



저작자표시-비영리-변경금지 2.0 대한민국

이용자는 아래의 조건을 따르는 경우에 한하여 자유롭게

- 이 저작물을 복제, 배포, 전송, 전시, 공연 및 방송할 수 있습니다.

다음과 같은 조건을 따라야 합니다:



저작자표시. 귀하는 원저작자를 표시하여야 합니다.



비영리. 귀하는 이 저작물을 영리 목적으로 이용할 수 없습니다.



변경금지. 귀하는 이 저작물을 개작, 변형 또는 가공할 수 없습니다.

- 귀하는, 이 저작물의 재이용이나 배포의 경우, 이 저작물에 적용된 이용허락조건을 명확하게 나타내어야 합니다.
- 저작권자로부터 별도의 허가를 받으면 이러한 조건들은 적용되지 않습니다.

저작권법에 따른 이용자의 권리는 위의 내용에 의하여 영향을 받지 않습니다.

이것은 [이용허락규약\(Legal Code\)](#)을 이해하기 쉽게 요약한 것입니다.

[Disclaimer](#)

공학석사 학위논문

중성자 발생장치를 위한
중수소 디스크형 티타늄 타겟
제조 과정 연구

A Study on the Fabrication Procedure for a
Disk-Type Deuterated Titanium Target for a
Neutron Generator

2023년 8월

서울대학교 대학원
에너지시스템공학부 원자핵공학전공
정 원 식

중성자 발생장치를 위한
중수소 디스크형 티타늄 타겟
제조 과정 연구

A Study on the Fabrication Procedure for a
Disk-Type Deuterated Titanium Target for a
Neutron Generator

지도 교수 김 기 현

이 논문을 공학석사 학위논문으로 제출함
2023년 8월

서울대학교 대학원
에너지시스템공학부 원자핵공학전공
정 원 식

정원식의 공학석사 학위논문을 인준함
2023년 8월

위 원 장	정	경	재	(인)
부위원장	김	기	현	(인)
위 원	손	순	환	(인)

초 록

본 논문은 중성자 발생장치 디스크 타입 타겟의 수명을 높이기 위한 높은 D/Ti 값을 갖는 타겟을 제작하기 위해 박막 증착과 중수소 흡장 레시피를 제시했다. 중성자 타겟은 수소 저장층인 티타늄 박막과 열제거를 위한 구리 기저물질로 구성된다. Geant 4 시뮬레이션을 이용하여 최고의 중성자 발생 효율을 보이는 중수소 이온빔의 에너지와 티타늄 박막 두께 최적화를 수행하였다. 스퍼터링을 이용하여 DC power 그리고 기관의 온도에 따라 티타늄 박막을 증착하여 조건에 따라 표면 평가와 박막 저항값 평가를 통해 박막의 품질을 평가하였다. 수소 흡장 조건 최적화는 다른 두께의 티타늄 호일을 이용하여 수소 흡장 온도와 시간에 따른 H/Ti 결과 값을 비교하여 수행되었다. 수소(또는 중수소) 흡장률은 박막 표면 그리고 박막의 증착 조건에 따라 결정된다. 각 조건별로 증착된 박막에 대해 최적화된 수소 흡장 조건을 적용하여 박막의 품질에 따른 수소 흡장결과들을 비교하였고 가장 높은 수소 흡장률을 갖는 박막 증착 조건을 확인했다. 선정된 레시피들을 적용하여 최종적으로 중수소 흡장을 진행하여 높은 중수소 흡장 결과를 보였다. 여기서 높은 박막의 품질은 높은 중수소 흡장률을 보이는 결과를 통해 박막의 품질 향상은 더 높은 중수소 흡장률을 갖는 타겟을 제작할 수 있음을 실험적으로 확인하였다.

주요어 : 중성자 발생장치 타겟
티타늄 박막
수소 흡장률
중수소 흡장률
박막 증착
수소 흡장 조건

학 번 : 2021-20461

목 차

제 1 장 서 론	1
제 1 절 연구의 배경	1
1. 중성자 발생장치	1
2. 중성자 발생장치 타겟	4
2.1. 박막 두께에 대한 선행연구	5
2.2. 수소 흡장 물질 및 기저물질 선정	7
2.3. 수소 흡장 조건에 따른 흡장률 변화	8
2.4. 박막의 제작과 수소 흡장률의 연관성	11
제 2 장 중성자 타겟 모델링 및 전산모사	13
제 1 절 전산모사 모델링	13
제 2 절 Genat4 전산모사 결과	15
1. 티타늄 박막 두께 최적화	15
2. 구리 기저물질 두께 최적화	17
3. 삼중수소 흡장률에 따른 티타늄 밀도 수정 및 중성자 수율 결과	18
제 3 장 티타늄 박막 증착	25
제 1 절 스퍼터 설비	25
제 2 절 박막 증착 실험 방법	25
1. 구리 기저물질 제작 및 연마	26
2. 접촉식 단자 측정기	27
3. 전계방사 주사전자현미경	28
4. Four-point probe 측정	29
제 3 절 실험 결과	29
1. 연마에 따른 구리 기저물질, 티타늄 박막 표면 평가	29
2. 박막 증착 조건에 따른 표면 관찰 및 저항 평가	31
2.1. 전계방사 주사전자 현미경을 이용한 표면 관찰	31
2.2. Four-point probe를 이용한 저항 측정	32
제 4 장 수소 및 중수소 흡장	35
제 1 절 수소 흡장 설비	35
제 2 절 수소 및 중수소 흡장 실험 방법	36
1. 티타늄 호일 수소 흡장	36
2. 티타늄 박막 수소 및 중수소 흡장	37
3. ONH-2000 ELTRA	37
제 3 절 실험 결과	38
1. 티타늄 호일 수소 흡장 결과	38
2. 티타늄 박막 수소 흡장 결과	42

3. 티타늄 박막 중수소 흡장 결과.....	44
제 5 장 결론 및 제언.....	46
참고문헌.....	48
Abstract	51

표 목차

표 1. 상용 밀봉관 형태 D-T 중성자 발생장치.....	3
표 2. 삼중수소가 흡장된 Sc, Ti, Y, Zr, Gd, Er, Hf, 그리고 Ta 박막의 D-T 반응으로 인한 중성자 발생률 결과.....	8
표 3. 티타늄 중수소화 실험 결과 사례	10
표 4. 흡장률별 타겟의 밀도.....	20
표 5. 흡장률별 실리콘 검출기에 도달한 알파 입자의 효율.....	23
표 6. 흡장률별 실리콘 검출기에 도달한 중성자의 효율.....	24
표 7. 티타늄 박막 증착 조건에 따른 SiO ₂ 샘플들에 대한 표면 저항값 10회 반복 측정 결과.....	34
표 8. 400 °C, 1 기압 조건에서 5시간 수소 증착 실험 결과.....	38
표 9. 400 °C, 1 기압 조건에서 24시간 수소 증착 실험 결과	39
표 10. 450 °C, 1 기압 조건에서 5시간 수소 증착 실험 결과	39
표 11. 450 °C, 1 기압 조건에서 24시간 수소 증착 실험 결과	39
표 12. 새로운 흡장설비를 이용한 티타늄 호일 수소 흡장 조건	40
표 13. 티타늄 타겟의 구리 부분 수소 흡장량.....	42
표 14. 티타늄 타겟의 구리와 티타늄 박막의 수소 흡장량.....	43
표 15. 티타늄 박막 증착 조건에 따른 수소 흡장 결과.....	44
표 16. 최적 박막 증착 조건에서의 중수소 흡장 결과.....	45

그림 목차

그림 1. 중성자 발생 위치와 타겟에 끼워지는 중수소의 위치.....	6
그림 2. 티타늄 파우더 수소화 형성 과정 - 실선:D/Ti(점선-중수소화 속도) (PD2=100 hPa, T=693 K)	9
그림 3. 기관의 온도에 E-gun으로 증착되는 티타늄 박막의 SEM 및 AFM 현미경 사진 비교. (a) 473 K (b) 573 K (c) 673 K	11
그림 4. GEANT4 전산모사코드로 구현한 중성자 발생량을 모사하기위한 도식도.....	14
그림 5. ENDF/B-VI D-T의 입사되는 중수소 에너지에 따른 D-T 반응 단면적.....	15
그림 6. 티타늄 박막 두께별 중수소 이온빔 에너지에 따른 D-T 반응 효율	16
그림 7. 중수소 이온빔 에너지에 따른 D-T 반응 위치	16
그림 8. 구리 기저물질의 두께별 입사된 중수소 빔의 에너지에 따른 입사된 중수소 개수 당 실리콘 검출기에 도달한 (좌) 중성자 입자와 (우) 알파 입자 개수	18
그림 9. 흡장률에 따른 입사된 중수소 이온빔 에너지별 D-T 반응 효율	21
그림 10. 5 μm 티타늄 박막에 대한 중수소 이온빔 에너지별 D-T 반응 효율.....	22
그림 11. 중수소 이온빔 에너지에 따른 D-T 반응 위치	22
그림 12. 티타늄 박막으로부터 발생하는 각도별 중성자 방출 분포	24
그림 13. DC 마그네트론 스퍼터링 시스템 도식화	25

그림 14. 박막 증착 과정과 평가 과정 도식화	26
그림 15. 티타늄 박막 표면 광학 현미경 이미지: 구리 기판 전처리 이전(좌) 전처리 이후(우)	30
그림 16. 티타늄 박막의 전처리 이전(파란점), 전처리 이후 (검은점) 높이 단차	30
그림 17. 박막 증착 조건에 따른 FE-SEM 관찰 (a) 100 W, 100 °C (b) 100 W, 300 °C (c) 50 W, 300 °C (d) 200 W, 50 °C (e) 200 W, 50 °C (f) 100 W, 50 °C	32
그림 18. SiO ₂ 웨이퍼의 인가 전류에 따른 저항값 측정	33
그림 19. 티타늄 박막 증착 조건에 따른 SiO ₂ 샘플들에 대한 표면 저항값 (좌) 증착 온도 변화 (우) 스퍼터링 파워 변화	34
그림 20. 수소 및 중수소 흡장 설비 도식화	35
그림 21. 수소 반응용기 온도와 수소 장입 시간에 따른 200 μm 티타늄 호일 H/Ti 값	41
그림 22. 티타늄 호일 두께에 따른 H/Ti 값	41
그림 23. (좌) 200 μm 티타늄 호일의 시간에 따른 수소 반응용기 압력 변화 (우) 24시간 수소 노출 후 티타늄 호일 FE-SEM 관찰	42
그림 24. 증착 조건 변화에 따른 수소 흡장 시 타겟 표면: (a) 50 W, 300 °C (b) 300 W, 200 °C (c) 200 W, 300 °C (d) 100 W, 300 °C	43

제 1 장 서 론

제 1 절 연구의 배경

1. 중성자 발생장치

중성자 발생장치는 크게 4가지의 종류가 있으며 가속기 기반 중성자 발생장치, 소형 밀봉형 중성자 발생장치, 원자로, 방사성동위원소가 있다. 본 연구에서는 D-D 핵융합 반응을 이용한 가속기 기반과 소형 밀봉형 중성자 발생장치에 이용되는 타겟에 대한 연구를 진행하였다. D-D, D-T 핵융합 반응을 이용한 중성자원은 낮은 이온빔 에너지로 중성자를 생성하며, 반응 단면적이 크기 때문에 소형 중성자원으로 적합하다. 특히 이러한 중성자원은 동위원소 중성자원이 비해 중성자 발생을 효과적으로 조절할 수 있으며, 때에 따라 펄스 형태의 중성자 빔을 생성할 수 있어 관리와 활용면에서 큰 이점이 있다.

D-D, D-T 반응을 이용한 중성자 발생기술은 1930년대 Penning 등에 의해 개발되었다 [1]. 1970년대에는 가속기 규모의 대형 장치들이 등장하며 10^{12} n/s 이상의 높은 중성자 발생률을 갖는 장치에 대한 연구가 집중적으로 이루어졌다. 그리고 높은 중성자 발생률과 동시에 중성자 발생 타겟의 수명에 대한 문제가 지적되기 시작하며 수명 문제를 해결하기 위해 회전표적 [2-4], 기체표적 [5] 등 여러 방안들에 대한 연구 1970년대부터 시작되어 현재까지 이루지고 있다. 대표적으로 1980년대 Lawrence Livermore 연구소(LLNL)에서 개발한 RTNS-II 장치는 130 mA, 380 keV 중수소 이온빔과 5000 rpm 속도로 회전하는 타겟을 이용하여 3×10^{14} n/s의 세기를 갖는 D-T 중성자를 발생시키며, 타겟의 수명은 100 시간인 장치를 개발하였다 [6]. 여기서 타겟의 수명은 중성자 발생률이 초기 발생률의 절반 이하로 떨어지는데 걸리는 시간으로 정의된다.

세계적으로 보안검색, 핵물질 감시, BNCT(Boron Neutron Capture Therapy) 등의 중성자 응용분야에 대한 관심이 지속적으로 높아지면서 D-D, D-T 반응을 이용한 밀봉관 형태의 소형 중성자 발생장치에 대한 수요가 꾸준히 증가하고있다. 밀봉관 형태의 소형 중성자 발생장치가 사용제품으로 시장에 나와있으며, 표 1과 같이 상용의 중성자 발생장치로 얻을 수 있는 중성자 발생률은 D-T 반응으로 대략 10^8-10^9 n/s가 일반적이고. 일부 장치에서는 $10^{10}-10^{11}$ n/s 까지도 얻을 수 있으나, 타겟의 수명은 가장 긴 경우가 약 2000 시간, 수율이 높을수록 타겟의 수명은 짧아지며 수백 시간 정도까지 짧아진다.

