

DBPAS를 이용한 CaWO_4 결정의 결함특성

김창규 · 안창모 · 송기영 · 이종용†
한남대학교 물리학과

The Defect Characterization of CaWO_4 Crystals by Doppler Broadening Positron Annihilation Spectroscopy

C.G. Kim, C.M. Ahn, G.Y. Song and C.Y. Lee†
Department of Physics, Hannam University

(2002년 3월 2일 받음, 2002년 4월 26일 최종수정본 받음)

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

As samples were exposed by X-ray increasing from 3, 6, and 9 Gy with 6 MV, and 10 MV each and also by E-beam increasing the energies with 6 MeV, 9 MeV, 12 MeV, and 20 MeV. The S-parameter values were increased as increasing the exposed time and the energies. The S-parameters of the large and small size grains in CaWO_4 were measured. The S-parameter of the small size grains in CaWO_4 was resulted in larger values.

Key words : S-parameter, Positron, DBPAS, defect

1. 서 론

Dirac에 의해 제안되고 앤더슨에 의해 실험으로 입증된 양전자는 전자의 반입자로 지난 20 여년 동안 재료 특성이 나 반도체 소자 결함 등에 이용되어져 왔다.^{1~3)} 특히 재료의 특성 중에서도 양전자는 전자와의 상호 작용을 통한 재료내의 결함 특성을 측정하는 수단으로 연구되어 왔다. 전자와 소멸을 할 때는 대부분의 경우 2 개의 γ 선이 거의 180° 각도를 이루면서 방출된다.

양전자를 이용한 결함측정 방법으로는 아래와 같이 크게 세 가지로 분류 할 수 있다. 첫째로 도플러 넓어짐 측정 방법⁴⁾ (Doppler Broadening Positron Annihilation Spectroscopy : DBPAS)은 γ 선 에너지의 측정을 이용한 것으로 소멸과정에서 전자와 양전자 쌍의 운동량이 소멸 감마선에 보존되므로, 이것을 이용하는 에너지 편이로 측정 할 수 있다. 둘째는 양전자 수명 측정방법⁵⁾으로 양전자 소스에서 에너지 전이에 의해 양전자가 생성될 때 동시에 발생하는 1.27 MeV의 γ 선의 방출 시간과 시료에 주사되고 양전자가 소멸 할 때 생성되는 0.511 MeV의 감마에너지들에 대한 시간 간격을 측정하여 시료내의 결함에 따른 시간 지연을 측정하는 것이다. 셋째로 각 상관 소멸 광자 방법⁶⁾은 방사하는 γ 선의 수직 방향인 두 운동량 성분들이 작은 각으로 벗어나게 되며, 이때 각의 크기를 편각이라고 하고, 전자 운동량의 크기에 비례하며 이 편각은 1차원 또는 2차원으

로 γ - γ 동시 측정 방법으로 측정하는 것이다. 본 실험 방법은 도플러 넓어짐 측정 방법을 사용한다. 이 방법은 측정법이 용이하고 측정하는 경우에도 시료에 전혀 영향을 주지 않으며, 나노미터 수준의 결함을 측정 할 수 있는 장점을 가지고 있다. 또한 실리콘웨이퍼의 표면 결함 측정⁷⁾ 할 때 나 실리콘 소자에 대한 연구⁸⁾, 물리 화학적 또는 전기적 충격이 가해 질 때에 시료에 발생하는 결함 측정⁹⁾ 등에도 사용하고 있다.

최근 경제발전과 생활수준의 향상으로 의학기술과 관련된 산업이 나날이 성장하고 있다. 의료산업에서 사용하는 CaWO_4 시료는 의료영상을 얻을 때 방사선 피폭을 줄이기 위한 수단으로 형광 증감물질로서 많이 사용되고 있다.¹⁰⁾ 이 물질은 방사선 특히 X선과 작용하여 발광을 통한 영상을 형성하게 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 CaWO_4 시료에 대하여 시료의 감도 즉 형광 알갱이의 크기에 따른 S 변수를 이용한 결함 크기 비교와 시료에 전자를 주사하였을 때 주사한 양에 대하여 또한 X선을 노출시켰을 때 노출시키는 세기에 따른 결함 특성을 분석함으로써 상업적인 형광 증감 물질 제조 및 수명 연구에 대한 실험을 목적으로 수행하였다.

