko, "ZnWO<sub>4</sub> crystals as detectors for 2 $\beta$  decay and dark matter experiment", *Nucl. Instr. Meth.*, A544, pp. 553-564, 2005.



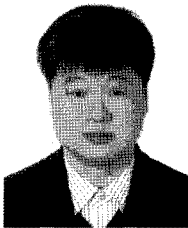
**도시홍**

- 1944년 출생
- 1969년 경북대학교 문리대 물리학과 졸업 (이학사)
- 1972년 경북대학교 대학원 물리학과 졸업 (이학석사)
- 1988년 경북대학교 대학원 물리학과 졸업 (이학박사)
- 1990년~1991년 9. 일본 福井大學 객원교수
- 1980년~현재 부경대학교 자연과학대학 물리학과 교수, 부산지방방사능측정소장



**김정인**

- 1980년 출생
- 2006년 경북대학교 자연과학대학 물리학과 졸업(이학사)
- 2008년 경북대학교 대학원 물리학과 졸업 (이학석사)



**김홍주**

- 1961년 출생
- 1984년 고려대학교 자연과학대학 물리학과(이학사)
- 1986년 고려대학교 자연과학대학 물리학과(이학석사)
- 1987년 고려대학교 자연과학대학 물리학과(이학박사)
- 1987년~1997년 Luisiana 주립대학교 연구원 및 연구교수
- 1997년~2004년 서울대학교 초빙교수 및 연세대학교 연구교수
- 2004년~현재 경북대학교 자연과학대학 물리학과 부교수



**강희동**

- 1944년 출생
- 1966년 경북대학교 문리대 물리학과 졸업 (이학사)
- 1973년 경북대학교 대학원 물리학과 졸업 (이학석사)
- 1980년 프랑스 Paul Sabatier 대학 졸업 (이학박사)
- 1986년~1989년 한국원자력연구소 책임 연구원
- 1989년~현재 경북대학교 자연과학대학 물리학과 교수, 대구지방방사능측정소장, 방사선과학연구소장



**김성환**

- 1967년 출생
- 1990년 경북대학교 자연과학대학 물리학과 졸업(이학사)
- 1993년 경북대학교 대학원 물리학과 졸업 (이학석사)
- 2003년 경북대학교 대학원 물리학과 졸업 (이학박사)
- 1997년~현재 대구보건대학 방사선과 부교수



**오문영**

- 1948년 출생
- 2000년 부경대학교 대학원 물리학과 졸업 (이학박사)
- 1989년~현재 동아대학교의료원 영상의학과