

2000 추계 학술발표회 논문집  
한국원자력학회

## NTD-Si의 방사능 예측

### Estimation of NTD-Si Radioactivity

전병진, 변수현\*

한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

\*서울대학교  
서울특별시 관악구 신림동 산56-1

#### 요 약

NTD(neutron transmutation doping)로 생산되는 규소 반도체의 방사능을 예측하였다. 규소 단결정에 중성자를 쬐여 생기는 방사성 동위원소 가운데 비교적 긴 반감기를 갖는 Si-32와 P-32의 비방사능을 계산하였으며, Si-32는 P-32에 비하여 무시할 수 있음을 확인하였다. NTD를 적용할 수 있는 최저 비저항을 파악하기 위하여 P-32의 방사능을 비저항과 열중성자속의 함수로 유도하였다. 그 결과 방사성 물질에서 면제될 수 있으려면 약 5  $\Omega$ cm의 비저항이 NTD로 가능한 실질적인 하한이었다.

#### Abstract

Radioactivity of Si semiconductor produced by the neutron transmutation doping(NTD) is estimated. Among the radionuclide produced by the neutron irradiation of silicon, the specific activities of Si-32 and P-32 are calculated, and it is confirmed that the activity of Si-32 can be neglected compared with P-32. So as to find out the minimum resistivity which can be achieved by the NTD, the specific activity of P-32 is deduced as a function of resistivity and thermal neutron flux. As a result, around 5  $\Omega$ cm of resistivity is the actual lower limit of NTD.

#### 1. 서 론

NTD는 고순도의 반도체에 중성자를 쬐여 비저항의 균일도가 매우 높은 n-형 반도체를 얻는 것으로서, 연구용 원자로에서 상업적인 수입을 얻을 수 있는 매우 드문 예 가운데 하나이다. 그런데, 원자로를 이용하여야 하는 제약 때문에 반도체 산업에서는 NTD를 대체할 수 있는 기술을 꾸준히 개발하여 왔다. 그러나 아직도 NTD의 비저항 균질도에 훨씬 미치지 못하여 NTD는 고유의 영역을 가지고 있으며 이 기능은 앞으로도 상당 기간 유지될 것

으로 추정하고 있다.

NTD의 여러 제약 조건 가운데 비저항과 조사량이 서로 반비례하며 조사량이 많으면 잔류 방사능이 높다는 것은 해결하기 어려운 한계이다. 실제 수요는 비저항이 낮은 분야에 많으므로 이는 매우 중요하다. 이 가운데 비저항과 조사량의 반비례 관계는 상황에 따라 어느 정도 극복할 가능성도 있다. NTD용으로 주로 사용되는 Floating Zone Silicon(FZ-Si)은 6"까지 생산되고 있다. 6"가 나오기 시작한지 제법 오래되었으나 아직도 5"가 주를 이루고 있으며 앞으로도 상당 기간 그러하리라고 예측하고 있다. 그 원인은 다른 도핑 방법에서 균일도를 유지하는데 한계가 있기 때문이라고 추정된다. NTD의 경우에도 현재 6"를 수용할 수 있는 원자로는 드물다. 그러나 새로이 설계/건설하고 있는 연구로에서 NTD를 포함시키고 있는 예가 많으며, 한 번의 조사로 많은 양을 도핑하기 위하여 큰 직경을 수용하도록 설계할 것이다. 또한 열중성자속도 높이려고 애쓸 것이다. 하나로에도 두 개의 NTD 조사공이 있으며, 각각 8"와 6"까지 수용할 수 있다. 조사공 내부의 설비를 최적화하면  $7 \times 10^{13} \text{n/cm}^2\text{-s}$ 의 열중성자속을 얻을 수 있는 가능성이 있다. 이러한 경향성은 NTD의 공급을 안정시켜서 NTD-Si의 응용 범위를 넓히고 8" FZ-Si의 생산 동기를 부여할 수도 있다. 반도체 산업에서는 비저항에 따라 비용이 많이 달라지는 것을 꺼리므로 새 시설에서는 큰 단결정에 대하여 상대적으로 비저항이 낮은 도핑을 하고 기존 시설에서는 비저항이 높은 도핑을 하여 NTD 공급의 안정을 꾀할 수 있을 것으로 판단한다.

