

동시계수 양전자 소멸 측정에 의한 양성자 조사된 BaSrFBr:Eu 박막 특성

김주홍^a · Y. Nagai^b · 이종용^{a*}

^a한남대학교 물리학과, 대전 306-791

^bInstitute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577 Japan

(2009년 10월 29일 받음, 2009년 11월 20일 수정, 2009년 11월 20일 확정)

동시 계수 도플러 넓어짐 양전자 소멸 분광법과 양전자 소멸 수명 측정법으로 BaSrFBr:Eu의 박막 시료에 0, 3, 5, 7.5 MeV 에너지의 양성자 조사에 의한 결함을 측정하여 박막구조 특성에 대하여 조사하였다. 양전자와 전자의 쌍소멸로 발생하는 511 keV 감마선 스펙트럼의 수리적 해석 방법인 S-변수를 사용하여, 박막 구조 변화를 측정하였다. 본 연구에서 측정된 S-변수가 박막에 조사된 양성자의 빔 에너지에 따라 변하지 않고 거의 일정한 값을 보였다. 따라서 양성자 조사에너지의 세기 변화에 따라 결함이 증가하지 않았으며, 그 이유는 양성자 조사 에너지에 따른 Bragg 피크 때문에 박막 시료의 특정 깊이에 결함을 형성하여 박막전체의 결함으로 잘 나타나지 않기 때문으로 판단된다. 향후, 박막의 두께에 따른 결함의 분포를 측정하기 위해서는 양전자 선원 Na의 사용 대신 양전자 빔을 이용하여야 한다.

주제어 : 양성자 빔, S-변수, 동시계수 양전자 소멸, BaSrFBr:Eu

I. 서 론

최근 영상 의료 분야에서는 1980년대에 후지사가 처음 발표한 [1] 고분자 재료의 지지체 위에 형광물질인 다결정체 층의 영상판(image plate) [2]을 사용하여 신속한 영상 데이터를 얻고 있다. 이 영상판은 X선 흡수율이 증감지보다 더 작아서 사용 횟수가 많아질 수 있으며 영상판 내부의 반도체 특성을 띠는 X선 저장 형광 물질은 디지털화된 X선의 이미지를 발생할 수 있고, X선이 조사되면 주사 결함이라는 것에 의하여 X선 조사에 대한 정보를 저장할 수 있게 된다. 저장된 정보 복원을 위하여 영상판에 레이저로 Photostimulable Luminescence (PSL)를 이용한 영상 [3]을 컴퓨터로 직접 얻을 수 있어서, 증감지를 이용하여 필름을 현상하는 것 보다 저렴한 가격과 빠른 시간 내에 영상을 확인할 수 있는 장점이 있다. 그러나 이 다결정체 층 물질의 발광효율은 사용 빈도에 따라 저하되는데 현재까지 그 원인이 명확히 규명되어 있지 않으며, 병원에서는 영상판의 수명을 어렵짐작하여 해상도 값에 따라 임의로 정하여 교체하고 있다. 그러므로 의료산업에서 증감지 효율 저하에 관한 연구 [4,5,6]보다 영상판 수명에 관한 연구 [7,8]가

더욱 중요시 되고 있다.

양전자 소멸 측정법은 물질의 전자 구조, 결함 측정, 전자의 밀도분포 및 운동량 분포 등 핵과 고체 물리에서 사용되는 방법이다. 양전자 소멸 측정법은 지난 30년 동안 재료의 특성이나 반도체 소자 결함 측정에 이용되었으며 [9,10,11], 반입자인 양전자는 전자와의 상호 작용을 통한 재료내의 원자 단위의 크기 결함 특성을 측정하는 수단으로 연구되어 왔다. 측정법이 용이하고 측정하는 경우에도 비파괴 방법의 하나로 시료에 전혀 영향을 주지 않으며, 나노미터 수준의 결함을 측정 할 수 있는 장점을 가지고 있다. 양전자는 전자의 반입자로서 양전자가 전자와 소멸을 할 때는 대부분의 경우 2 개의 감마선이 거의 180° 각도를 이루면서 방출된다. 도플러 넓어짐 양전자 소멸 측정법(Doppler Broadening Positron Annihilation Spectrometer: DBPAS)은 전자의 운동량을 이용한 양전자 소멸 측정의 한 방법이다. 이 측정법은 운동량을 가진 전자와 양전자의 쌍소멸에 의하여 발생하는 것을 이용한 것으로써 양전자가 전자와 소멸 할 때 총에너지가 $2mc^2 - E_b$ 인 두 개의 감마선이 서로 반대 방향으로 방출하는 것이다. 이때 각각 mc^2 와 E_b 는 전자의 정지 에너지와 결함에너지이다. 운동량과

