

감마선 검출용 HgI₂ 소자 제작 및 특성 평가

최명진 · 이흥규 · 강영일 · 임호진 · 최승기

국방과학연구소, 대전 300-600

요 약

상온에서 사용할 수 있는 감마선 검출 소자로서 HgI₂ 소자의 응용성을 판단하기 위하여 기상 성장법으로 HgI₂ 단결정을 성장시켰고 이를 이용하여 검출 소자를 제작한 후 감마선 검출 특성을 조사하였다. 성장된 단결정의 비저항과 전하 운반자 포획 밀도는 상온에서 각각 10¹¹Ω·cm와 1.8×10¹⁴/cm³였으며 단결정의 Photoluminescence를 측정된 결과 성장된 HgI₂ 단결정의 밴드갭의 온도계수는 20K 부터 77K에서 -1.53×10⁻⁴eV/K였다. 감마선 검출실험 결과 제작된 HgI₂ 검출 소자는 상온에서 우수한 계수 특성과 시간에 대한 선형적 축적 계수 특성을 나타내었으나 온도변화에 따라 계수의 특성의 변화는 심하였다.

서 론

세계적으로 개인용 포켓선량계나 서베이미터에 사용되는 GM관은 점차적으로 반도체 검출기로 대체되어가는 추세이다. 반도체 검출기는 우수한 검출능과 빠른 응답 특성을 갖고 있어서 앞으로 그 사용 범위는 점차 증가될 전망이다. 본 연구의 목적은 화합물 반도체인 HgI₂ 단결정을 성장시켜 감마선 검출 소자를 제작한 후 그 특성을 조사하여 상온에서 사용할 수 있는 선량계용 감마선 검출 소자의 응용성을 판단하는 것이다. HgI₂는 원자번호가 커서 감마선 검출 효율이 우수하고 높은 에너지 분해능을 가지며 에너지 밴드갭이 2.13eV로 매우 커 열적 잡음이 작아 상온에서 감마선 검출이 가능한 물질로 CdTe와 함께 많은 연구가 이루어져 왔다 [1, 2, 3]. HgI₂ 단결정의 성장은 온도에 따른 증기압의 차이를 이용하여 단결정을 성장시키는 기상 성장법 중 결정부위의 온도를 주기적으로 변화시키는 POCT(Periodic Oscillation Crystal Temperature)법 [4, 5]을 이용하였으며 성장

된 단결정의 전기 광학적 특성은 비저항 측정, 전하운반자 포획밀도 및 PL(Photoluminescence) 측정으로 평가하였다. 성장된 HgI₂ 단결정을 이용하여 실험 실적으로 방사선 검출소자와 증폭기를 제작하여 마이크로 프로세서를 이용한 감마선 검출 시스템을 구성하였고 세기가 10μCi인 ⁶⁰Co와 ¹³⁷Cs를 감마선원으로 사용하여 계수율과 축적 계수량 실험을 실시하여 HgI₂ 감마선 검출소자의 검출 특성에 관한 결과에 대하여 기술하였다.

실 험

단결정 성장

Aldrich사 제품인 순도 99.9999% HgI₂ 분말을 사용하여 온도에 따른 증기압 차이를 이용하는 기상 성장법으로 HgI₂ 단결정을 성장시켰다. 결정을 성장시키면 온도가 낮은 부위에서 결정핵이 생성되고 결정이 성장되기 시작하며 결정의 성장속도는 약 0.6g/day였다. 준비된 HgI₂ 분말을 직경이 50 mm이고 길이가 130

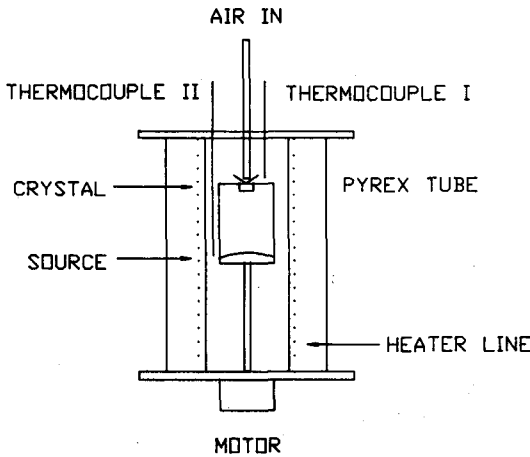


Fig. 1. Apparatus for HgI₂ single crystal growth

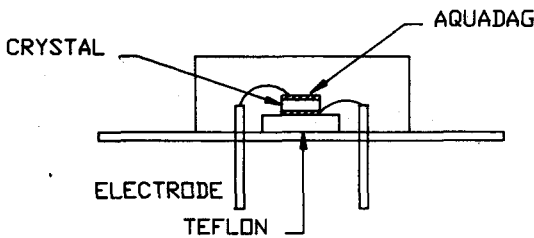


Fig. 2. Schematic diagram of HgI₂ γ -ray detector.