현재 NTD 규소 반도체(NTD-Si)를 가장 많이 생산하는 일본에서는 20 $\Omega$ cm가 사실상의 NTD 한계이고, 10 $\Omega$ cm를 하는 경우가 있으나 매우 드물다고 한다. 10 $\Omega$ cm를 얻기 위한 조사량(fluence)은 약  $2.5 \times 10^{18} \text{n/cm}^2$ 이므로[1], 평균 열중성자속이  $1 \times 10^{14} \text{n/cm}^2\text{-s}$ 인 NTD 시설에서의 조사 시간은 약 7시간이다. 기존 시설에서 NTD 용량을 추정할 때는 50 또는 60 $\Omega$ cm를 기준으로 하므로 5-6배의 시간이 걸린다. 그러나 단결정을 장전하고 인출하는데 걸리는 시간을 고려하면 4배 이내이다. 기존 시설에서는 길이 50cm 이내, 직경 5" 이내를 도핑할 수 있는 것이 대부분이다. 가장 긴 경우는 DR3의 최근 설비이며 70cm까지 쪼이고 있다[2]. 따라서 새 시설에서는 큰 직경과 보다 긴 단결정을 도핑함으로써 낮은 비저항을 얻기 위하여 조사 시간이 길어지는 것 사이에 어느 정도 균형을 이룰 수 있다.

그러나 잔류 방사능이 높아서 방사성 물질에서 면제될 때까지 매우 긴 냉각 시간이 걸린다면 타당성이 상실된다. 이런 취지에서 NTD-Si의 잔류 방사선이 비저항이나 중성자속에 따라 어떠한 경향성을 나타내는지 분석하였다.

방사성 물질에서 면제될 수 있는 기준은 현실성을 반영하여 점차 완화되어 왔으며, 나라마다 다른 값이 적용되고 있다. NTD에서 대부분을 차지하는 잔류 방사선원은 P-32이다. 영국 Harwell의 1985년 발표 자료에는[1] 당시의 IAEA 기준에 따라 7.4Bq/g을 적용하는 것으로 되어 있으며, 현재의 국내 규정으로는 1,000Bq/g이고, 일본에서는 74Bq/g을 적용하고 있다. 일본은 현재 NTD 웨이퍼를 가장 많이 생산하고 있으므로 일본의 규정에 기준하여 분석하였다.

## 2. NTD-Si의 도핑 원리

NTD-Si는 Si 동위원소 가운데 Si-30이 중성자를 흡수하여 Si-31이 된 뒤 반감기 157.3분으로 붕괴하여 P-31이 되므로 5족 원소를 첨가하는 n-형 도핑이 되는 것을 이용하는 것이다. 중성자를 쪼인 뒤 이틀 정도 냉각시키면 Si-31은 모두 P-31로 붕괴되어 방사능이 충분히 낮다. Si 단결정의 비저항은 dopant의 농도에 반비례하며, NTD에서 dopant의 농도는

Si-30의 중성자 흡수 반응에 거의 비례한다. P-31의 농도(C: atoms/cc)와 비저항( $\rho$ :  $\Omega$ cm)의 상관 관계는 다음과 같다.

$$\rho = \frac{1}{C\mu\epsilon} \quad (1)$$

여기서,  $\mu$  = lattice drift mobility of electrons in the crystal,

$\epsilon$  = electronic charge =  $1.6 \times 10^{-19}$  Coulombs

Harwell에서 조사한 바에 따르면[1]  $\mu$ 는  $1220 \sim 1500$   $\text{cm}^2/\text{s}$  범위의 값을 가지며, 표준적인 값으로  $1350$   $\text{cm}^2/\text{s}$ 를 사용한다. 단결정의 밀도 2.33, 규소의 질량수 28.086, Si-30의 존재비 3.09%를 대입하면 다음과 같은 상관식을 얻을 수 있다.

$$\int_{t=0}^{t_i} \int_{E=0}^{\infty} \Phi(E, t) \sigma_a(E) dE dt = 2.9985 E_6 \left( \frac{1}{\rho^S} - \frac{1}{\rho^S} \right) \quad (2)$$

여기서,  $\rho^S$ 는 조사 전(n-형)의 비저항이고,  $\rho^E$ 는 조사 후의 비저항,  $t_i$ 는 조사 시간이다.

