

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

임유석 · 이종용[†]

한남대학교 이과대학 물리학과

Positron Annihilation Lifetime Study on the Proton-Irradiation BaSrFBr : Eu Film

Yu-Suk Im, Chong Yong Lee[†]

Department of Physics, Hannam University, Daejeon, 306-792, Korea

(2010년 5월 19일 접수 : 2010년 6월 4일 최종수정 : 2010년 6월 7일 채택)

Abstract Positron annihilation lifetime spectroscopy is applied to BaSrFBr : Eu film which is used for the phosphore layer, and afterwards the reliability and self-consistency of source corrections in the positron lifetime spectroscopy is investigated using a ²²Na positron emitter covered by thin foils. The positron lifetime showed no significant change through the various proton irradiation energies. It is unusual that the measurements of the defects indicate that most of the defects were likely to have been generated by X-ray radiation. This may have resulted from the Bragg peaks of the proton characteristics. The Bragg peak does not affect the defect signals enough to distinguish the lifetimes and intensities in a material that includes multi-grains. The lifetime (τ_1) associated with positron annihilations in the Ba, Br, and Eu of the sample was about 250 ps, and due to the annihilations at F-centers or defects from the irradiated protons in sample, the lifetime (τ_2) was about 500 ps.

Key words positron annihilation lifetime, BaSrFBr : Eu, proton irradiation, thin film.

1. 서 론

후지사가 처음 발표한¹⁾ 고분자 재료의 지지체 위에 형광물질, 다결정체 층의 피사체 진단용 재료인 영상 판(image plate)²⁾을 사용하여 신속한 영상 데이터를 얻고 있다. 이 영상 판은 X선의 흡수율이 필름보다 더 좋고 재생 효율이 높아서 사용 횟수가 많으며, 영상판 내부의 반도체 특성을 띠는 X선 저장 형광 물질은 디지털화된 X선의 이미지를 발생시킬 수 있고, X선이 조사되면 주사 결합이라는 것에 의하여 X선 조사에 대한 정보를 저장할 수 있게 된다. 그리고 CR (Computer Radiology)을 사용하여 저장된 정보 복원을 위하여 영상판에 레이저로 Photo-stimulable Luminescence (PSL)를 이용한 영상³⁾을 PACS (Picture Archiving and communication System) 프로그램으로 직접 볼 수 있어서, 증감지를 사용하여 필름을 현상하는 것 보다 상대적으로 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, 병원

에서는 영상 판의 수명을 어렵짐작하여 해상도 값에 따라 임의로 정하여 교체하고 있다. 그러므로 최근에는 의료산업에서 증감지 효율 저하에 관한 연구^{4,5,6)}보다 영상 판 수명에 관한 연구^{7,8)}가 더욱 중요시 되고 있다.

양전자 소멸 수명 측정법은 물질의 전자 구조, 결합 측정, 전자의 밀도분포 및 운동량 분포 등 핵과 고체 물리에서 사용되는 방법이다. 양전자 소멸 수명 측정법은 지난 30년 동안 재료의 특성이나 반도체 소자 결합 측정에 이용되었으며,^{9,10)} 결합에 대한 민감도가 ppm정도로 측정이 가능한 양전자 소멸 수명 측정법의 이용은 전자와의 상호 작용을 통한 재료내의 원자 단위의 크기 결합 특성을 측정하는 수단으로 연구되어 왔다. 측정법이 용이하고 측정하는 경우에도 비파괴 방법의 하나로 시료에 전혀 영향을 주지 않으며, 나노미터 수준의 결합을 측정할 수 있는 장점을 가지고 있다. 양전자는 전자의 반입자로서 양전자가 전자와 소멸을 할 때는 대부분의 경우 2개의 감마선이 거의 180° 각도를 이루면서 방출된다. 일반적으로 결합이 없는 시료에서의 양전자 수명은 100-200 ps 정도로 측정되고 있다.¹¹⁾ 그러나 시료에서의 양전자의 수명은 전자 밀도와 연관 되어있기 때문에, 전자 밀도가 크면 수명이 짧지만 원자 공공 결합 등에 의하여 전자 밀도가 낮으면 양전자가 결합에 포획되어 수

[†]Corresponding author
E-Mail : cylee@hnu.kr (C. Y. Lee)

명이 길어진다. 그러므로 결함에 대한 종류나 크기를 양전자 소멸에 대한 수명 측정으로 얻을 수 있다.