mm인 파이렉스관에 넣고 10^{-5} Torr까지 진공 배기한 후 봉입하여 그림 1과 같은 기상 성장 장치에 넣어 결정을 성장시켰다. 이때 결정 성장 부위의 온도는 122°C 이고 HgI₂ 분말 시료의 온도는 125°C 였다. 그리고 전기로에 균일한 온도 구배를 주기 위한 방법으로 모터를 사용하여 HgI₂ 분말이 든 파이렉스관을 1/2 rpm으로 회전시켰고 결정 성장 부위에 공기를 주입시켜 주기적으로 성장부위의 온도를 변동시킴으로써 종자결정의 성장과 부식이 교대로 일어나게하여 양질의 단결정이 선택되어 성장되도록 하였다.

전기 광학적 특성

성장된 HgI₂ 단결정의 결정성은 X-선 회절 장치(JEOL, JDX-8030)를 이용하여 조사하였으며 단결정의 표면상태는 주사형 전자현미경(SEM, Phillips-501B)으로 관찰하였다. 비저

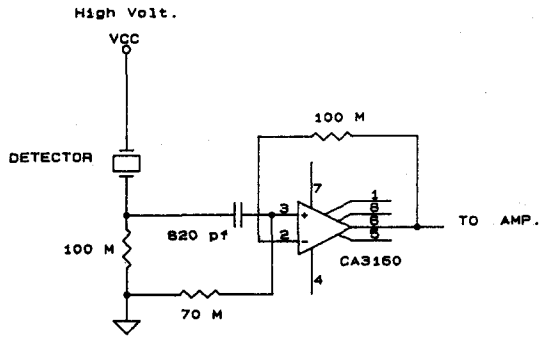


Fig. 3. Pre-amplifier circuit diagram of the HgI₂ γ -ray detection system.

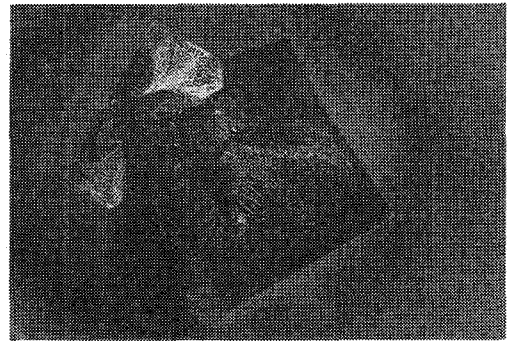


Fig. 4. HgI₂ single crystal(Crystal growth rate : 0.6g/day).

항과 운반자 포획밀도 등 전기적 특성은 Keithley 602 electrometer를 이용하여 측정하였으며 성장된 단결정의 에너지 밴드 구조는 저온에서 PL를 측정하여 조사하였다. PL를 측정하기 위하여 HgI₂ 단결정 시편을 헬륨 저온장치(Air Product, CSA-202B)로 20K까지 냉각시킨 후 출력이 2 W인 Argon-이온 레이저(Spectra Physics 164-06)의 4880 Å 단색광을 HgI₂ 단결정의 (100)면에 수직하게 조사시켜 나온 광을 PM 튜브(RCA, 4832)로 검출하여 Lock-in Amp. (PAR, 124A)로 증폭시켜서 X-Y 기록계(Yokogawa, 3066)로 기록하였다. 이때 온도는 20K에서 77K까지 변화시켰다.

검출소자 제작 및 측정 시스템

성장된 HgI₂ 단결정 시편을 5×5×1mm의 크기로 자른 후 aquadag으로 전극을 형성시키고

금선을 연결시켜 전극을 만들었으며 Tr-can에 에폭시로 밀봉시켜 감마선 검출소자를 제작하였다. 그림 2는 제작된 검출소자의 구조도이다.

