

X-선 조사된 Beta-eucryptite의 열자극 발광

김태규, 이병용*, 최범식**, 강현식⁺, 추성실⁺⁺, 황정남⁺⁺⁺

전주교육대학 과학교육과

울산대학교 의과대학 치료방사선과학교실*

전주대학교 이과대학 물리학과**

전북대학교 사범대학 물리교육과⁺

연세대학교 의과대학 치료방사선과학교실⁺⁺

연세대학교 이과대학 물리학과⁺⁺⁺

초 록

4MeV X-선을 제조된 beta-eucryptite에 조사시킨 후, 300K-600K 온도 구간에서 열자극 발광을 측정하였다. 혼합되어 측정된 열자극발광 스펙트럼은 342K, 392K, 438K, 474K과 572K에서 열자극발광 peak가 나타난다. 527K의 열자극발광 스펙트럼은 retrapping이 일어나는 2nd kinetic order임을 알았다. Peak shape 법의 활성화에너지는 1.03eV이었고 이탈진동수는 $3.9 \times 10^8 \text{sec}^{-1}$ 이었다. 또한 initial rise법과 온도 상승률에 따른 활성화 에너지는 각각 $1.19 \pm 0.03 \text{eV}$, $1.02 \pm 0.05 \text{eV}$ 로 나타났다. 최고의 열자극발광 세기를 갖는 온도 527K를 유지하고 측정된 isothermal decay 스펙트럼에 의한 이탈진동수는 heating rate법의 결과와 유사한 $2.8 \times 10^8 \text{sec}^{-1}$ 이었다. 50Gy의 조사선량 범위까지는 조사선량에 따른 열자극발광 세기의 선형성이 유지되었지만, 그 이상의 영역에서는 supralinearity가 나타난 후 saturation되었다.

I. 서론

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 분류되는 데 alpha-eucryptite는 자연산이고, beta-eucryptite는 Li_2O , Al_2O_3 , SiO_2 의 성분으로 고온에서 제조된다. Beta-eucryptite의 실제적인 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 의해 열자극발광 (Thermoluminescence:TL)이 나타난다.³⁾ 이 TL특성을 조사하여 kinetic order, 활성화에너지, 이탈진동수등의 열적 변수를 구하고, 조사선량에 따른 TL세기의 의존성을 연구하여 방사선 선량계로 응용할 수 있다. 본 연구에서는 beta-eucryptite의 방사선 선량계로 응용하기 위하여 4MeV의 포톤을 조사시킨 후, 온도상승률에 따른 TL특성, isothermal decay, 조사선량에 따른 TL세기의 의존성을 조사하였다.

II. 실험기구 및 방법

그림 1은 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 설치하여서 저온에서부터 고온까지 TL을 측정할 수 있도록 하였다.⁴⁾ 또한 시료지지대는 360° 회전할 수 있도록 고안되어서 진공을 깨지않고 조사된 시료의 TL을 측정할 수 있다.

Li_2CO_3 , Al_2O_3 와 SiO_2 를 1:1:2의 중량비로 섞어 성형시킨 후, 1800°C로 가열하면 CO_2 가 방출되고 beta-eucryptite가 만들어진다. 본 실험에 사용한 시료의 크기는 5x5x1mm이다.

Photon을 조사시키기 전에 모든 시료를 400°C에서 1시간 동안 열처리하여 시료내에 잔존하는 TL emission center를 제거하였다. Photon을 조사시키지 않은 시료의 TL을 300K부터 600K 사이에서 측정하여 background를 확인한 후 photon을 조사시켜 TL을 측정하였다. 4MeV X-선 발생장치를 이용하여 포톤을 시료에 조사시켰고, 방출되는 TL을 광증배관으로 측정하였다. TL측정시 시료의 온도상승률은 program된 온도조절장치를 이용하여 다양한 값으로 변화시키면서 TL을 측정하였고, 이 때의 시료 온도는 Cu-Constantan 열전쌍으로 측정하여 TL의 세기와 온도를 X-Y기록계에 기록하였다.

