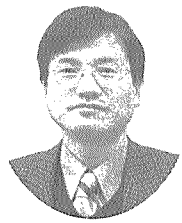
광자극 발광 선량계(OSLD)의 새로운 개념과 원리



김 장 렬
한국원자력연구소
방사선안전관리실 책임연구원

Ⅰ. 개요

지난 수세기 동안의 발광선량계측(Luminescence Dosimetry) 분야 발전에 가장 중요한 부분이라면 천연 다이아몬드로부터 'Glimmering Light'를 설명한 1663년의 Boyle의 업적을 말할 수 있을 것이며 이어서 Bequerel, Rutherford 및 Curie등과 같은 유명과학자에 의한 연구도 중요한 부분을 차지할 수 있을 것이다. 그러나 열발광(Thermoluminescence, TL)을 LiF 물질을 사용하여 선량계측 기술로 확립한 것은 1950년대 미국 Wisconsin 대학의 연구팀에 의해서였다. 그 후 TL 물질 개발 등에 많은 시간과 노력을 투자하여 TL은 주 방사선 계측방법으로서 세계의 많은 국가에서 사용되고 있다.

근대 발광계측기술의 발전은 서서히 광자극발광(Optically Stimulated Luminescence, OSL) 및 여러 변형된 발광물질의 개발로 옮겨지고 있다.

OSL은 물질의 연대측정을 위하여 고고학과 지질학에서 환경중 방사선 흡수선량 측정에 오랫동안 사용되어온 일반적인 방법이다. 고전적 측정 방법으로는 일정한 강도의 자극광(Stimulation Light)을 OSL 물질에 주어 자극시간동안 계속해서 발광을 측정하는 것이다. Huntly[2]등이 처음으로 이 방법을 사용하였고 지금은 일반적으로 'CW(Continuous Wave)-OSL'로 불린다.

OSL이 방사선측정분야에 오랜 기간동안 사용하여 왔음에도 불구하고 개인선량 계측기술로서의 OSL은 아직 광범위하게 사용되고 있지 않다. 개인선량 계측분야에 처음으로 OSL 사용이 언급된 것은 약 45년 전 Antonov-Romanovskii[3]에 의해서였는데 그 이후 개인선량 계측에 있어서 OSL의 사용에 대한 보고서는 많이 찾아 볼 수 없다. 이는 방사선에 고 반응도를 가짐과 동시에 높은 광자극 효율, 저 유효원자번호, 상온에서의 안정적인 발광 등을 가지는 좋은 발광물질이 없었기 때문이다.

많은 연구그룹에서 광자극에 의해 심층트

랩에 있는 포획전자를 천층트랩으로 이동시킨 후 상온에서 발광을 측정하여 방사선 계측 수단으로 사용하기위한 노력을 경주하여 왔다. 이러한 OSL 측정방법은 '지연(Delayed) OSL(DOSL)' 이라 불려지며, 여러 물질이 이 방법에 사용되었으나 이 또한 상대적으로 낮은 감도를 나타내고 있다.

유사한 기술로는 냉각광자극발광(COSL)이 있는데 이는 어원상 광전이 열발광(Phototransferred Thermoluminescence, PTTL)으로 정의되어야 더 정확한 표현이 될 것이다. 이는 조사된 발광체를 상온 이하로 냉각시킨 후심층트랩의 전하를 천층트랩으로 전이시키기 위하여 저온에서 발광체를 광자극시킨다. 그런 다음 전하의 전이에 의하여 발생된 저온 TL을 측정하기 위하여 이를 가열한다. 이런 의미에서 이는 OSL과 유사하지만 이 과정에서의 천층트랩은 광자극 온도에서 안정적이므로 발광시키기 위해서는 가열이 필요하므로 PTTL이 더 올바른 표현이 되는 것이다.