† E-mail : cylee@mail.hannam.ac.kr

2. 실험 방법

CaWO₄ 시료는 Kyokyo사의 형광 증감 시료로써 각각 200×200×1 mm³ 인 저감도 BMⅢ와 고감도 BHⅢ를 가지고 20×20×1 mm³ 크기로 제작되었고, Verian 사의 Clinac 2100 C/D가 X선과 전자선 빔의 동시 발생 장치를 이용하여 X선의 경우에는 6, 10 MV 에너지 세기의 두 종류 시료로 나누어 실험하였다. 이때 조사의 범위(조사야)는 100×100 mm²이고, X선 빔 소스로부터 1m 거리 간격을 띄워 각각 3, 6, 9 Gy로 조사시켜 모두 6 쌍인 결함의 정도가 서로 다른 시료를 제작하였다. 전자선의 경우는 각각 6, 9, 12, 20 MeV 에너지 세기에서 4 쌍의 시료를 준비했으며, 100×100 mm 조사 범위로 일정한 선량 6 Gy를 X선의 경우와 같이 1m 거리에서 조사시켜 결함의 정도가 서로 다른 4 쌍의 시료를 제작하였다.

도플러 넓어짐 측정법 실험을 하기 위하여 양전자 소스는 활성화 면적의 직경이 9.53 mm이고, 5μm 두께의 니켈 foil로 양면을 감싸고 있는 22Na 10 μCi를 사용하였다. 양전자의 열적 투과 깊이가 100 μm 정도이므로 측정하려는 CaWO₄ 시료의 두께가 100~300 μm인 측정 실험에는 지장이 없었으며, Fig. 1에서와 같이 소스는 시료 한 쌍의 가운데에 샌드위치 형태로 배치하였다. 또한 양전자 소멸 에너지에 의한 감마에너지 검출을 위하여 Ortec사 Gem 20180-P 검출기와 증폭기를 사용하고 511 keV 근처에서 측정하였다. 다른 연구자의 실험에서와 같이¹¹⁾ 각 도플러 스펙트럼은 peak 채널에서 스펙트럼 당 100,000개 포함하고 있으며, 시료를 측정할 때의 S 변수는 5회 실험 평균값이다. 이때 측정된 모든 시료에서, 표준편차가 가장 큰 값이 4.03×10⁻⁴ 이었다. 실험은 의료장비에서 사용하는 증

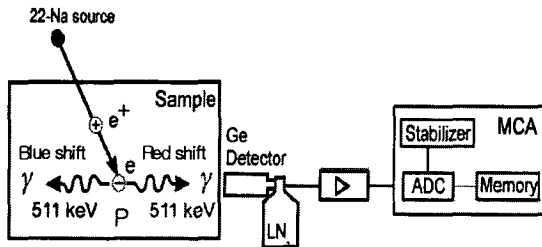


Fig. 1. Schematic diagram of experimental arrangement of Doppler-broadening spectroscopy.

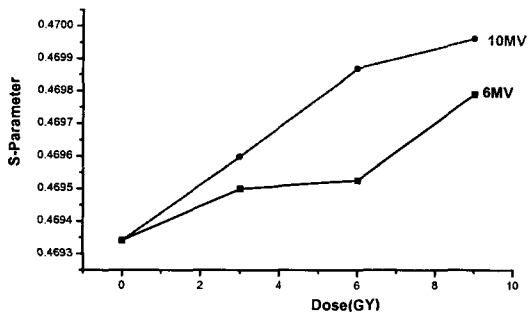


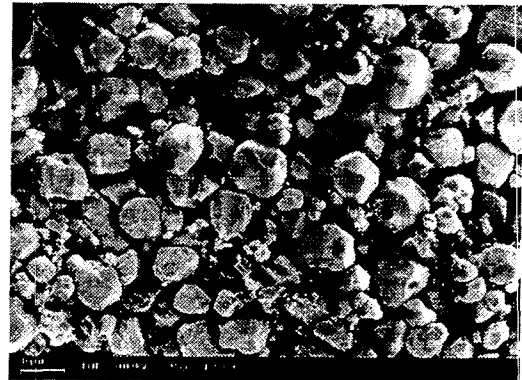
Fig. 2. The variation of S-parameter depending on the X-ray dose intensity in the large size grains of CaWO₄.

