

^{137}Cs 으로 조사된 베타-유크립타이트의 열자극발광 특성

김태규, 이병용*, 박영우**, 추성실⁺, 황정남⁺⁺

전주교육대학 과학교육과

*울산대학교 의과대학 치료방사선과학교실

**연세대학교 원주의과대학 기초과학교실

⁺연세대학교 의과대학 치료방사선과학교실

⁺⁺연세대학교 이과대학 물리학과

초 록

베타-유크립타이트를 제조하고, ^{137}Cs 의 포톤으로 조사된 베타-유크립타이트의 열자극발광 스펙트럼을 측정하였다. 200cGy-20000Gy의 조사선량에 따른 300K-600K 온도구간의 전체 열자극발광 세기는 50Gy선량까지 선형성이 유지되지만, 그 이상의 영역에서는 supralinearity가 나타난다. 2000Gy 조사선량에서 supralinearity된 양이 최대로 나타나며, 약 17100Gy 영역에서 소멸된다. 포톤 조사에 의해 순수하게 형성된 trapping centers에 의한 supralinearity된 양이 부가된 전체 열자극발광 세기는 supralinearity가 나타나는 50Gy 영역을 제외한 supralinearity의 모든 영역에서 실험결과와 잘 일치한다.

I. 서 론

Eucryptite는 유효원자번호가 작고 용점이 높기 때문에 금속 이원온으로 널리 응용되고 있다.^{1,2)} $\text{Li}_2\text{O}_3 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$ 로 조성된 eucryptite는 alpha와 beta로 분류되는데 alpha-eucryptite는 자연산이고, beta-eucryptite는 Li_2O_3 , Al_2O_3 , SiO_2 의 성분으로 고온에서 제조된다. Beta-eucryptite의 실질적인 응용은 많은 연구가 이루어지고 있으나, beta-eucryptite의 열자극 발광에 의한 방사선 선량계로의 연구는 전무한 상태이다. 다만 beta-eucryptite의 결정 구조에 대하여 미미한 연구가 되었을 뿐, beta-eucryptite의 defect center에 대한 연구도 이루어져 있지 않은 상태이다.

Photon, γ -선, 자외선 또는 입자로 시료를 조사시키면, beta-eucryptite내에 존재하는 defect center에 의한 열자극발광 (Thermoluminescence:TL)이 나타난다. 이 열자극 발광을 선량계(Thermoluminescence dosimeter:TLD)로 사용되기 위해서는 조사선량에 대한 TL세기의 선형적인 특성을 가져야 한다.³⁾ 그러나 조사선량이 증가하면 선형성에서 벗어나 supralinearity가 나타나게 된다. Attix, Mayhugh와 Christy등에 의한 LiF의 supralinearity 연구⁵⁻⁷⁾와 Rasheedy등에 의한 CaF_2 의 연구⁸⁾가 이루어졌을 뿐이다. 본 연구에서는 ^{137}Cs 의 다양한 선량으로 제조된 beta-eucryptite에 조사시킨 후, 조사선량에 따른 TL세

기의 특성과 *supralinearity*에 대하여 조사하였다.

II. 실험기구 및 방법

그림1은 본 실험을 위하여 새로 고안하여 제작한 실험 장치의 개략도이다. TL과 TSEE (Thermally stimulated exoelectron emission)을 동시에 측정할 수 있도록 고안하였으며, 이온주입이나 전자선 조사에 의한 TL 특성도 연구하기 위하여 전자총과 소형가속기(10keV)를 부착하였다. X-선과 자외선등을 조사할 수 있도록 수광창을 만들었고, 시료지지대에 발열체와 액체질소통을 설치하여 저온에서부터 고온까지 TL을 측정할 수 있도록 하였다. 또한 시료지지대는 360° 회전할 수 있도록 고안되어서 진공을 깨지않고 조사된 시료의 TL을 측정할 수 있다.⁹⁾