다른 OSL 방법은 발광물질에 방사선이 조사되면 안정적인 방사선유발 결함이 발생되고 이 결함의 농도가 흡수선량에 비례하는 것을 이용하는 것이다. 빛으로 이 발광체를 쪼임으로서 기저층으로부터 여기층으로 전자의 여기를 유발시키게 된다. 여기상태에서 기저상태로 되돌아가면서 발광하게 되는데 그 강도는 흡수선량에 비례하게 된다. 이러한 접근은 지금까지 논의한 바와는 상당히 다른데 이는 광자극이 결함의 전리를 유발하는 것이 아니고 단지 여기만을 유발시키는 것이다. 따라서 발광체내의 모든 신호를 없애지 않고 여러 번 판독을 할 수 있는 것이다. 단점은 신호를 0으로 재설정 할 수 없고 감도가 상대적으로 낮다는 것인데 이로 인하여 높은 농도의 방사선 유발 결함(즉 고준위 흡수선량)이 필요하게 된다. 이러한 접근의 예로서 알칼리 할로겐 화합물(Alkali halides) 내의 F_2-center (혹은 M-center)와 유리물질로부터의 radiophotoluminescence(RPL)등이 있다.

방사선 유발 결함을 이용한 이러한 OSL 방법의 새로운 변형으로서 발광물질로 Al_2O_3:C 결정체를 이용한 파동 OSL(POSL)이 최근에 보고 되었다.

조사된 Al_2O_3:C를 파동 광선원에 노출시키면 파동사이에는 방출 발광이 검출되지만 파동을 주는 동안에는 검출되지 않는다. 이러한 검출방법의 장점은 CW-OSL에 비해 광학필터의 사용이 줄어들게 됨과 동시에 DOSL 측정시 주 신호에 방해가 되는 지발발광을 막아주는 역할도 한다는 것이다. 이로 인해 POSL 기술은 DOSL이나 PTTL/COSL과 비교해서 높은 감도와 온도에 덜 민감한 특징을 나타내며 PTTL/COSL과 같은 냉각제의 사용도 필요하지 않게 된다. 또한 감도가 매우 높고 판독이 빠르다는 특징을 가지고 있어 이 방법은 넓은 면적의 검출기를 사용해서 선량분포 측정에도 사용될 수 있다.

일반적으로 OSL 기법은 기존의 TL 기술에 비해 많은 장점을 가지고 있다. 가장 큰 장점은 판독방법이 모두 광학적 방법이기 때문에 시료에 열을 가할 필요가 없다는 것이다. 이로 인하여 신뢰성과 재현성을 가지는 가열 시스템을 갖출 필요가 없을 뿐만 아니라 발광효율의 'Thermal quenching' 효과도 줄일 수 있는 것이다. 광자극을 사용하여 발광에 대한 판독이 thermal quenching이 일어나는 온도 이하에서 수행됨으로서 감도가 획기

적으로 증가할 수 있다. 광학적 특성을 이용하여 판독함으로서 플라스틱 물질(예를 들면 polytetrafluoro-ethylene, PTFE)에 발광체를 입힌 플라스틱 선량계의 사용이 가능할 수 있다. 이러한 방법으로 사용하기에 편리하고 여러 환경에 강한 선량계를 만들 수 있는 것이다. 또한 OSL이 고감도이기 때문에 여러번 판독할 수 있는 매우 큰 장점을 제공하게 되는데 판독하기에 충분한 발광신호를 만들어 내기 위하여 모든 포획전자를 자극하여 방출시킬 필요가 없고 일부만 방출시켜도 판독이 가능하기 때문이다. 이를 이용하여 추후 선량검증 목적으로 두 번, 세 번 반복해서 측정하는 것이 가능하다.

마지막으로 광자극 강도를 조절하여 판독과정을 매우 짧게 할 수 있기 때문에 (< 1 sec) 다량의 선량계를 빠르게 판독할 수 있다.

과거 1950년대나 1960년대 TL 개발에 주력하였을 때와 같이 근래에 OSL에 대한 많은 관심이 모아지고 있다. OSL 원리, 모델링 및 새 실험기술의 개발 등에 대한 기초연구들이 심도 있는 실험을 통하여 차례차례 수행되고 있어 방사선 계측의 모든 분야에 적용되기를 기다리고 있다. 따라서 본 보고에서는 OSL에 대한 기초적인 개념과 원리에 대해 기술하고자 한다.