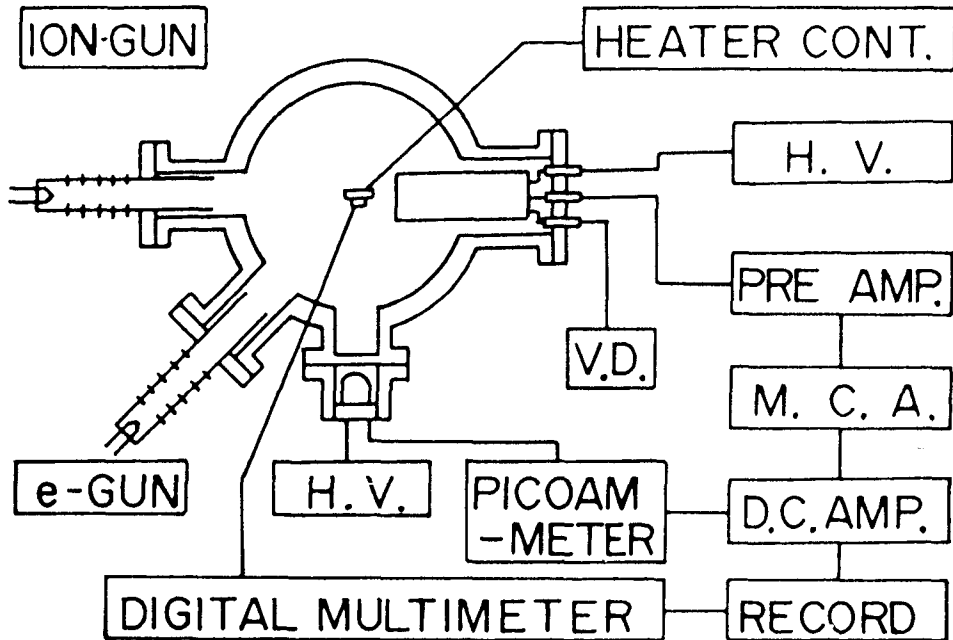


Fig. 1. Schematic diagram of the experimental apparatus for measuring TL and TSEE.

Ⅲ. 실험결과 및 분석

그림 2는 500cGy의 4MeV X-선으로 조사시킨 후 1K/S의 온도 상승률로 측정된 beta-eucryptite의 TL곡선이다. 혼합된 TL곡선을 수치해석적인 방법⁵⁾으로 분해하면 342K, 392K, 438K, 474K, 527K에서 TL peak가 나타난다. TL스펙트럼으로부터 활성화에너지 및 이탈진동수를 결정하는 방법은 peak shape법⁶⁾, initial rise법⁷⁾ 및 heating rate법⁸⁾ 등이 있다. Peak shape법의 활성화 에너지는 $T < T_m$ 영역의 반폭치 τ 와 $T > T_m$ 의 δ 및 전체 반폭치 ω 에 의하여 구할 수 있다. 일반적으로 $\delta/\omega = 0.45$ 이하면 재결합이 주로 일어나는 1st kinetic order TL이고, $\delta/\omega > 0.5$ 이면 retrapping이 주로 일어나는 2nd kinetic order로 알려져 있다.⁹⁾ 그림 2의 527K TL 곡선에서 $\tau = 35K$, $\delta = 39K$, $\omega = 74K$ 이므로 $\delta/\omega = 0.53$ 이 되어 527K peak는 retrapping이 일어나는 2nd kinetic order임을 알 수 있다. 또한 450K에서 3분동안 thermal annealing하면 낮은 온도영역의 TL 세기가 소멸되어 혼합된 스펙트럼을 분리시킬 수 있다. 열처리 법에 의해 분리된 TL스펙트럼의 τ , δ , ω 는 각각 31K, 36K, 67K이어서 $\delta/\omega = 0.54$ 이므로 이 TL 스펙트럼은 2nd kinetic order임을 재확인하였다. Peak shape법에 따른 각각의 온도에 대한 활성화 에너지는 다음과 같이 표시된다.