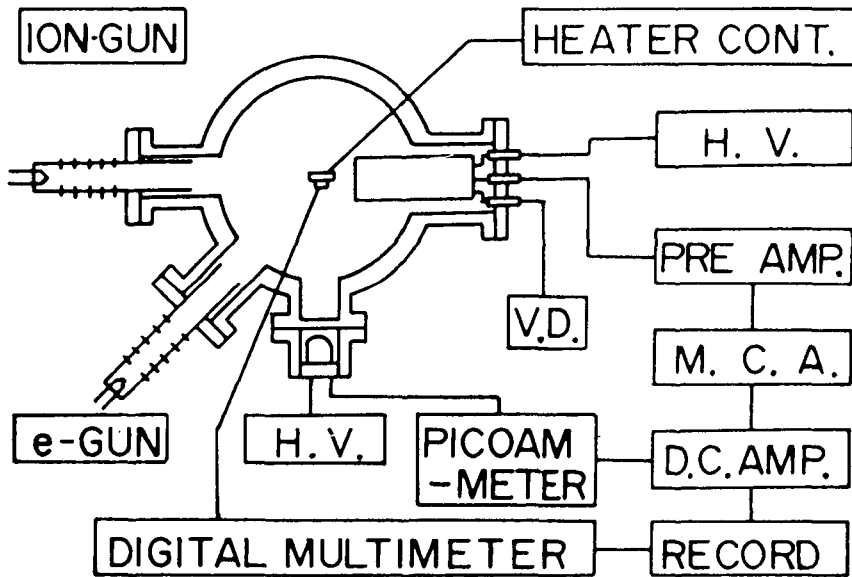


Fig. 1 Schematic diagram of the experimental apparatus for measuring TL and TSEE.

Li_2CO_3 , Al_2O_3 와 SiO_2 를 1:1:2의 중량비로 섞어 성형시킨 후, 1800°C 로 가열하면 CO_2 가 방출되고 beta-eucryptite가 만들어진다. 본 실험에 사용한 시료의 크기는 $5 \times 5 \times 1 \text{mm}^3$ 이다. Photon을 조사시키기 전에 모든 시료를 400°C 에서 1시간 동안 열처리하여 시료내에 잔존하는 TL emission center를 제거하였다. Photon을 조사시키지 않은 시료의 TL을 300K 부터 600K 사이에서 측정하여 background를 확인한 후 photon을 조사시켜 TL을 측정하였다. ^{137}Cs 이 조사된 시료에서 방출되는 TL을 광증배관으로 측정하였다. TL측정시 시료의 온도는 program된 온도조절장치를 이용하여 1K/S 의 온도상승률로 가열하여 TL의 세기와 온도를 X-Y기록계에 기록하였다. 5개 시료를 각각의 선량으로 조사시킨 후, 열적인 영향등의 불필요한 신호를 제거되도록 $5 \times 10^{-7} \text{torr}$ 의 진공도에서 TL세기를 측정하였다.

Ⅲ. 실험결과 및 분석

그림2는 시료를 100Gy의 ¹³⁷Cs로 조사시킨 후, 1K/S의 온도상승률로 가열하여 측정된 베타-유크립타이트의 열자극발광 스펙트럼이다. 측정된 TL곡선은 수치해석적인 방법이나 열처리법에 의하면 373K, 401K, 500K, 543K에서 정점온도를 가지는 TL곡선들로 분해된다. 373K, 401K, 543K 곡선 세기는 500K TL세기의 23%, 36%, 5%를 가지며, 500K peak는 높은 온도를 가지므로 선량계로 사용될 수 있다. 보다 높은 온도 영역에서 나타나는 peak는 filter나 lock-in amplifier등의 잡신호 제거 장치를 사용하지 않으면 적외선 방출의 증가로 말미암아 선량계로 사용되지 못한다.

