

양전자 소멸 분광법을 이용한 $Gd_2O_2S : Tb$ 결함 특성

이종용[†] · 김창규^{*}

한남대학교 물리학과, 김천대학 방사선과^{*}
(2004년 2월 13일 접수)

The Defect Characterization of $Gd_2O_2S : Tb$ Crystals by Positron Annihilation Spectroscopy

C. Y. Lee[†], C. G. Kim^{*}

*Physics Department, Hannam University. Radiology Department, Gimcheon College**

(Received February 13, 2004)

요 약

양전자 소멸 분광법으로 시료에서 원자 크기 정도 결함의 특성을 조사하였다. 양전자와 전자의 쌍소멸에서 발생하는 511 KeV 감마선 스펙트럼의 수리적 해석 방법인 S-변수를 사용하여, 결함의 정도를 측정하였다.

임상에서 X-선 증감제로 0, 2, 4, 6년 동안 사용한 시료를 실험하였다. 각 시료들에서 측정된 S-변수는 0.4932부터 0.4956 정도의 변화를 보였다. 이에 상응하는 실험 방법으로 같은 시료에 X-선의 에너지와 조사시간 즉 6 MV 및 15 MV의 X-선을 사용하여 3, 6, 9, 그리고 12 Gy의 조사량을 변화시키면서 결함의 정도를 측정 비교하였다.

주제어 : $Gd_2O_2S : Tb$, S-변수, 양전자, 도플러 넓어짐 양전자소멸 분광법, 결함

Abstract

DBPAS has been used to characterize atomic size defect structures in materials. In this investigation the numerical analysis of the Doppler spectra was employed to the determination of the shape parameter, S, defined as the ratio between the amount of counts in a central portion of the spectrum and the total counts of whole spectrum.

As the samples were exposed by X-ray increasing the exposed doses from 3, 6, and 9 Gy with 6 MV and 15 MV, respectively and also irradiated by X-ray as the medical applications used for in 0, 2, 4 and 6 years. The S-parameter values were increased as increasing the exposed time and the energies, that indicated the defects generate more. The S-parameters of the samples with medical treatment is varied from 0.4932 to 0.4956.

Key Words : $Gd_2O_2S : Tb$, S-parameter, positron, DBPAS, defect

1. 서 론

양전자는 전자의 반입자로서 지난 20년 동안 재

료의 특성이나 반도체 소자 결함에 이용되었으며 [1-3], 양전자는 전자와의 상호 작용을 통한 재료내의 결함 특성을 측정하는 수단으로 연구되어 왔다.

양전자가 전자와 소멸을 할 때는 대부분의 경우 2개의 γ 선이 거의 180° 각도를 이루면서 방출된다.

양전자를 이용한 결합측정 방법은 크게 세 가지가 있다. 즉, 도플러 넓어짐 양전자 소멸 분광법 [4](Doppler Broadening Positron Annihilation Spectroscopy : DBPAS), 양전자 소멸 수명 분광법[5], 각 상관 소멸 광자 방법[6]이다. 그 중 본 실험 방법에서 사용하고 있는 도플러 넓어짐 양전자 소멸 분광법은 γ 선 에너지의 측정을 이용한 것으로 소멸과정에서 전자와 양전자 쌍의 운동량이 소멸 감마선에 보존되므로, 전자의 운동량은 소멸 감마선의 에너지 편이의 정도로 측정 될 수 있다. 이 방법은 측정이 용이하며, 측정하는 경우에도 시료에 전혀 영향을 주지 않는 비 파괴적 측정법이다. 또한 다양한 시료를 측정 할 수 있으며, 나노미터 크기의 결합을 측정 할 수 있는 장점을 가지고 있다. 그러므로 실리콘 쿨웨이퍼의 표면 결합 측정[7] 이나 실리콘 소자에 대한 연구[8], 물리 화학적 또는 전기적 충격이 가해 질 때에 시료에 발생하는 결합 측정[9] 등에도 사용하고 있다.