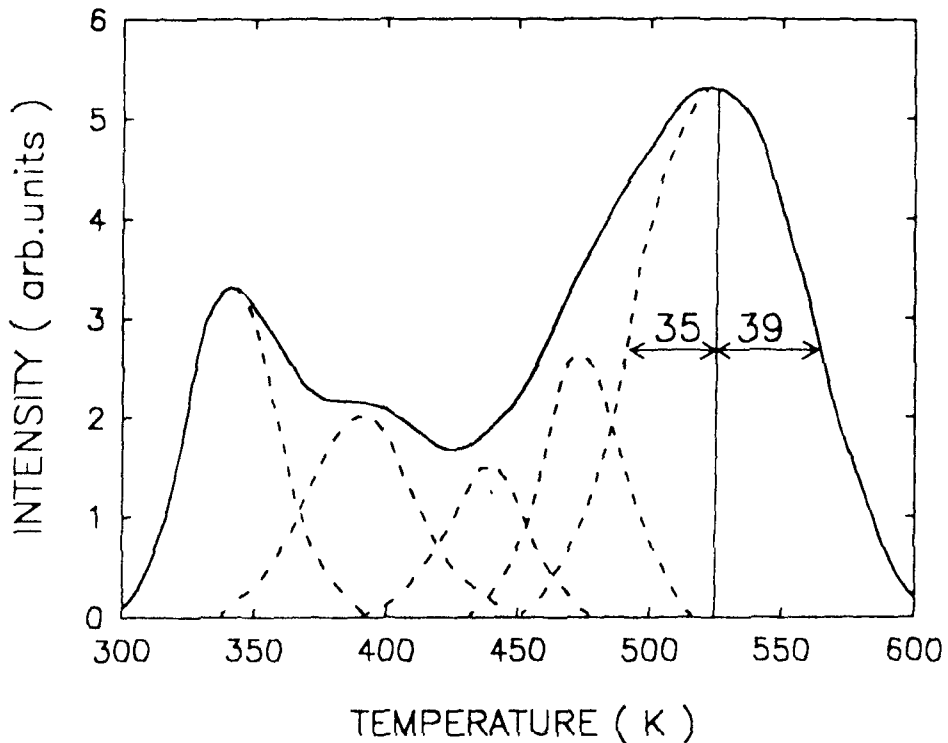


Fig. 2. TL spectrum from 4MeV-photon irradiated beta-eucryptite. The duplicated TL curve is split into the isolated TL spectrum by using the numerical analysis and thermal annealing. The peak temperatures are located at 342K, 392K, 438K, 474K and 527K.

$$E_{\tau} = 1.81 \left(\frac{kT_m^2}{\tau} \right) - 4kT_m \dots \dots \dots \text{식(1)}$$

$$E_{\delta} = 1.71 \left(\frac{kT_m^2}{\delta} \right) \dots \dots \dots \text{식(2)}$$

$$E_{\omega} = 3.54 \left(\frac{kT_m^2}{\omega} \right) - 2kT_m \dots \dots \dots \text{식(3)}$$

그리고 이탈진동수는

$$S = \frac{\beta E}{kT_m^2} \exp\left(\frac{E}{kT_m}\right) \dots \dots \dots \text{식(4)}$$

로 주어진다. 여기서 k 는 Boltzmann상수이고, T_m 은 TL peak 위치의 온도이고, β 는 온도상승률이며 E 는 활성화에너지이다. 식(1), (2), (3)으로부터 구한 각각의 온도에 대한 활성화에너지는 모두 1.03eV이고 식(4)에 의한 이탈진동수 s 는 $3.9 \times 10^8 \text{sec}^{-1}$ 이다. 2nd kinetic order일 때의 TL세기는 아래와 같다.