HgI₂ 단결정에 대한 ohmic성 전극 물질로는 aquadag과 Ge, Pd 등이 있으며 그 외의 Al등의 금속은 HgI₂와 반응성이 커 사용할 수 없다. 또한 Ge과 Pd는 진공중에서 증착할 때 HgI₂ 표면에 나쁜 영향을 주므로[6] 본 실험에서는 탄소분말을 용매에 갠 aquadag을 사용하였다. 제작된 검출소자로 부터 검출된 신호를 처리하기 위하여 CA 3160, LM 324로 증폭회로를 설계, 제작하였고 증폭된 감마선 검출신호는 microprocessor를 이용하여 디지털 표시가 가능하도록 하였으며 전체 시스템은 interface를 통하여 Apple PC와 연결하여 데이터를 처리할 수 있도록 하였다. 그림 3에 검출기와 전치증폭기의 회로도를 나타내었다. 또한 HgI₂ 감마선 검출기의 온도변화에 대한 특성을 알아보기 위하여 저온 상자와 디지털 온도계를 사용하여 -30°C에서 +30°C까지 온도변화 실험을 수행하였다.

실험결과 및 고찰

감마선 검출소자로 사용되는 HgI₂ 단결정은 결정성이 뛰어나고 상온에서 비저항이 크며 운반자 포획밀도가 작을수록 좋다. HgI₂ 결정의 성장 초기에는 여러 핵이 형성되어 자라다가 그 중에서 성장이 우세한 핵이 더 빨리 자라 완전한 결정으로 성장해 가는 것으로 확인되었다. 성장된 HgI₂ 단결정은 선명한 적색을 띄었으며 결정성장 상태가 좋지 않거나 불순물을 많이 포함한 단결정은 연한 적색이나 검붉은 적색을 띄었다. 그림 4에 성장된 HgI₂ 단결정 사진을 나타내었다.

성장된 HgI₂ 단결정의 상온에서의 특성을 알아보기 위하여 비저항과 운반자 포획밀도를 측정하였다. 전하운반자 포획밀도는 HgI₂ 단결정 시편의 공간전하 제한전류(Space Charge Limited Current)를 측정하여 얻은 VTFL

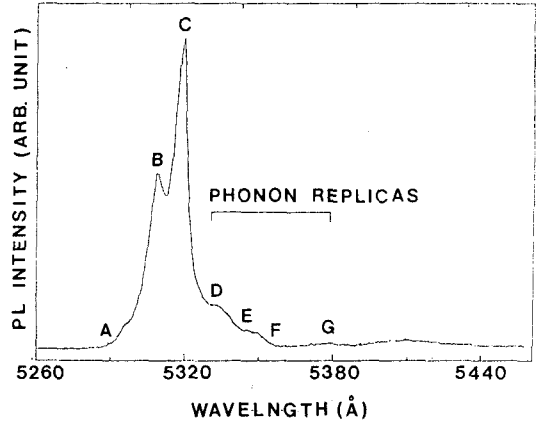


Fig. 5. Photoluminescence spectrum of the HgI₂ single crystal.

(Trap Filled Limited Voltage)로 부터 구하였는데 VTFL과 운반자 포획밀도 N_t와의 관계는 다음식으로 주어진다[17].

$$N_t = 2\epsilon V_{TFL}L/ed^2 \dots\dots\dots (1)$$

여기서 ε는 유전상수이고 e는 전자의 전하량, d는 시편의 두께이다. 측정 결과 HgI₂의 비저항은 10¹¹Ω·cm, 전하운반자 포획밀도는 1.8×10¹⁴/cm³의 값을 얻었다. 그러나 매우 잘 성장된 HgI₂ 단결정은 10¹³Ω·cm의 비저항을 갖는다고 보고되고 있으며 단결정 성장시 원재료에 포함될 수 있는 불순물이 효과적으로 제거되지 못할 경우 비저항이 감소하게 된다. 따라서 정제과정을 거친 HgI₂ 분말을 결정성장에 사용하면 비저항이 더 큰 단결정을 성장시킬 수 있을 것으로 판단된다. 불순물 및 결정의 격자 결함 등은 에너지 밴드갭 내에 운반자 포획 준위를 형성하게 되는데 이것은 감마선에 의하여 생성된 전하운반자를 포획하여 검출소자의 전하 수집효율을 저해하는 주 원인이 되므로 가능한 줄이는 것이 좋다.

20K에서 HgI₂ 단결정의 PL 스펙트럼을 5200 Å에서 6640 Å까지 측정한 결과 많은 luminescence line들을 관측할 수 있었다. 그림 5는 HgI₂ 단결정의 PL 스펙트럼을 나타낸

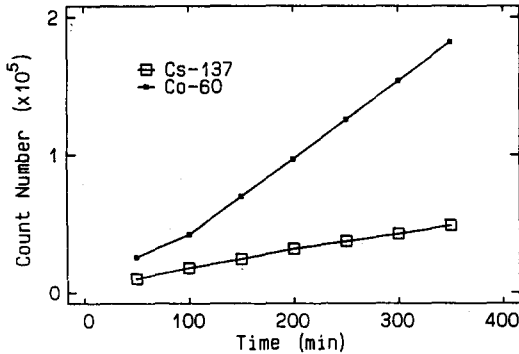


Fig. 6. Count rate characteristics of the HgI_2 γ -ray detector (Bias voltage : 200V, Distance : 1 cm).