* [전자우편] cylee@mail.hannam.ac.kr

에너지의 보존법칙에 따라서, 이 에너지는 두 광자로 똑같이 나누어지지 않고, 전자의 운동방향에 따라 한 광자 에너지는 $p_{LC}/2$ 가 늘어나고, 반면에 다른 광자의 에너지는 같은 양만큼의 에너지가 줄어든다. 이 경우 운동량 p_L 은 전자와 양전자 소멸시 광자 방사가 일어나는 세로 방향의 성분이다. 사용되는 검출기는 광자들이 임의의 방향으로 방사하는 경우에도 blue 나 red로 이동된 광자 모두의 측정을 할 수 있다. 이때에 $2\Delta E = p_{LC}$ 에 의한 소멸광자 피크의 넓어짐이 생기게 된다. 일반적으로 이 광자를 검출하기 위하여 게르마늄 검출기를 사용하는데 그 이유는 고 에너지 광자에 대하여 충분히 좋은 분해능과 상대적인 효율이 높기 때문이다.

이 측정법의 약점 중의 하나는 상대적으로 신호대비 커다란 잡음이며 특히 저에너지 방향의 피크에 영향이 크다. 1976년에 Lynn과 공동 연구자 [12]들은 게르마늄 검출기의 반대 방향으로 NaI 검출기를 추가하였으며, 이것은 방사하는 광자를 양 방향 동시에 측정하여 잡음을 줄이기 위한 것이었다. 이 방법은 최근에도 저렴한 가격으로 다른 또 하나의 검출기를 추가하여 설치하기 때문에 여전히 사용되고 있다. 그 다음해에 Lynn과 공동 연구자들은 NaI 검출기를 게르마늄 검출기로 바꾸어 에너지에 대한 정보를 얻게 되었다 [13]. 이것은 관례적으로 동시 계수 도플러 넓어짐 측정법(Coincidence-DBPAS or CDB)이라 부른다. 상당히 많은 잡음을 줄임으로서, 이 측정 방법으로 코아 전자들의 높은 운동량 소멸에 대한 정보를 얻을 수 있고 이론적 계산과 비교 할 수 있게 되었다. 지난 몇 년 사이에는 이 방법을 통하여 소멸된 격자들에서의 화학적 성분을 구하게 되었다. 즉 낮은 운동량의 valance나 전도 전자들과의 양전자 소멸은 작은 도플러 이동을 보여주지만 코아 전자들과의 양전자 소멸은 상대적으로 큰 도플러 이동이 나타난다. 그러므로 511 keV에너지 분포에서 큰 에너지 부분에 기여하게 된다. 일반적으로 코아 전자들의 에너지 분포는 각 원자들의 고유한 화학적 성분에 대한 특성으로 나타나고 주변의 화학적 영향을 많이 받지 않는 것으로 알려져 있다. 그러므로 동시 계수 측정법으로 얻은 높은 에너지 분포에서의 코아 전자와 양전자 소멸은 물질의 화학적 성분에 대한 정보를 얻을 수 있다.