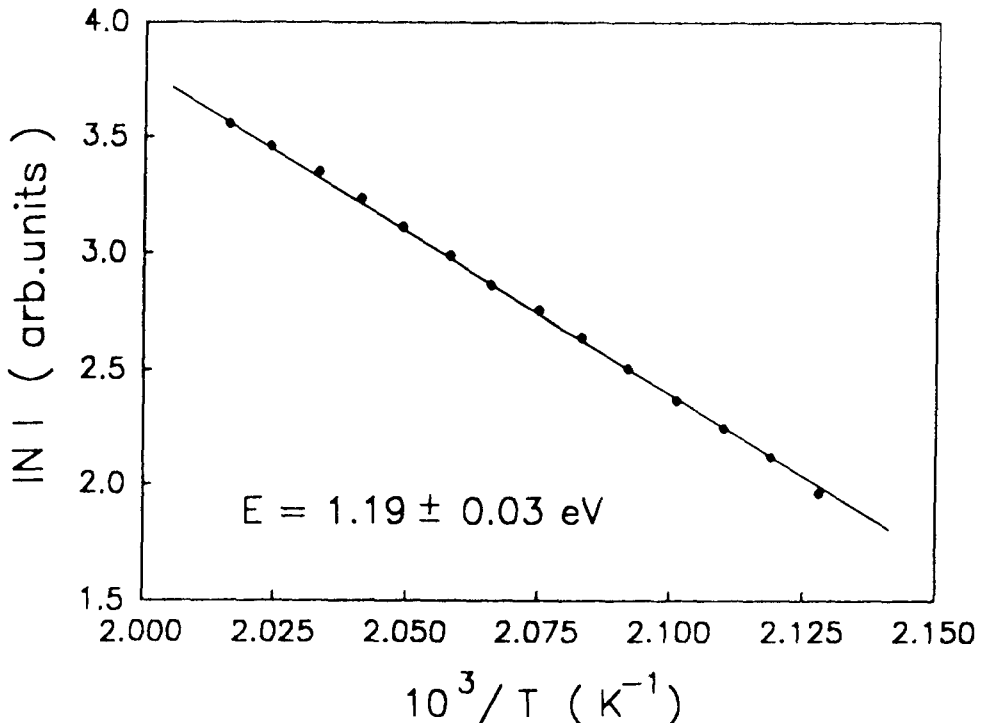


Fig.3. The TL intensity as a function of temperature. By using the initial rise method, the activation energy is calculated to be $1.19 \pm 0.03 \text{eV}$ from the slope of line.

$$I(T) = n_o^2 s' \exp\left(\frac{-E}{kT}\right) \left[1 + \left(\frac{n_o s'}{\beta}\right) \int_{T_o}^T \exp\left(\frac{-E}{kT'}\right) dT' \right]^{-2} \dots\dots\dots \text{식(5)}$$

Initial rise법에 의하면 식(5)는

$$I(T) = n_o^2 s' \exp\left(\frac{-E}{kT}\right) \dots\dots\dots \text{식(6)}$$

로 바뀐다. 그림 3은 $\ln I$ 을 $10^3/T$ 의 함수로 나타낸 그림이다. 직선의 기울기로부터 구한 활성화 에너지 E값은 $1.19 \pm 0.03 \text{eV}$ 이었다. 이 결과는 peak shape법에 의한 결과와 유사하다.

식(4)를 변형하면

$$\frac{\beta}{kT_m^2} = \frac{s}{E} \left(\frac{-E}{kT_m} \right) \dots\dots\dots \text{식(7)}$$

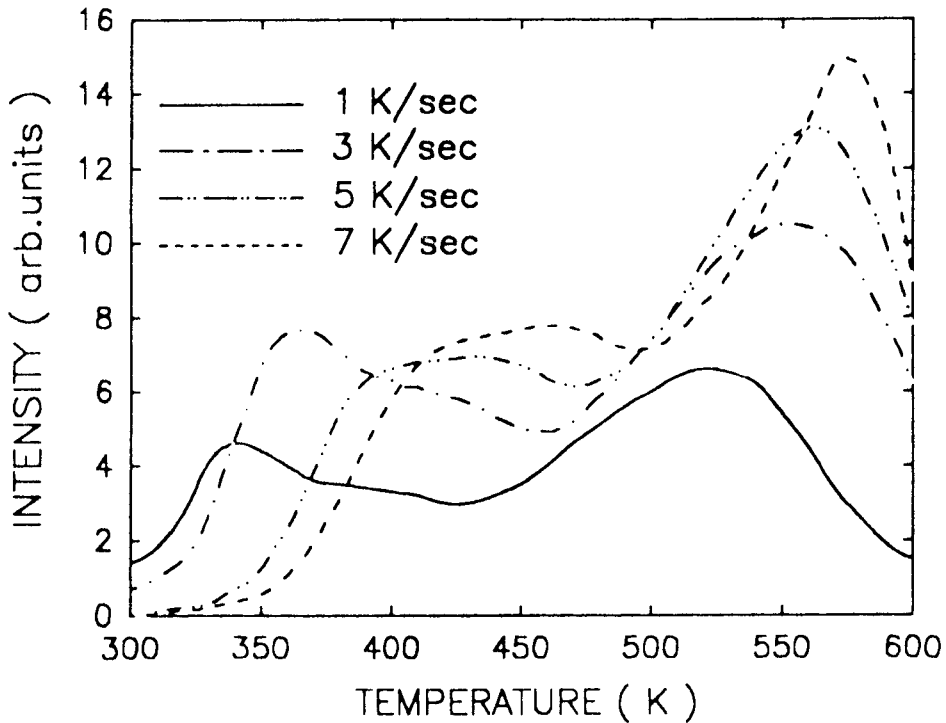


Fig. 4. TL spectra from 4MeV-photon irradiated sample with the various heating rates. The peak temperatures of TL curves with 1, 3, 5 and 7K/s are located at 527K, 550K, 563K and 575K, respectively. The TL peak is shifted to higher temperature according to the increment of the heating rates.