본 연구에서는 다결정체 층 영상판 내부의 형광물질인 BaSrFBr:Eu 박막의 결함을 측정하여 영상판 수명과의 관련성을 조사하고자 한다. 우주 개발의 관심에 따른 입사되는 우주 방사선의 90% 정도인 양성자의 조사에 따르는 BaSrFBr:Eu 박막의 효율 저하를 양전자 소멸 수명 측정법(PALS: Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy)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.

2. 실험 방법

BaSrFBr:Eu 박막의 다결정체 층은 AGFA사의 ADCC MD 4.0인 BaSrFBr:Eu 형광 시료를 사용하였으며 각각 300 × 250 × 0.8 mm³인 것을 실험 편의상 15 × 15 × 0.8 mm³의 크기로 제작하였다. 비닐로 코팅된 보호막의 두께는 10 μm이며 BaSrFBr:Eu 형광 물질은 두께가 250 μm인

것을 사용하였다. 양성자 조사로 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 PACS로 구성되어 있다. 양성자 빔 조사를 위하여 원자력의학원의 싸이클로트론 MC 50 가속기를 이용하였으며 빔의 세기는 37 MeV 10 nA를 사용하였다. 뒷부분의 산란 에너지를 무시하고자 시료 뒤에 알루미늄의 얇은 막을 사용하였으며, 본 실험에서는 3% 이하로 맞추었다. 조사하는 빔의 반치 폭은 42 mm이며, 양성자 빔의 크기는 지름이 약 40 mm의 크기로 조절하였다. 시료에 양성자 조사량은 3.78 × 10¹³/cm²로 조정하였다. 본 실험에서는 BaSrFBr:Eu 시료의 양성자 빔 조사에 의한 결함 정도를 알아보고자 하였으므로 실험 목적의 특성상 상온에서 수행하였다.

양전자 소멸 수명 측정법 실험을 하기 위하여 양전자 소스는 활성화 면적의 직경이 9.53 mm이고, 5 μm 두께의 티타늄 foil로 양면을 감싸고 있는 25 μCi ²²Na 소스를 사용하였다. 양전자의 열적 투과가 시료 내부에 들어가서 100 μm 보다 깊게 투과하므로 측정하려는 BaSrFBr:Eu 시료의 경우 표면의 보호막 두께가 10 μm이며 형광 물질의 두께가 250 μm로써 본 실험에서는 보호막의 두께를 무시할 수 있다. Fig. 1(b)는 양전자 소멸 수명 측정 장치를 보여 주고 있으며, 양전자 소스는 시료 한 쌍의 가운데에 샌드위치 형태로 배치하였다. 양전자 소멸 수명 측정은 Fast-Fast 동시 측정 방법으로 사용하였으며, 측정 시스템의 해상도는 대략 200 ps 정도이다. 관례적으로 스펙트럼 당 데이터는 2 × 10⁶ 개를 측정하였으며, 스펙트럼 분석을 위하여 PALSFIT 프로그램을 사용하였다. 또한 소스에 대한 보정을 위하여 소결 처리된 결함이 거의 없는 철 금속의 수명이 106 ps이므로 기준을 삼았으며, 일반적으로 사용되는 스펙트럼은 2 가우시안 해석법을 사용하였으며, 3개의 성분을 스펙트럼 분석으로 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

양전자 소멸 수명 측정법은 양전자가 포획된 결함에서의 소멸 시간을 측정하는 방법이다. Fig. 2는 양성자 빔의 에너지를 0, 3, 5 MeV로 변화시키고 조사량은 양성자의 입자 수가 약 10¹³~10²⁰으로서 BaSrFBr:Eu 박막 시료에 조사시켰을 때 측정한 τ와 성분 세기의 값이다. 이 값은 양전자 소스가 foil로부터 소멸되는 성분 값 τ = 350 ps와, 성분 세기 13%를 보정한 후의 결과를 나타낸 것이다. 가속기에서 나와서 조사된 양성자는 얇은 알루미늄