천연 규소는 Si-28(92.23%), Si-29(4.67%), Si-30(3.10%)로 구성되며, 이 중에서 중성자 흡수 후  $\beta$  붕괴를 하는 핵종은 Si-30 뿐이다. 고속 중성자의 경우에는 단순 흡수 반응 이외에 (n,p), (n,np), (n, $\alpha$ ), (n,2p) 반응으로 3족(Al)이나 2족(Mg) 원소도 생성되지만 단면적으로 상대적으로 훨씬 작고, NTD 조사공에서의 고속 중성자속 비율도 매우 작기 때문에 일반적으로 고려하지 않는다. 또한 Si-31이나 P-31이 또 중성자를 흡수하여 없어지는 것도 매우 작기 때문에 비저항 계산에서는 고려하지 않는다. 그러나 이들이 중성자를 흡수하여 생기는 Si-32와 P-32는 반감기가 긴 방사성 물질이기 때문에 NTD-Si를 산업적으로 이용할 때 주요 방사선원이 된다. 따라서 이의 방사능이 충분히 낮아서 방사성 물질에서 면제될 수 있어야 한다. P-32가 다시 중성자를 흡수하여 생성되는 P-33의 방사능은 P-32에 비하여 훨씬 낮을 것임에 틀림없으며, 국내 규정에 의한 면제 기준도 P-32의 100배이다. 따라서 이의 방사능은 무시한다. 이 밖에 단결정에 포함된 불순물의 방사화도 있지만 단결정의 순도가 매우 높기 때문에 일반적으로 고려하지 않는다.

초기 비저항은 수천  $\Omega$ -cm이고, 목표 비저항은 목적에 따라 넓은 분포를 가지나 평균적으로  $50\Omega$ -cm 정도이므로 대체로 비저항과 조사 시간은 반비례한다고 볼 수 있다. 따라서 비저항이 낮을수록 조사량이 많아져 잔류 방사능이 높아진다. NTD는 이러한 제약 때문에 수요가 상대적으로 많은 낮은 비저항에 응용하지 못하고 있다. 현재 NTD-Si는  $20\Omega$ -cm까지 적용하고 그 미만에는 거의 적용하지 않는 것으로 알려져 있다.

### 3. NTD-Si의 방사능 예측

Si-30이 중성자를 흡수하여 감소하는 것과 Si-31의 중성자 흡수 반응을 무시하였을 때 중성자를 조사하는 동안 Si-31의 수밀도( $N_{Si-31}$ ) 변화는 다음과 같다.

$$\frac{dN_{Si-31}}{dt} = R_{Si-30} - N_{Si-31} \lambda_{Si-31} \quad (3)$$

여기서,  $R_{Si-30} = \int_{E=0}^{\infty} \Phi(E) \Sigma_a^{Si-30}(E) dE$ 로서 Si-30의 중성자 흡수 반응률이다. 이것이

시간에 따라 변하지 않는다고 가정하면, 초기에 Si-31은 없으므로 식(3)의 해는 다음과 같다.

$$N_{Si-31}(t) = \frac{R_{Si-30}}{\lambda_{Si-31}} (1 - e^{-\lambda_{Si-31}t}) \quad (4)$$

조사 직후의 방사능은 이 Si-31이 대부분 차지하지만 반감기가 157.3분이므로 이를 정도 냉각시키면 거의 무시할 수 있는 수준으로 낮아진다.