최근에 의료산업에서 사용하는 희토류형 증감지 시료는 의료영상을 얻을 때 방사선 피폭을 줄이기 위한 수단으로 형광 증감물질로서 많이 사용되고 있다[10]. 증감지는 X선이 직접 필름 감광막에 흡수되는 양이 미비하여(약1%) 거의 대부분 통과하게 되는데 그 통과되는 에너지를 흡수하여 다시 필름에 감광시키는 역할을 하며, 다량의 X선을 흡수하여 형광을 발광하므로 이것을 필름에 밀착시키면

필름 감광막에 강한 사진작용을 준다. 즉 X선 자체의 사진 작용과 증감지의 형광에 의한 감광 작용이 서로 협력하여 사진작용이 한층 선명해 진다. 이 물질은 방사선 특히 X선과 상호 작용하여 발광을 통한 영상을 얻게 되는데 발광효율에 따라서 인체 방사선 피폭선량, 영상획득 시간이 결정되어 진다. 이 물질의 발광효율은 사용 빈도에 따라 저하되는데 그 원인이 명확하게 규명되어 있지 않다.

본 연구에서는 의료 영상의 증감지로 많이 사용되는 $Gd_2O_3 : Tb$ 시료에 대하여 의학적인 감도 즉 병원에서 진단용으로 사용한 년도에 따른 총감마선의 수와 $511 \text{ KeV} \pm$ 수 KeV 의 영역에 해당하는 감마선의 비인 S-변수를 이용한 결합 크기 비교와 X선을 노출 시켰을 때 노출시키는 세기에 따른 결합 특성을 분석함으로써 상업적인 형광 증감 물질 제조 및 수명 연구에 대한 실험을 목적으로 수행하였다.

2. 실험방법

증감지의 감도가 $CaWO_4$ 시료보다 좋은 $Gd_2O_3 : Tb$ 시료는 Kodak사의 형광 증감 시료로써 각각 $200 \times 250 \times 0.4 \text{ mm}^3$ 인 것을 실험 편의상 $20 \times 20 \times 0.4 \text{ mm}^3$ 의 크기로 제작되었고, Verian 사의 Clinac 2100 C/D가 X선과 전자선 빔의 동시 발생 장치를 이용하여 X선의 경우에는 6, 15 MV 에너지 세기의 두 종류 시료로 나누어 실험하였다. 이때 조사의 범위(조사야)는 $100 \times 100 \text{ mm}^2$ 이고, X선 빔 소스로부터 1m 거리 간격을 띄워 각각 3, 6, 9, 12 Gy로 조

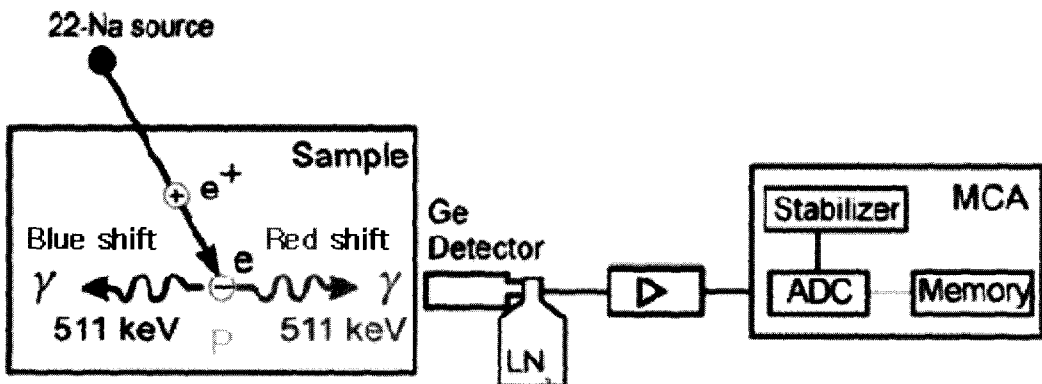


Fig. 1. Schematic diagram of experimental arrangement of Doppler-broadening spectroscopy.