감지 CaWO₄ 시료의 X-선과 전자선에 의한 결함 정도를 알아보고자 하였으므로 실험 목적의 특성상 상온에서 수행하였다.

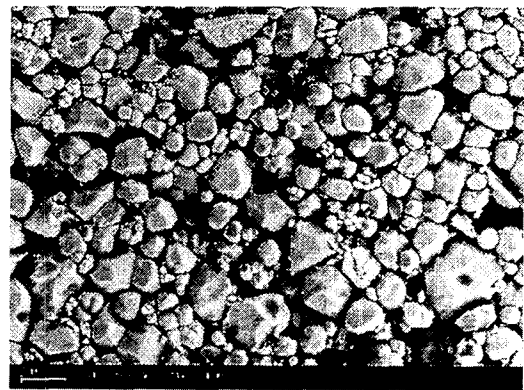
3. 결과 및 고찰

3.1 CaWO₄의 X선 조사시 결함특성

Fig. 2는 저감도 CaWO₄보다 상대적으로 비교적 큰 입자 크기를 가진 고감도 CaWO₄에 상온에서 X선을 각각 6, 10 MV 에너지로 3, 6, 9 Gy의 선량을 조사하였을 때의 S 변수 값을 보여주고 있다. X선을 주사하지 않았을 때의 시료인 CaWO₄를 기준으로 0을 정의하였고, 수평축의 선량을 3, 6, 9 Gy로 증가함에 따라서 S 변수 값을 정의하였다. 두 X선 에너지를 조사하는 경우 모두 선량이 3, 6, 9 Gy로 증가함에 따라서 S 변수 값은 비례적으로 증가하는 경향을 보이고 있으며, 6 MV X선의 에너지보다는 10 MV X선의 에너지일 때 S 변수 값이 보다 더 증가하는 경향을 알 수가 있다. 이것은 Fig. 3에서 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. 이러한 이유 때문에 결정의 결함이 증가된 것을 알



(a)



(b)

Fig. 3. SEM Photographs of large size grains in CaWO₄, (a) unexposed (b) exposed samples by 10 MV 9 Gy X-ray.

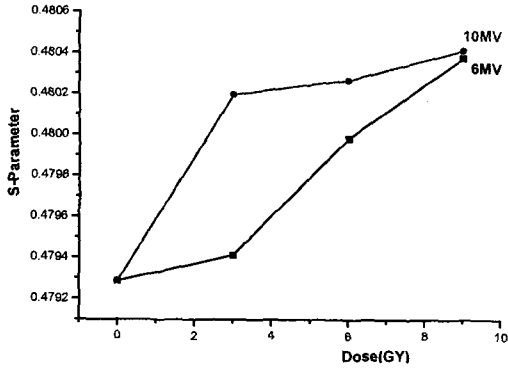
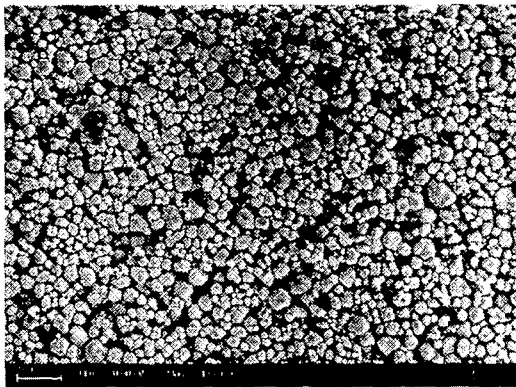
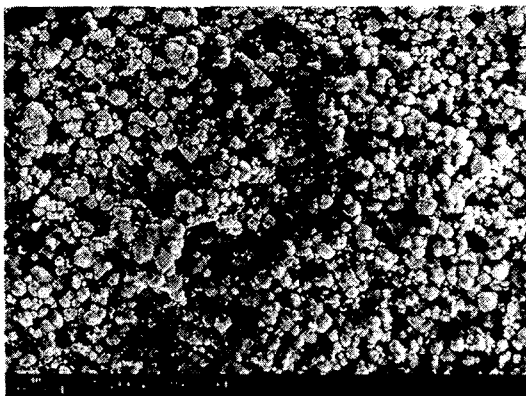


Fig. 4. The variation of S-parameter depending on the X-ray dose intensity in the small size grains of CaWO₄.