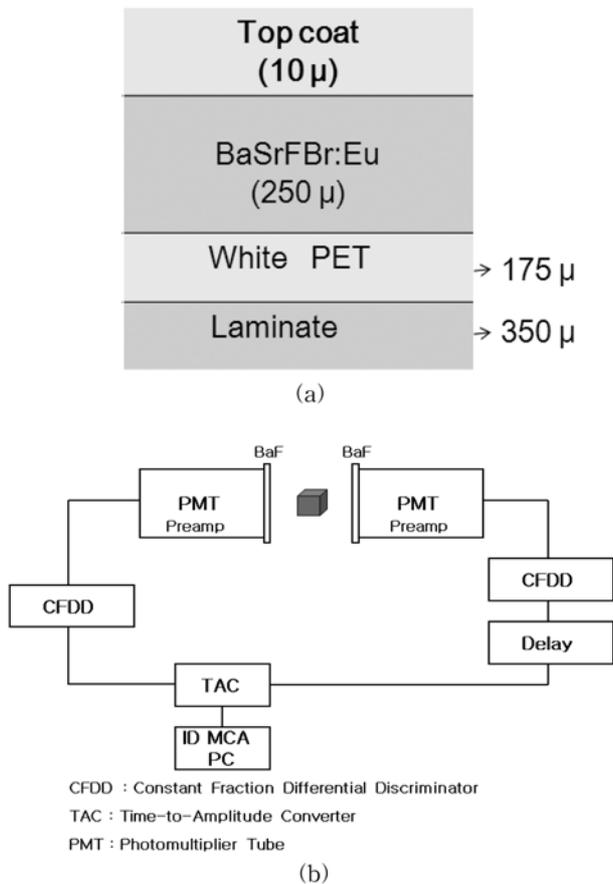


Fig. 1. Schematic Diagram of (a) the image plate and (b) Positron Annihilation Lifetime System setup.

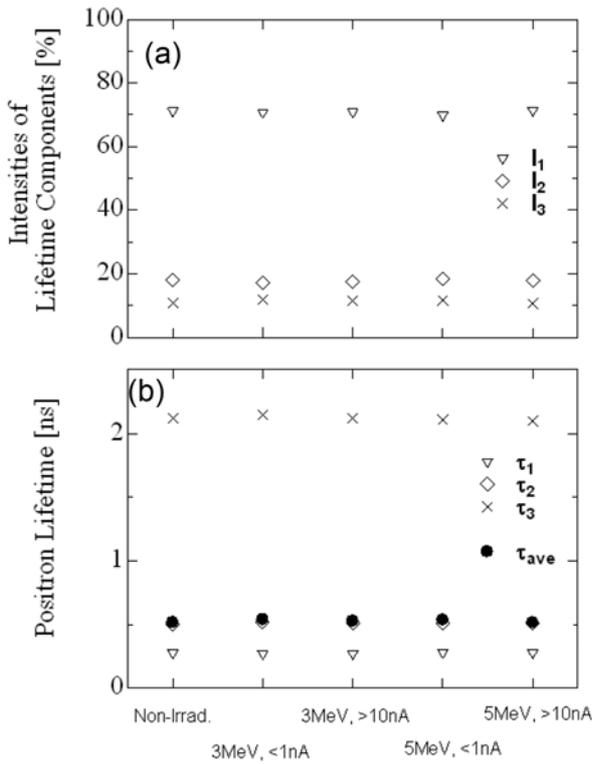


Fig. 2. (a) Positron lifetimes with intensities (%) of the BaSrFBr:Eu thin film and (b) the film irradiated by the various proton energies.