사시켜 모두 6 쌍의 조사량의 정도가 서로 다른 시료들을 제작하였다. 임상에서 사용될 증감지는 종합 병원에서 사용하는 진단용 X-선을 주사하여 사용된 것으로 2년 간격의 시료를 측정하였다.

도플러 넓어짐 양전자 소멸 분광법 실험을 하기 위하여 양전자 소스는 활성화 면적의 직경이 9.53 mm이고, 5 μm 두께의 니켈 foil로 양면을 감싸고 있는 10 μCi ^{22}Na 소스를 사용하였다. 양전자의 열적 투과 깊이가 100 μm 정도이므로 측정하려는 $\text{Gd}_2\text{O}_3\text{:Tb}$ 시료의 경우 표면의 폴리머 두께가 20 μm 이며 희토류 형광물질은 두께가 100~300 μm 로써 S-변수를 측정하는 실험에서 폴리머의 두께는 무시 할 수 있다. Fig. 1은 실험 방법을 보여 주고 있으며, 양전자 소스는 시료 한 쌍의 가운데에 샌드위치 형태로 배치하였다. 또한 양전자 소멸에 의한 511 KeV 감마선 에너지 검출을 위하여 Ortec사 Gem 20180-P 검출기 그리고 내부 및 외부 증폭기를 사용하여 측정하였다. 다른 연구자의 실험에서와 같이[11] 도플러 스펙트럼은 peak 채널에서 스펙트럼 당 100,000 개 정도를 포함하고 있으며, S-변수는 5회 측정된 실험 평균값이다. 임상 시료에서는, S-변수의 표준편차가 가장 큰 값이 5.03×10^{-4} 이었다. 실험은 의료장비에서 사용하는 증감지 $\text{Gd}_2\text{O}_3\text{:Tb}$ 시료의 X-선에 의한 결함 정도를 알아보고자 하였으므로 실험 목적의 특성상 상온에서 수행하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 $\text{Gd}_2\text{O}_3\text{:Tb}$ 의 X선 조사시 결함특성

Fig. 2는 상온에서 X선을 각각 6, 15 MV 에너지로 3, 6, 9, 12 Gy의 선량을 조사하였을 때의 S-변수 값을 보여주고 있다. 이때의 표준편차의 최대 값은 4×10^{-4} 이다. X선을 조사하지 않았을 때의 시료인 $\text{Gd}_2\text{O}_3\text{:Tb}$ 에서의 S 값을 기준으로 정의하였고, 수평축의 선량을 3, 6, 9, 12 Gy로 증가함에 따라서 S-변수 값을 정의하였다. 두 X선 에너지를 조사하는 경우 모두 선량이 3, 6, 9, 12 Gy로 증가함에 따라서 S-변수 값은 비례적으로 증가하는 경향을 보이

고 있으며, 6 MV X선의 에너지보다는 15 MV X선의 에너지일 때 S-변수 값이 보다 더 높은 경향을 알 수가 있다. 6 MeV에서 선량이 9 Gy 이상 증가시켜도 변화가 없는 것은 에너지가 낮은 경우에는 결함 증가가 실험 오차 범위내로 여겨진다. Fig. 2에서 알 수 있듯이 동일한 선량을 조사하였을 때는 에너지가 큰 X선 조사의 경우가 결함이 높게 나타났고, 선량의 크기를 증가시키는 것보다 에너지 크기의 증가가 결함을 높이는데 더 기여하는 것으로 판단된다. 또한 Fig. 3의 SEM에서 보이는 것과 같이 X선 조사를 하지 않은 시료와 X선이 조사된 시료가 다른 것을 확인할 수 있는데, 입자에 X선이 조사되면 결정의 입자가 파괴되어 기존의 결정 크기가 작아지거나, 불규칙적으로 된다. 조사선 에너지와 선량이 다른 (b) 와 (c) 경우를 비교하여 보면 시료내의 결정의 결함에 대하여는 큰 에너지와 많은 선량에서 더 증가함을 보여준다. 특히 양전자 소멸에 있어서 양전자가 격자 빈자리에서 주변의 최외각 전자와 소멸하는 경우에 S-변수 값이 증가하는 특성이 있다. 이러한 이유 때문에 결정의 결함이 증가된 것을 알 수가 있다. 결함이 증가된 시료에서의 도플러 넓어짐 양전자 소멸 분광 스펙트럼은 511 keV 부근 감마선의 수가 증가하고 큰 에너지 편이에 (높은 운동량) 해당하는 감마선의 수는 감소한다. 격자 결함자리에 운동량이 작은 최외각 전자가 많아짐으로 양전자와의 소멸율이 증가하여 511 keV의 감마선의 수가 증가하고, 반대로 큰 운동량