표 1. 상용 밀봉관 형태 D-T 중성자 발생장치

Model	Neutron [n/s]	Pulse operation parameter		
		Beam Current	Frequency	Maximum Accelerator Voltage
MP 320 ^{a)}	1×10^8	60 μ A	2.5–20 kHz	95 kV
MINIGEN ^{a)}	3×10^8	20-70 μ A	0.5–20 kHz	60-130 kV
D711 ^{a)}	2×10^8	3 mA	Continuous	90 kV
P385 ^{a)}	3×10^8	70 μ A	2.5–20 kHz	130 kV
Genie 16 ^{b)}	1×10^8	40 μ A	~ 5 kHz	90 kV
Genie 35 ^{b)}	1×10^8	2 mA	~ 5 kHz	160 kV
DT109 API ^{c)}	1×10^8	500 μ A	-	100 kV
DT108 API ^{c)}	1×10^8	500 μ A	Continuous	120 kV
DT110 GS ^{c)}	1×10^8	2 mA	0–10 kHz	130 kV
ING-013 ^{d)}	5×10^8	2.27 A	1–50 Hz	130 kV
ING-03 ^{d)}	3×10^8	0.45 A	1–30 Hz	130 kV
ING-031 ^{d)}	2×10^8	3.18 A	1–100 Hz	130 kV

a) Products of Thermo Fisher Scientific, Inc.

b) Products of EADS SODERN.

c) Products of Del Mar Ventures.

국내에서도 한국원자력연구원에 의해 1960년대부터 중성자 발생 기술에 대한 연구가 시작되었으며 [7-9], 1980년대에는 10^{12} n/s의 D-T 중성자 발생장치 개발을 목표로 연구가 시작되었으나 산업적 이용이 활발한 이온주입기 개발로 연구가 전환되었다 [10]. 2000년대에는 서울대학교에서 헬리콘 이온원과 티타늄 drive-in 표적을 이용한 D-D 중성자 발생장치를 개발하였으며, 최대 1.9×10^8 n/s의 중성자 수율을 얻을 수 있었다 [11]. 하지만, 해당 장치 표적의 성능을 표시하는 지표인 D/Ti 값은 이론적으로 최대 값인 2에 비해 낮은 약 0.2로 표적 내까지 충분히 분산되지 못하여 표면에서만 D-D 반응이 이루지며, 냉각 또한 충분히 이루어지지 못해 표면이 약하게 부풀어 오르는 등 손상이 관찰되어 짧은 수명이 문제점으로 지적되었다. 또한 2013년도부터 한국원자력연구원에서 14 MeV 중성자 발생장치에 대한 연구를 진행하고 있으며 고체 타겟형, 플라즈마 타겟형 중성자 발생장치 개발에 더불어 소형, 대형 장치 개발에 대한 연구가 진행 중이다 [12].

본 연구는 D-D 반응을 이용하는 중성자 발생장치의 필수 요소 중 하나인 중수소 흡장 타겟의 수명을 증가시키기 위해 타겟의 중수소 흡장률을 높이는 연구를 목적으로 하였다. 얇은 수소 (또는 중수소) 흡장 티타늄 박막의 수소 (또는 중수소) 흡장 능력을 평가하기 위해 H/Ti (또는 D/Ti) 값을 지표로 삼았으며, 박막 증착 과정과 수소 흡장 과정에 따라 박막의 흡장 정도를 평가하여 최종적으로 높은 D/Ti 값을 갖는 박막 증착 및 수소 흡장 레시피를 제안하였다.

2. 중성자 발생장치 타겟

현재 국내에서는 삼중수소화 타겟 개발 기술이 부족하여, 해외로부터 수입에 의존하고 있다. 삼중수소 타겟 제작 기술을 개발하면 해외 의존도를 감소시킬 수 있으며 또한 국내 월성 TRF에서 생산된 삼중수소를 자원화 할 수 있어 효율적이다. 하지만, 본 연구에서는 삼중수소를 직접적으로 이용하기에는 한계가 있기 때문에, 화학적

특성이 동일한 수소와 중수소를 이용하여 기존 삼중수소화 타겟의 단점을 완화하고, 장수명, 고효율의 타겟 제조 공정을 확보하는 것을 목적으로 한다.

삼중수소 타겟은 삼중수소가 흡장된 타겟에 중수소 이온빔을 조사하여 중성자를 생성하는 매개체이다. 이러한 타겟을 사용할 경우, 시간이 지남에 따라 타겟 내에서 ${}^3\text{H}({}^2\text{H},n)\alpha$ 반응으로 삼중수소 수량이 감소하여 중성자 발생량이 줄어들게 된다. 따라서, 삼중수소 타겟의 안전성을 유지하고 수명을 연장하기 위해서는 교환 빈도를 최소화하면서도 높은 중성자 발생량을 유지할 수 있는 최적화된 타겟 제작 방법의 연구 및 개발이 필요하다. 일반적으로 중성자 타겟은 가벼우면서 단단한 조밀 육방 격자구조를 가진 티타늄과 같은 전이금속에 중수소 또는 삼중수소를 흡장하여 제작된다. 따라서, 장시간 동안 중성자 발생용 타겟을 사용하기 위해서는 중수소 또는 삼중수소를 저장하는 물질의 특성에 대한 연구를 통해 타겟 내의 중수소 또는 삼중수소 손실을 최소화하는 방법을 연구해야 한다. 타겟 내의 삼중수소가 많이 흡장되어 있을수록 중수소와 반응하는 삼중수소의 양이 많기 때문에 타겟으로 중성자 발생장치의 수명이 일반적으로 증가한다. 절대적인 삼중수소의 양만 증가시키기 위해 수소흡장 타겟의 부피를 증가시키는 방법은 타겟의 수명을 증가시킬 수는 있지만, 대부분의 중성자는 표면에서 발생하기 때문에 D-T 핵융합 반응으로 표면의 삼중수소가 소모 시 중성자 수율은 감소하게 된다. 따라서, 본 연구에서는 타겟 내 수소가 얼마만큼의 비율로 흡장되어 있는 지 확인할 수 있는 H/Ti 값을 고효율 장수명 타겟의 평가값으로 나타낸다.

박막 증착부터 수소 장입에 이르기까지 삼중수소화 타겟 제조 과정에 기여하는 여러 요인들을 고려하여 다양한 타겟을 생성 및 테스트함으로써 최적의 삼중수소 타겟 제조 기술을 확보할 수 있다.

2.1 박막 두께에 대한 선행연구

미국 Sandia 이온빔 실험실에서 연구된 14 MeV D-T 중성자 중성자 발생용 타겟은 5 μm 두께와 지름 2 cm의 티타늄 박막을 구리

기저물질 위에 증착하여 삼중수소가 흡장된 $\text{TiTi}_{1.8}$ 타겟을 이용하여 박막의 수명을 연장하기 위한 연구를 진행했다 [13]. 그림 1은 135 keV 중수소 이온빔을 입사했을 때, SRIM code를 사용해서 얻은 중성자 발생 전산모사 결과이다.

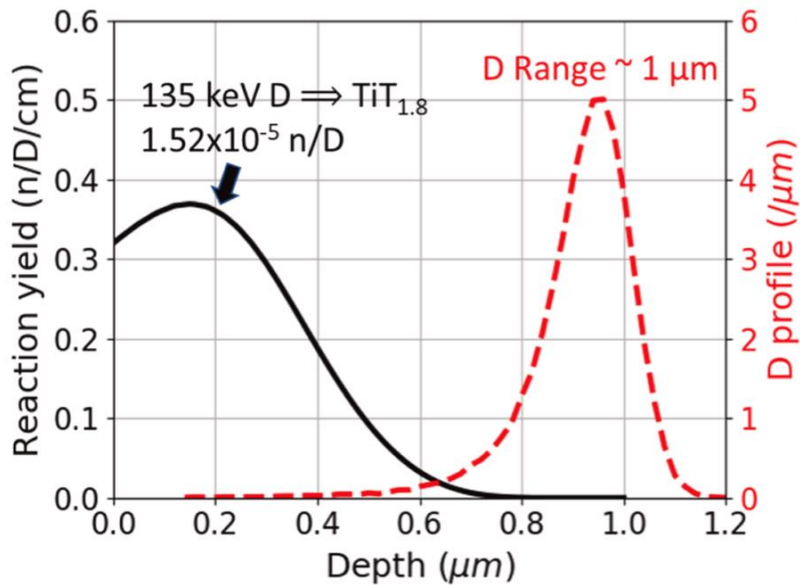


그림 1. 중성자 발생 위치와 타겟에 끼워지는 중수소의 위치 [13]

5 μm 두께의 타겟에서 대부분의 D-T 반응은 0.5 μm 발생하며, 반응하지 못한 중수소 입자는 대부분 1 μm 내에 끼워진다. 결과적으로 티타늄에 증착된 대략 10% 미만의 삼중수소만 중성자를 발생하는데 사용되기 때문에 90% 이상의 삼중수소가 낭비되고 있다. 여러 종류의 0.4 μm $\text{TiTi}_{1.8}$ 박막과 5.0 μm $\text{TiTi}_{1.8}$ 박막으로 제작한 타겟의 중성자 발생량을 측정된 결과 각각 $2.5 \times 10^{15} \text{ n/s}$, $2.2 \times 10^{15} \text{ n/s}$ 로 측정되었다. 따라서, 삼중수소를 적게 사용해도 0.4 μm $\text{TiTi}_{1.8}$ 박막을 사용해도 더 많은 중성자를 방출하는 타겟을 제작할 수 있다.

또한, 끼워진 중수소 입자가 타겟 내부에서 확산 이동하면서 삼중수소와 교체될 확률이 높아지기 때문에 삼중수소가 확산 방출될 확률이 높아진다. 따라서, 중성자 발생 타겟의 수명은 예상보다

짧아지는 원인이 된다. 이러한 문제점을 해결하기 위해 5 μm 두께의 타겟의 온도를 증가시켜 중수소와 삼중수소의 확산율을 증가시킨 결과 타겟의 온도를 350 $^{\circ}\text{C}$ 이상에서 동작할 때는 타겟내 삼중수소가 방출하고, 100 $^{\circ}\text{C}$ 미만 일 경우에는 타겟의 0.5 μm 내에서만 중수소와 상호작용 하고 1 μm 내에 끼워진 중수소에 의해서 삼중수소는 확산 방출된다는 사실을 밝혔다. 타겟의 온도가 150 $^{\circ}\text{C}$ 로 유지 될 때, 중수소와 삼중수소가 타겟 전체 영역에서 상호작용한다.

2.2 수소 흡장 물질 및 기저물질 선정

D. J. Malbrough가 발표한 중성자 발생장치에 이용되는 금속들에 대한 중성자 수율 실험 결과를 제시했다 [14]. 아래 표 2와 같이 중수소 이온빔 80-200 keV 영역대에서 티타늄이 가장 높은 중성자 수율을 보였다. 따라서, 수소 흡장 물질로서는 우선적으로 티타늄을 고려하였다.

기저물질은 중수소 이온빔 조사로 인한 타겟의 온도 증가로 흡장된 삼중수소가 빠져나가는 것을 방지하기 위해 높은 열전도성이 필수적이다. 또한, 기저물질 내에서 중수소의 확산속도가 빠르고 용해도가 낮아야 중수소가 기저물질 내에 축적되지 않고 D-D 반응이 아닌 D-T 반응을 일으킬 수 있으며, 중수소의 가스 버블로 인한 타겟 손상을 방지한다. 그리고 삼중수소에 대한 용해도가 낮아야 한다. 삼중수소에 대한 용해도가 높을 시 고온에서 삼중수소가 과잉 흡장 되어 추후 해당 물질을 다루는데 문제가 발생하기 때문이다. 이러한 조건들을 고려했을 기저물질의 재료는 구리로 선정하였다.

표 2. 삼중수소가 흡장된 Sc, Ti, Y, Zr, Gd, Er, Hf, 그리고 Ta 박막의 D-T 반응으로 인한 중성자 발생률 결과 [14]

Energy (keV)	Neutron Yields (10 ⁶ neutrons/microcoulomb)							
	ScT _x x=1.97	TiT _x x=1.99	YT _x x=1.90	ZrT _x x=1.92	GdT _x x=1.95	ErT _x x=1.96	HfT _x x=2.00	TaT _x x=0.77
200	186	191	151	156	144	164	170	82.0
190	180	185	145	152	139	155	164	78.5
180	170	175	138	143	134	152	158	76.2
170	160	165	132	135	121	137	145	71.6
160	148	155	119	129	119	129	133	66.5
150	137	139	112	117	109	119	130	62.2
140	126	130	101	107	95.5	111	117	56.7
130	111	120	91.8	93.2	85.1	96.4	106	50.6
120	96.3	102	78.9	81.6	76.2	84.0	91.8	44.3
110	77.8	83.4	67.2	68.4	62.7	69.2	76.7	37.7
100	62.8	69.2	54.2	55.5	50.3	55.3	61.4	30.1
90	47.8	51.2	43.2	42.7	39.4	42.6	46.9	23.9
80	33.8	37.4	29.2	29.7	27.2	30.0	32.2	16.6

2.3 수소 흡장 조건에 따른 흡장률 변화

대표적인 상업용 밀봉 중성자 발생장치 판매 회사인 Sodern의 Carole Monnin는 티타늄의 수소 흡장 특성을 확인하기 위해 티타늄 파우더와 티타늄 박막에 수소 흡장 실험을 진행했다 [15]. 티타늄의 경우, 수소 흡장 시 산화막의 영향이 크기 때문에 산화막을 제거하여 수소가 흡착될 수 있도록 고온의 전처리 과정이 필요하며 고진공이 환경이 필수적이다. Sodern사에서는 293–753 K, 20–950 hPa 범위의 환경에서 티타늄 파우더와 박막에 대해 각각 수소 흡장실험을 진행하였다.