(a)



(b)

Fig. 5. SEM photographs of small size grain of CaWO₄ (a) unexposed (b) exposed samples by 10 MV 9 Gy X-ray.

수가 있다. 일반적으로 결함이 증가된 시료에서의 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 운동량을 갖는 코어 전자의 감소로 큰 에너지 편이가 있는 부분에서는 그 수가 감소하게 된다. X-선을 조사하면 시료는 결함이 증가하며, 또한 선량이 증가하면 증가할수록 결함의 양이 많아지는 것을 알 수 있다.

즉 결정의 결함 증가는 조사선량과 에너지에 의해 좌우되는 것을 알 수 있었다.

Fig. 4는 입자 크기가 작은 저감도 CaWO₄에 X-선 조사시 결함의 특성을 나타낸 것으로 S 변수 값은 비교적 작은 결정의 CaWO₄에 X선을 각각 6, 10 MV 에너지로 3, 6, 9 Gy의 선량을 조사하였을 때의 값이다. 고감도 증감지의 큰 결정에서와 마찬가지로 조사선량을 증가시켰을 때 S 변수의 값은 이에 대응하여 비례적으로 증가하였다. 또한 6 MV X선 에너지일 때보다 10 MV X선 에너지로 조사시켰을 때 S 변수 값의 변화가 큰 것을 알 수가 있다.

Fig. 5는 입자 크기가 작은 CaWO₄에 X선이 조사되지 않은 시료와 10 MV X선 9 Gy가 조사된 시료의 SEM 사진이다. Fig. 5에서 보는 것과 마찬가지로 X선이 조사된 시료에서는 결함이 많이 발생하였음을 볼 수가 있다. Fig. 2, 3과 Fig. 4, 5를 비교하면 입자 크기가 작은 CaWO₄ 시료는 방사선이 노출되지 않은 입자 크기가 큰 CaWO₄ 시료에 비하여 S 변수 값이 큰 것을 볼 수가 있는데, 이것은 입자 크기가 작은 CaWO₄에서 입자는 작은 입자로 이루어져 있기 때문에 입자간 결함 미세 공극이 결함으로 작용했을 것으로 생각된다. 즉 구성입자가 작은 크기로 구성된 결정 시료에서는 단위 면적 당 결정간 결함 부위가 많으므로 인하여 Fig. 4, 5에 보여지는 것처럼 결함의 증가가 상대적으로 크게 나타나는 것을 알 수가 있었다.

3.2 전자선 조사시 CaWO₄ 결함특성

Fig. 6, 7은 전자선의 에너지 변화에 따라 CaWO₄ 결정 시료에 노출시켰을 때 변화하는 S 변수의 값이다. 전자선 에너지를 6, 9, 12, 20 MeV로 변화시키고, 선량은 6 Gy로 일정하게 각각의 시료에 전자선을 조사시켰을 때 X-선 변화와 같은 경향으로 S 변수 값이 전자선 에너지에 비례해서 증가함을 알 수 있었다. 임상에서는 20 MeV 근처에서 표피치료를 하게 되는데, Fig. 6, 7에서는 6 MeV 이상인 전자선의 조사가 시료에 결함에 영향을 주는 경향이 나타난다.

