

도플러 넓어짐 스펙트럼을 이용한 희토류 증감지 결합 특성

이종용[†] · 김창규* · 송기영 · 김재홍**

한남대학교 이과대학 물리학과

*김천대학 방사선과

**원자력의학원 RI 및 방사성의약품개발실

The Defect Characterization of Rare-earth Intensifying Screen Material by Doppler Broadening Positron Annihilation Spectrometer

C. Y. Lee[†], C. G. Kim*, G. Y. Song and J. H. Kim**

Department of Physics, Hannam University, Daejeon, Korea

*Radiology Department, Gimcheon College, Gimcheonsi, Korea

**Radiopharmaceuticals Lab, KIRAM, Seoul, Korea

(2005년 1월 12일 받음, 2005년 6월 1일 최종수정본 받음)

Abstract Doppler broadening spectrometer for positron annihilation experiment(DBPAS) has been used to characterize nano size defect structures in materials. DBPAS measures the concentration, spatial distribution, and size of open volume defects in the rare-earth intensifying screen materials. The screens were exposed by X-ray varying the exposed doses from 3, 6, 9, and 12 Gy with 6 MV and 15 MV, respectively and also irradiated by 37 MeV proton beams ranging from 0 to 10¹² p/pts. The S parameter values increased as the exposed time and the energies increased, which indicated the defects were generated more. The S parameters of the samples with X-rays varied from 0.5098 to 0.5108, on the other hand, as proton beams varied from 0.4804 to 0.4821.

Keywords Intensifying screen, DBPAS, proton beam, X-ray, defect.

1. 서 론

양전자 소멸 측정법은 지난 30여 년 동안 재료 특성이나 반도체 소자 결합 등에 이용되어져 왔다.^{1,3)} 특히 재료의 특성 중에서도 양전자는 전자와의 상호 작용에 의한 시료내의 결합 특성을 측정하는 수단으로 연구되어 왔다. 측정법이 용이하고 측정하는 경우에도 비파괴 방법의 하나로 시료에 전혀 영향을 주지 않으며, 나노미터 수준의 결합을 측정 할 수 있는 장점을 가지고 있기 때문이다. 그리고 실리콘 웨이퍼의 표면 결합 측정⁴⁾ 할 때나 실리콘 소자에 대한 연구,⁵⁾ 물리 화학적 또는 전기적 충격이 가해 질 때에 시료에 발생하는 결합 측정⁶⁾ 등에 많이 사용하고 있다. 국내에서는 증감지에 대한 연구의 한 수단⁷⁾으로 이용되어 왔다. 특히 도플러 넓어짐 측정 방법⁸⁾(Doppler Broadening Positron Annihilation Spectrometer : DBPAS)은 양전자 소멸 측정법의 한 종류로서 소멸과정에서 전자와 양전자 쌍의 소멸에 의한 운

동량 분포에 대한 것을 측정하여 이용하는 것이다. 양전자가 전자와 소멸 할 때, 총에너지가 $2m_0c^2 - E_b$ 인 방향이 반대의 두 광자(감마선)가 방사된다. 이때 m_0c^2 는 전자의 정지에너지이고, E_b 는 전자의 결합에너지이다. 운동량과 에너지의 보존법칙에 따라서, 이 에너지는 두 광자로 똑같이 나누어지지 않고, 한 광자 에너지는 $p_L c/2$ 가 늘어나고, 반면에 다른 한 광자의 에너지는 같은 양만큼의 에너지가 줄어든다. 이 경우 운동량 p_L 은 전자와 양전자 소멸시 광자 방사가 일어나는 방향의 세로축 성분이다. 사용되는 검출기는 광자들이 입의 방향으로 방사하는 경우에도 blue나 red로 이동된 광자 모두의 측정이 가능하다. 이 때에 $2\Delta E = p_L c$ 에 의한 소멸광자 피크의 넓어짐이 생기게 된다. 일반적으로 이 광자를 검출하기 위하여 게르마늄 검출기를 사용하는데 그 이유는 고에너지 광자에 대하여 충분히 좋은 분해능과 상대적인 효율이 높기 때문이다. 양전자 소멸을 이용한 다른 측정법은 양전자 수명 측정방법⁹⁾으로 양전자 소스에서 에너지 전이에 의해 양전자가 생성될 때 동시에 발생하는 1.27 MeV의 광자의 방출 시간과 시료에 주사되고 양전자가 소