티타늄 파우더의 경우 온도가 693 K, 압력이 10⁴ Pa일 때 그림 2와 같은 결과를 얻었다. 실선은 시간에 따른 D/Ti 값을 의미하며, 시간에 따른 D/Ti 변화율에서 초기(α 상)에는 수소가 확산되어 포물선 형태

로 감소하며, 그 이후 새로운 상에서 중수소가 침전되며 새로운 상이 자라남에 따라 D/Ti 값이 변하는 것이 확인된다. 점선에 해당되는 중수소화 속도가 약 5 시간 후 0에 가까워지기 때문에 이후 파우더의 중수소 흡장율은 후 크게 변화가 없으며 D/Ti 값이 최대값인 1.64에 도달한다.

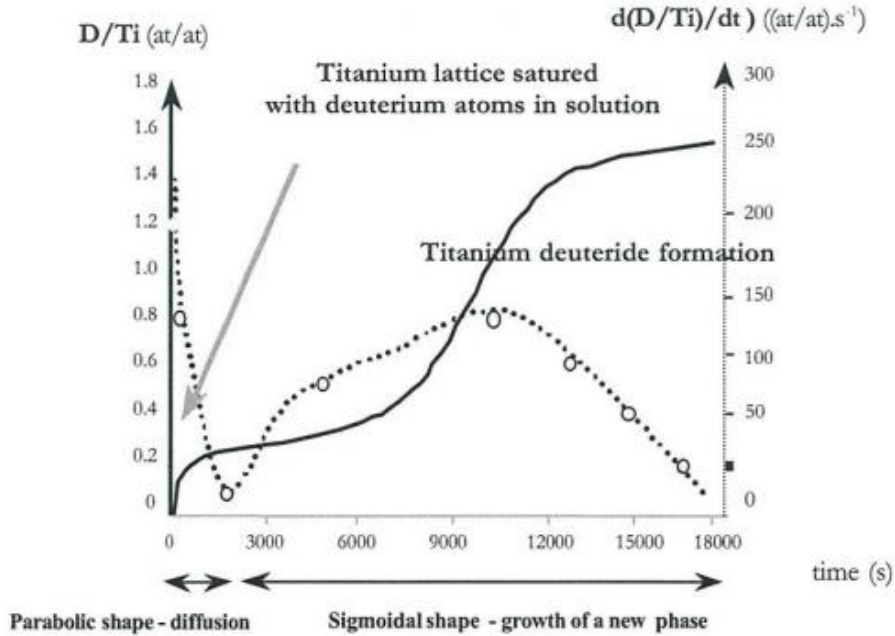


그림 2. 티타늄 파우더 수소화 형성 과정 - 실선:D/Ti(점선-중수소화 속도) (PD₂=100 hPa, T=693 K) [15]

티타늄 박막의 경우, 입자들이 분산된 티타늄 파우더에 비해 박막이 연속적인 상태로 형성되어 있어 입자들간의 반응성이 높아 중수소화 속도가 더 빠르다. 하지만, 수소 및 중수소 흡장은 티타늄 박막의 질에 영향을 받기 때문에 파우더 또는 스펀지 형태의 티타늄 샘플 보다 낮은 D/Ti 값을 갖게 된다. 표 3에서도 시편의 종류에 따라 D/Ti 값이 큰 차이가 있는 것을 확인할 수 있으며, 시편 활성화 조건, 중수소 흡장 온도에 따라서 D/Ti 값이 크게 차이가 난다.

표 3. 티타늄 중수소화 실험 결과 사례

Sample	Activation	D ₂ absorption	D/Ti	Ref.
Ti sponge	600 °C, 2 h vacuum	25 °C	1.5-2	16
Ti foil 0.5 mm	200-300 °C 10 Pa	400 °C, 50 kPa	0.1	17
Ti powder	200-300 °C 10 Pa	400 °C, 50 kPa	1.6	17
Ti/TiO ₂ film/gold	Unspecified	1.33 mPa	0	18
Ti/TiO ₂ foil 50 um	Unspecified	-	0	19
Ti bulk	Unspecified	600 °C, 500 kPa	1.5	20
Ti sponge	200°C, 17 h vacuum	350 °C, 600 kPa	1.96	21
Ti/Cu layer 2 um	PVD condition	200 °C, 100 kPa	1.9	22
Ti powder	Unspecified	420 °C, 100 kPa	1.64	23
Ti film/Cu	PVD condition	420 °C, 100 kPa	1.43	23
Ti sheet 1 mm	Unspecified	600-850 °C, 100 kPa	1.0-1.2	23

수소 흡장 시, 가장 큰 영향을 주는 부분은 산화막으로 인한 불활성층(dead layer) 생성이다. 티타늄 박막의 경우 최소 0.05 μm 에서 최대 0.3 μm 의 두께까지 산화막이 생성된다는 연구가 있다[24]. 이는 수소 흡장을 방해할 뿐만 아니라 중성자 생산을 위해 주입하는 중수소 이온빔의 에너지 또한 잃게 한다는 단점이 있다. 이에 대한 해결방안으로 LLNL에서는 티타늄 박막 위 얇은 팔라듐 코팅을 제안하였다[25]. 팔라듐은 수소 동위원소들에 대해 높은 확산 계수를 갖으며, 티타늄 박막을 산화로부터 막아주는 효과가 있다. LLNL에서는 5,000 Å 두께를 갖는 티타늄 박막 타겟을 이용했으며, 티타늄 박막 위 75-100 Å 두께의 팔라듐 박막을 갖는 타겟에 대해 수소 흡장 실험을 진행하였다. 이를 통해 LLNL은 D/Ti 값이 모든 실험들에 대해 1.7 이상의 값을 갖는 것을 확인하였다. 기존 Sodern사 타겟의 최대 값인 1.43에 비해 향상된 결과 값을 갖는 것을 확인했다. 이와 같은 특성으로 본 연구에서는 수소 흡장 시 673—723 K, 10^4 Pa을 기본 흡장 환경으로 선택하였다.

2.4 박막의 제작과 수소 흡장률의 연관성

Sodern 사의 삼중수소 및 중수소 타겟 제조 공정 최적화 및 중수소 생성에 관한 연구에 따르면, 증착되는 박막의 질은 기판의 온도에 영향을 받는다 [15]. 해당 연구에서는 473, 573 그리고 673 K 의 서로 다른 온도에서의 티타늄 박막 증착을 통해 각 조건에서의 박막을 SEM 을 통해 관찰하였고, 이를 토대로 그림 3 (a)와 같이 보다 낮은 온도의 기판에서 증착된 박막의 경우, 입자가 다중 입자 층을 갖고 상대적으로 다공성의 구조를 가짐을 보였으며, 이러한 다공성 미세 구조를 갖는 박막의 경우 낮은 중성자 수율로 이어질 수 있다는 결과를 제시하였다.

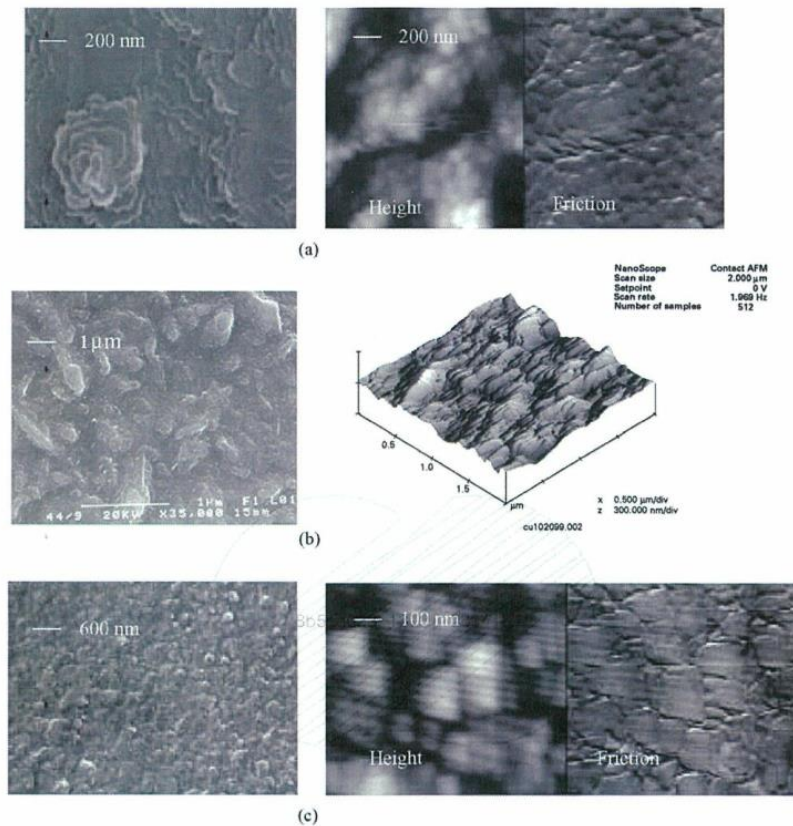


그림 3. 기판의 온도에 E-gun으로 증착되는 티타늄 박막의 SEM 및 AFM 현미경 사진 비교[17]. (a) 473 K (b) 573 K (c) 673 K

높은 온도에서 증착된 박막의 경우 안정성 측면에서도 장점을 갖는데, 중성자 빔을 타겟에 입사시켜 실행한 안정성 테스트에서, 높은 온도에서 증착된 티타늄 박막의 경우 타 조건과 다르게 박막이 손상되지 않는 연구결과가 제시되었다 [15].

그러나 오사카 대학에서 진행된 삼중수소 타겟에 사용되는 티타늄 박막 생성에 관한 연구에 따르면, 높은 온도 조건이 반드시 좋은 박막 품질로 이어지는 것은 아니다. 해당 연구에서는 삼중수소화 타겟의 짧은 수명에 대한 원인으로 높은 온도 공정 조건에서 제작된 삼중수소화 타겟은 낮은 화학적 안정성, 그리고 티타늄 박막과 기판 표면 사이의 낮은 접착성을 제시하였다 [26]. 접착성을 개선하기 위한 방법으로 기판 표면의 클리닝 및 글로우 방전을 통한 드라이 에칭 등이 있고, 이러한 과정을 거친 경우 그렇지 않은 경우에 비해 높은 임계부하를 갖는 양질의 박막이 형성된다는 결과를 제시하여 표면의 전처리 또한 중요한 조건임을 제시했다.

또한 Kah-Yoong Chan 의 연구결과에 따르면, 스퍼터링 파워에 따라 결정 구조 등의 박막 특성이 변할 수 있다 [27]. 해당 연구에서는 AFM 현미경을 통해 구리 박막 표면을 분석했다. 더 높은 스퍼터링 파워로 증착된 구리 박막은 구리 입자의 크기는 더 커지지만, voided boundaries는 줄어들기 때문에 오히려 surface mobility를 증가시켜, 결과적으로 표면에서 구리 이온들이 더 균등하게 증착되어 연속적인 박막 표면을 생성하는 데 기여한다는 결과를 제시하였다.

위 연구들을 토대로 고효율 타겟 제작을 위한 고품질의 박막 증착을 위해서는 기판 온도를 점차적으로 증가시키며 최적의 박막이 증착될 수 있는 온도를 확립해야 하고, 기판 표면 뿐만 아니라 스퍼터 장비에 인가되는 파워 등 증착 조건을 변화시킴에 따라 어떤 조건에서 높은 임계부하 및 연속적인 표면 구조를 갖는 양질의 박막이 형성되는지 확인해야 한다.

제 2 장 중성자 타겟 모델링 및 전산모사

제 1 절 전산모사 모델링

GEANT4 전산모사 코드를 사용해서 중수소 이온빔 에너지 크기에 따른 중성자 수율 변화를 확인하고자 하였고 이를 통해 가장 높은 수율을 보인 중수소 이온빔 에너지에 대한 최소 필요 박막 두께를 도출하고자 한다.

전산 모사를 통해 구현한 구조는 아래 그림 4와 같다. 타겟인 $TiTi_2$ 박막과 구리 기저물질 그리고 실리콘 검출기로 가정한 실리콘 구체이다. $TiTi_2$ 박막과 중수소 선원 간의 거리는 10 cm이며, 편슬빔으로 중수소가 발생한다고 가정하였다. 이러한 구조를 전산 모사하여 도출한 결과는 박막의 두께별 D-T 반응 효율(D-T 반응 횟수/입사시킨 중수소의 수)과 구리 기저물질 두께별 중성자와 알파 입자가 실리콘 검출기에 닿는 효율(실리콘에 닿은 중성자 또는 알파 입자의 수/발생시킨 중수소의 수)을 계산하였다. 그리고 중수소 에너지별로 타겟에 최대 반응을 일으키는 두께를 찾아보기 위하여 중수소의 에너지별로 타겟에 반응하는 위치를 계산하여 최적의 중수소 에너지와 타겟의 두께를 도출하였다. 그러나 전산 모사를 진행중 $TiTi_2$ 의 밀도를 조밀 육방 격자 (Hexagonal Close Packed lattice; HCP) 구조가 아닌 면심 입방 격자(Face Centered Cubic lattice; FCC) 구조에서의 밀도로 계산되어야 함을 인지하여, 추후 재계산한 밀도를 통해 위의 계산을 다시 수행하였고, 타겟의 티타늄과 삼중수소의 비율을 바꾸어가며 D-T 반응률, 반응 위치를 계산하였다.