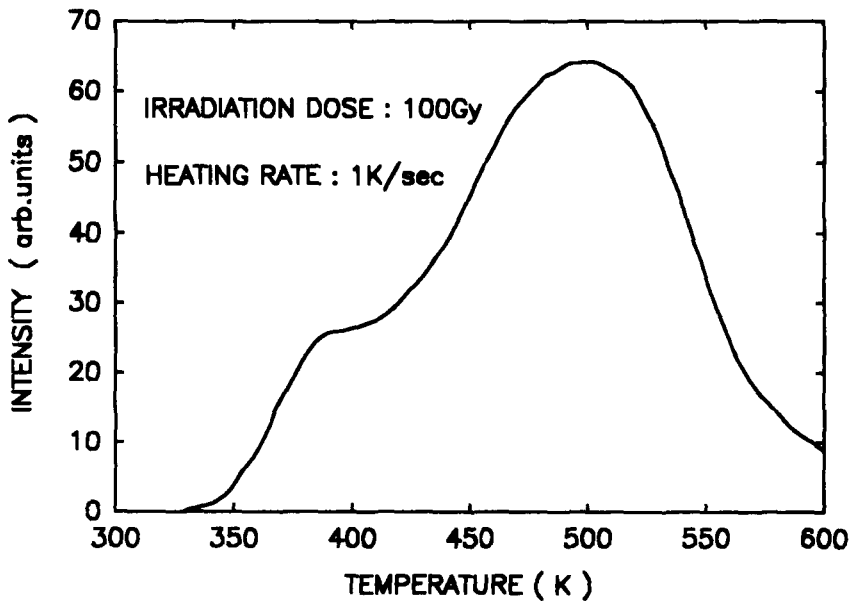


Fig.2 TL spectrum from 4MeV-photon irradiated beta-eucryptite. The duplicated TL curve is split into the isolated TL spectrum by using the numerical analysis and thermal annealing. The peak temperatures are located at 373K, 401K, 500K and 543K.

그림3은 조사선량에 따른 300K-600K 온도구간의 전체 TL세기와 401K peak와 500K peak의 높이를 나타낸 그림이다. 50Gy선량까지 조사선량에 대한 TL세기의 선형성이 유지되고 그 이상의 선량에서는 선형성에서 벗어난다. 즉 supralinearity가 50Gy에서부터 나타난다. 17100Gy이상의 높은 선량에서는 TL세기가 saturation되고 있다. 조사선량에 따른 각각의 분해된 peak세기도 전체 TL세기와 유사한 추세를 보인다. 방사선 조사에 의해 열자극 발광을 내는 trapping center에 전하 운반체들이 채워짐에 따라 낮은 선량에서는 TL세기가 선형적으로 증가하다가 높은 선량에서는 기하급수적으로 증가하여 최고점에 이르게 된다. 즉 조사 선량에 따른 TL세기는 다음과 같다.

$$L(R) = L_0 \left(1 - \exp(-rR) \right) \dots \dots \dots \text{식(1)}$$

200cGy부터 20000Gy사이의 선량에 따른 300K-600K 온도구간의 전체 TL세기는 그림4와 같다.