[†]E-Mail : cylee@mail.hannam.ac.kr

멸 할 때 생성되는 0.511 MeV의 광자 에너지들에 대한 시간 간격을 측정하여 시료내의 결함에 따른 시간 지연을 측정하는 것이다. 셋째로 각 상관 소멸 광자 방법¹⁰⁾은 방사하는 광자의 수직 방향인 두 운동량 성분들이 작은 각으로 벗어나게 되며, 이때 각의 크기를 편각이라고 하고, 전자 운동량의 크기에 비례하며 이 편각은 1차원 또는 2차원으로 광자-광자를 동시 측정 방법으로 측정하는 것이다.

생활수준의 향상으로 의학과 관련된 산업이 나날이 성장하고 있다. 의료산업에서 많이 사용하고 있는 방사선 영상 형광체인 CaWO_4 나 $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S:Tb}$ 시료는 의료 영상을 얻을 때 방사선 피폭을 줄이기 위한 수단으로 형광 증감물질로서 많이 사용되고 있다.¹¹⁾ X 선은 물체에 투과하는 힘이 강하므로, X선이 직접 필름 감광막에 흡수되는 양이 1%로 미비하여 거의 대부분 통과하게 되므로 의료 영상을 위한 증감지는 그 통과되는 에너지를 흡수하여 다시 필름에 감광시키는 역할을 하며, 다량의 X선을 흡수하여 형광을 발광하고 이것을 필름에 밀착시키면 필름 감광막에 강한 사진작용을 준다. 즉 X선 자체의 사진 작용과 증감지의 형광에 의한 감광 작용이 서로 협력하여 사진작용이 한층 선명해 진다. 희토류 증감지 시료는 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 현재까지 명확히 규명되어 있지 않으며, 또한 의료 종사자들은 증감지의 수명을 어렵짐작 해산도에 따라 임의로 정하여 교체하고 있는 실정이다.

본 연구에서는 70년 대 이후 의료 영상에서 상대적으로 발광 효율이 높은 증감지로 많이 사용되는 희토류 $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S:Tb}$ 증감지 시료에 대하여 의학적인 감도 즉 병원에서 진단용으로 X-선을 주사하였을 때 따른 증감지의 수명과 연관된 결함의 정도를 정량적으로 측정하고

자 한다. 총감마선의 수와 511 KeV ± 수 KeV의 영역에 해당하는 감마선의 비인 S 변수를 이용한 결함 크기 비교를 위하여 양성자 빔 주사에 의한 결함의 정도 및 고 에너지의 X선을 노출 시켰을 때 노출시키는 세기에 따른 결함 특성을 분석함으로써 형광 증감 물질 제조 및 정량적 수명 연구를 위한 실험을 목적으로 수행하였다.

2. 실험 방법

증감지의 발광효율이 CaWO_4 시료보다 좋은 $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S:Tb}$ 시료는 Kodak사의 형광 증감 시료를 사용하였으며, 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, X선의 경우에는 Varian사의 Clinac 2100 C/D로써 X선의 발생 장치를 이용하여 6과, 15 MV 에너지 세기의 두 종류 시료로 나누어 실험하였다. 이때 조사의 범위(조사야)는 $100 \times 100 \text{ mm}^2$ 이고, X선 빔 소스로부터 1 m 거리 간격을 띄워 각각 3, 6, 9, 12 Gy로 조사시켜 모두 6쌍의 조사량의 정도가 서로 다른 시료들을 제작하였다. 특히 양성자빔 조사를 위하여 원자력의학원의 싸이클로트론 가속기를 이용하였으며 빔의 크기는 $20 \times 20 \text{ mm}$ 로써 실험 장치는 Fig. 1에서 보여주고 있으며 실험 장치의 세부 사항은 기 발표¹²⁾되어 있다. 이 경우 빔의 세기는 37 MeV 10 nA를 사용하였다. 뒷부분의 산란 에너지를 무시하고자 시료 뒤에 알루미늄의 얇은 막을 사용하였으며, 본 실험에서는 3% 이하로 맞추었다.