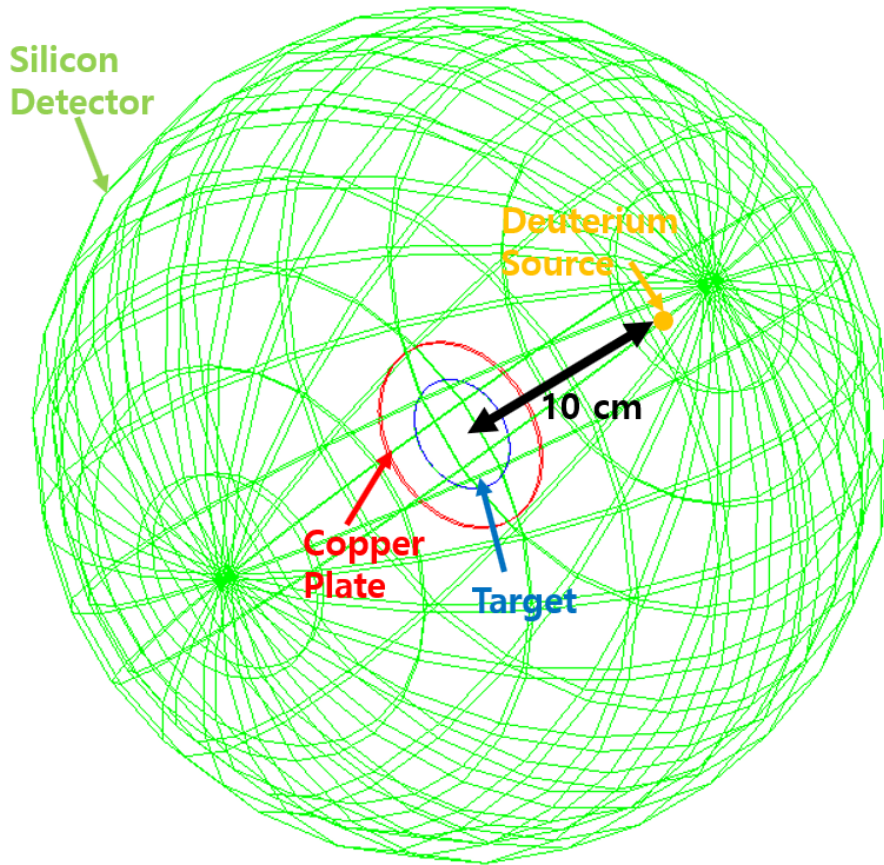


그림 4. GEANT4 전산모사코드로 구현한 중성자 발생량을 모사하기위한 도식도

타겟의 반지름은 1.5 cm이며 두께는 0.5-10 μm 인 TiT_2 박막과 반지름이 2.54 cm이고 두께가 0.5-5 mm인 구리 기저물질로 구성했고, TiT_2 박막의 두께와 중수소 빔에너지는 실행 중에 변화 시킬 수 있게 전산모사 코드를 설계했다. 중수소 빔에너지를 50-1,000 keV로 설정하고 중수소 입자 100,000,000개를 발생시켰다.

제 2 절 Geant4 전산모사 결과

1. 티타늄 박막 두께 최적화

중수소 빔의 에너지 크기에 따라 티타늄 박막 내에서 D-T 반응이 발생하는 최대 깊이 위치가 변화되며, 또한 해당 시뮬레이션은 ENDF/B-VI의 D-T 반응 단면적 데이터를 이용했으며 그림 5와 같이 입사되는 중수소 이온빔 에너지별 D-T 반응 단면적이 다르기 때문에 발생하는 중성자 수 또한 변화가 있다. 이에 따라 중수소 빔의 에너지에 따라 중성자 발생 반응률과 해당 에너지에서의 삼중수소와 반응하는 최대 깊이를 계산하였다.

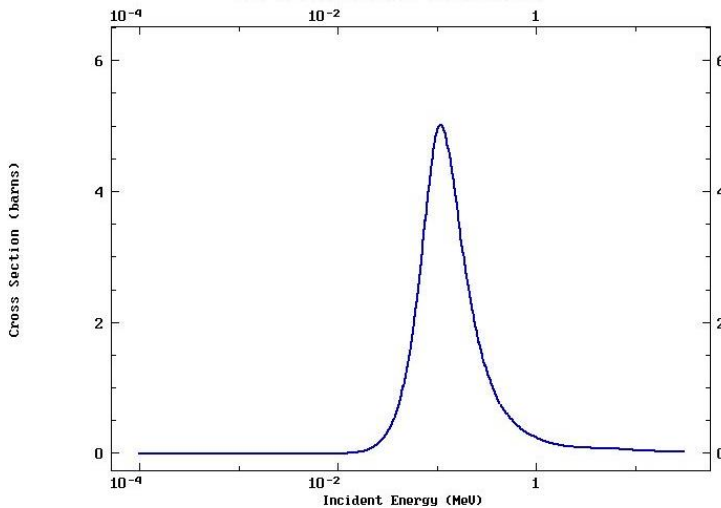


그림 5. ENDF/B-VI D-T의 입사되는 중수소 에너지에 따른 D-T 반응 단면적

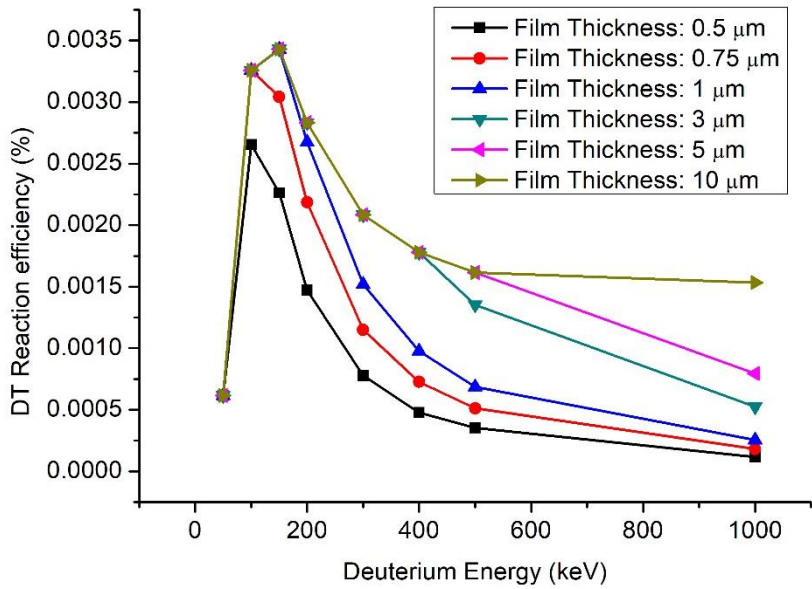


그림 6. 티타늄 박막 두께별 중수소 이온빔 에너지에 따른 D-T 반응 효율

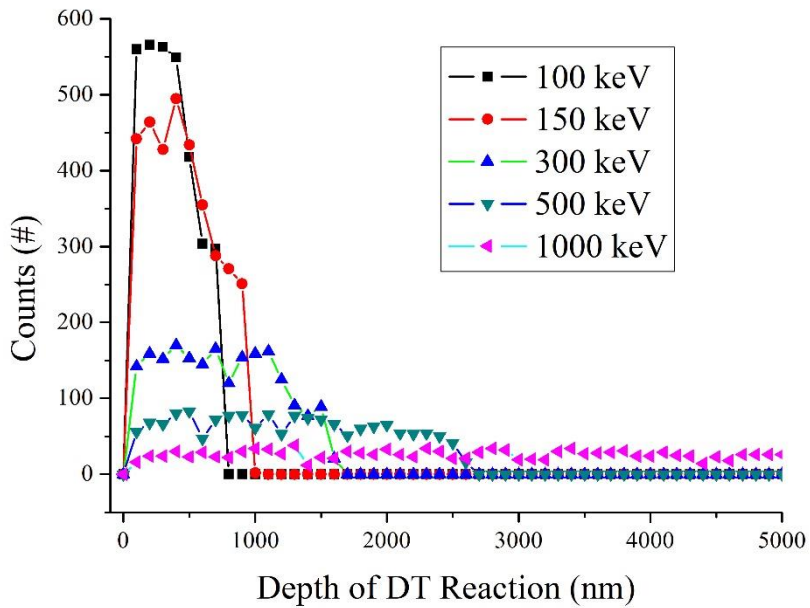


그림 7. 중수소 이온빔 에너지에 따른 D-T 반응 위치

D-T 반응 효율을 가장 높일 수 있는 중수소 이온빔 에너지를 찾고 이에 따른 최소 박막 두께를 확인하기 위해, 티타늄의 밀도는 5.11 g/cm^3 , 중수소의 에너지를 100, 150, 300, 500, 1,000 keV로 설정하여 박막의 두께별 중수소의 에너지 별로 발생시킨 중수소 당 D-T 반응을 및 반응 위치를 그림 6과 7에서 확인하였다. 그림 6은 티타늄 박막 두께와 에너지 크기에 따른 D-T 반응 효율이다. 박막두께가 $0.75 \mu\text{m}$ 이하에서는 100 keV의 에너지에서 반응 효율이 가장 높고 $1 \mu\text{m}$ 이상일 때, 150 keV의 에너지에서 반응 효율이 가장 높다. 그림 7에서 150 keV의 에너지의 박막 깊이 별 D-T 반응은 $1 \mu\text{m}$ 내에서 모두 발생하는 것을 확인했다. 따라서, $0.75 \mu\text{m}$ 두께 내에서 모든 D-T 반응이 이루어지지 않기 때문에 해당 두께 이하에서는 100 keV가 가장 높은 효율을 보이나, 해당 두께 이상에서는 150 keV가 가장 높은 D-T 반응 효율을 보인다. 하지만, 가장 높은 D-T 반응 효율은 150 keV에 해당되기 때문에 티타늄 박막은 최소 $1 \mu\text{m}$ 이상 증착 되어야 한다.

2. 구리 기저물질 두께 최적화

D-T 반응으로 발생된 중성자와 알파 입자가 구리 기저물질의 두께 변화로 인해 외부의 실리콘 검출기에 도달하는 수의 변화가 있는지를 전산 모사를 통해 확인했다. 박막의 두께는 $1 \mu\text{m}$ 으로 설정하였고, 고려한 구리 기저물질의 두께는 0.5, 1, 1.5, 2, 3, 5 mm이다.

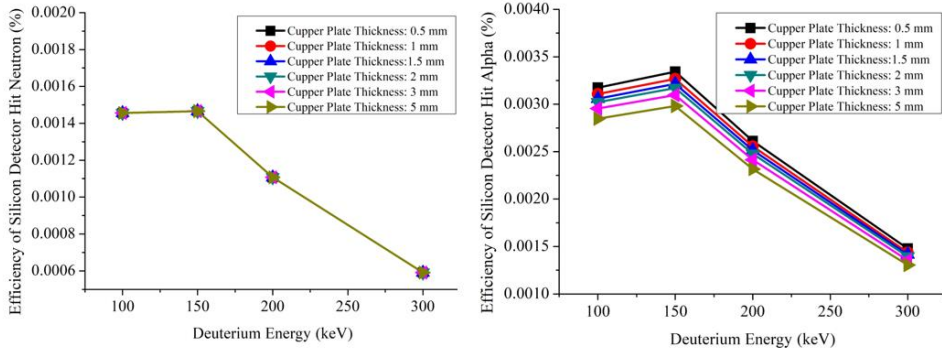


그림 8. 구리 기저물질의 두께별 입사된 중수소 빔의 에너지에 따른 입사된 중수소 개수 당 실리콘 검출기에 도달한 (좌) 중성자 입자와 (우) 알파 입자 개수

중성자의 경우 투과성이 크기 때문에 구리 기저물질의 두께에 따라 실리콘 검출기에 도달하는 수의 변화는 없었으나 중성자의 경우 저지능이 크기 때문에 구리 기저물질의 두께가 증가함에 따라 도달하는 중성자의 수는 감소하는 것으로 확인이 되었다. 두께가 0.5 mm 그리고 5 mm일 때 둘의 차이는 약 10%로 계산되었다. 알파 입자 계측을 통해 중성자 수율을 추정하기 때문에 더 많은 알파 입자를 계측하기 위해 구리 기저물질의 두께가 얇을수록 좋지만 타겟의 열제거 그리고 물리적 건전성 측면에서는 좋지 않기 때문에 적절한 두께를 열해석을 통해 적절한 두께를 선택해야한다. 따라서, 구리 기저물질 두께는 1 mm로 선정하였다.