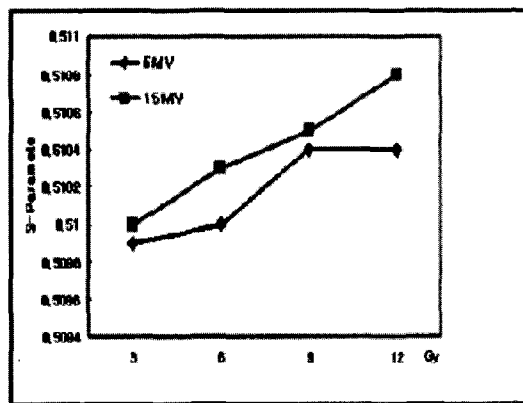


Fig. 2. The variation of S-parameter depending on the X-ray dose intensity of $\text{Gd}_2\text{O}_3\text{:Tb}$.

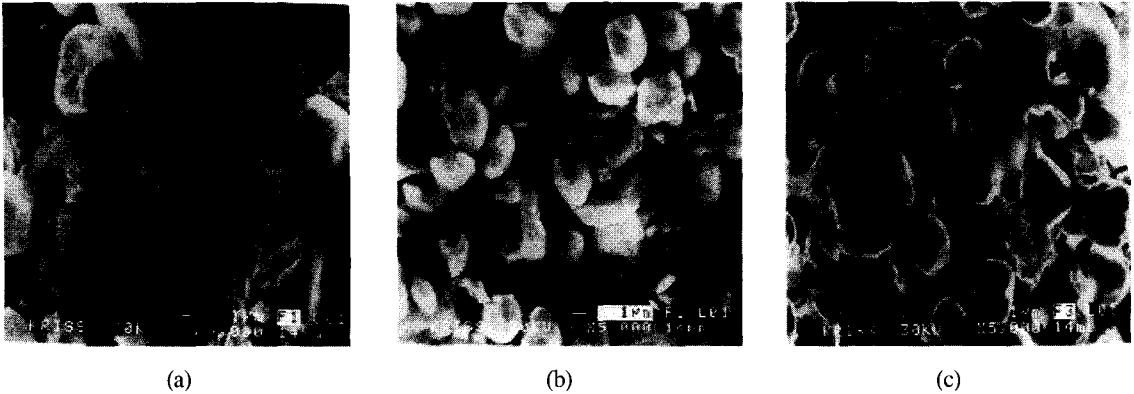


Fig. 3. SEM Photographs of large size grains in $Gd_2O_3 : Tb$ (a) unexposed (b) exposed samples by 6 MV 6 Gy and (c) 15 MV 9 Gy X-ray

을 갖는 코어 전자의 감소로 큰 에너지 편이가 있는 부분에서는 그 수가 감소하게 된다.

X-선을 조사하면 시료는 결합이 증가하며, 또한 선량이 증가하면 증가할수록 결합의 양이 많아지는 것을 알 수 있다. 즉 결정의 결합 증가는 조사선량 및 조사 에너지와 상관이 있음을 알 수 있었다.