가 된다. 온도상승률을 변화시키면 T_m 이 변하는데 이 값들로부터 식(7)을 이용하여 활성화에너지를 구할 수 있다. 그림4는 500cGy로 조사시킨 후 1, 3, 5, 7 K/S의 온도상승률로 시료를 가열하여 측정된 TL 스펙트럼이다. 1, 3, 5, 7 K/S의 온도상승률로 측정된 TL 곡선의 정점 온도는 각각 527K, 550K, 563K, 575K로 나타나 온도상승률이 증가할수록 TL peak 온도가 높은 온도쪽으로 이동함을 알 수 있다. 그림 5는 여러가지 온도상승률에 대하여 $\ln(\beta/kT_m^2)$ 을 $10^3/T_m$ 의 함수를 나타내며 이 직선의 기울기로부터 온도상승률에 의한 활성화에너지가 1.02 ± 0.05 eV임을 알 수 있다. 이 값은 peak shape법과 initial rise법에서 구한 값과 잘 일치하였다.

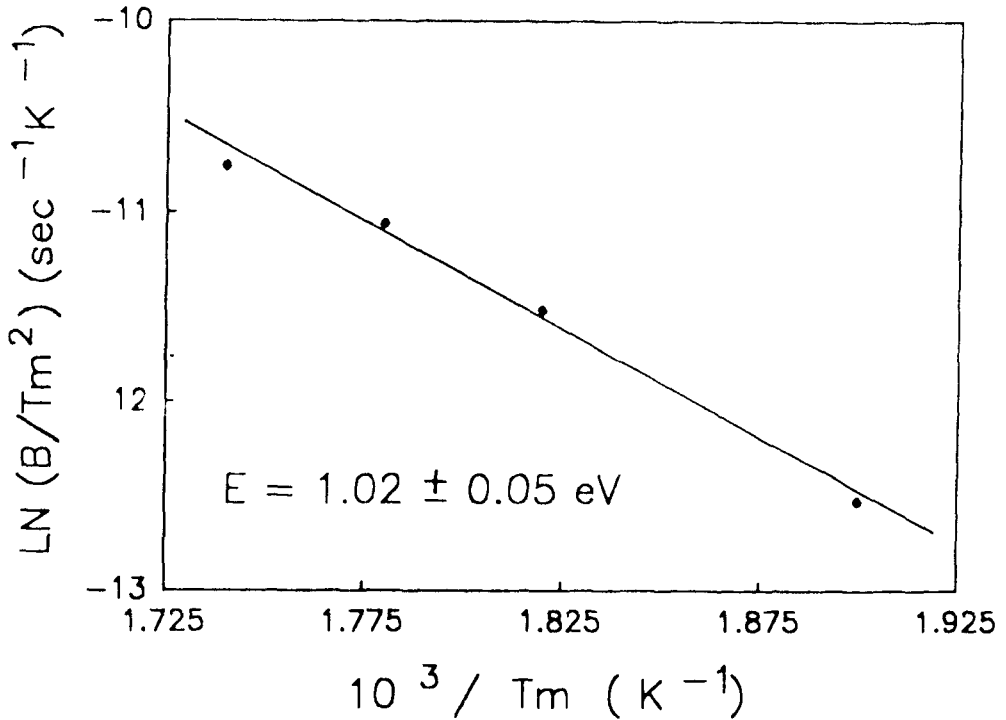


Fig. 5. The relation of the heating rates and maximum temperatures. Based on the various heating rates, the activation energy is calculated to be 1.02 ± 0.05 eV from the slope of line.