3. 삼중수소 흡장률에 따른 티타늄 밀도 수정 및 중성자 수율 결과

티타늄은 실온에서 조밀 육방 격자(HCP)구조를 가지며 해당 상태를 α -Ti이라고 부른다. 이때 격자상수는 $a_0 = 2.9511 \text{ \AA}$, $c_0 = 4.6843 \text{ \AA}$ 이다[28]. 조밀 육방 격자는 단위격자에 총 6개의 원자가 들어갈 수 있기에 순수한 티타늄의 밀도는 아래 식과 같이 계산된다.

$$\frac{6 \times M_{Ti}}{\frac{\sqrt{3}}{4} a_0^2 \times 6 \times c_0} = 4.506 \text{ (g/cm}^3\text{)} \quad (2-1)$$

티타늄의 격자구조는 수소를 흡장할 경우 TiH_x 에서 x 가 1.0이상 이 될 경우 조밀 육방 격자에서 면심 입방 격자 구조로 변형된다[29]. 본 연구에서는 전산모사에서 타겟의 티타늄 박막의 밀도를 이러한 점을 고려하여 수정하였다. 먼저 조밀 육방 격자일 때는 순수 티타늄의 밀도를 이용하여 삼중수소가 흡장된 티타늄의 밀도를 계산하였다. 밀도 계산 식은 아래와 같다.

$$\begin{aligned}\rho_{TiTx} &= \frac{m_{Ti}+m_T}{v} = \frac{m_{Ti}}{v} \left(1 + \frac{m_T}{m_{Ti}}\right) = \rho_{Ti} \left(1 + \frac{N_T A_T}{N_{Ti} A_{Ti}}\right) \\ &= \rho_{Ti} \left(1 + x \frac{A_T}{A_{Ti}}\right)\end{aligned}\quad (2-2)$$

그 외의 삼중수소의 비율이 티타늄에 대해서 1.0 이상일 경우에는 면심 입방 격자인 수소화 티타늄(Titanium hydride)의 밀도를 이용하여 삼중수소가 흡장된 티타늄의 밀도를 계산하였다. 밀도 계산식은 아래와 같다.

$$\rho_{TiTx} = \frac{m_{TiH_2} (A_{Ti}+xA_T)}{v (A_{Ti}+2A_H)} = \rho_{TiH_2} \frac{(A_{Ti}+xA_T)}{(A_{Ti}+2A_H)}\quad (2-3)$$

위의 계산식을 통해 계산된 삼중수소 흡장률에 따른 밀도는 표 4에 명시하였다.

표 4. 흡장률별 타겟의 밀도

삼중수소 흡장률	밀도 (g/cm ³)	삼중수소 흡장률	밀도 (g/cm ³)
1:0.1	4.534391368	1:1	3.835607
1:0.2	4.562782735	1:1.1	3.858342
1:0.3	4.591174103	1:1.2	3.881077
1:0.4	4.619565471	1:1.3	3.903812
1:0.5	4.647956839	1:1.4	3.926547
1:0.6	4.676348206	1:1.5	3.949281
1:0.7	4.704739574	1:1.6	3.972016
1:0.8	4.733130942	1:1.7	3.994751
1:0.9	4.76152231	1:1.8	4.017486
-	-	1:1.9	4.040221
-	-	1:2	4.062956

수정된 밀도를 반영하여 앞서 진행된 중수소 에너지별 D-T 반응 위치, D-T 반응률을 재계산하였다. 그림 9는 삼중수소 흡장률에 따른 D-T 반응 발생률이며 티타늄 박막의 삼중수소 흡장률이 높을수록 높은 D-T 반응 발생률을 보인다. 삼중수소의 흡장률에 따른 최대 반응 위치에는 큰 영향이 있지 않았지만 흡장률이 감소함에 따라 반응률이 감소되었다. 삼중수소의 흡장률에 따른 반응률은 최대 17.7% 차이가 발생하였다.

기존 밀도를 고려한 중수소 에너지별 D-T 반응 발생률은 100 keV의 에너지 보다 150 keV의 에너지를 갖는 중수소일 때 높았지만, 수정된 밀도로 계산한 결과 100 keV의 중수소 에너지일 때 D-T 반응 발생률이 더 높다. 그림 10 에서 가장 높은 D-T 반응 발생률을 보이는 에너지는 130 keV임을 확인했다. 해당 에너지에 대한 가장 깊은 D-T 반응 위치는 1.182 μm 임을 확인했다. 따라서, 기존 밀도 수정 이전의 결과를 통해 최대 D-T 반응 발생률을 얻기 위해서는 최소 1 μm 이상의 박막이 아닌 약 1.2 μm 두께의 티타늄 박막이 필요함을 알 수 있었

다. 이는, 해당 연구에서 이용된 D-T 반응단면적 데이터는 입사되는 중수소 이온빔의 에너지가 100 keV 가장 높은 확률을 보인다. 하지만, 이온들이 타겟 표면에 입사한 후 에너지를 잃으며 타겟 재료 내부로 침투하여 핵반응을 일으켜야 되기 때문에 약간 더 높은 에너지인 130 keV의 중수소 에너지를 갖을 때 가장 높은 D-T 반응 효율을 보인다. 이를 통해 최적의 타겟의 두께와 중수소의 에너지는 1.2 μm , 130 keV로 판단하였다.

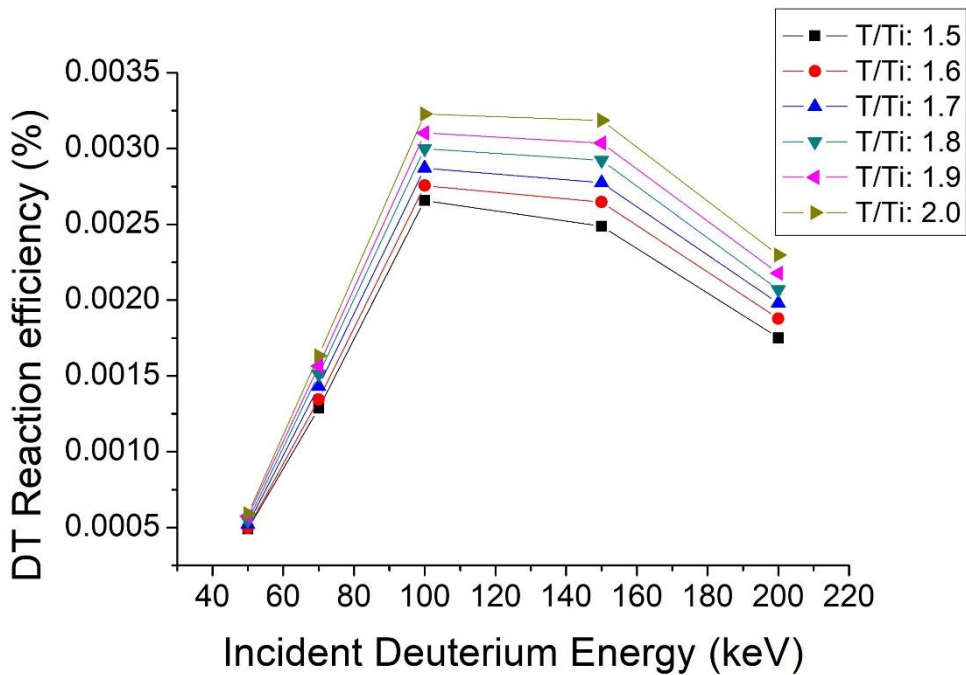


그림 9. 흡장률에 따른 입사된 중수소 이온빔 에너지별 D-T 반응 효율

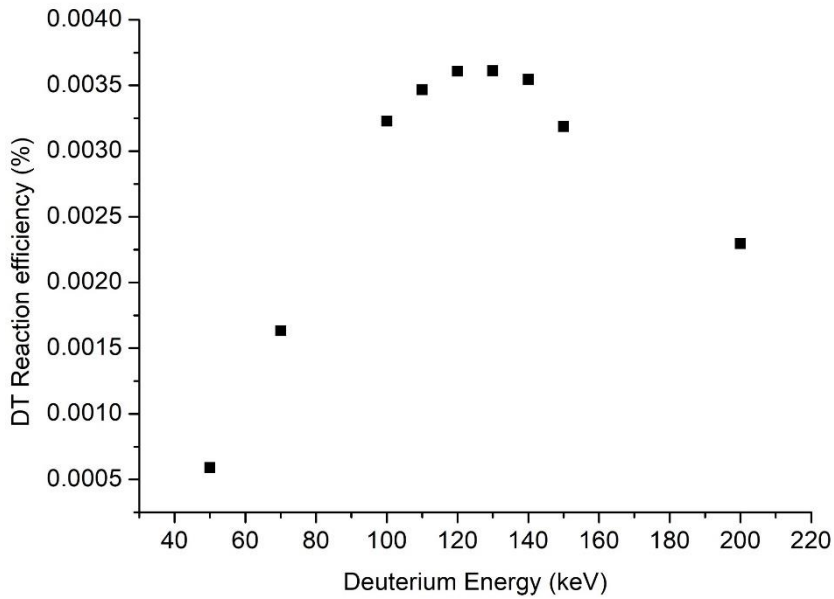


그림 10. 5 μm 티타늄 박막에 대한 중수소 이온빔 에너지별 D-T 반응 효율

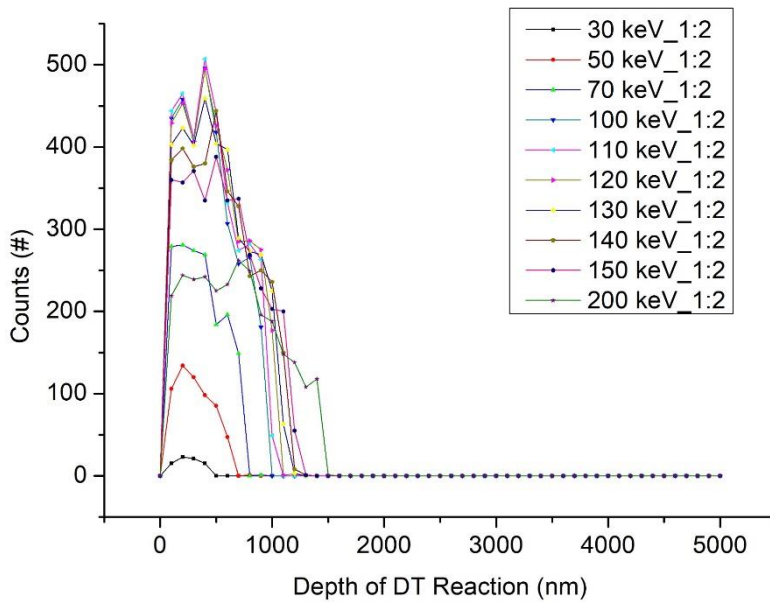


그림 11. 중수소 이온빔 에너지에 따른 D-T 반응 위치

수정된 밀도를 적용하여 실리콘 검출기에 도달한 알파 입자와 중성자 수를 계산하여 표 5, 6에 명시하였다. 기존의 밀도를 통해 계산한

수보다 다소 감소하였으며, 마찬가지로 발생하는 알파 입자 또는 중성자의 수가 감소하였다. 삼중수소의 흡장률이 낮을수록 효율은 감소하는 경향을 확인하였다.

표 5. 흡장률별 실리콘 검출기에 도달한 알파 입자의 효율

흡장률	50 keV	70 keV	100 keV	150 keV
1:1.5	0.000217	0.000538	0.00118	0.001077
1:1.6	0.000222	0.00057	0.001208	0.001138
1:1.7	0.000246	0.000605	0.001263	0.001194
1:1.8	0.000256	0.000664	0.001308	0.001255
1:1.9	0.000268	0.00069	0.001378	0.001303
1:2	0.000277	0.000724	0.001422	0.001376

표 6. 흡장률별 실리콘 검출기에 도달한 중성자의 효율

흡장률	50 keV	70 keV	100 keV	150 keV
1:1.5	0.000255	0.000706	0.001326	0.001241
1:1.6	0.000256	0.000719	0.001386	0.001324
1:1.7	0.000262	0.000771	0.001441	0.001375
1:1.8	0.000272	0.000794	0.001515	0.001458
1:1.9	0.000285	0.000821	0.00155	0.001515
1:2	0.00029	0.000847	0.001611	0.001589

전산 모사를 통해 구현된 최적 타겟의 중성자 수율을 계산하기 위해서 각도 별 중성자 방출 비율을 그림 9와 같이 계산하였다. 138 °에서 가장 많은 중성자들이 생성되어 방출되며, 전체 중성자 발생량의 4.313%를 차지한다. 100 keV, 40 uA의 이온빔 입사시의 중수소 입자의 수를 가정하여 계산되는 중성자의 수율은 $8.7 \times 10^7 n/s$ 이다.

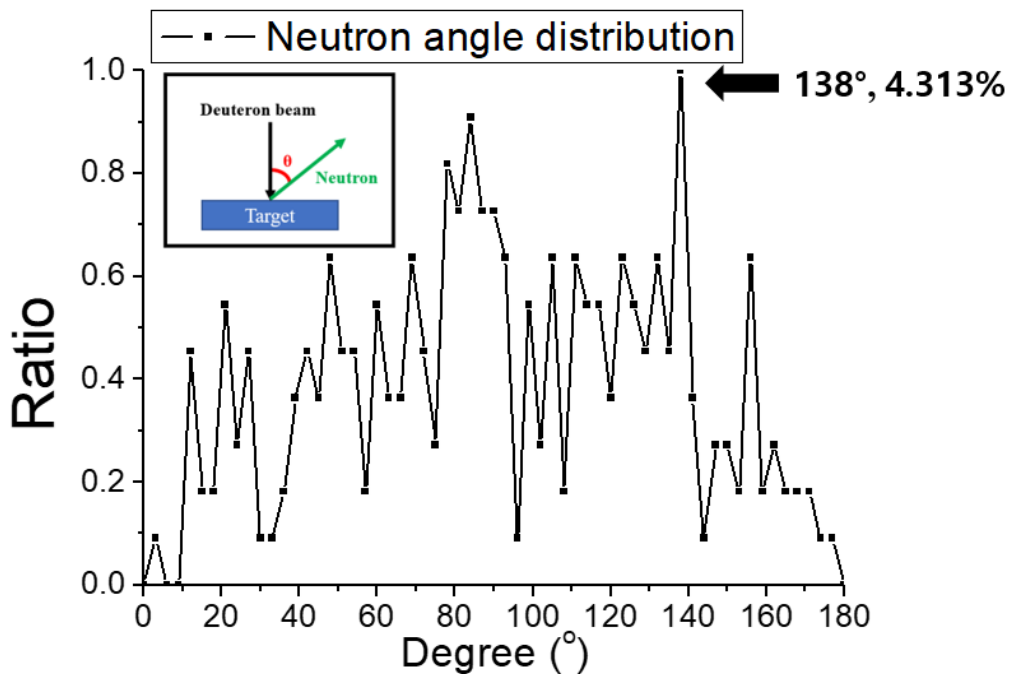


그림 12. 티타늄 박막으로부터 발생하는 각도별 중성자 방출 분포

제 3 장 티타늄 박막 증착

제 1 절 스퍼터 설비

본 연구에 사용되는 스퍼터 설비는 구리 기저물질에 수소 장입을 위해 필요한 티타늄 박막층을 증착하기 위한 목적으로 사용되며, 그 기본적인 구성은 다음과 같다.