P-31의 경우 중성자 흡수를 무시하면 수밀도 변화는 다음과 같다.

$$\frac{dN_{P-31}}{dt} = N_{Si-31}\lambda_{Si-31} \quad (5)$$

여기에 식(4)를 대입하여 풀면 P-31 수밀도는 다음과 같다.

$$N_{P-31}(t) = N_{P-31}^0 + R_{Si-30} \left[ t - \frac{1}{\lambda_{Si-31}} (1 - e^{-\lambda_{Si-31}t}) \right] \quad (6)$$

P-32의 경우에도 중성자를 흡수하여 P-33으로 변하는 것을 무시할 경우 수밀도 변화는 다음과 같다.

$$\frac{dN_{P-32}}{dt} = r_{P-31}N_{P-31}(t) - N_{P-32}\lambda_{P-32} \quad (7)$$

여기서,  $r_{P-31} = \int_{E=0}^{\infty} \Phi(E)\sigma_a^{P-31}(E)dE$ 로서 하나의 P-31 원자핵이 단위 시간당 중성자를 흡수할 확률이다. 이것이 시간에 따라 변하지 않는다고 가정하고 식 (6)을 대입하여 P-32의 비방사능을 구하면 다음과 같다.

$$N_{P-32}(t_i)\lambda_{P-32} = r_{P-31} \left\{ N_{P-31}^0 (1 - e^{-\lambda_{P-32}t_i}) + R_{Si-30} \left[ t_i - \left( \frac{1}{\lambda_{P-32}} + \frac{1}{\lambda_{Si-31}} \right) (1 - e^{-\lambda_{P-32}t_i}) + \frac{\lambda_{P-32}}{\lambda_{Si-31}(\lambda_{Si-31} - \lambda_{P-32})} (e^{-\lambda_{P-32}t_i} - e^{-\lambda_{Si-31}t_i}) \right] \right\} \quad (8)$$

이 식에서 볼 때 P-32의 비방사능은 열중성자속과 조사 시간에 좌우됨을 알 수 있다. 또한 목표 비저항은 열중성자속과 조사 시간의 곱에 반비례하기 때문에 P-32의 비방사능은 열중성자속과 비저항에 의해 결정된다. 따라서 열중성자속과 비저항에 따라 P-32의 비방사능이 달라지는 경향성을 계산하였다. 이 계산을 하기 위한 반응율을 구할 때 Si-30과 P-31의 흡수 단면적은 참고 문헌 3에 제시된 Maxwell 평균 단면적을 사용하였다. 따라서 이에 대응하는 열중성자속은 Maxwell 분포의 적분값에 해당하는 것이다. Si-30은 약 1 keV, P-31은 약 10 eV까지 거의 1/v 특성을 가지므로 고속 중성자의 비율이 매우 낮은 NTD 조사공에서는 두 핵종의 반응율에 일관성이 있다.

먼저 중성자속 변화가 P-32 비방사능에 미치는 영향을 살펴보기 위하여 몇가지 비저항에 대하여 중성자속에 따라 비방사능을 계산하였으며 그 결과는 그림 1과 같다. 중성자속이 정해지면 (2) 식으로부터 조사 시간이 결정되고, 중성자속 및 조사 시간을 (8) 식에 대입하면 P-32 비방사능을 구할 수 있다. 조사 시간을 구할 때 초기 비저항은 1000 Ωcm로 가정하였다. 그림 1에서 볼 때 중성자속이 증가할수록 대체로 비방사능이 감소하는 경향을 보이고 있으므로 비방사능을 줄이기 위해서는 가급적 중성자속이 높은 것이 유리하다. 5 Ωcm인 경우에는 중성자속이 낮을 때 오히려 비방사능이 낮아지는데, 이는 조사 시간이 너무 길어

서 P-32의 붕괴 효과가 더욱 크게 나타나기 때문이다. 사실상 이 영역에서는 5 Ωcm를 얻는 조사가 불가능하다.