발표된 논문[12]에 따르면 증감지의 다른 종류로써 입자 크기가 작은 $CaWO_4$ 시료는 방사선이 노출되지 않은 입자 크기가 큰 $CaWO_4$ 시료에 비하여 S-변수 값이 큰 것을 볼 수가 있는데, 이것은 입자 크기가 작은 $CaWO_4$ 에서 입자는 작은 입자로 이루어져 있기 때문에 입자간 결합 미세 공극이 결합으로 작용했을 것으로 보고되고 있다. 즉 X 선에 의하여 구성입자가 작은 크기로 변화된 결정 시료에서는 단위 면적 당 결정간 결합 부위가 많으므로 인하여 Fig. 2에 보여지는 것처럼 결합의 증가가 상대적으로 크게 나타나는 것을 알 수가 있었다. 또한 Gupta et al.[13], 결합 모델 이론에 의하면, 일반적으로 시료는 두 부분의 성분으로 나뉘며, 양의 (+) 전하를 띤 입자는 결정 경계면 안에서 음의 (-) 전하를 띤 입자는 결정 경계 표면에 몰려있으며, 이 두 입자들은 항상 같은 수이고, 균형을 이루고 있기 때문이다 라고 보고 되었는데, 이 모델에 따라서 운동량이 낮은 전자 입자는 결정 경계표면에 음 전하를 띤 층이 생길 것이다. 결합 경계면 근처에는 전자선에 의한 음 전하를 띤 입자가 많이 형성 될 것이고, 양전자는 속도가 낮은 전자와 소멸하면서 S-변수

값이 증가 할 것이다. 그러므로 도플러 넓어짐 방법에서는 결합의 크기 변화를 측정이 가능하게 하는 것으로 여겨진다. 이것은 다른 연구자의 발표에서도 증명되고 있다[11].

또한 Fig. 2, 3에서 알 수 있듯이 동일한 선량을 조사하였을 때는 에너지가 큰 X선 조사의 경우 결합 증가의 영향은 선량의 크기를 증가시키는 것보다 에너지 크기의 변화가 결합을 증가시키는데 더 기여하는 것으로 판단된다.

3.2 임상에서 사용된 $Gd_2O_3 : Tb$ 증감지 결합특성

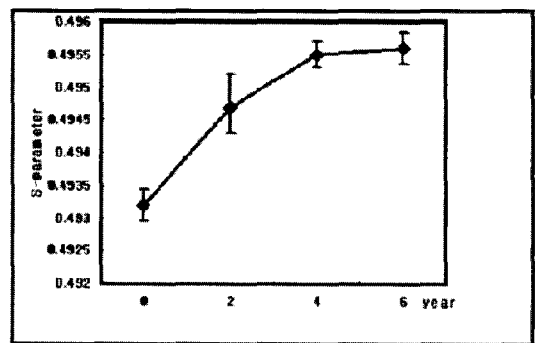
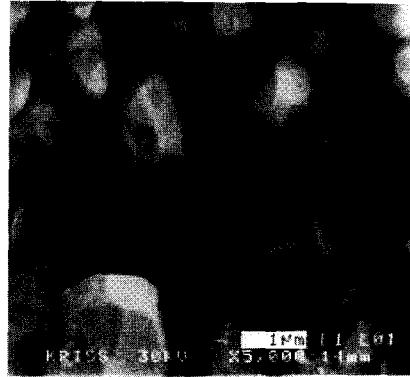


Fig. 4. S-parameters on the medical X-ray dose intensity in $Gd_2O_3 : Tb$ screen vs. various years.

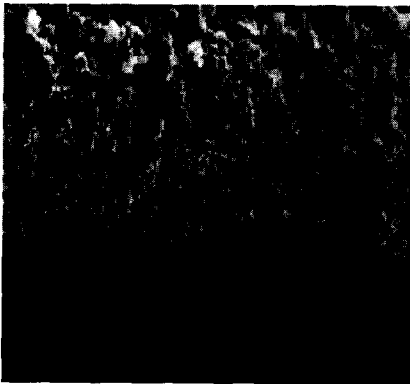
Fig. 4, 5는 진단용 X-선 조사를 이용한 임상에서 사용된 $Gd_2O_3 : Tb$ 시료의 년도 별로 측정된 S-변



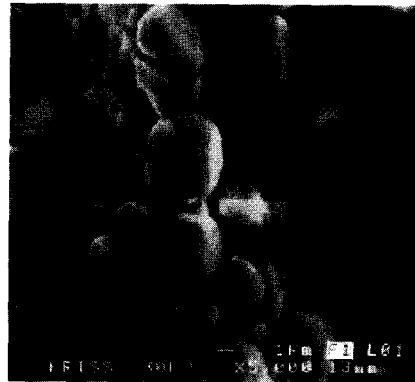
origin



2 year



4 year



6 year

Fig. 5. SEM photographs of $Gd_2O_2S : Tb$ in 0, 2, 4, 6 years.