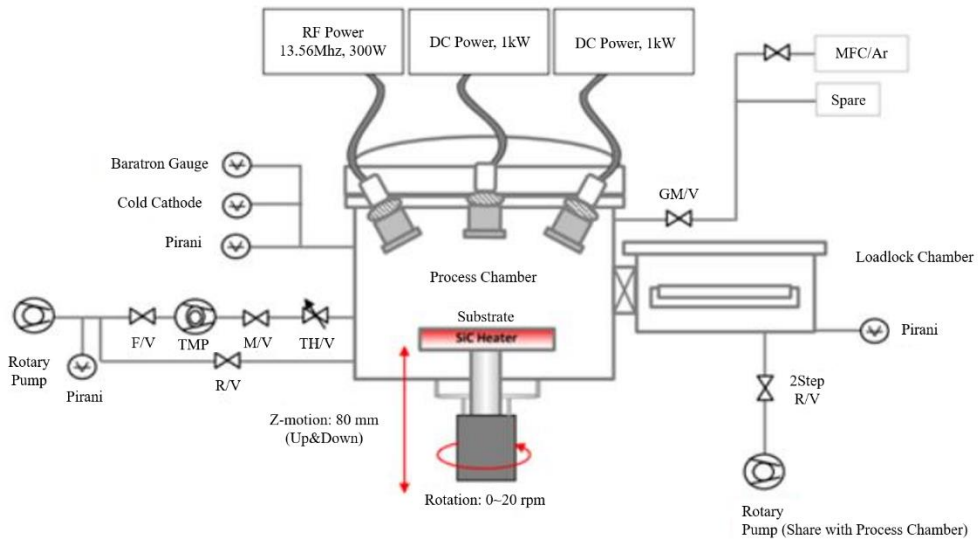


그림 13. DC 마그네트론 스퍼터링 시스템 도식화

다양한 조건에서의 타겟 제조를 위해 DC뿐 아니라 RF 스퍼터링 또한 가능하도록 두 종류의 마그네트론 스퍼터링 건으로 구성된다.

최대 600 ℃까지 설정할 수 있는 히터를 통해 조절 가능하며, Thermo Couple(TC)를 이용한 기관의 중심과 외각 부분의 온도 테스트를 통해 기관의 가열 균일성을 확인했다. 또한 해당 설비는 타겟의 효율을 저하시키는 산화 효과를 최소화하기 위해 낮은 진공도를 보장하며, 박막의 균일한 증착을 위해 중요한 기관의 온도 및 증착 균일성에 대해 보장하고 있다.

제 2 절 박막 증착 실험 방법

본 연구에서는 최적의 삼중수소 흡장이 가능한 중성자 타겟 레시 피 확보를 위해 기판의 온도 및 증착될 박막의 두께를 변화시키는 등 다양한 조건에서 박막을 제작하였다. 또한, 제작된 박막의 두께, 결합 및 오염 유무 등 표면 상태, 박막과 기판의 결합 강도 및 박막의 결정 구조 등 박막의 품질에 주요한 영향을 미치는 요인들을 분석하기 위하여, 그림 10과 같이 크게 세 가지의 측정(surface profiler, FE-SEM, Four-point probe)장비를 이용한 분석 방식을 통해 박막을 해석하였다.

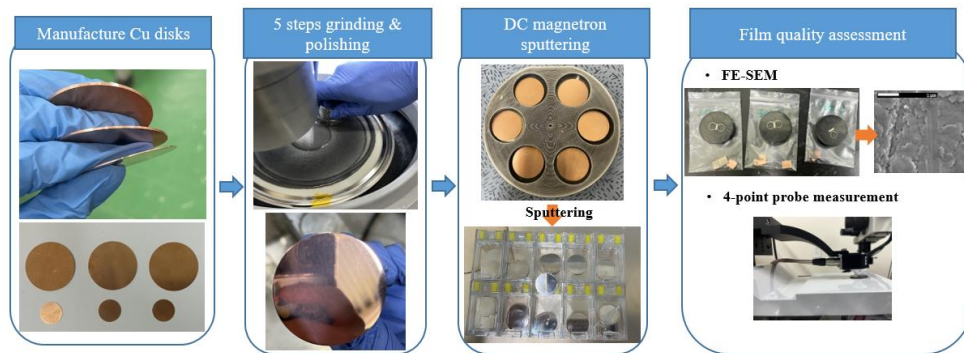


그림 14. 박막 증착 과정과 평가 과정 도식화

1. 구리 기저물질 제작 및 연마

티타늄 증착 기저물질로 열전도율이 높으며 가장 많이 사용되는 구리를 선정하였다. 연구의 최종 목적인 디스크형 타겟 프로토타입 개발을 위해 Sodern사의 디스크형 타겟의 규격과 동일한 구리 기저물질 (D = 50.8 mm)을 직접 제작하였으며, 분석 시 추가적인 커팅이 필요없는 작은 사이즈의 구리 기저물질 (D = 24 mm)을 제작하였다.

티타늄 박막은 기저물질의 표면 상태에 따라 박막 품질이 달라지기 때문에 표면의 기계적 연마 또한 중요하다. 기계적 연마는 grinding과 polishing 과정으로 구성된다. Grinding은 원하는 모양, 크기 또는 표면 마감을 달성하기 위해 연마재를 사용하여 재료의 표면층을 제거하는 공정인 반면, polishing은 polishing compound 또는 buffing wheel과 같은 미세한 연마재를 사용하여 표면을 매끄럽게 하고 광택을 내는 공정이다. 본 연구에서는 SiC Foil #800, #1200, #4000을 연마재로 연마재로 사용하여 grinding 하였다. 연마 속도는 각각 300 rpm, 150 rpm, 300 rpm이며, 1분, 1분, 2분간 진행되었다. 이후 polishing 작업은 MD-Chem 표면에 대해 150 rpm으로 2분간 진행되었으며, 연마재로는 OP-S 0.04 μm 가 사용되었다. 총 5단계에서 각 단계에서 구리 기저물질의 표면과 증착된 티타늄 박막 표면을 광학 현미경으로 관찰하고, 접촉식 단자 측정기를 통해 표면 및 티타늄 박막의 균일성을 평가하였다.

2. 접촉식 단자 측정기

접촉식 단자 측정기(surface profiler) 또는 알파 스텝은 박막의 접촉식 팁으로 표면을 스캔하여 라인 프로파일을 해석하고, 이를 기반으로 표면의 평탄도, 거칠기, 결함 등을 분석하는 데 사용되는 계측기로, 박막의 품질을 측정하는 주요 방법 중 하나로 널리 사용되고 있다. 본 연구에서는 서울대학교 공동기기원에서 보유한 ET200 장비를 이용하여 측정을 진행했으며, 이러한 측정을 토대로 박막의 결함 및 오염 유무 및 표면의 상태를 파악함으로써 박막의 품질 및 안정성을 측정하였다. 표면 측정기의 경우 측정 결과를 실시간으로 확인할 수 있고, 데이터 처리 및 분석에 사용되는 소프트웨어가 제공됨에 따라 측정 결과의 해석이 용이하다는 장점을 갖는데, 이는 다양한 조건에서 제작된 다수의 타겟의 박막 품질을 측정해야 하는 본 연구에 적합한 특성으로 볼 수 있다. 또한 접촉식 단자 측정기를 통한 측정의 경우, 표면을 매우 세밀하게 스캔할

수 있다는 장점을 갖고 있어, 측정 이후 삼중수소 흡장 및 분석으로 이어지는 본 연구과제의 진행에 매우 적합하다.

시중에서 판매되는 구리판을 사용하여 박막의 기저물질을 디스크 형태로 직접 제작하였기 때문에 구리 디스크의 절삭이 이루어진 부분의 휘어짐으로 인한 두께의 차이가 예상되었다. 이러한 차이는 티타늄 증착 시 두께의 균일함이 떨어지며 티타늄의 층이 생기는 요인에 직접적으로 영향을 준다. 따라서, 초기 구리 디스크와 각 연마단계에 따라 제작된 구리 디스크에 대해 접촉식 단차 측정기를 이용하여 단차를 측정하였고, 각 단계의 구리 디스크에 티타늄 증착을 수행한 후 티타늄 박막에 대한 단차를 측정하였다. 또한, 거칠기를 측정하여 각 단계에 따른 거칠기를 평가하였으며 이를 추후 수소/중수소 흡장 시 박막이 벗겨지는 현상에 대한 지표로 사용하고자 한다.

3. 전계방사 주사전자 현미경

전계방사 주사전자현미경(Field Emission Scanning Microscope, FE-SEM)은 전자를 이용해 물체의 표면을 고해상도로 관찰하는 현미경으로, 본 연구에서는 서울대학교 공동기기원에서 보유중인 FE-SEM 7800F Prime을 이용하여 타겟의 단면을 FE-SEM을 통해 관찰하였다. 관찰하고자 하는 영역의 크기에 따라 적합한 현미경을 선택해야 하는데, 본 연구의 경우 1 μm 정도의 두께의 박막을 대상으로 분석하기 때문에 나노 레벨의 박막 분석에 적합한 TEM 또는 X-선 현미경이 아닌 SEM을 통해 관찰하는 것이 적합하다. 박막의 품질에 영향을 주는 박막 증착 조건(증착 온도, 스퍼터링 파워)에 따른 시편들을 제작하여 SEM을 통해 관찰하였다. 이러한 관찰을 통해 박막의 결정 및 다공성 구조 등을 확인함으로써 수소 흡장에 직결되는 박막 특성을 분석하였다.

4. Four-point probe 측정

Four-point probe method의 경우 박막의 전기적 특성을 측정하는 방법 중의 하나로, 박막의 저항, 전도도, 이온성도 등을 측정할 수 있는 분석법이다. 선행 연구들에 따르면 박막의 결정 구조가 개선됨에 따라 저항(resistivity)이 감소하기 때문에, 박막의 저항은 박막의 품질을 대변하는 주요 요인 중 하나로서, 그 측정의 중요성이 대두된다. 4 probe method는 1번과 4번의 프로브에 전류를 흘려 2번과 3번 프로브의 전압차를 측정하여 저항값을 계산하는 방식이다. 비파괴적 측정 방법이며 높은 정밀도와 정확성을 갖고, 제작 및 적용이 용이하다는 장점을 갖고 있어, FE-SEM 이나 표면 측정기를 통한 분석 이전에 제조된 박막의 품질을 대략적으로 파악할 수 있다는 점에서 본 연구과제의 박막 품질 분석 과정에 중요한 역할을 한다.

하지만, 본 연구에서 이용한 저항 측정기는 반도체 저항 측정을 목적으로 두는 장비이기 때문에 일반적으로 알려진 티타늄의 저항 0.1 마이크로 옴 단위의 저항을 측정 하기 위한 고전압 인가가 불가하기 때문에, 실리콘 웨이퍼에 티타늄 박막을 증착시켜 저항을 0.01 - 0.1 옴단위로 향상시켜 티타늄 박막 증착 조건에 따른 표면 저항을 측정하였다.

제 3 절 실험 결과

1. 연마에 따른 구리 기저물질, 티타늄 박막 표면 평가

1.1 광학 현미경 관찰과 접촉식 단차 측정기 측정

각 연마 단계에 따른 구리 디스크의 거칠기를 관찰하였으며, 접촉식 단차 측정기를 이용한 단차 측정 및 거칠기 측정을 진행하였다. 또한, 티타늄 박막 증착 시 기저물질의 거칠기에 따른 박막의 거칠기를 관찰하였다.