본 연구에서는 다결정체 층 영상판 내부의 형광물질인 BaSrFBr:Eu 박막의 결함을 측정하여 영상판 수명과의 관련성을 조사하고자 한다. 우주 개발의 관심에 따른 입사되

는 우주 방사선의 90 % 정도인 양성자의 조사에 따르는 BaSrFBr:Eu 박막의 효율 저하를 동시계수 도플러 넓어짐 양전자 소멸법(CDB)에 의한 결함의 양에 대한 분석을 사용하였다. 특히, 양성자 조사의 에너지 세기에 따른 영상판의 형광물질 결함의 특성을 분석함으로써 형광 물질 제조 및 정량적 수명 연구를 위한 실험을 목적으로 수행하였다.

II. 실험

방사선 영상판의 다결정체 층은 AGFA사의 ADCC MD 4.0인 BaSrFBr:Eu 형광 시료를 사용하였으며 각각 $300 \times 250 \times 0.8 \text{ mm}^3$ 인 것을 실험 편의상 $15 \times 15 \times 0.8 \text{ mm}^3$ 의 크기로 제작하였다. 비닐로 코팅된 보호막의 두께는 $10 \mu\text{m}$ 이며 BaSrFBr:Eu 형광 물질은 두께가 $250 \mu\text{m}$ 인 것을 사용하였다. 임상에서 사용된 BaSrFBr:Eu 시료는 대학병원에서 진단용 영상 판으로 사용하는 것으로 실험 하였으며, 그 구조는 Fig. 1(a)과 같다. 병원에서는 영상 판독을 위하여 Computer Radiography(CR)를 사용하며, AGFA사의 ADC Compact Plus CR 시스템으로 영상 판, 판독기 그리고 처리기와 의료영상을 표시하기 위한 저장 전달 장치인 Picture Archiving and Communication System(PACS)로 구성되어 있다. 양성자 빔 조사를 위하여 원자력 의학원의 싸이클로트론 MC 50 가속기를 이용하였으며 빔의 세기는 $37 \text{ MeV } 10 \text{ nA}$ 를 사용하였다. 뒷부분의 산란 에너지를 무시하고자 시료 뒤에 알루미늄의 얇은 막을 사용하였으며, 본 실험에서는 3 % 이하로 맞추었다. 조사하는 빔의 반치 폭은 42 mm 이며, 양성자 빔의 크기는 지름이 약 40 mm 의 크기로 조절하였다. 시료에 양성자 조사량은 $3.78 \times 10^{13} / \text{cm}^2$ 으로 조정하였다. 본 실험에서는 BaSrFBr:Eu 시료의 양성자 빔 조사에 의한 결함 정도를 알아보고자 하였으므로 실험 목적의 특성상 상온에서 수행하였다.

동시 계수 양전자 소멸 분광법 실험을 하기 위하여 양전자 소스는 활성화 면적의 직경이 9.53 mm 이고, $5 \mu\text{m}$ 두께의 니켈 foil로 양면을 감싸고 있는 $25 \mu\text{Ci } ^{22}\text{Na}$ 소스를 사용하였다. 양전자의 열적 투과가 시료 내부에 들어가서 $100 \mu\text{m}$ 보다 깊게 투과하므로 측정하려는 BaSrFBr:Eu 시료의 경우 표면의 보호막 두께가 $10 \mu\text{m}$ 이며 형광 물질의 두께가 $250 \mu\text{m}$ 로써 본 실험에서는 보호막의 두께를 무시할 수 있다. Fig. 1(b)는 동시 계수 양전자 소멸 분광 실험

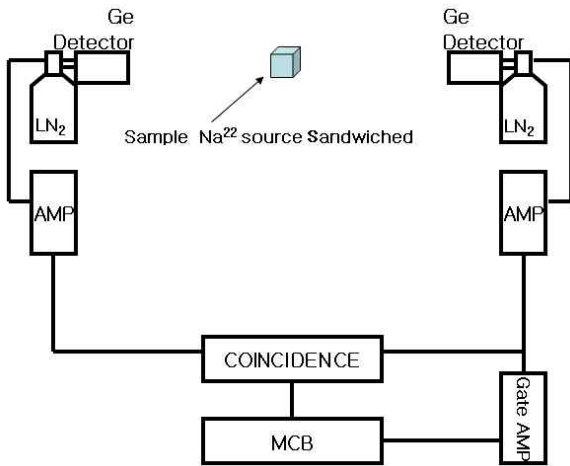
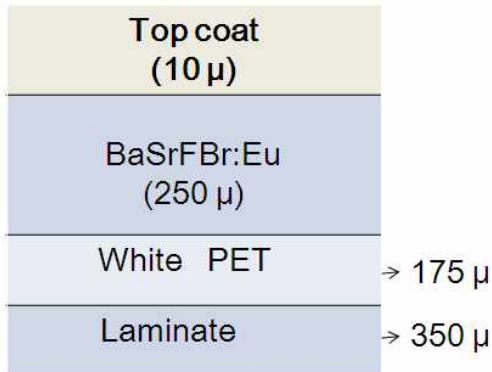