도플러 넓어짐 양전자 소멸 분광법 실험을 하기 위하여 양전자 소스는 활성화 면적의 직경이 9.53 mm이고, $5 \mu\text{m}$ 두께의 니켈 foil로 양면을 감싸고 있는 $10 \mu\text{Ci}$ ^{22}Na 소스를 사용하였다. 양전자의 열적 투과 깊이가 $100 \mu\text{m}$ 정도이므로 측정하려는 $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S:Tb}$ 시료의 경우 표면의 보호막 폴리머 두께가 $20 \mu\text{m}$ 이며 희토류 형광물질은 두께가 100~300로써 S 변수를 측정하는 본 실험

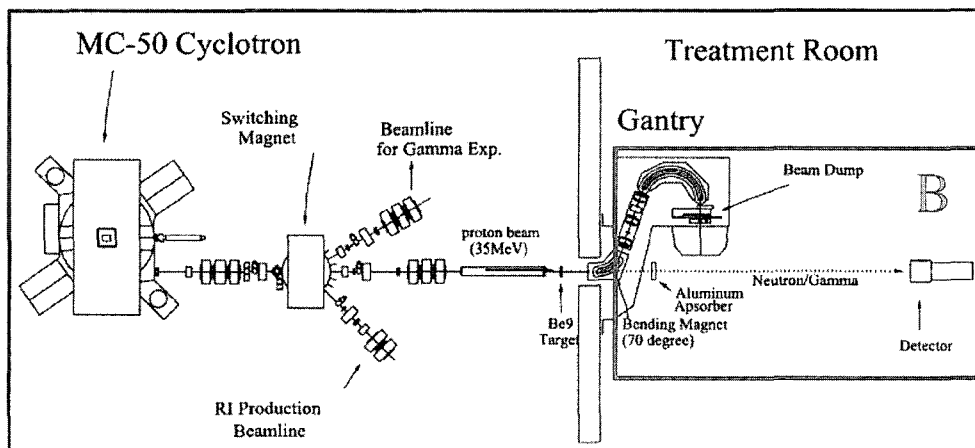


Fig. 1. 50 MeV experimental proton beam line - KIRAMS

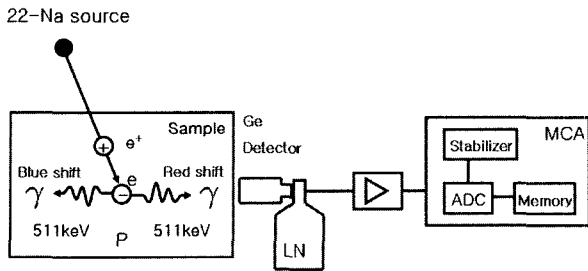


Fig. 2. Schematic diagram of experimental arrangement of Doppler broadening spectroscopy.