TL peak지점의 온도를 일정하게 유지시킨 후, 시간경과에 따른 isothermal decay TL 스펙트럼을 조사하였다. 그림 6은 4MeV X-선으로 500cGy를 시료에 조사시킨 후, 1K/S의 온도상승률로 시료의 온도를 527K까지 일정하게 올리고 그 이후에는 최고의 TL세기를 갖는 온도인 527K로 유지시키고 측정된 TL 스펙트럼이다. 그림 6의 점선은 시간에 따른 시료의 온도곡선을 나타내며 이 직선으로부터 본 실험 장치에 설치된 발열체의 시간에 따른 온도의 선형성이 매우 양호하게 나타났다. 시간에 따른 isothermal decay의 TL 세기는

$$I = I_0 \exp \left[-s \exp \left(\frac{-E}{kT} \right) t \right] \dots \dots \dots \text{식 (8)}$$

로 주어진다. 그림 7은 시간에 따른 $\ln I$ 의 관계를 나타낸다. 그림(7)의 직선기울기로부터 구한 이

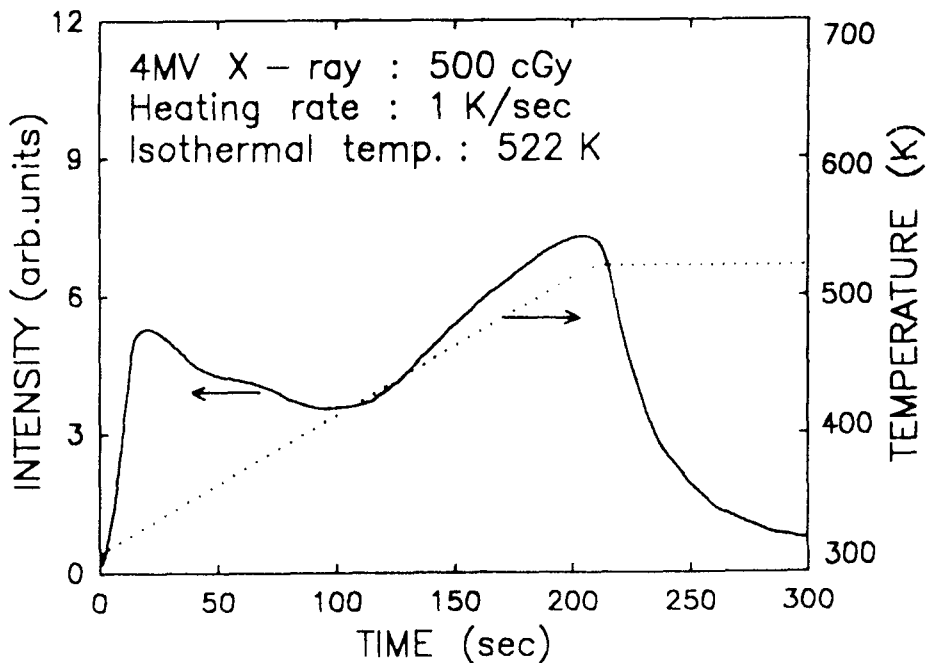


Fig. 6. The isothermal decay TL spectrum. 4MeV X-ray irradiated sample with 500cGy is constantly heated until reaching at 527K and TL spectrum is measured while keeping on 527K.