Figure 1. Schematic Diagram of (a) the image plate and (b) Coincidence Doppler Broadening Positron Annihilation setup.

장치를 보여 주고 있으며, 양성자 소스는 시료 한 쌍의 가운데에 샌드위치 형태로 배치하였다. 양성자 소멸에 의한 511 keV 감마선 에너지 검출을 위하여 Ortec사 Gem 20180-P 검출기 그리고 내부 및 외부 증폭기를 사용하여 측정하였다.

III. 결과 및 고찰

Fig. 2는 양성자 빔의 에너지를 0, 3, 5, 7.5 MeV로 변화시키고 조사량은 양성자의 입자 수가 10^{13} 으로 BaSrFBr:Eu 박막 시료에 조사시켰을 때 변화하는 S 변수의 값이다. 에너지를 변화시키면서, 조사량을 3.78×10^{13} ptl/cm²로 각 시료에 조사시켰을 때 기 발표된 [14] X-선 변화와 같은 경향으로 7.5 MeV 이하에서는 S 변수 값이 조사에너지에 비례해서 약간 증가함을 알 수 있다. S-변수의 5회 측정된

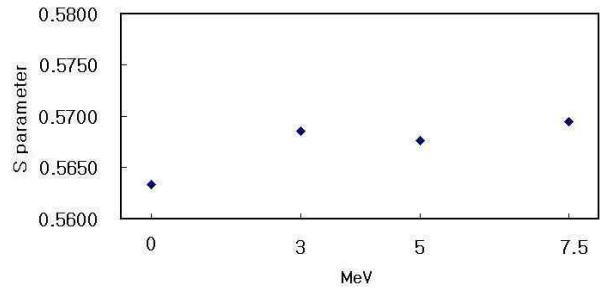
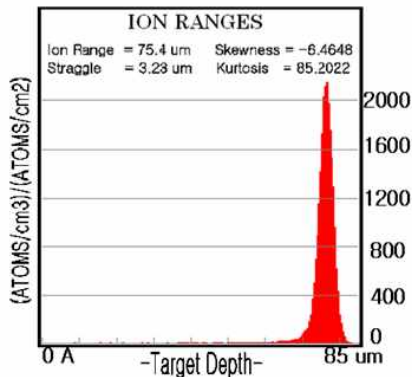


Figure 2. S parameters with CDB in BaSrFBr:Eu vs. various proton irradiation energies.

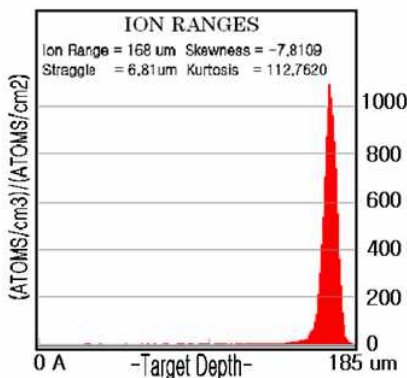
값의 표준편차는 1.0×10^{-4} 이다.