창의 박막을 통과한 수소의 빔 라인에 의해 발생되며, 빔이 사각형 모양이지만, 빔의 거리 조절을 하면, 크기와 에너지를 변화시킬 수 있다. 양성자 조사에너지를 변화시키면서, 조사량을 처음에 3.78×10^{13} ptls/cm²으로 하고 조사량을 증가하며 각 시료에 조사 시켰을 때는 기 발표된¹²⁾ X-선 조사 후의 시간에 따라서 S 변수 값이 증가되는 변화와는 서로 다른 경향으로 나타났다. 5 MeV 이하에서는 τ 값이 조사에너지에 비례해서 변화의 차이가 없음을 알 수 있다. Fig. 2에서는 보이지 않지만 7.5, 20 MeV에서도 마찬가지로 큰 변화가 없음을 알 수 있었다. τ_1 과 τ_2 의 경우에 각각 250 ps, 500 ps로 나타나는 데, τ_1 의 경우에는 성분의 세기(I_1)가 70% 정도라서, 양전자 소멸 율이 가장 크다. 그 이유는 BaSrFBr:Eu 박막의 경우에 Ba, Br, Eu의 성분으로부터 소멸된 양전자 소멸에 대한 수명으로 생각이 된다. 일반적으로 반도체나 금속속에서의 양전자 소멸 시간이 150-300 ps이기 때문이다. τ_2 는 BaSrFBr:Eu 박막의 구조가 정방정계로써¹³⁾ Ba, Br 격자에 의한 공공의 F-센터가 생기므로 양전자 소멸 시간이 증가한 것으로 생각이 되며, τ_3 의 경우는 2 ns 이상으로서 준 안정화된 포지트로늄의 구성을 보여주고 있다. 이때 τ_2 와 τ_3 의 각각 성분의 세기는 I_2, I_3 이다. 시료가 단 결정이 아닌 입자 알갱이의 크기가 5~10 μm 인 다 결정 입자형태로서 양성자 조사의 경우에는 Bragg 피크

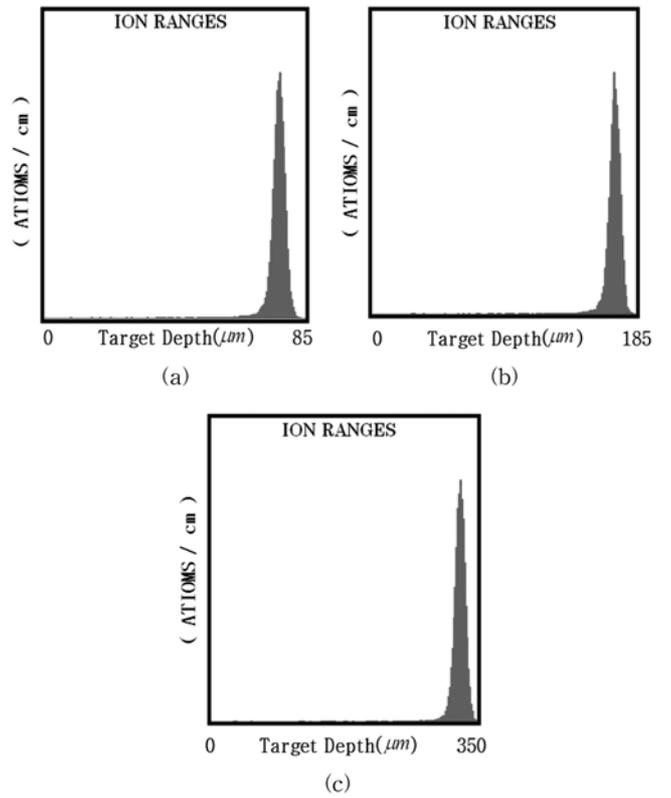


Fig. 3. SRIM simulations in BaSrFBr:Eu : (a) 3, (b) 5, and (c) 7.5 MeV proton irradiations : Bragg peaks are (a) 75.4, (b) 168 and (c) 325 μm each.