전자선을 주사하지 않은 CaWO₄ 시료에서는 입자 크기가 작은 시료에서 입자 크기가 큰 시료 보다 항상 S 변수 값이 크게 나타났으며, 입자 크기가 작은 시료에서 입자 크기가 큰 시료에 비하여 S 변수 값의 변화 폭이 큰 것을 알

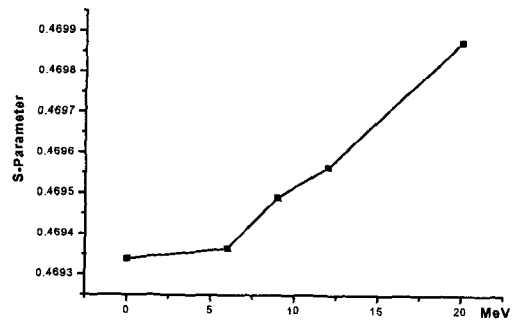


Fig. 6. The variation of S-parameter in the large size grains of CaWO₄ exposed by various electron beam energies.

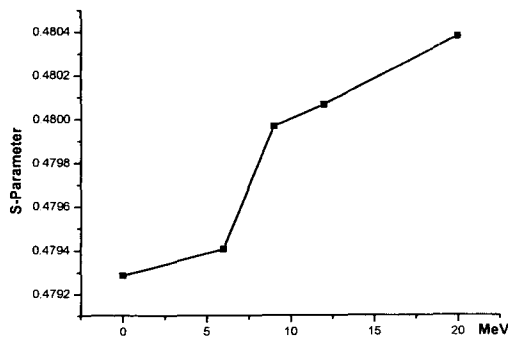


Fig. 7. The variation of S-parameter in the large size grains of CaWO_4 exposed by various electron beam energies.

수 있다. 이는 앞의 X선 조사의 경우와 유사하게 S 변수 값이 변화되는 것을 알 수 있었다. SEM 사진으로부터는 전자선을 주사하지 않은 시료와 비교 할 때, 입자의 변화가 거의 나타나지 않지만 Gupta et al.¹²⁾, 결합 모델 이론에 의하면, 일반적으로 시료는 두 부분의 성분으로 나뉘며, + 전하를 띤 입자는 결정 경계면 안에서 - 전하를 띤 입자는 결정 경계 표면에 몰려있으며, 이 두 입자들은 항상 같은 수이고, 균형을 이루고 있기 때문이다라고 보고되었는데, 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 방법으로 결합의 크기 변화를 측정할 수 있는 것으로 생각된다. 이것은 다른 연구자의 발표에서도 증명되고 있다.¹¹⁾

또한 Fig. 2, 4, 6, 7에서 알 수 있듯이 동일한 선량을 조사하였을 때는 에너지가 큰 X선 조사의 경우가 전자선 조사의 경우보다 S 변수 변화 폭의 값이 커지는 것을 알 수가 있는데, 이것은 CaWO_4 시료의 결합 증가의 영향은 선량의 크기를 증가시키는 것보다 에너지 크기의 변화가 결합을 증가시키는데 더 기여하는 것으로 판단된다.

4. 결 론

본 연구는 형광 증감 물질인 CaWO_4 수명 측정에 필요한 기초자료를 얻고자 방사선 조사에 대한 결합특성을 분석함으로써 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) CaWO_4 에 X선이나 전자빔을 조사하는 경우에 입자

크기가 작은 시료와 입자 크기가 큰 시료 모두 선량 및 에너지 변화에 따라 S 변수 값이 증가하였다. 또한 입자 크기가 작은 시료가 입자 크기가 큰 시료에 비하여 S 변수 값이 큰 폭으로 변화하는 것을 알 수 있었다.

2) CaWO_4 에 동일 선량이 조사되었다 하더라도 방사선의 종류 및 에너지 크기에 따라 입자에 생기는 결합의 양이 다르다는 것을 알 수 있었다. 또한 전자선을 주사하는 경우에는 입자의 경계 표면을 이용한 Gupta의 결합 모델로 설명을 할 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 2002년도 한남대학교 교비에 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. Triftshauer, 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**, No. 1, 117 (1988).
5. J.L. Lee, J.T. Waber, Meta. Trans. **21a**, 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., p.100~103 (2001).
11. T.K. Gupta, W.D. Straub, M.S. Ramanachalam, J.P. Schaffer, and A. Rohatgi J. Appl. Phys. **66**, 6132 (1989).
12. T.K. Gupta and W. G. Carlson, J. Mater. Sci. **20**, 3487 (1987).