에서 폴리머의 두께는 무시 할 수 있다. Fig. 2는 실험 방법을 보여 주고 있으며, 양전자 소스는 시료 한 쌍의 가운데에 샌드위치 형태로 배치하였다. 또한 양전자 소멸에 의한 511 KeV 감마선 에너지 검출을 위하여 Ortec 사 Gem 20180-P 검출기 그리고 내부 및 외부 증폭기를 사용하여 측정하였다. 기 발표된 실험에서와 같이¹³⁾ 본 연구에서의 도플러 스펙트럼은 peak 채널에서 스펙트럼 당 100,000 개 정도를 포함하고 있으며, S 변수는 5회 측정된 실험 평균값으로 정하였다. 시료에서의, S 변수의 표준편차가 가장 큰 값은 4.03×10^{-4} 이었다. 실험은 의료 장비에서 사용하는 증감지 $Gd_2O_3:S:Tb$ 의 양성자 빔에 의한 것과 X선에 의한 결함 정도를 알아보고자 하였으므로 실험 목적의 특성상 상온에서 수행하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 양성자 빔 조사시 희토류 증감지 $Gd_2O_3:S:Tb$ 결함

Fig. 3은 양성자 빔의 에너지를 37 MeV로 고정시키고 조사량의 변화에 따라 $Gd_2O_3:S:Tb$ 결정에 조사시켰을 때 변화하는 S 변수의 값이다. 에너지를 37 MeV로 하고, 조사량을 0, 1, 2 ($\times 10^{12} pt/cm^2$)으로 각 시료에 조사시켰을 때 기 발표된⁷⁾ X-선 변화와 같은 경향으로 S 변수 값은 조사량에 비례해서 증가함을 알 수 있다. S 변수의 특성이 결함의 양에 따라 증가하고 1 ppm 정도의 결함 측정이 가능하므로 Fig. 3은 양성자의 조사량에 따라 비례하여 결함의 양을 증가시키고 있음을 알 수 있다. 본 실험에서 에너지를 37 MeV를 사용한 이유는 X선의 경우에는 깊이에 따른 에너지의 감소가 심하여, X-선 주사로 표피 치료에 사용하기 어려우나, 임상에서 양성자 빔의 경우는 Bragg 피크가 15 mm 정도 나타나고 주변 조직의 후유증을 최소화하며, 깊이가 깊은 종양의 치료를 하기 위한 고 에너지 양성자 빔을 이용하는 연구 발표¹⁴⁾가 증가하고 있기 때문이다. 양성자 빔의 조사에 의한 결함은 실리콘 실험¹⁵⁾의 경우에는 12 MeV 양성자 빔 조사 시에 고립된 음전하 형태의 단 정공들의 결함이나

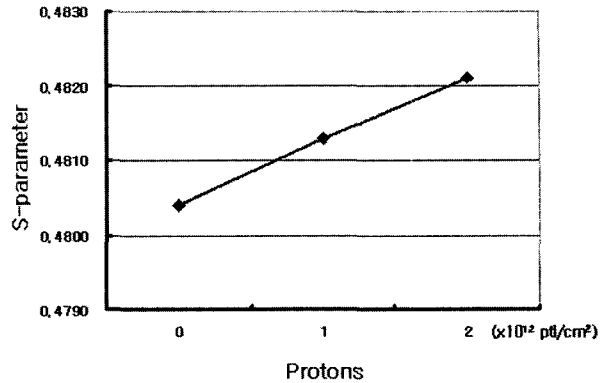


Fig. 3. S-parameter vs. various 37 MeV proton beams in $Gd_2O_3:S:Tb$

두 정공들의 결함으로 나타난다고 알려져 있으므로 양전자가 정공 결합근처에서 주변의 최외각 전자와 소멸할 경우 S 변수 값이 증가하므로 Fig. 3에서는 양성자 조사량에 따른 가파른 상승을 보이고 있다.

양성자 빔과 같이 입자의 성질을 지닌 전자선의 경우에는 기 발표된⁷⁾ 경우 주사하지 않은 $CaWO_4$ 시료에서는 입자 크기가 작은 시료에서 입자 크기가 큰 시료보다 항상 S 변수 값이 크게 나타났으며, 입자 크기가 작은 시료에서 입자 크기가 큰 시료에 비하여 S 변수 값의 변화 폭이 큰 것을 알 수 있다. 양성자 빔의 경우에는 저 에너지 (1-2 MeV)의 경우 액체나 기체에는 영향이 있지만 고체 시료에 영향을 거의 주지 않으며,¹⁶⁾ 12 MeV 이상에서는 조사 에너지의 증가보다 조사선량의 증가가 시료의 결함에 더욱 영향을 미치는 것¹⁵⁾으로 알려져 있다.