의 영향에 의한 결함 정도는 X-선에 의한 결함 형태를 쉽게 구별할 수 있는 실리콘에서 나타나는 결함처럼 조사 에너지에 따라서 다르게 나타나지 않는다. 양성자 조사 에너지가 5 MeV보다 크면 Fig. 3에서 보이는 것과 같이 양성자의 투과 깊이가 BaSrFBr:Eu 박막 두께보다 커지므로 본 실험에서는 고려하지 않았다. Fig. 3은 시료의 밀도가 4.95이며, 10000 입자의 양성자 조사량과 조사 에너지에 따른 SRIM 시뮬레이션 결과이다.

Fig. 3은 양성자가 BaSrFBr:Eu 박막에 조사 되었을 때 나타나는 Bragg 피크의 깊이를 보여주고 있다. BaSrFBr:Eu 박막의 두께가 300 μm 이하이므로 양성자의 조사 에너지를 7.5 MeV 까지 한 시뮬레이션의 결과이다. 양성자 조사 시뮬레이션의 결과로부터, X-선 조사 에너지의 경우와 다르게 나타난다. 일정한 깊이에서 Bragg 피크가 나타나므로 에너지에 따른 투과 깊이의 결과는 양전자 결함 측정 실험에서는 양성자 조사에 의한 결함의 영향이 크지 않을 것임을 보여주고 있다. 임상에서는 양성자 조사 에너지가 20 MeV 부근으로 피사체에 단순 표피 암 치료를 하고 있다. X-선의 경우에는 표면으로부터 깊이에 따른 에너지의 감소가 심하기 때문에, 최근에는 고 에너지 양성자 빔을 사용하면 Bragg 피크가 15 mm 정도 나

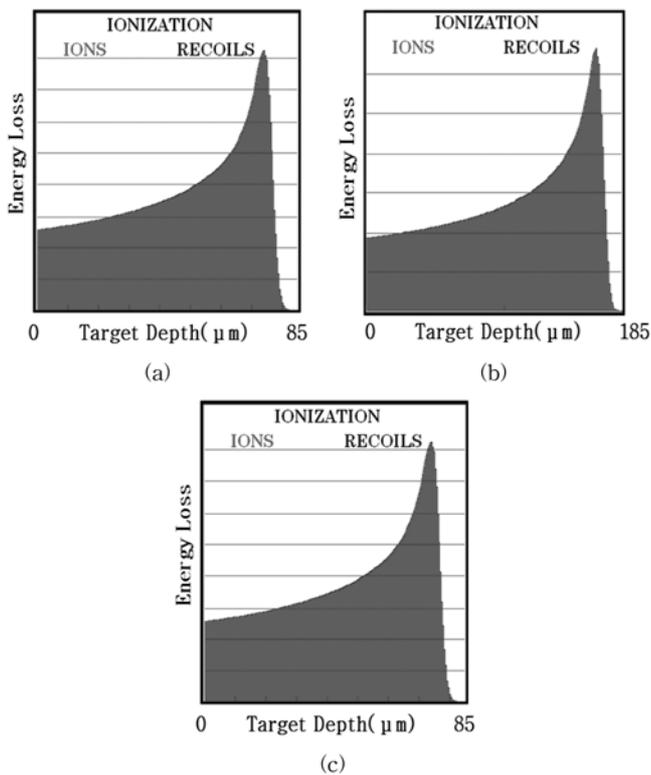


Fig. 4. Proton Energy loss vs. Penetration depth in BaSrFBr:Eu : (a) 3, (b) 5 and (c) 7.5 MeV proton irradiations.

타나고 주변조직의 후유증을 최소화 하며, 깊이가 깊은 종양의 치료를 할 수 있으므로, 고 에너지의 양성자 빔을 이용하는 연구 발표¹⁴⁾는 증가하고 있다. 본 실험에서 양성자 조사에너지를 20 MeV 사용하여 실험 하였으나 박막의 두께가 300 μm 이하이므로 에너지 크기에 대한 시료의 영향은 거의 없어서 결함의 증가는 보이지 않았다. SRIM 시뮬레이션 결과를 따르면 에너지가 20 MeV인 양성자는 본 박막 시료를 완전히 통과하는 깊이이므로 결함의 유무를 알 수가 없다. Fig. 4는 양성자가 시료에 투과될 때의 Bragg 피크까지의 에너지 감소를 보여주고 있다. 양성자는 시료에 침투하면 Bragg 피크로 나타나므로 양성자의 에너지 감소가 곧 표면에서 투과 깊이까지 결함의 증가를 의미한다고 볼 수 없다. BaSrFBr:Eu 박막의 경우에는 양성자 조사에 의하여 생긴 Bragg 피크로 인한 결함의 증가보다 다 결정 물질과 F-센터에 따른 양성자 소멸 시간의 변화가 크기 때문에 조사하기 전과 후의 양성자 소멸 시간의 변화가 없다고 여겨진다.