것이다. J.L.Merz에 의하면 2.30eV를 중심으로 하는 예리한 피크는 엑시톤 효과에 의하여 나타나는 것으로서 다른 피크에 비하여 상대적 강도가 높을수록 단결정의 질은 좋고 2.20eV를 중심으로 하는 피크는 결정결함의 일종인 I-vacancy, Hg-antisite, Hg-interstitial 등에 의하여 나타나는 것으로 알려져 있다[8]. 그리고 잔여 불순물에 의하여 나타나는 것으로 알려진 2.00eV를 중심으로 하는 밴드는 20K PL 측정에서는 거의 관측되지 않아 성장된 HgI_2 단결정에 포함된 것으로 생각되는 carbon등의 불순물은 본 PL 측정에서는 관측되지 않을 정도였다. 따라서 본 실험에서 기상성장법으로 성장시킨 HgI_2 단결정은 vacancy 등 결함은 존재하나 비교적 양호한 단결정 특성을 갖는 것을 알 수 있었다[9]. 또, PL 측정온도를 77K까지 변화시켰을 때 엑시톤에 의한 예리한 피크는 낮은 에너지쪽으로 이동하였고 이로부터 HgI_2 단결정의 에너지 밴드갭 온도계수는 20K 부터 77K 구간에서 $-1.53 \times 10^{-4} \text{eV/K}$ 임을 알 수 있었다.

제작된 감마선 검출 시스템의 감마선 검출특성을 조사한 후 그림 6에 ^{60}Co 와 ^{137}Cs 에 대한 HgI_2 검출소자의 감마선 응답특성을 나타내었다. 실험에 사용된 ^{60}Co 은 높은 에너지(1.17 MeV, 1.33 MeV)의 감마선을, ^{137}Cs 는 비교적 낮은 에너지(662 keV)의 감마선을 방출하는 핵종으로서 그림에서 보는 바와 같이 두 감마선

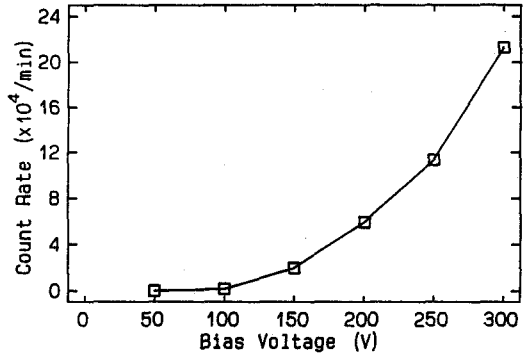


Fig. 7. Count rate characteristics of the HgI_2 γ -ray detector vs. voltage (Source : ^{60}Co , Distance : 1 cm).

핵종에 대한 누적 계수는 시간에 대하여 비교적 양호한 선형성을 보이고 있다. 여기서 감마선 검출신호의 크기는 0.2mV이었고 신호 상승 시간은 0.3 msec였으며 검출신호의 지속시간은 2 msec였다. 그리고 감마선원에 대한 계수율은 각각 535/min와 128/min였다. 검출기에 인가되는 전압에 따른 계수율의 변화를 그림 7에 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 전압이 증가함에 따라 계수율은 지수 함수적으로 증가함을 알 수 있었다. 또 온도에 대한 계수율의 변화특성을 그림 8에 나타내었다. -25°C 부터 $+30^\circ\text{C}$ 까지 계수율 변화를 측정된 결과 0°C 부근에서 높은 계수특성을 보였다. 이것은 HgI_2 감마선 검출소자가 높은 온도 의존성을 갖는다는 것을 의미하며 상온용 감마선 검출소자로의 응용 가능성을 저해하는 요소중의 하나이며 개선이 필요하다.

결 론

HgI_2 단결정을 성장시켜 전기 광학적 특성을 조사하고 감마선 검출소자를 제작한 후 검출실험을 통하여 얻은 결과는 다음과 같다.