Gupta et al.,¹⁷⁾ 결함 모델 이론에 의하면, 일반적으로 결정 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. 결함 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 결함의 크기 변화를 측정이 가능하게 하는 것으로 여겨진다. 이것에 대한 다른 논문 발표에서 증명하고 있다.¹²⁾

3.2 희토류 증감지 $Gd_2O_3:S:Tb$ 에 X선 조사시의 결함

Fig. 4에서 상온에서 X선을 각각 6, 15 MV 에너지로 3, 6, 9, 12 Gy의 선량을 조사하였을 때의 S 변수 값을 보여주고 있다. 본 실험에서는 표준편차의 최대 값이 4

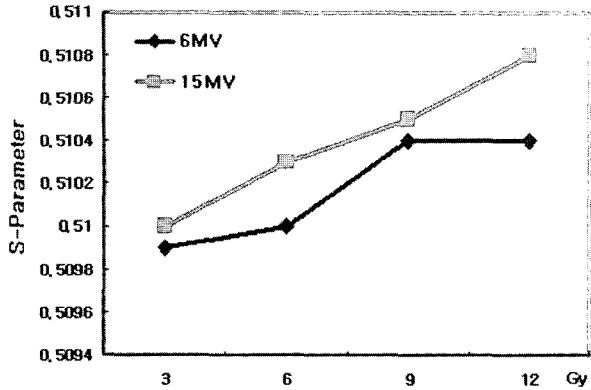
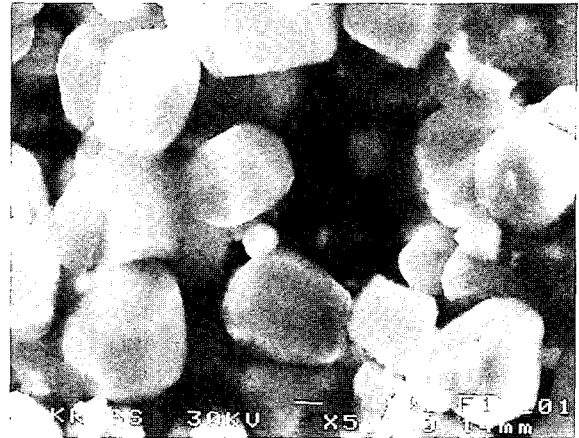


Fig. 4. The variation of S-parameter depending on the exposed X-ray intensity in Gd₂O₃:Tb.

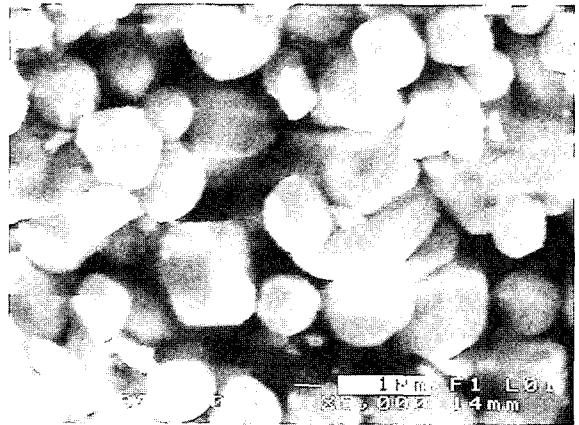
$\times 10^{-4}$ 이다. X선을 조사하지 않았을 때의 Gd₂O₃:Tb 증감지에서의 S 값을 기준으로 정의하였고, 수평축의 선량을 3, 6, 9, 12 Gy로 증가함에 따른 S 변수 값을 세로 축으로 정의하였다. 서로 다른 X선 에너지를 조사하는 경우, 모두 선량이 3, 6, 9, 12 Gy로 증가함에 따라서 S 변수 값은 비례적으로 증가하는 경향을 보이고 있으며, 6 MV X선의 에너지보다는 15 MV X선의 에너지일 때 S 변수 값이 보다 더 높은 경향을 알 수가 있다. Fig. 4에서 알 수 있듯이 동일한 선량을 조사하였을 때는 에너지가 큰 X선 조사의 경우가 결함이 높게 나타났고, 선량의 크기를 증가시키는 것보다 에너지 크기의 증가는 결함을 높이는데 더 기여하는 것으로 판단된다.