수 값과 SEM 사진이다. 임상에서는 $CaWO_4$ 시료보다 $Gd_2O_2S : Tb$ 시료를 많이 사용하고 있는데 희토류 증감지는 $CaWO_4$ 에 비하여 고유변환효율과 흡수율이 높아 같은 노출조건에서 감도가 높다. 그러므로 같은 노출조건에서 보다 고해상도의 영상을 얻을 수 있게 된다. 즉 조사선량을 감소시킬 수 있는 장점이 있다. Fig. 4에서 보면 2년과 4년 사이에서 결함의 정도가 급격한 변화를 볼 수 있는데 이것으로 증감지의 수명을 대략 측정 할 수 있다. 즉 4년 후에는 증감지의 S-변수 변화의 정도가 낮아지는데 그 이유는 이미 결함의 양이 충분히 증가하여 변화의 속도가 늦어지는 것으로 나타난다. 이 증감지는 250 병상의 종합 병원에서 사용한 것으로 대략 4년 주기로 증감지를 교체하기 때문이다. SEM 사진으로 보면 $Gd_2O_2S : Tb$ 시료의 경우 년도가 지날수록 X-선의 조사영향으로 입자 크기가 작은 시료로 변

화되며, 입자 크기가 큰 시료에 비하여 S-변수 값의 변화 폭이 큰 것을 알 수 있다. 그리고 진단용의 경우에는 인체에 지장이 없는 때문에 70에서 80 KV 정도로 조사 에너지를 낮추었지만, 하루에도 여러 번 수년 동안 조사로 인하여 누적된 X-선의 조사 에너지 영향으로 앞 절의 X선 조사의 경우와 유사하게 S-변수 값이 변화되는 것을 알 수 있었다.

Fig. 6은 사용 년도별로 관전압이 80 KV에서 $Gd_2O_2S : Tb$ 증감지 시료의 Hawlet 차트를 이용한 화질 치(IQ)와 해상도의 값(LP/mm)을 나타낸 값이다. 차트를 이용한 것은 일반적으로 10명 정도가 화질의 정도를 보이는 부분까지 읽어서 점수로 나타낸 평균값으로 IQ의 경우에는 7.67부터 6.97로 나타났으며, 이 경우 4년과 6년의 경우 변화가 거의 없었다. 또한 해상도 역시 4.3부터 3.0으로 나타났으나 4년과 6년의 변화가 거의 없는 것으로 나타났다. 또

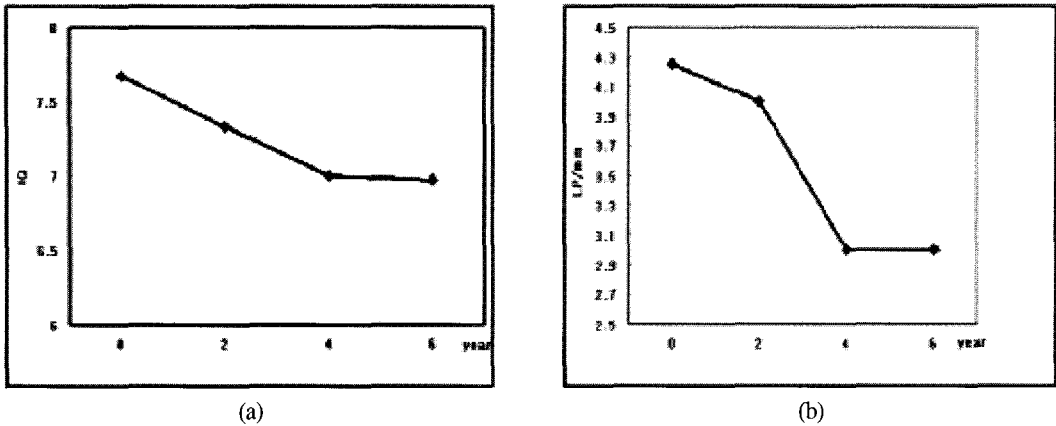


Fig. 6. (a) Image Quality(IQ) and (b) Resolution(LP/mm) in $Gd_2O_3 : Tb$ screen vs. various years.