Gupta et al.,¹⁵⁾ 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 입

자는 결정 경계표면에 음 전하를 띤 층이 생길 것이다. 결함 경계면 근처에는 전자선에 의한 음 전하를 띤 입자가 많이 형성 될 것이고, 양성자는 속도가 낮은 전자와 소멸하면서 소멸시간이 증가 할 것이다. 그러므로 양성자 소멸 수명 측정 방법에서는 결함의 크기 및 시료의 변화를 측정이 가능하게 하는 것으로 여겨진다. J. G. Shin et al.¹²⁾에 따르면 BaSrFBr:Eu 박막에서는 X-선을 조사하면 Eu^{2+} 에서 Eu^{3+} 의 이온 상태로 변하는 과정에서 전자는 가전대로 부터 전도대로 개방되고, 이 전자는 결정 속에 형성되어 있던 할로겐 이온의 홀에 포획되는데, 양성자 조사의 경우에는 양성자가 대신 포획되어 결함이 크게 증가하지 않게 된다.

4. 결 론

본 실험에서는 양성자 소멸 수명 측정 방법을 이용한 양성자 조사의 에너지 변화에 따른 결함의 크기를 연구 하였다. 우주 방사선의 90%를 차지하는 양성자는 박막 시료에 양성자 조사를 하면 결함의 크기는 변화할 수 있지만 X-선 조사의 경우 에서와 같이 양성자 조사에너지의 변화에 따른 소멸 시간에 따른 결함의 증가는 보이지 않는다. 그 이유는 BaSrFBr:Eu 박막에서 양성자 조사의 경우의 Bragg 피크 영향은 박막 내부에 다 결정 알갱이가 도포되어 있는 결함과 F-센터로 생성되는 양성자 소멸 시간보다 결함 형성에 기여하는 것이 작아서 조사 에너지의 변화에 따른 결함의 증가는 PALS 소멸 시간의 변화가 현저히 나타나지 않는 것이다. 양성자 조사의 경우에는 양성자가 대신 F-센터에 포획되어 결함이 크게 증가하지 않을 것으로 여겨진다. 또한 7.5 MeV 보다 큰 에너지 조사 실험에서는 시뮬레이션 결과로 부터 양성자는 이미 350 μm 박막 시료를 투과하였다.

감사의 글

이 논문은 2010 년도 한남대학교 학술 연구비 지원에 의해 수행하였습니다.

참 고 문 헌

1. J. 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. C. Y. Lee, C. G. Kim, K. Y. Song and J. H. Kim, Kor. J. Mater. Res., **15**(6), 370 (2005) (in Korean).

5. C. Y. Lee, S. H. Bae, J. H. Kim and J. H. Kwon, Kor. J. Mater. Res., **16**(7), 455 (2006) (in Korean).
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. B, **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., **15**(2), 370 (2005).
11. I. Prochazka, Materials Structure, **8**, 55 (2001).
12. J. G. Shin, C. Y. Lee, S. H. Bae, J. H. Kim and J. H. Kwon, Kor. J. Mater. Res., **18**(8), 427 (2008) (in Korean).
13. T. Kurobori, M. Liu and Y. Hirose, Nucl. Instru. Meth. Phys. Res. B, **191**, 306 (2002).
14. 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. Meth. Phys. Res. Sec. A, **603**, 301 (2009).
15. T. K. Gupta and W. G. Carlson, J. Mater. Sci. **20**, 3487 (1987).