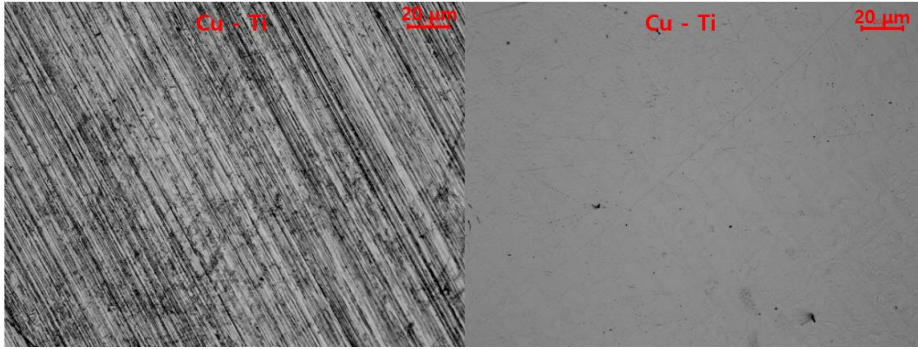


그림 15. 티타늄 박막 표면 광학 현미경 이미지: 구리 기판 전처리 이전(좌)
전처리 이후(우)

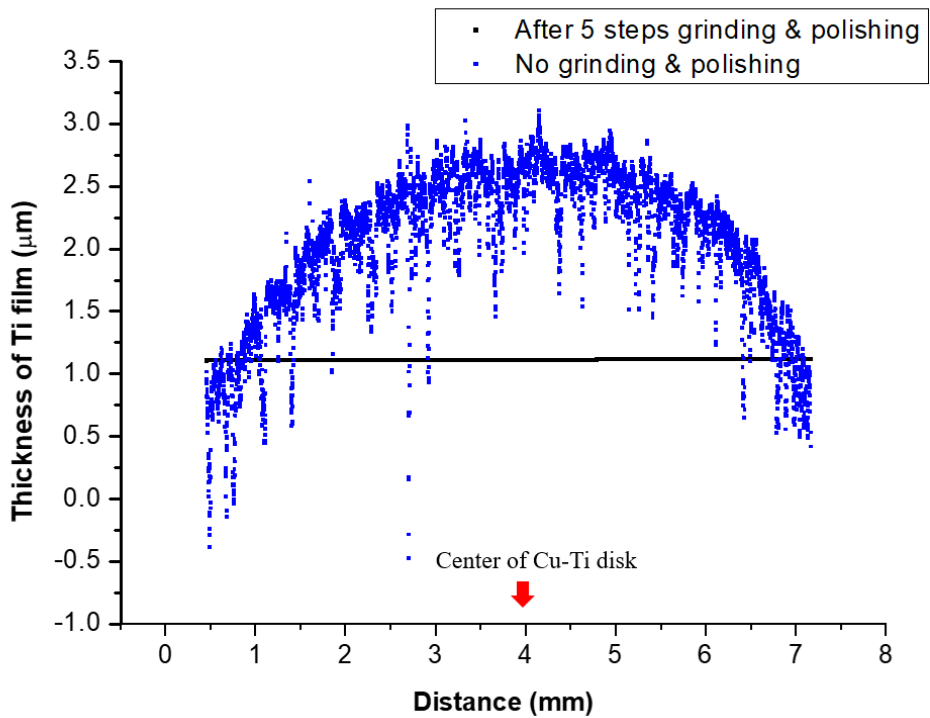


그림 16. 티타늄 박막의 전처리 이전(파란점), 전처리 이후(검은점) 높이 단차

그림 15와 같이, 구리 디스크의 Grinding과 Polishing 단계의 유무에 따라 육안으로도 표면의 스크레치들의 차이가 있음을 확인했다. 또한 티타늄 박막 증착 이후의 표면은 구리 디스크의 표면과 같은 스크레치들이 남아있으며 오염물질들이 해당 단계에서 점차 제거되는 것을 관찰했다. 또한 그림 16과 같이 전처리 이전의 구리는 최대 3.5 μm 의 단

차가 있음을 확인했다. 하지만 전처리 이후, 구리 디스크의 단차가 0.01 μm 이내며 티타늄 박막 증착 시 또한 단차가 매우 작으며 균일하게 증착 되었음을 확인할 수 있었다.

2. 박막 증착 조건에 따른 표면 관찰 및 저항 평가

2.1 전계방사 주사전자 현미경을 이용한 표면 관찰

구리 기판은 5단계의 Polishing과 Grinding 과정을 우선적으로 거치게 되며 이후 알코올, 아세톤, 초순수를 이용한 초음파 세척을 진행 뒤 티타늄 박막을 증착하였다. 티타늄 박막 품질에 가장 영향을 많이 주는 스퍼터링 파워와 증착 온도를 주요 변수로 설정하였으며 각 증착 조건에 따라 증착된 박막의 표면을 관찰하였다. 조건에 따른 표면 관찰을 통해 각 조건에 따른 공극률, 입자의 크기 및 균질함을 확인하고자 한다. 그림 16에서 (a)와 (b)의 경우 스퍼터링 파워는 동일하나 증착 온도가 100 $^{\circ}\text{C}$ 와 300 $^{\circ}\text{C}$ 일 때 표면의 차이를 확인했다. 100 $^{\circ}\text{C}$ 에서 증착 시, 입자에 층이 생기며 공극률 또한 300 $^{\circ}\text{C}$ 조건 보다 작음을 확인했다. 50 W, 300 $^{\circ}\text{C}$ 조건에서 평균적으로 100 nm의 입자 크기를 갖는 티타늄 박막이 증착되고 가장 균질하게 박막이 형성되었으나, 공극률은 가장 낮다. 하지만, 너무 낮은 공극률은 수소의 이동이 제한되고 일정 이상 수소가 흡장시 표면의 균열 발생, 기저물질과의 접착력 감소를 초래하여 박리 현상이 발생할 수 있기 때문에 오히려 수소흡장 측면에서 부정적이다. 그림 17의 (d)와 (e)에서 200 W와 100 W 증착 조건에서의 박막의 표면을 확인했다. 두 조건에서 티타늄 입자의 크기와 공극률은 유사하나, 200 W 조건에서 박막의 층이 도드라지게 관찰되며 균질함이 떨어짐을 확인했다. FE-SEM을 이용한 증착 조건별 표면 관찰을 통해, 증착온도는 300 $^{\circ}\text{C}$ 그리고 스퍼터링 파워는 100 W 이하의 조건에서 박막을 증착하는 것을 우선적인 레시피로 고려하였다.

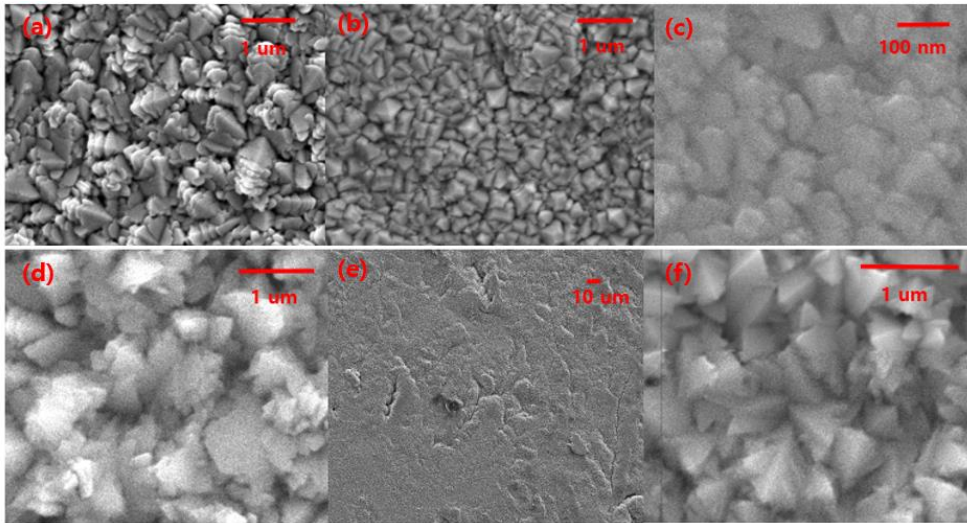


그림 17. 박막 증착 조건에 따른 FE-SEM 관찰 (a) 100 W, 100 °C
 (b) 100 W, 300 °C (c) 50 W, 300 °C (d) 200 W, 50 °C
 (e) 200 W, 50 °C (f) 100 W, 50 °C

2.2 Four-point probe를 이용한 저항 측정

신뢰성있는 저항값을 갖는 SiO₂ 웨이퍼의 저항값을 우선적으로 측정하여 이용하고자 하는 장비의 신뢰성 확보 및 샘플을 측정을 위해 인가할 적절한 전류값을 확인하였다. 이용한 SiO₂의 저항값은 1-10 Ω-cm이며 그림17과 같이 1 mA-100 mA 범위의 전류값에서의 저항값을 측정하였으며 샘플의 저항값을 바르게 추정할 5 mA를 샘플 측정 전류값으로 선정하였다. 박막 증착 조건에 따라 SiO₂ 웨이퍼위에 증착된 샘플들의 저항값을 측정하기 위해 3가지의 스퍼터링 파워조건(100 W, 200 W, 300 W)으로 제작한 샘플 그리고 3가지의 증착 온도(100 °C, 200 °C, 300 °C)에서 제작한 샘플 그리고 박막의 결정구조가 가장 균일하게 예측되는 증착 조건인 50 W, 300 °C에서 제작된 샘플에 대한 표면 저항값을 측정하였다.

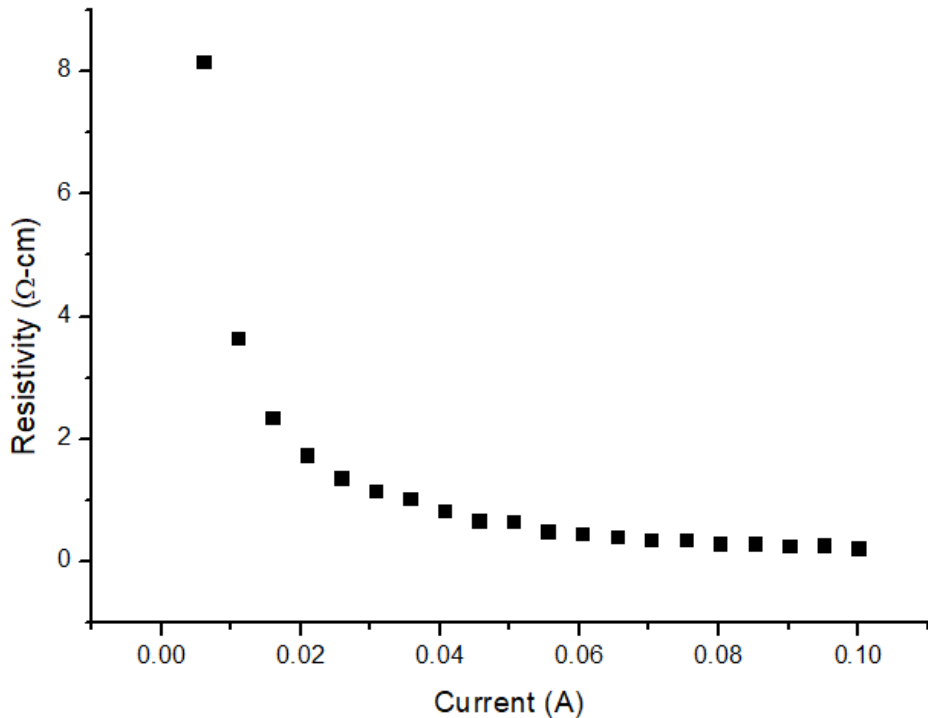


그림 18. SiO₂ 웨이퍼의 인가 전류에 따른 저항값 측정

측정된 저항값은 티타늄 박막의 입자 크기를 나타내는 지표이며, 저항값이 작을수록 grain boundary의 비율이 높아진다. 이는 dislocation의 이동성이 감소함을 의미하며 더 큰 stress에도 박막이 deformation되지 않는 것을 의미한다. 따라서, 낮은 저항값이 측정될수록 더 높은 품질의 박막임을 의미한다. 박막 증착 조건별 샘플들에 대해 10번의 저항값 반복 측정을 수행하였으며 그 평균값을 아래 표 7에서 확인할 수 있다. 그림 18과 같이 스퍼터링 파워가 낮을수록, 증착 온도가 높을수록 더 낮은 저항값을 갖는다. 50 W, 300 °C 조건에서 가장 낮은 표면저항값인 0.02576 Ω/square을 획득하였다.

표 7. 티타늄 박막 증착 조건에 따른 SiO₂ 샘플들에 대한 표면 저항값 10회 반복 측정 결과

DC Power	300 W	200 W	100 W	100 W	100 W	50 W
Temperature	100 ℃	100 ℃	100 ℃	200 ℃	300 ℃	300 ℃
Sheet Resistance (Ω/square)	0.18863	0.13222	0.11732	0.09313	0.0512	0.02562
	0.18879	0.14321	0.12535	0.09342	0.05365	0.02573
	0.1894	0.13657	0.12144	0.09452	0.05742	0.02581
	0.18964	0.13699	0.1123	0.09432	0.0612	0.02575
	0.18956	0.13521	0.12041	0.09474	0.05677	0.02576
	0.18991	0.13649	0.12867	0.09486	0.05698	0.02574
	0.19013	0.13593	0.12672	0.09493	0.05642	0.02578
	0.19011	0.14157	0.12374	0.09544	0.05567	0.02576
	0.18978	0.14124	0.11469	0.09589	0.05563	0.0258
	0.19024	0.13235	0.11921	0.09576	0.06002	0.02585
Average	0.18962	0.13718	0.12099	0.09470	0.05650	0.02576