II. 광자극발광선량계(OSLD) 원리

1. 광자극 발광(OSL)

광자극 발광(OSL)은 결정내의 트랩준위에 포획된 전자가 광자극을 통하여 여기되고 재결합센터의 양공과 재결합하는 과정에서 빛이 방출되는 현상이다. TL이 트랩준위의 전자들을 열로서 자극하는 것으로 시작된다면, OSL은 이들을 빛으로 자극하는 것으로 시작된다고 할 수 있다. 이후의 발광 과정들은 TL의 그것과 같다고 할 수 있다. 그림 1에 OSL을 측정하기 위한 장치의 개략도, 그림 2에 측정된 OSL 곡선을 나타내었다. 트랩내의 전자 점유는 그 물질에 조사된 방사선의 결과이므로, OSL 강도는 흡수선량과 깊이 관계되어 있다.

광자극 발광 선량계(optically stimulated luminescence dosimeter: OSLD)는 OSL 광량이 흡수한 방사선의 선량에 일정영역 범

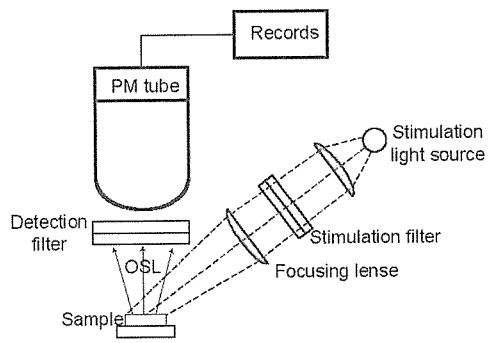


그림 1. OSL 측정 장치의 개략도

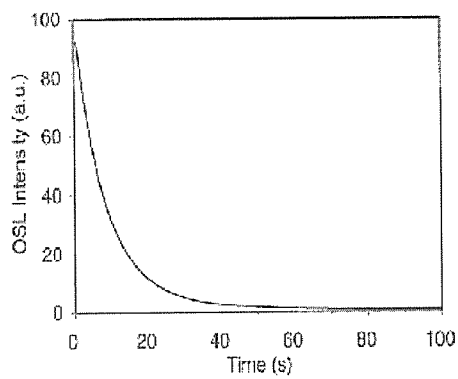


그림 2. 측정된 OSL 곡선

위 내에서 비례하는 특성을 이용한 선량계이다. OSL의 TL에 대한 가장 큰 장점으로, OSL은 상온에서 측정한다는 것이다. 이것은 시료의 열적 변성을 근본적으로 막을 수 있는 것으로 중요한 장점이라 할 수 있다.

2. OSL 모델

OSL은 트랩준위의 전자를 빛으로 여기시켜 재결합준위로 이동시키는 것으로 가정할 수 있으므로, 이의 간단한 모델은 그림 3과 같이 나타낼 수 있다. 즉, 빛은 트랩준위의 전자(전자 농도 n)를 광자극률 f로 자극하여 전도띠로 보내고, 이어 재결합 준위의 정공(정공 농도 m)과 재결합하여 강도 I_{OSL}의 빛을 방출한다.

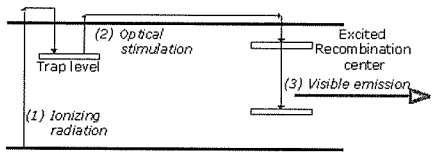


그림 3. OSL을 기술하기 위한 간단한 모델

이러한 일련의 과정들은 다음과 같은 미분방정식으로 표현할 수 있다.

$$\frac{dn_c}{dt} = -\frac{dn}{dt} + \frac{dm}{dt} \qquad (1)$$

보편적으로 전도띠의 전자농도는 트랩의 전자농도에 비하여 훨씬 적고, 또한 이것들의 시간 변화율도 상대적으로 매우 적어, $n_c \ll n$, $|dn_c/dt| \ll |dn/dt|$으로 가정하면 다음 식을 얻을 수 있다.

$$I_{OSL} = -\frac{dm}{dt} = -\frac{dn}{dt} = nf \qquad (2)$$

여기서 f는 광자극률로서 자극강도 Φ는 광이온화 단면적(photoionization cross-section) σ로 나타내어진다 ($f = \Phi\sigma$).