가속기에서 나오는 조사된 양성자는 얇은 알루미늄 창을 통과한 수소의 빔 라인에 의해 발생되며, 빔이 사각형 모양이나 빔의 거리 조절을 하여 크기와 에너지를 변화시킬 수 있다. 양성자 빔의 조사에 의한 결함은 실리콘 실험 [15]의 경우에는 12 MeV 양성자 빔 조사 시에 고립된 음전하 형태의 단 정공들의 결함이나 두 정공들의 결함으로 나타난다고 알려져 있으므로 양성자가 정공 결함 근처에서 주변의 최외각 전자와 소멸할 경우 S-변수 값이 현저히 증가할 것이다. 그러나 본 실험에서는 시료가 단 결정이 아닌 결정 입자형태로서 양성자 조사의 경우에는 실리콘에서 나타나는 결함처럼 에너지에 따라서 다르게 구별되지는 않는다. Fig. 3은 양성자 조사량에 따른 SRIM 시뮬레이션 결과를 보여주고 있는데, 시료의 두께가 300 μm 이하이므로 7.5 MeV 까지 조사한 시뮬레이션의 결과이다. 이때 양성자 조사 시뮬레이션의 경우에는 Bragg 피크가 나타나므로 X-선 조사 [14]와 달리 에너지에 따른 투과 깊이의 결과를 보여주고 있다. 임상에서는 20 MeV 근처에서 단순 표피암 치료를 하게 되는데, X-선의 경우에는 깊이에 따른 에너지의 감소가 심하므로, 최근에는 고 에너지 양성자 빔의 경우 Bragg 피크가 15 mm 정도 나타나고 주변조직의 후유증을 최소화 하며 깊이가 깊은 종양의 치료를 하기 위한 고 에너지의 양성자 빔을 이용하는 연구 발표 [16]가 증가하기 때문에 본 실험에서 20 MeV를 사용하여 실험 하였으나 시료의 두께가 300 μm 이하이므로 에너지 크기에 대한 영향이 거의 없어서 결함의 증가는 나타나지 않았다.

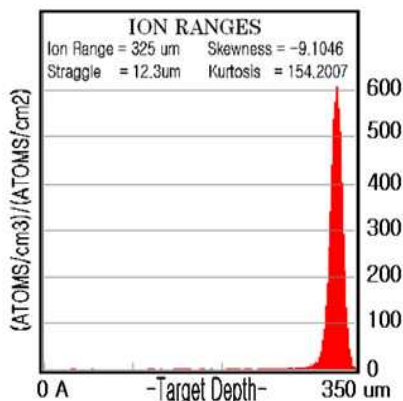
Gupta et al. [17], 결함 모델 이론에 의하면, 일반적으로 결정 시료는 두 부분의 성분으로 나뉘며, 양의 (+) 전하를 띤 입자는 결정 경계면 안에서 음의 (-) 전하를 띤 입자는 결정 경계 표면에 몰려있으며, 이 두 입자들은 항상 같



(a)



(b)



(c)

Figure 3. SRIM simulations in BaSrFBr:Eu : 3, 5, 7.5 MeV proton irradiation : (a) 75.4, (b) 168, and (c) 325 μm each.

은 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]. 하지만 BaSrFBr:Eu 박막에서는 X-선을 조사하면 Eu^{2+} 에서 Eu^{3+} 의 이온 상태로 변하는 과정에서 전자는 가전대로부터 전도대로 개방되고, 이 전자는 결정 속에 형성되어 있던 할로젠 이온의 홀에 포획되는데, 양성자 조사의 경우에는 양성자가 대신 포획되어 결함이 크게 증가하지 않게 된다.

IV. 결 론

본 실험에서는 동시 계수 양전자 소멸 법을 이용한 양성자 조사의 에너지 변화에 따른 결함의 크기를 연구하였다. 양성자 조사를 하면 결함의 크기는 변화하지만 X-선 조사의 경우 에서와 같이 에너지의 변화에 따른 결함의 증가는 보이지 않는다. 그 이유는 양성자 조사의 경우에는 Bragg 피크가 생기므로 에너지의 변화에 따른 결함의 증가가 현저히 나타나지 않는 것이다. 7.5 MeV 보다 큰 에너지 조사 실험에서는 시뮬레이션 결과에서 양성자가 이미 350 μm 박막 시료를 투과하였으므로 큰 의미가 없었다.