- (1) 기상성장법으로 HgI_2 단결정을 성장시킨 결과 성장속도는 약 0.6g/day였다.
- (2) 성장된 단결정의 비저항과 전하운반자 포

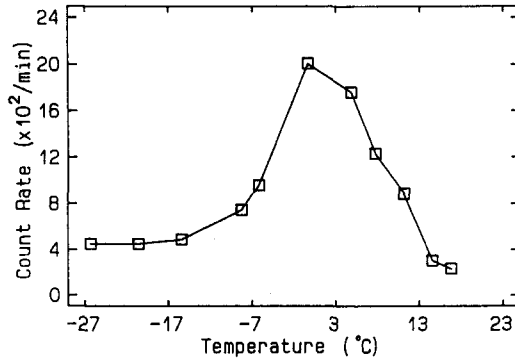


Fig. 8. Count rate characteristics of the HgI₂ γ-ray detector vs. temperature (Source : ¹³⁷Cs, Distance : 1 cm).

획밀도는 상온에서 $10^{11}\Omega \cdot \text{cm}$ 와 $1.8 \times 10^{14}/\text{cm}^3$ 이었다.

(3) PL 측정 결과 I-vacancy 등의 결함은 존재하나 불순물 밴드는 거의 관측되지 않았고, HgI₂의 밴드갭 온도계수는 $-1.53 \times 10^{-4} \text{eV/K}$ 였다.

(4) 성장된 HgI₂ 단결정으로 감마선 검출소자를 제작하여 감마선 검출특성 실험을 수행한 결과 세기가 $10\mu\text{Ci}$ 인 ⁶⁰Co와 ¹³⁷Cs에 대한 계수율은 각각 535/min, 128/min였으며 상온에서 시간에 대한 좋은 선형성을 보였으나 온도변화에 대하여 심한 계수율 변화 특성을 나타내었다.

따라서 HgI₂ 감마선 검출소자의 검출특성은 우수하였으나 실용화를 위하여는 온도변화에 대한 개선 등 차후 연구가 더 필요한 것으로 판단된다.

참고문헌

1. Beinglass, G. Dishon, A. Holzer and M.Schieber, "Improved crystals of mercury iodide grown in a horizontal furnace from the vapor phase using the temperature oscillation method" *J. Cryst. Growth*, **42**, 166(1977).
2. W.R.Willig, "New gamma detectors of mercury iodide and other heavy metal compound," *Nucl. Instr. and Meth.*, **96**, 615(1971).
3. H.L.Malm, "A mercuric iodide gamma-ray spectrometer," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **19**, 263(1973).
4. M. Schieber, W.F. Schneppe and L. Van Den Berg, "Vapor growth of HgI₂ by periodic source or crystal temperature oscillation", *J. Cryst. Growth*, **33**, 125(1976).
5. H. Scholz, "On crystallization by temperature-gradient reversal," *Acta Electronica*, **17**, 69(1974).
6. 홍 성식, 석사학위 논문, 충남대학교(1986).
7. U. Braatz and D. Zappe, "Investigation of space charge limited, pool-Frenkel, and isothermal currents of HgI₂ single crystal," *Phys. Stat. Sol.(a)*, **86**, 407(1984).
8. J.L. Mertz, Z.L. Wu, L. van Den Berg and W.F.Schneppe, "Low temperature photoluminescence of detector-grade HgI₂," *Nucl. Instr. and Meth.*, **213**, 51(1983).
9. M.Schieber, M. Roth and W.F. Schneppe, "Crystal growth and application of mercuric iodide," *J. Cryst. Growth*, **65**, 353(1983).

Fabrication and Test of a HgI₂ Gamma Ray Detector

Myung-Jin Choi, Hong-Kyu Lee, Young-II Kang,
Ho-Jin Lim, Seung-Ki Choi

Agency for Defense Development, Taejon 300-600

ABSTRACT

The HgI₂ single crystal which can be used for the γ -ray detector at room temperature was grown by Temperature Oscillation Method. The low temperature photoluminescence, specific resistivity and trap concentration of HgI₂ single crystal were investigated. Three main luminescence bands were observed at 2.30eV, 2.20 eV and 2.00eV at 20K, related to the excitons, I-vacancies and impurities, respectively. The specific resistivity and trap concentration of HgI₂ single crystal were $10^{11}\Omega \cdot \text{cm}$ and $1.8 \times 10^{14}/\text{cm}^3$ at room temperature, respectively. Also the radiation detecting system was devised by HgI₂ γ -ray detector, one chip microprocessor, LCD module and personal computer. The prepared HgI₂ γ -ray detector showed a good linearity of γ -radiation dose for standard γ -ray.

Key words : HgI₂, Photoluminescence, Crystal growth, Gamma detection, Sensitivity