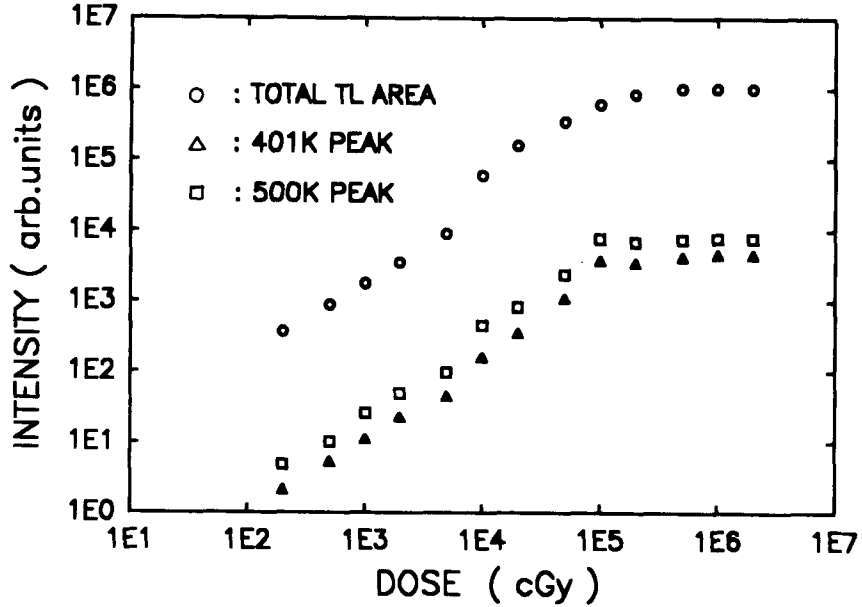


Fig.3 The TL intensity as a function of irradiation dose, Open circle is the integral of the TL intensity between 300K and 600K, At 500Gy the supralinearity begins, grows and disappears at 17100Gy. Open triangle and square are 401K and 500K peak, respectively.

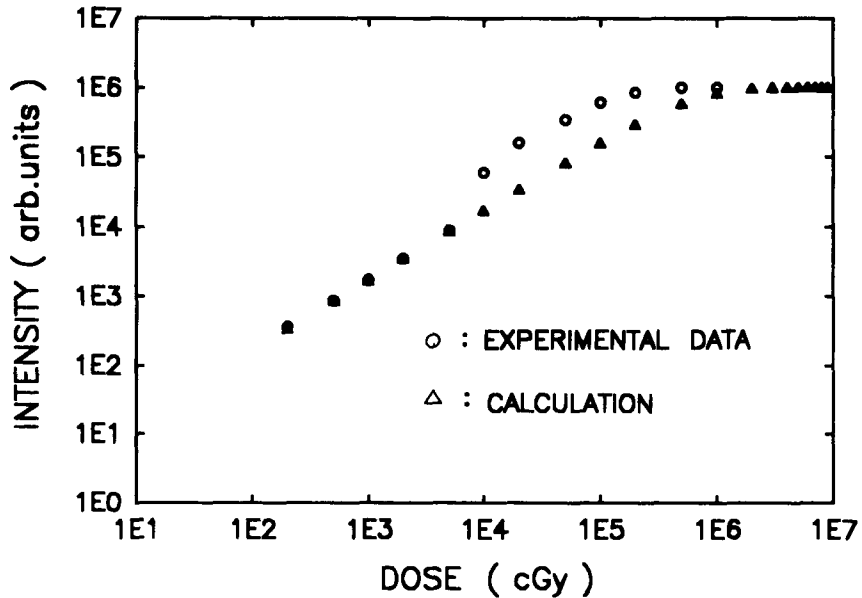


Fig. 4 The measured TL intensity (open circle) and calculation (open triangle) as a function of irradiation dose.

낮은 선량 영역에서는 선량에 대한 TL세기의 선형성이 유지되지만 50Gy-5000Gy의 선량영역에서는 supralinearity를 보여준다. 식(1)에 의한 선량에 따른 TL세기는 그림4의 삼각형 곡선이며 약 17100Gy 선량까지는 선형적으로 증가한 후, 그 이상의 영역에서는 saturation된다. 그림5는 조사선량에 따른 supralinearity된 량을 나타낸다. 이 량은 그림4에서 측정된 전체 TL세기에서 선형적으로 증가하는 식(1)의 TL세기를 뺀으로서 구해진다. Supralinearity된 량은 supralinearity가 일어나는 조사선량에서부터 증가하다가 약 2000Gy 영역에서 최대량을 가진 후 감소된다. 그 이상의 조사 선량에서는 saturation이 일어나기 때문에 supralinearity된 량은 나타나지 않는다. 포톤을 시료에 조사시키면 시료내에 새로운 trapping centers를 형성시키며 새로 형성된 center의 일부는 없어진다. 소멸된 량을 제외하고 형성된 양만이 supralinearity된 양에 기여하는 trapping centers이다. 새로 형성된 trapping centers에 전하운반체들이 점진적으로 채워지며 또한 이 trapping centers는 luminescent centers로 작용한다. 이러한 centers량들은 원래 시료에 존재하고 있는 luminescent centers량에 부가되어 TL세기로 나타난다. 조사선량 R에 따른 trapping centers의 생성비는 아래와 같다.