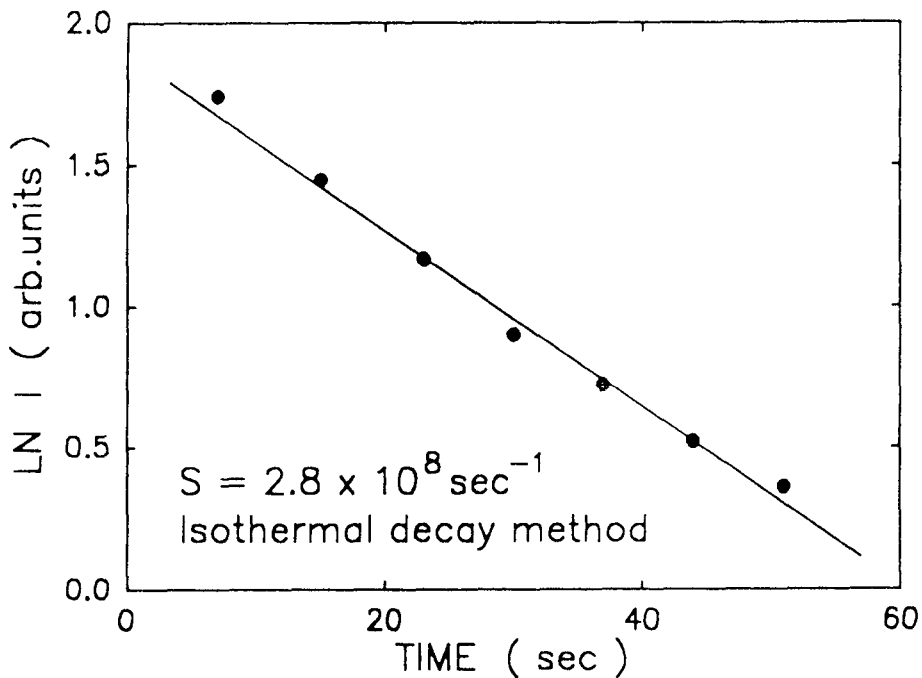


Fig. 7. Intensity as a function of decay time. On the basis of isothermal decay, the frequency-factor is obtained to be $2.8 \times 10^8 \text{sec}^{-1}$ from TL spectrum.

탈진동수는 $2.8 \times 10^8 \text{sec}^{-1}$ 이었다. 이 결과는 peak shape법에 의한 $3.9 \times 10^8 \text{sec}^{-1}$ 과 잘 일치한다.

그림 8은 200cGy-20000Gy의 다양한 선량으로 조사시킨 후, 1K/S의 온도 상승률로 측정된 TL 스펙트럼의 전체 세기이다. 50Gy의 조사선량 범위까지는 조사선량에 따른 TL세기의 선형성이 유지되었지만, 그 이상의 영역에서는 supralinearity가 나타난 후 saturation됨을 보인다.

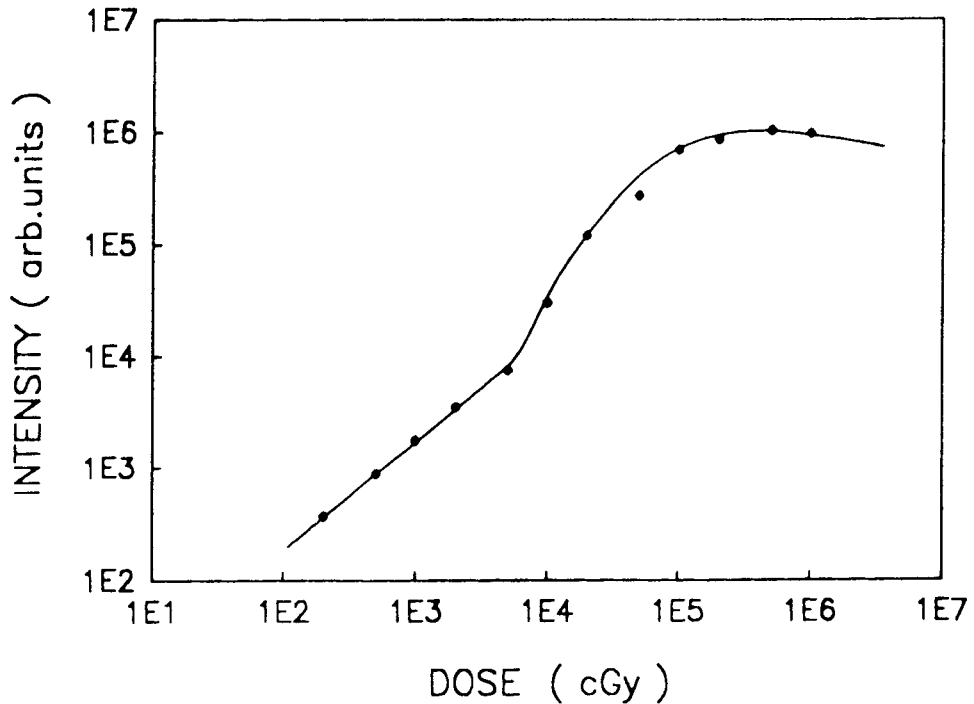


Fig.8. The TL intensity as a function of irradiation flux. The TL intensity linearly depends on the irradiation flux up to 50Gy and beyond 50Gy the supralinearity and saturation come out.