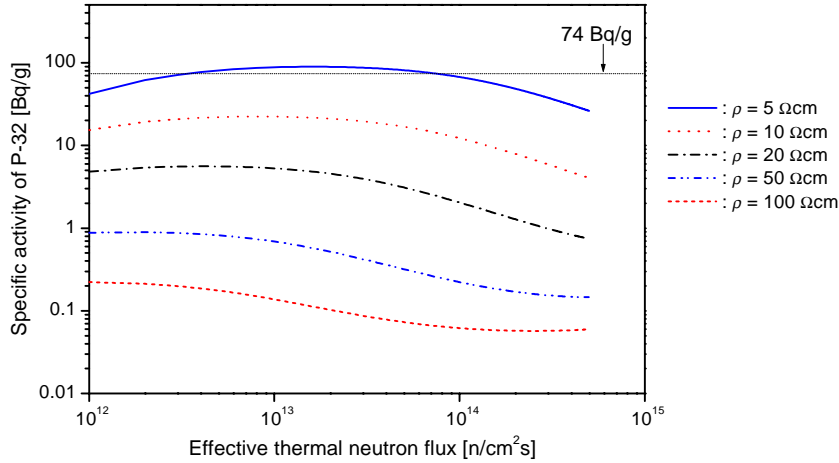


그림 1. 유효 중성자속 변화에 따른 NTD 조사후의 P-32 비방사능.

열중성자속이 고정된 상태에서 비저항에 따라 P-32 비방사능을 계산한 결과는 그림 2와 같다. 이 계산은 열중성자속이  $7 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{-s}$ 인 경우에 대한 것이다. 그림에서 볼 때 비저항이 10 Ωcm 미만인 영역에서 P-32 비방사능이 급격하게 변하고 있으며 일본의 규제 기준치 74 Bq/g에 대응되는 비저항 값은 약 5 Ωcm이다. 이는 조사 직후의 비방사능이며, 단결정을 꺼내어 취급할 수 있으려면 Si-31의 방사능이 충분히 낮아질 때까지 약 2일을 냉각시켜야 한다. 이후 세척, 목표 비저항 달성 여부를 확인하는 품질 검사, 관리 구역 바깥으로 반출할 수 있는지의 여부를 확인하는 표면 오염 측정, 포장 등을 고려하면 약 5일이 걸린다고 가정하였을 때 조사 완료 시점에서 허용되는 비방사능은 94.36 Bq/g이다. 그러나 그림 2에서 보듯이 비저항을 낮추는데는 거의 도움이 되지 않는다. 또한 그림 1에서 보듯이 중성자속이  $1 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2\text{-s}$  이상인 경우에는 비방사능이 더 낮으나 비저항의 하한을 크게 낮추지는 못한다. P-32의 반감기가 14.262일이므로 반출 전에 냉각시켜 비방사능을 낮추려고 한다면 매우 오랜 기간이 필요하다. 따라서 약 5 Ωcm가 NTD로 가능한 비저항의 하한이라고 볼 수 있다.

이상의 계산은 한 번의 쪼임으로 끝내는 경우이다. NTD 방법으로는 중성자속이 거의 직선적으로 변하는 곳에서 절반을 쪼인 뒤 뒤집어서 나머지 절반을 쪼이는 방법도 있으며, 이를 도치법이라 한다. 이 때 뒤집어 넣는 작업을 하기 위하여 Si-31이 충분히 붕괴될 때까지 2일간 냉각시킨 뒤 다시 나머지 절반을 쪼인다면 모든 Si-31이 P-31로 붕괴된 뒤에 다시 쪼이므로 P-32의 생성량이 더 많다. 이를 확인하기 위하여 앞서와 마찬가지로 열중성자속이  $7 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{-s}$ 인 경우에 대하여 계산하였다. 비저항 50 Ωcm를 얻는 경우 한 번에 조사시킬 때는 0.27 Bq/g, 도치법에서는 0.60 Bq/g으로서 약 2 배가 된다. 그러나 비저항 10 Ωcm를 얻는 경우에는 한 번에 조사시킬 때 75.3 Bq/g, 도치법에서는 78.3 Bq/g으로서 거의 일치한다. 따라서 P-32의 비방사능이 규제치에 접근하는 영역에서는 도치법과 한 번 조사시키는 경우 사이에 비방사능의 차이를 무시할 수 있다.