시료에 주어지는 광자극을 펄스(pulse) 모드로 주면서 측정하는 방법을 POSL(pulsed OSL)이라 부르는데, 그림 4에 POSL 테크닉을 도식적으로 간단히 나타내었다.

광자극 펄스와 PMT gate를 연동하여 OSL은 펄스들 사이 시간에 측정하게 된다. 이 방법은 OSL을 측정하는 동안에는 자극광이 없으므로, CW-OSL 등에서 반드시 필요한 PMT 앞의 필터가 필요 없게 되어 OSL 측정 효율이 크게 증가하는 장점을 가진다.

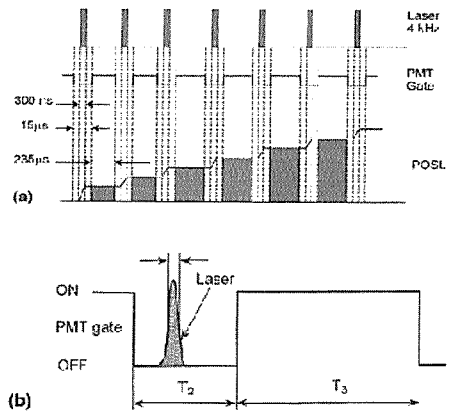


그림 4. (a) POSL 테크닉의 개략도
자극광이 펄스로 입사되는 상황에서 OSL은 펄스들 사이에서 측정된다.
(b) 측정 상황 상세도
시간 T3 구간에서 PMT gate가 열려 OSL 측정이 이루어진다.

3. OSL의 장점

고감도 TL 물질인 LiF:Mg,Cu,P의 경우 방사선에 대한 감도가 TLD-100 (LiF:Mg, Ti)에 비하여 25배 이상이나, 열처리 온도 또는 최대 판독 온도가245℃ 이상이 되면 재사용시 심각한 감도 감쇠가 일어나고 또한 발광곡선의 구조도 변하게 되어 믿을만한 TL 선량계로 사용이 어렵다. 이것은 열에 의한 TL 물질의 변화에 의한 것으로 일반적으로 "Thermal quenching"이라 불린다. 그러나 OSL 측정은 상온에서 이루어지므로 TL 방법에서 일반적인 문제로 겪게 되는 Thermal quenching 현상을 근본적으로 차단할 수 있다. TL 측정에서는 선량계를 한번 판독하면 저장된 모든 정보를 읽게 된다.

즉 동일한 시료에 대하여 재판독이 불가능하다. 그러나 OSL 측정은 동일한 시료에 대하여 반복적인 측정이 가능하여 선량계로 응용할 때 선량의 재평가가 가능하다. TL 측정에서는 트랩에 포획된 거의 모든 전자를 비우게 되어 정보를 읽게 되지만, OSL 측정에서는 트랩에 포획된 전자의 일부만 여기 시킬 수가 있어 정보를 어느 정도 남길 수가 있게 된다.

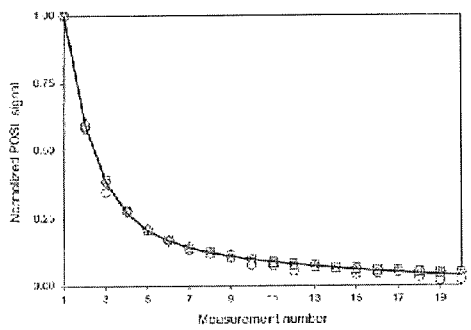


그림 5. 측정 회수에 따른 OSL 강도의 변화

그림 5는 판독 회수에 따른 OSL 신호의 감소 정도를 나타내는 것으로 초기 선량에관계없이 감쇠 패턴이 일정함을 알 수 있다. 특정 OSL 물질에 대하여 이러한 데이터를 확보하면 수회 이상 반복 판독이 가능하게 된다.