IV. 결 론

제조된 beta-eucryptite에 4MeV-photon을 조사시켜 300K-600K 온도 구간에서 TL을 측정하였다. 조사된 beta-eucryptite의 TL 스펙트럼은 혼합된 형태로 나타났으며, 이 스펙트럼을 수치해석적인 방법으로 분해하면 342K, 392K, 438K, 474K과 527K에서 TL peak가 나타난다. 527K TL 스펙트럼의 τ , δ , ω 는 각각 35K, 39K, 75K를 가지며, δ/ω 의 값이 0.53을 가지므로 527K TL 스펙트럼은 retrapping이 일어나는 2nd kinetic order임을 알았다. 또한 450K에서 3분 동안의 열처리를 통하여 527K TL 스펙트럼만을 분리할 수 있었고, 이 결과는 수치해석적인 방법에 의한 분해 결과와 잘 일치하였다. τ , δ , ω 에 대한 peak shape법의 활성화에너지는 모두 1.03eV이었고, 이탈진동수는 $3.9 \times 10^8 \text{sec}^{-1}$ 이었다. 또한 initial rise법과 다양한 온도 상승률에 따른 활성화에너지는 각각 $1.19 \pm 0.03 \text{eV}$, $1.02 \pm 0.05 \text{eV}$ 로 나타났으며, 이 결과는

peak shape법의 결과와 일치하였다. 최고의 TL세를 갖는 온도 527K를 유지하며 isothermal decay TL 스펙트럼을 구하였다. Isothermal decay 법에 따른 이탈진동수는 heating rate법의 $3.9 \times 10^8 \text{sec}^{-1}$ 와 유사한 $2.8 \times 10^8 \text{sec}^{-1}$ 이었다. 50Gy의 조사선량 범위까지는 조사선량에 따른 TL세기의 선형성이 유지되었지만, 그 이상의 영역에서는 supralinearity가 나타난 후 saturation됨을 보인다.

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 Li^+ (p, α) 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. 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)
5. D.Briggs and M.P.Seah: Practical Surface Analysis: John Wiley & Sons, New York(1984), pp. 459-468
6. R.Chen: On the Calculation of Activation Energies and Frequency Factors from Glow Curves: J. Appl. Phys., 40, 570-585(1969)
7. G.F.J.Garlick and A.F.Gibson: The Electron Trap Mechanism of Luminescence in Sulphide and Silicate Phosphors: Proc. Phys. Soc., 60, 574-590(1948)
8. P.Kelly and P.Braunlich: Phenomenological Theory of Thermoluminescence: Phys. Rev., B1, 1587-1595(1970)
9. A. Halperin and A.A.Braner: Evaluation of Thermal Activation Energies from Glow Curves: Phys. Rev., 117, 408-415(1960)

Thermoluminescence from X-Ray Irradiated Beta-Eucryptite

Tae Kyu Kim, Ph.D., Byong Yong Yi, M.S.^{*}, Beum Sik Choi, Ph. D.^{**}, Hyun Sik Kang, Ph. D.⁺, Seong Sil Chu, Ph. D.⁺⁺, Chung Nam Whang, Ph. D.⁺⁺⁺
 Dept. of Science Education, Chonju Ntl Teachers College, Chonju, Korea
 Dept. of Ther. Radiol., Coll. of Medicine, Ulsan Univ., Seoul, Korea^{*}
 Dept. of Physics, Chonju University, Chonju, Korea^{**}
 Dept. of Physics Education, Chonbuk University, Chonju, Korea
 Dept. of Radiation Oncology, Coll. of Med., Yonsei Univ., Seoul, Korea⁺⁺
 Dept. of Physics, Yonsei University, Seoul, Korea⁺⁺⁺

Abstract

In this study, beta-eucryptite is fabricated and the thermal parameters of this material have been investigated. The thermoluminescence from 4MeV X-ray irradiated beta-eucryptite have been measured over the temperature range of 300K-600K. Thermoluminescence curve from X-ray irradiated beta-eucryptite shows five peaks located at 342K, 392K, 438K, 474K, and 527K. τ , δ and ω of peak at 527K are 35K, 39K and 74K, respectively and this peak is found to be 2nd order kinetics. The activation energy of peak shape method is calculated to be 1.03eV and the frequency factor for 527K curve is calculated to be $3.9 \times 10^8 \text{sec}^{-1}$. Based on the various heating rates methods, the activation energy of the peak is computed to be $1.02 \pm 0.05 \text{eV}$ that is similar to $1.19 \pm 0.03 \text{eV}$ of initial rise method. The linearity of thermoluminescence intensity and radiation flux is valid up to 50Gy and beyond higher dose the supralinearity and saturation come out.