또한 Fig. 5의 SEM에서 보이는 것과 같이 X선 조사를 하지 않은 시료와 X선이 조사된 시료에서, 입자에 X선이 조사되면 결정의 입자가 파괴되어 기존의 결정 크기가 작아지거나, 불규칙적으로 되는 것을 알 수 있다. 조사선 에너지와 선량이 다른 (b)와 (c) 경우를 비교하여 보면 시료내의 결정의 결함에 대하여는 고 에너지를 조사하거나 조사량이 증가 할수록 결함은 더 증가하고 있음을 보여준다. 일반적으로 양전자는 격자 빈자리에서 주변의 최외각 전자와 소멸하는 경우에 S 변수 값이 증가하는 특성이 있다. 이러한 이유 때문에 증감지내의 결정은 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. 그러므로 격자 결함자리에 운동량이 작은 최외각 전자가 많아짐으로 양전자와의 소멸율이 증가하여 511 keV의 감마선의 수가 증가하고, 반대로 큰 운동량을 갖는 코어 전자의 감소로 큰 에너지 편이가 있는 부분에서는 그 수가 감소하게 된다.

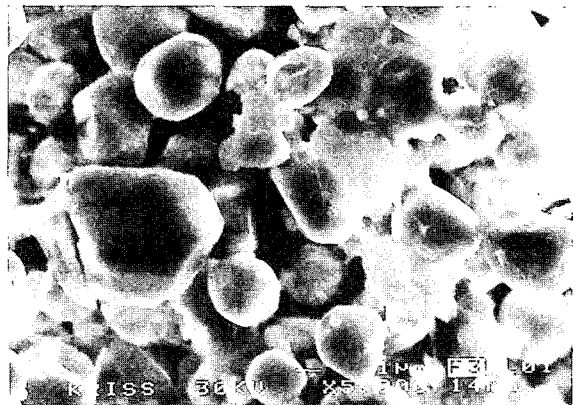
에너지가 큰 X-선을 조사하면 시료는 결함이 증가하며, 그리고 선량이 증가하면 증가할수록 결함의 양이 많



(a)



(b)



(c)

Fig. 5. SEM Photographs in Gd₂O₃:Tb intensifying screen (a) unexposed (b) exposed samples by 6 MV 6 Gy and (c) 15 MV 9 Gy X-ray

아지는 것을 알 수 있다. 즉 결정의 결함 증가는 조사 선량 및 조사 에너지와 상관이 있음을 알 수 있다. 임상에서는 인체에 영향을 적게 주기 위하여 80 kV의 X-선 에너지를 사용하기 때문에 본 실험에서 보다는 증감지의 결함에 영향을 적게 줄 것으로 예상되지만, 임상

서는 대략 4년 정도의 주기로 교체하기 때문에, 누적된 조사량의 증가에 의한 증감지의 결함이 상대적으로 증가할 것으로 사료된다.

기 발표된 논문⁷⁾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 알 수 있다. 즉 X 선에 의하여 grain들의 파괴에 의한 작은 크기로 변화된 grain 시료에서는 단위 면적 당 결정간 결합 부위가 많으므로 인하여 Fig. 3에 보여주는 것처럼 결함의 증가가 상대적으로 크게 나타나는 것을 알 수가 있었다.