$$\frac{dy}{dR} = a(Y-y) \dots \dots \dots \text{식(2)}$$

여기서 Y는 새로운 trapping centers로 전환되는 단위체적당 site수, a는 생성확률, y는 단위체적당 생성된 trapping center수이다. 식(2)의 해는

$$y(R) = Y \left(1 - \exp(-aR) \right) \dots \dots \dots \text{식(3)}$$

로 주어지며, 이 결과는 식(1)과 같다.

또한 새로 형성된 trapping centers중에서 소멸되는 centers의 비율과 해는 다음과 같다.

$$\begin{aligned} \frac{dk}{dR} &= b(y-k) \\ &= b \left(Y - k - Y \exp(-aR) \right) \dots \dots \dots \text{식(4)} \end{aligned}$$

$$k(R) = Y \left(1 - \frac{b}{b-a} \exp(-aR) - \frac{a}{a-b} \exp(-bR) \right) \dots \dots \dots \text{식(5)}$$

여기서 k는 새로 형성된 trapping center중에서 소멸되는 단위 체적당의 center수, b는 trapping center의 소멸 확률이다. M는 1/b이고 N는 1/a이다. 조사선량 R에 의해 생성된 량에서 소멸된 량을 제외하고 순수하게 형성된 luminescent center수 S는

$$\begin{aligned}
 S(R) &= y(R) - k(R) \\
 &= Y \left(1 - \exp(-R/N) - \frac{N}{N-M} \left(1 - \exp(-R/N) \right) + \frac{M}{M-N} \left(1 - \exp(-R/M) \right) \right) \\
 &= Y \left(\frac{M}{M-N} \right) \left(\exp(-R/M) - \exp(-R/N) \right) \dots \dots \dots \text{식 (6)}
 \end{aligned}$$

이다. 아래와 같은 식(6)의 변수들을 택하면.

$$\begin{aligned}
 a &= 1.1 \times 10^{-5} \text{ cGy}^{-1} \\
 b &= 1.3 \times 10^{-6} \text{ cGy}^{-1} \\
 Y &= 7.4 \times 10^5 \text{ arb. units} \\
 r &= 1.71 \times 10^6 \text{ cGy} \\
 L_0 &= 1.02 \times 10^6 \text{ arb. units}
 \end{aligned}$$

supralinearity가 일어나기 시작하는 선량 영역을 제외한 supralinearity 전 영역에서 실험 결과와 잘 일치됨을 그림5에서 알 수 있다.

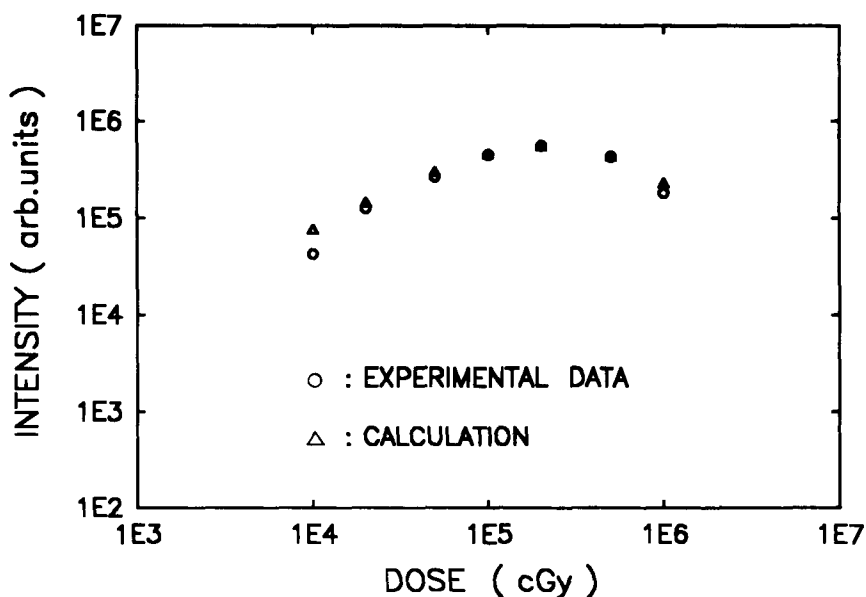


Fig. 5 The net amount of supralinearity as a function of irradiation dose.