OSL은 매우 빠른 시간 이내에 측정이 가능하다. TL 측정의 경우 시료의 온도를 가열하여야 하므로 일회 측정시 최소 수십초 이상이 소요되나 OSL의 경우 광자극의 광원에 따라 나노(nano) 초에서 수초이내에 측정이 가능하다. 표 1에 광자극 광원에 따른 판독시간을 나타내었다.

표 1. 광자극 광원에 따른 판독시간

Stimulation source	Reading time
YaG Laser	ns
Laser Diode	100 ms
LED	1 s
IR Lamp	10 s

TL은 열에 의한 자극으로 트랩준위의 전자를 여기 시키는 방법이므로 300 ℃ 이상에 대응되는 깊은 트랩에 대한 정보는 이용하기가 어렵다. 그러나 OSL은 자극 광원의 파장을 조정하여 이러한 깊은 트랩의 정보도 선량평가에 적용할 수 있는 가능성을 가지고 있다.

OSL 측정에서 자극 광(stimulation light)을 매우 작은 부분(직경 100 micron 이하)으로 집속할 수 있으므로 위치 분해 OSL 신호를 얻을 수 있다.

TL 측정에서는 특정 부분에 열자극을 가한다 하더라도 전도에 의해 주변부가 동시에 열자극을 받게 되므로 분해능이 현저하게 떨어지게 된다. 이러한 테크닉을 사용하여 OSL

은 방사선량 분포를 높은 분해능으로 측정할 수 있다. 이것을 응용하여 선량계 배지가 움직이면서 방사선이 조사되었는지 아니면 고정된 상태에서 방사선이 조사되었는지를 알 수 있다. 선량계 배지를 설계할 때 주기적인 원형 구멍이 뚫린 필터를 OSLD 소자 전면에 장착하고 선량계 배지를 움직이면서 또는 정지된 상태로 방사선에 노출시킨 후 선량분포 이미지를 얻는다면, 움직인 정도에 따라 선량분포 패턴의흐려진 정도가 다르게 나타나므로 이로써 선량계가 방사선에 노출되는 동안 움직이면서 노출되었는지 아니면 정지된 상태로 노출되었는지를 판단할 수 있다. 그 예로 그림 6에 선량분포 패턴을 나타내는 이미지와 이것을 Fourier 변환한 이미지를 나타내었다. 얻어진 이미지의 Fourier 변환을 비교하면 방사선이 조사되는 동안의 움직임에 의해 "흐려진 정도"에 대한 정보를 얻을 수 있다.

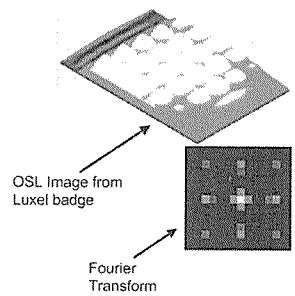


그림 6. Al_2O_3:C OSLD로부터 얻어진 OSL 이미지와 이의 Fourier 변환

III. 결 론

OSL 기법에 대한 최근의 발전은 개인방사선 측정분야 뿐만 아니라 환경방사선 측정, 의료분야 및 연대측정등 방사선계측의 모든 연구 및 응용분야에 활짝 길을 열어놓았다. 이러한 연구 영역 및 응용부분들은 아직 발견되지 않은 신물질의 개발연구와 함께 새로운 세기의 고체 방사선계측 연구분야의 중심역할을 할 것이 틀림없다.

아직 OSL 연구분야에 초보수준인 우리나라에서도 이의 적극적인 연구와 활용을 통하여 한 단계 발전된 방사선계측기술이 탄생될 것을 기대해 본다. KRIA

참고문헌

1. S. W. S. Mckeever, New Millennium Frontiers of Luminescence Dosimetry, Radia. Prot. Dosim. Vol. 100, pp. 27 - 32 (2002).
2. D. J. Huntley, D. L. Godfrey-Smith and M. L. W. Thewalt, Optical Dating of Sediments, Nature 313, pp. 105 - 107 (1985)
3. V. V. Antonov-Romanovskii, I. F. Keirum-Marcus, M. S. Poroshima and Z. A. Trapeznicova, USAEC Report AEC-tr-2435 (pt. 1) (1956)