결론적으로 Fig. 4, 5에서 알 수 있듯이 동일한 선량을 조사하였을 때는 에너지가 큰 X선 조사의 경우 결함 증가의 영향은 선량의 크기를 증가시키는 것보다 에너지 크기의 변화가 결함을 증가시키는데 더 기여하는 것으로 판단된다. 하지만 조사선량의 증가에 의하여, 증감지의 결함이 계속 증가하므로 증감지의 발광효율은 나빠질 것이다.

4. 결 론

본 연구는 희토류 증감지 $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S:Tb}$ 수명 측정에 필요한 정량적 기초 자료를 얻고자 방사선 조사에 대한 결함특성을 분석함으로써 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S:Tb}$ 에 X선이나 양성자 빔을 조사하는 경우에 조사선량 및 에너지 변화에 따라 S 변수 값이 증가하였다. 그 이유는 입자 알갱이의 파괴에 의하여 시료 내에 정공이 많이 생기는 결과로써 S 변수 값이 큰 폭으로 변화하는 것을 알 수 있었다. 이 결과는 증감지의 발광 효율을 떨어뜨릴 것이다.

2) $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S:Tb}$ 에 같은 양이 조사되었다 하더라도 방사선의 종류 및 에너지 크기에 따라 입자에 생기는 결함의 양이 다르다는 것을 알 수 있었다. 또한 전자선을 조사하는 경우보다 X-선을 조사하는 경우가 S 변수의 값

이 크게 나타나는 것은 시료의 결함이 더 증가한 것임을 알 수 있다.

감사의 글

본 연구는 2005년도 과학기술부의 싸이클로트론 이용 연구지원사업에 의하여 수행되었습니다. 원자력 의학원의 이민용님께 감사를 드립니다.

참 고 문 헌

1. B. Nielson, O. W. Holland, T. C. Leung, and K. G. Lynn, *J. Appl. Phys.*, **74**, 1636 (1993).
2. M. S. Ramanachalam, A. Rohatgi, J. P. Schaffer, and T. K. Gupta, *J. Appl. Phys.*, **69**, 8380 (1991).
3. B. Mantl and W. Triftshauser, *Appl. Phys.*, **5**, 177 (1974).
4. E. H. Molen, J. M. Oblak, and O. H. Kriege, *Met. Trans.*, **2**, 1627 (1971).
5. H. E. Collins, *Met. Trans.*, **5**, 189 (1974).
6. T. M. Wesik, D. Krammer, W. T. Lee, and A. Q. Pard, *Turbomachinery Intl.*, **1**, 24 (1984).
7. C. G. Kim, C. M. Ahn, G. Y. Song, and C. Y. Lee, *J. Mater. Res.*, **12**, 359 (2002).
8. A. P. Druzhkov, R. N. Yeshchenko, S. M. Klotsman, A. N. Martem' Yanov, and G. G. Taluts, *Phys. Met. Metall.*, **66**, 117 (1988).
9. J. L. Lee, J. T. Waber, *Meta. Trans.*, **21a**, 2037 (1990).
10. Z. Wei, D. Yang, and K. H. Wu, *Scri. Meta. Meter.*, **29**, 753 (1993).
11. Korean Radiation Imaging & Information Technology Researchers, *Medical - Radiation Imaging & Information Technology*, Komoonsa, (2002).
12. J. S. Chai, *MC-50 Cyclotron Operation Annual Report*, KIRAM (2003).
13. T. K. Gupta and W. G. Carlson, *J. Mater. Sci.*, **20**, 3487 (1987).
14. M. Pacilio et. al., *Phys. Med. Biol.*, **47**, 107 (2002).
15. A. Uedono, Y. Cho, S. Tanigawa, and A. Ikari *Jpn. J. Appl. Phys.*, pt1 33, 1 (1994).
16. Nak Bae Kim, *March Technical Report*, KIGM&M (1994).
17. T. K. Gupta, W. D. Straub, M. S. Ramanachalam, J. P. Schaffer, and A. Rohatgi *J. Appl. Phys.*, **66**, 6132 (1989).