감사의 글

본 논문은 2009년도 한남대학교 교비에 의해 수행하였습니다. 또한 원자력 대형 연구 시설 활성화 과제 및 한국 연구 재단 2009-0074489 과제에 의한 도움을 받았습니다.

참고문헌

- [1] Miyahara, Science and Technology of Japan, **26**, 28 (1985).
- [2] Y. Amemiya and J. Miyahara, Nature(London), **336**, 89 (1988).
- [3] M. Sonoda, M. Takano, J. Miyahara, and H. Kato, Radiology, **148**, 833 (1983).
- [4] Soo In Kim and Chang Woo Lee, J. Kor. Vacuum Soc., **16**, 348 (2007).

- [5] C. Y. Lee, S. H. Bae, J. H. Kim, and J. H. Kwon, *Kor. J. Mater. Res.*, **16**, 455 (2006).
- [6] C. Y. Lee, J. H. Kwon, H. H. Kim, and J. M. Jeong, *J. Kor. Phys. Soc.*, **51**, 1172 (2007).
- [7] C. Dietze, Th. Hangleiter, P. Willems, P. J. R. Leblans, L. Struye, and J. M. Spaeth, *J. Appl. Phys.* **80**, 1074 (1996).
- [8] P. Hackenschmied, G. zeitler, M. Batentschuk, E. Hell, and W. Knupfer, *Nucl. Instru. Meth. Phys. Res.*, **191**, 163 (2002).
- [9] B. Mantl and W. Triftshauser, *Appl. Phys.*, **5**, 177 (1974).
- [10] C. Y. Lee, W. N. Kang, Y. Nagai, K. Inoue, and M. Hasegawa, *J. Kor. Vacuum Soc.*, **17**, 160 (2008).
- [11] C. Y. Lee and C. G. Kim, *J. Kor. Vacuum Soc.*, **13**, 92 (2004).
- [12] K. G. Lynn, J. R. MacDonald, R. A. Boie, L. C. Feldman, J. D. Gabbe, and M. F. Robbins, *Phy. Rev. Lett.* **38**, 241 (1977).
- [13] K. G. Lynn, J. E. Dickman, W. L. Brown, and M. F. Robbins, *Phy. Rev. B*, **20**, 3566 (1978).
- [14] J. G. Shin, C. Y. Lee, S. H. Bae, J. H. Kim, and J. H. Kwon, *Kor. J. Mater. Res.*, **18**, 427 (2008).
- [15] C. G. Kim, C. M. Ahn, G. Y. Song, and C. Y. Lee, *Kor. J. Mater. Res.*, **12**, 359 (2002).
- [16] T. Matsumura, T. Matsubara, T. Hiraiwa, K. Horie, M. Kuze, K. Miyabayashi, A. Okamura, T. Sawada, S. Shimizu, T. Shinkawa, T. Tsunemi, and M. Yoso, *Nucl. Instru. and Methods in Phys. Res. Sec. A*, **603**, 301 (2009).
- [17] T. K. Gupta and W. G. Carlson, *J. Mater. Sci.* **20**, 3487 (1987).

The Characterization of Proton Irradiated BaSrFBr:Eu Film by the Coincidence Doppler Broadening Positron Annihilation Spectroscopy

J. H. Kim^a, Y. Nagai^b, and C. Y. Lee^{a*}

^a*Physics Department, Hannam University, Taejon 306-791*

^b*Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577 Japan*

(Received October 29, 2009, Revised November 20, 2009, Accepted November 20, 2009)

Enhance signal-to-noise ratio, Coincidence Doppler Broadening positron method has been applied to study of characteristics of BaSrFBr:Eu film sample. 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. The films were exposed by 0, 3, 5, and 7.5 MeV proton beams ranging from 0 to 10^{13} p/pts. The S-parameter values were increased as increasing the exposed time and the energies, that indicated the defects generate more.

Keywords : BaSrFBr:Eu, S-parameter, CDBPAS, Proton beam

* [E-mail] cylee@mail.hannam.ac.kr