한 Fig. 4와 Fig. 6 으로부터 4년 된 증감지를 진단용으로 계속 사용하기에는 어려운 것을 알 수 있다. 이것은 Fig. 4의 S-변수의 경우와 같은 경향을 보이는 것으로 S-변수에 의한 결합과 년도별 증감지에서 성능의 저하가 서로 상관 관계가 있음을 보여주고 있다.

4. 결 론

본 연구는 희토류 증감 물질인 $Gd_2O_3 : Tb$ 시료의 수명 측정에 필요한 기초 자료를 얻고자 방사선 조사에 대한 결합특성을 분석함으로써 다음과 같은 결론을 얻었다. 첫째, $Gd_2O_3 : Tb$ 에 X선을 조사하는 경우에 선량 및 에너지 변화에 따라 S-변수 값이 증가하였다. 또한 $CaWO_4$ 보다 감도가 좋아도 입자 크기가 작은 $Gd_2O_3 : Tb$ 시료는 입자 크기가 큰 시료에 비하여 S-변수 값이 큰 쪽으로 변화하는 것을 알 수 있었다. 둘째, 임상에서 사용된 $Gd_2O_3 : Tb$ 증감지 시료에서 4년까지는 진단용 방사선 에너지의 크기가 작더라도 년도에 따라 입자에 생기는 결합의 양이 증가하였으며 교체 시기인 4년이 지나서 결합의 변화가 적은 것에 대하여는, 화질이나 해상도를 비교함으로써 결합의 증가에 따른 증감지로서의 감도에 따른 성능이 이미 나빠진 것을 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 2003년도 KISTEP(M2-042-C00043) 싸이클로트론 이용 연구 사업에 의하여 수행되었습니다.

참 고 문 헌

- [1] B. Nielson, O. W. Holland, T. C. Leung, and K. G. Lynn, *J. Appl. Phys.* **74**, 1636 (1993).
- [2] J. P. Schaffer *et al.*, *J. Elec. Mat.* **18**, 737 (1989).
- [3] B. Mantl and W. Triftshausen, *Appl. Phys.* **5**, 177 (1974).
- [4] A. P. Druzhkov, R. N. Yeshchenko, S. M. Klotsman, A. N. Martem'Yanov, and G. G. Taluts, *Phys. Met. Metall.* **66**, 117 (1988).
- [5] J. L. Lee and J. T. Waber, *Meta. Trans.* **21**, 2037 (1990).
- [6] Z. Wei, D. Yang, and K. H. Wu, *Scri. Meta. Meter.* **29**, 753 (1993).
- [7] E. H. Molen, J. M. Oblak, and O. H. Kriege, *Met. Trans.* **2**, 1627 (1971).
- [8] H. E. Collins, *Met. Trans.* **5**, 189 (1974).
- [9] T. M. Wesik, D. Krammer, W. T. Lee, and A. Q. Pard, *Turbomachinery Intl.*, **24** (1984).

- [10] J. Huh *et al.*, *Medical Radio. Photo.*, (ShinKwang Publ. 2001) p.p. 100~103
- [11] T. K. Gupta, W. D. Straub, M. S. Ramanachalam, J. P. Schaffer, and A. Rohatgi, *J. Appl. Phys.* **66**, 6132 (1989).
- [12] 김창규외 3인, *한국재료학회지* **12**, 359 (2002).
- [13] T. K. Gupta and W. G. Carlson, *J. Mater. Sci.* **20**, 3487 (1987).