According to the irradiation dose the net amount of supralinearity grows and slowly decreases after passing a maximum value around 2000Gy.

조사선량 R에 의해서 방출되는 선형성의 량과 supralinearity된 량이 부가된 전체 TL세기

$$\begin{aligned}
 TL(R) &= L(R) + S(R) \\
 &= L_0 \left(1 - \exp(-rR) \right) + Y \left(\frac{M}{M-N} \right) \left(\exp(-RM) - \exp(-RN) \right) \dots \dots \dots \text{식(7)}
 \end{aligned}$$

이다. 위와 같은 변수 값으로 대입한 식(7)에 의한 TL세기는 그림6과 같이 실험 결과와 잘 일치한다.

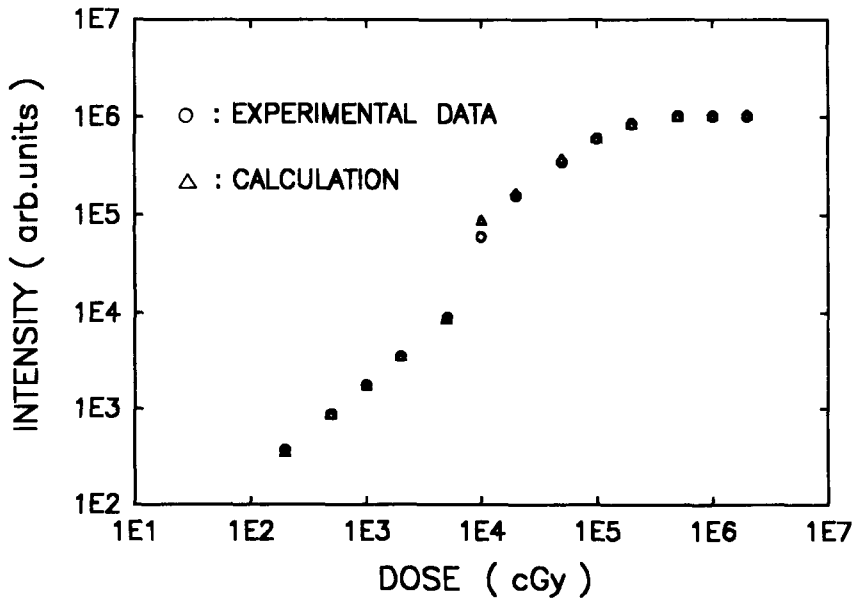


Fig.6 The total TL intensity of experimental data and calculation vs irradiation dose. The calculated TL intensity is accord with the experimental result except for the 50Gy range that supralinearity appears,

IV. 결 론

¹³⁷Cs으로 제조된 베타-유크립타이트를 조사시킨 후, 베타-유크립타이트의 TL스펙트럼을 측정하였다. 혼합되어 측정된 스펙트럼은 수치해석법이나 열처리법에 의해 373K, 401K, 500K, 543K에서 peak를 가지는 곡선으로 분해된다. 200cGy-20000Gy의 조사선량에 따른 300K-600K 온도구간의 전체 TL세기는 50Gy선량까지 선형성이 유지되지만, 그 이상의 영역에서는 supralinearity가 나타나며 17100Gy이상의 조사 영역에서부터 TL세기가 saturation된다. 조사선량에 따른 분해된 각각의 TL 곡선도 전체 TL세기와 동일한 경향을 보인다. 2000Gy조사 선량에서 supralinearity된 양이 최대로 나타나며 약 17100Gy영역에서 소멸된다.