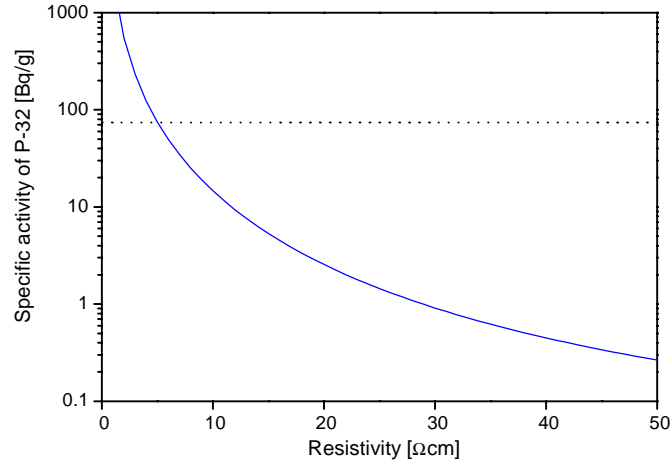


그림 2. 비저항 목표치 변화에 따른 NTD 조사후 P-32 비방사능.

Si-32는 반감기가 105년으로 매우 길기 때문에 P-32의 방사능에 비하여 매우 작을 것으로 예상되나 이를 확인하여 보았다. Si-32의 비방사능은 다음 식으로 표시된다.

$$N_{Si-32}(t_i)\lambda_{Si-32} = \frac{\lambda_{Si-32}}{\lambda_{Si-31}} r_{Si-31} R_{Si-30} \left[ t_i - \frac{1}{\lambda_{Si-31}} (1 - e^{-\lambda_{Si-31} t_i}) \right] \quad (9)$$

Si-31의 열중성자 흡수 단면적은 참고 문헌 4에  $0.18 \pm 0.04b$ 로 되어 있다. P-32의 비방사능이 74 Bq/g이고 비저항이 5 Ωcm인 경우에 Si-32의 비방사능은 0.012 Bq/g이다. 따라서 Si-32의 비방사능은 무시할 수 있는 것이 확인되었다.

#### 4. 결 론

NTD 규소 반도체를 원자로에서 반출할 때의 잔류 방사성 동위원소는 P-32이며, 방사성 물질에서 면제되는지의 여부는 비저항에 의해 결정된다. 열중성자속이 높을수록 완만하게 감소하나 방사성 물질에서 면제되는 기준치에 접근할 때는 중성자속에 따른 경향성을 거의 무시할 수 있다. 비저항이 10 Ωcm 미만인 영역에서 급격하게 변화하였으며, P-32 규제 기준치 74 Bq/g에 대응되는 비저항 한계는 약 5 Ωcm이다. 비방사능의 면제 기준이 상당히 완화되더라도 비저항의 한계를 크게 낮추지는 못한다. 현재의 NTD에서는 20 Ωcm가 실질적인 하한으로 간주되고 있고 10 Ωcm까지 내려가는 경우는 매우 드물다. 따라서 현재 하고 있는 NTD에서는 방사능의 문제가 없음이 확실하며, NTD 시설의 중성자속이 높아서 낮은 비저항의 도핑을 하는 경우에 5 Ωcm까지는 가능하다.

#### 감사의 글

본 논문은 과학기술부의 연구비 지원에 따라 수행된 결과이다. Si-30과 Si-31의 중성자 단면적 특성 등을 얻는데 도움을 준 장종화, 길충섭 두 분께 감사드린다.

#### 참고 문헌

1. N. W. Crick, Silicon irradiation at the Harwell Laboratory of the United Kingdom Atomic Energy Authority, Silicon Transmutation Doping Techniques and Practices,

- IAEA-TECDOC-456, Proc. Consultant Meeting Organized by the IAEA and held in Otwock-Swierk, Poland, 20-22 Nov. 1985, 65-82.
2. K. H. Nielsen, New horizontal facility for neutron transmutation doping of silicon, KAERI/GP-128/98, Proc. 6th Meet. IGORR, April 29-May 1, 1998, Taejon, Korea, 151-164.
  3. 장중화, 핵 자료 표, KAERI/GP-106/95, 한국원자력연구소, 1995. 7.
  4. S.F. Mughaghab, M. Diadeaname and N.E. Holden, Neutron cross sections, Vol. 1, Neutron resonance parameters and thermal cross sections, National Nuclear Data Center, BNL, Academic Press, 1981.