포톤 조사에 의해 순수하게 형성된 trapping centers에 의한 TL세기의 supralinearity된 양을 비교하면, 본 연구에서 제시된 supralinearity된 양과 실험결과는 supralinearity가 나타나는 50Gy영역을 제외한 supralinearity의 모든 영역에서 잘 일치한다. 또한 선량에 따라

선형적으로 증가한 TL세기와 supralinearity된 양을 더한 전체 TL세기 곡선도 전체 조사 영역에서 실험결과와 잘 맞고있다. 그러나 supralinearity가 일어나는 선량 영역의 차이에 대한 연구가 더 필요하다.

감사의 글

본 연구는 한국과학재단의 일반목적기초 (과제번호 923-0200-008-1) 연구비 지원에 의해 수행되었으며 이에 감사드립니다.

References

1. C. C. Lee, Y. K. Ko and D. K. Kim: Lithium Ion Source: New Physics, 7, 7-12(1967)
2. C. C. Lee, Y. K. Ko, D. K. Kim and K. M. Park: Alpha Energy Distribution of $\text{Li}^+(\text{p}, \alpha) \text{He}^+$ Reaction: J. of Nucl. Science, 8, 11-16(1968)
3. R. Chen and Y. Kirsh: Analysis of Thermally Stimulated Process: Pergamon, Oxford(1981), pp. 2-3
4. A. F. McKinlay: Thermoluminescence Dosimetry: Adam Hilger Ltd, Bristol (1981), pp. 22-26
5. M. R. Mayhugh: Color Centers and the Thermoluminescence Mechanism in LiF: J. Appl. Phys., 41, 4776-4782(1970)
6. M. R. Mayhugh and R. W. Christy: V_3 Band in LiF: Phys. Rev., B2, 3330-3332(1970)
7. F. H. Attix: Further Consideration of the Track-Interaction Model for Thermoluminescence in LiF(TLD-100): J. Appl. Phys., 46, 81-88(1975)
8. M. S. Rasheedy, F. Nishimura and T. Ichimori: On the thermoluminescence Emission Spectra of $\text{CaF}_2:\text{Tm}$: Nucl. Instr. Meth., B61, 67-71(1991)
9. C. N. Whang, T. K. Kim, S. T. Kang and H. S. Choe: Electron Beam Induced Thermoluminescence from Li^+ Implanted Al_2O_3 : Nucl. Instr. Meth., B23, 353-358(1987)

The Characteristics of Thermoluminescence from ^{137}Cs Irradiated Beta-Eucryptite

Tae Kyu Kim, Ph. D., Byong Yong Yi, Ph.D^{*}, Young Wco Vahc, Ph. D.^{**}, Seong Sil Chu, Ph. D.⁺, Chung Nam Whang, Ph. D.⁺⁺

Dept. of Science Education, Chonju Ntl Teachers College, Chonju, Korea

Dept. of Science Education, Chonju Ntl Teachers College, Chonju, Korea

^{*}Dept. of Ther. Radiol., Coll. of Medicine, Ulsan Univ., Seoul, Korea

^{**}College of Wonju Medicine, Yonsei Univ., Wonju, Korea

⁺Dept. of Radiation Oncology, Coll. of Med., Yonsei Univ., Seoul, Korea

⁺⁺Dept. of Physics, Yonsei Univ., Seoul, Korea

The thermally stimulated luminescence (Thermoluminescence:TL) of manufactured beta-eucryptite was studied for dose range of 200cGy-20000Gy. The TL spectrum from cesium irradiated beta-eucryptite was measured over the temperature range of 300K to 600K. The linearity of TL intensity vs irradiation dose is valid up to 50Gy and beyond higher dose supralinearity and saturation come out. At the dose of 2000Gy, the net number of supralinearity is maximum. The net amount of supralinearity form newly formed trapping center by photon irradiation and totally calculated TL intensity are accord with the experimental results except for the 50Gy range that supralinearity appears.