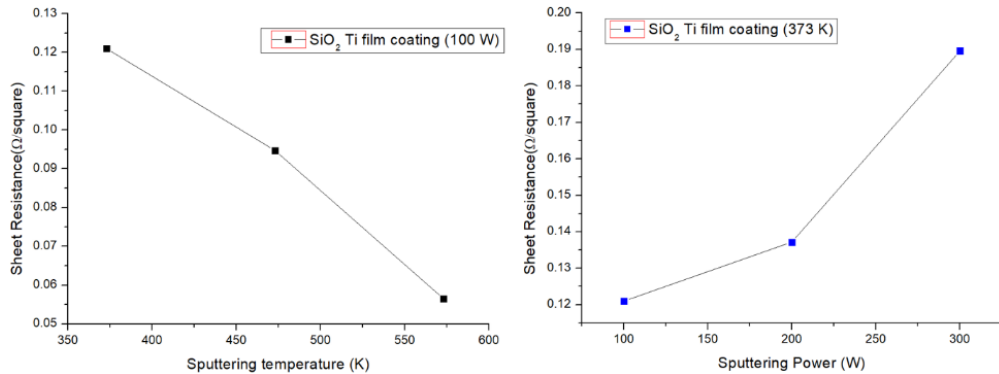


그림 19. 티타늄 박막 증착 조건에 따른 SiO₂ 샘플들에 대한 표면 저항값 (좌) 증착 온도 변화 (우) 스퍼터링 파워 변화

제 4 장 수소 및 중수소 흡장

제 1 절 수소 흡장 설비

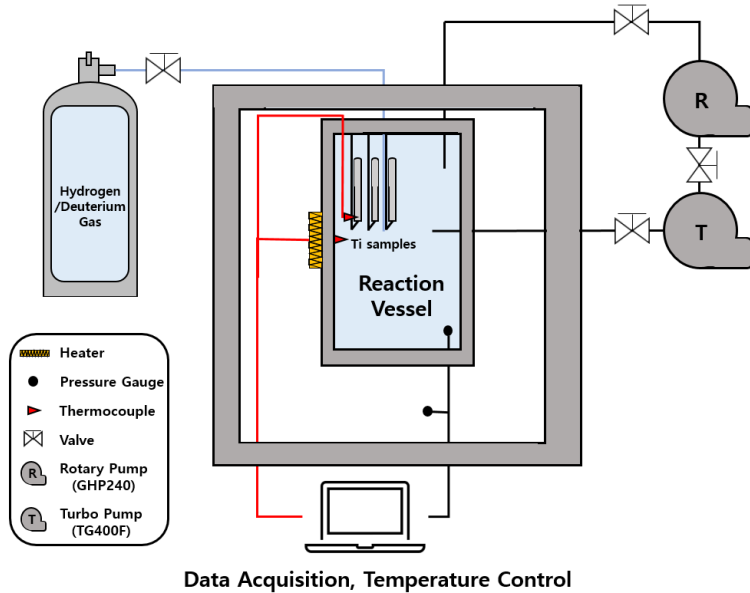


그림 20. 수소 및 중수소 흡장 설비 도식화

기존 서울대학교에서 보유한 수소 흡장 설비는 ① 정확한 수소 흡장량 측정하는 것이 불가능하며, ② 시편의 정확한 온도를 측정하는 것이 불가능하다는 두 한계점을 가지고 있다. 새로운 흡장 설비는 이를 보완할 수 있도록 설계되었다. 정확한 수소 흡장량을 측정하기 위해 새로운 수소 흡장 설비는 수소 가스 용기와 반응 용기 사이에 중간 용기 및 압력계를 두어, 기체 상태방정식을 활용해 정확히 시편에 장입된 수소량을 파악할 수 있도록 하였다. 또한 반응 용기 자체의 크기를 $\varnothing 150 \times 100$ mm 정도로 기존에 비해 작게 제작하여, 수소기체의 양이 기존에 비해 줄어들더라도 압력을 유지할 수 있도록 하였다. 정확한 시편 온도를 측정하여 수소 흡장 온도 조건을 확인하기 위해, 새로운 장비는 시편에 직접 닿을 수 있는 TC를 설치할 수 있도록 하였다. 이를 통해 기존 장비의 진공도와 온도 가열 범위는 유지한 채로, 한계점을 보완하는 설

계를 진행하였고 이를 통해 차후 수소 흡장 실험이 용이하게 진행될 수 있도록 하였다.

해당 설비를 이용하여 고진공 분위기에서 수소 흡장 실험을 진행하였다. 반응 용기의 압력은 약 10^{-6} Torr로 진공 처리되었고, 시료는 450 °C까지 가열되었다. 온도 안정화 후, 수소(또는 중수소)는 주입 압력 750 Torr로 일정 시간동안 주입된다. 수소 장입이 끝난 이후, 24시간 동안 진공 환경과 고온상태에서 열 처리가 진행되어 수소가 균일하게 분포되도록 하였다. 그런 다음, 시료는 0.5 °C/분의 냉각속도로 천천히 식도록 하였다. 수소(또는 중수소) 함량은 ONH-2000을 이용하여 측정되었다.

제 2 절 수소 및 중수소 흡장 실험 방법

1. 티타늄 호일 수소 흡장

티타늄 박막이 증착된 시편에 대한 수소 및 중수소 흡장 실험 이전, 기저물질의 수소 흡장을 제외한 티타늄 만의 수소 흡장 정도를 평가하여 수소 흡장 과정을 최적화하기 위해 티타늄 호일을 이용한 수소 흡장 실험을 우선적으로 진행하였다. 총 5개의 샘플에 대한 수소 흡장 실험을 진행하였으며, 호일의 두께, 수소 흡장 시간, 그리고 수소 흡장 온도에 변화를 주어 H/Ti 결과를 확인하였다. Sodern 사에서 티타늄 파우더에 대한 실험 결과로써 시간에 따른 수소 흡장율이 변화함을 확인할 수 있었다. 이에 따라, 수소 흡장 시간(5시간, 24시간)에 차이를 두어 실험을 진행하여 시간에 따른 흡장 정도를 확인했다. 또한, 수소 흡장 시 온도(400 °C, 450 °C)에 차이를 두어 실험을 진행하였다.

2. 티타늄 박막 수소 및 중수소 흡장

티타늄 호일을 이용한 수소흡장 결과를 이용하여 최적의 수소 흡장 조건을 확보한 이후, 티타늄 타겟에 대한 수소 그리고 중수소 흡장 실험을 진행하였다. 티타늄 타겟은 기저물질로 구리와 그 위에 증착된 티타늄 박막으로 구성되기 때문에 티타늄 자체만의 수소 흡장률을 알기 위해서는 구리의 수소 흡장률을 분석하는 것이 필수적이다. 따라서, 제작된 구리 기저물질의 반에 해당되는 표면을 켈톤 테이프를 이용해 티타늄 증착이 이루어지지 않도록 하여 구리로만 구성된 부분과 구리와 티타늄 박막으로 구성된 부분으로 나누어지도록 제작하였다. 스퍼터링 파워, 증착 온도, 기판 회전속도 변화에 따라 1 μm 의 티타늄 박막을 증착하였으며 수소/중수소 흡장실험을 진행하였다. 수소 흡장률의 경우, 구리 부분의 수소 흡장량을 분석하고 해당 값을 이용하여 구리와 티타늄 부분에서 구리 내의 수소 흡장량을 추정하였다. 이를 통해 티타늄 자체의 수소 흡장량을 추정하였다.

수소 흡장 실험을 통해, 최고의 H/Ti 값을 가진 박막 증착 조건과 최적의 수소 흡장 조건을 적용하여 타겟 중수소 흡장 실험을 진행하였으며 D/Ti 값을 도출했다.

3. ONH-2000 ELTRA

수소 흡장이 완료된 티타늄 호일 및 티타늄 박막은 서울대학교에서 보유한 원소 분석기(ONH-p 2 ELTRA)를 이용하여 H/Ti 값을 획득하였다. 원소 분석기의 분석원리는 다음과 같다. ① 무게를 측정된 시편을 장치 내로 투입하면 furnace 내 crucible 안으로 떨어지고, 이를 3,000 $^{\circ}\text{C}$ 까지 가열하여 용융시킨다. ② 용융된 시편에서 발생한 CO는 Rare earth copper oxide를 거치면서 산화되어 CO_2 가 되고 Sodium hydroxide에서 제거된다. ③ H_2 기체는 검출기 내로 주입된다. ④ 장치 내 열전도도 검출기(Thermal Conductivity Detector)는 운반 기체 N_2

와 측정 기체 H₂ 간의 열전도도 차이를 이용하여 수소 농도를 도출한다.

제 3 절 실험 결과

1. 티타늄 호일 수소 흡장 결과

아래 표 8는 새롭게 설계된 수소 흡장 설비가 아닌 기존에 서울대학교에서 보유한 수소 흡장 설비를 이용한 1차에서 4차까지의 실험 결과를 보여준다. 24시간 수소 흡장 시, 5시간 흡장의 경우보다 400 °C, 450 °C인 경우에서 모두 H/Ti 값이 약 5배 증가함을 확인했다. 또한, 수소 흡장 시간이 같은 경우 450 °C 환경에서 수소 흡장율이 400 °C에 비해 약 2배 가량 높은 것을 확인했다. 또한, 450 °C에서 24시간 수소 흡장 시, 최고값인 H/Ti=0.8483을 획득하였으나, 티타늄 호일의 상이 변화하여 균열이 이루어지는 것을 확인했다. 이를 통해 해당 실험 결과가 최대 수소 장입양임을 예측했다.

표 8. 400 °C, 1 기압 조건에서 5시간 수소 증착 실험 결과

Sample ID	Hydrogen	Weight	H/Ti
Ti-1-a	215.7 ppm	97.600	0.1032
Ti-1-b	81.0 ppm	134.800	0.0387
Ti-1-c	230.2ppm	143.700	0.1102
Average: 0.01756 Deviation: 0.00823			0.0840

표 9. 400 °C, 1 기압 조건에서 24시간 수소 증착 실험 결과

Sample ID	Hydrogen	Weight	H/Ti
Ti-2-a	0.1042%	24.000	0.4987
Ti-2-b	804.0 ppm	27.100	0.3847
Ti-2-c	782.2 ppm	27.000	0.3743
Average: 0.08761 Deviation: 0.01441			0.4193

표 10. 450 °C, 1 기압 조건에서 5시간 수소 증착 실험 결과

Sample ID	Hydrogen	Weight	H/Ti
Ti-3-a	353.2 ppm	32.500	0.1690
Ti-3-b	349.6 ppm	20.900	0.1673
Average: 0.03514 Deviation: 0.00026			0.1681

표 11. 450 °C, 1 기압 조건에서 24시간 수소 증착 실험 결과

Sample ID	Hydrogen	Weight	H/Ti
Ti-4-a	1.5516%	23.100	0.7427
Ti-4-b	1.7621%	10.500	0.8434
Ti-4-c	2.0033%	12.300	0.9589
Average: 1.77233 Deviation: 0.22605			0.8483

이후, 새로운 수소 흡장 설비를 이용하여 총 5번의 실험을 진행하였으며 기존 수소 흡장 설비에서 진행된 실험의 반복 실험 및 10 μ m의 호일에 대한 추가적인 실험을 진행하였으며 실험 조건은 표 12와 같다. 기존 수소 흡장 설비와 동일 조건에서 유사한 결과를 얻었으며, 그

림 21과 같이 증착 온도가 높을수록, 수소 흡장 시간이 클수록 수소 흡장률이 높은 것을 확인했다. 또한, 티타늄 호일의 두께가 얇을수록 미세하게 수소 흡장량이 많아짐을 그림 22에서 확인할 수 있다. 수소 반응 용기의 압력 변화를 통해 수소 반응이 전부 이루어지기 위해 필요한 시간을 추정하였다. 5시간의 수소 흡장 시간 이후 급격하게 압력이 변화함을 확인할 수 있으며, 반응이 이루어진다고 추정할 수 있다. 이를 통해 최소 7시간 이상 타겟을 수소 반응 용기에서 수소에 노출시켜야 한다. 하지만, 오랜 시간 노출 시킬 시 그림 21 (우)와 같이 상변화로 인한 균열이 이루어지기 때문에 적절한 수소 노출 시간을 가져야함을 확인했다.

표 12. 새로운 흡장설비를 이용한 티타늄 호일 수소 흡장 조건

	Ti foil thickness	Temperature	Hydrogen loading time
Target A	200 μ m	400 $^{\circ}$ C	5 hr
Target B		450 $^{\circ}$ C	24 hr
Target C		450 $^{\circ}$ C	5 hr
Target D		450 $^{\circ}$ C	24 hr
Target E	10 μ m	400 $^{\circ}$ C	12 hr

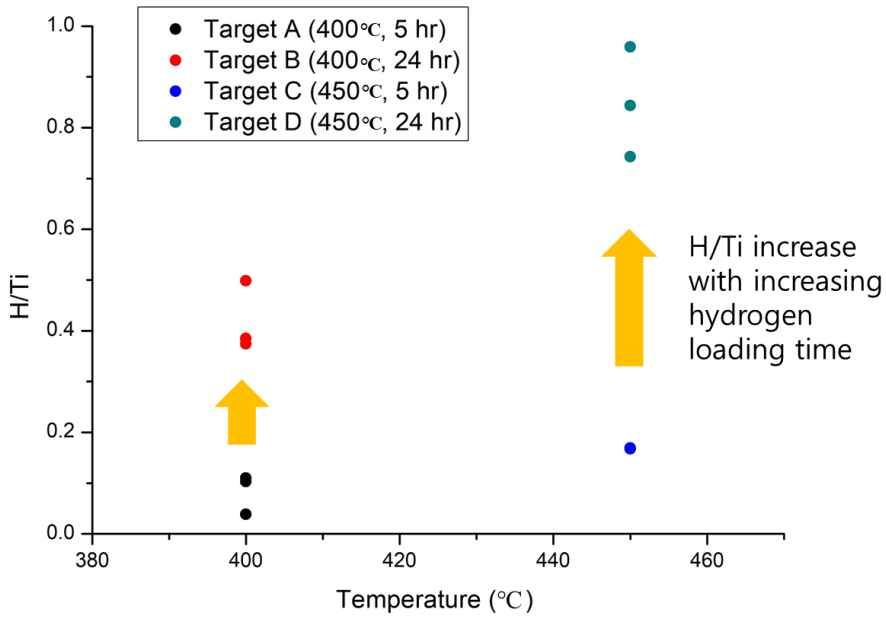


그림 21. 수소 반응용기 온도와 수소 장입 시간에 따른 200 μm 티타늄 호일 H/Ti 값

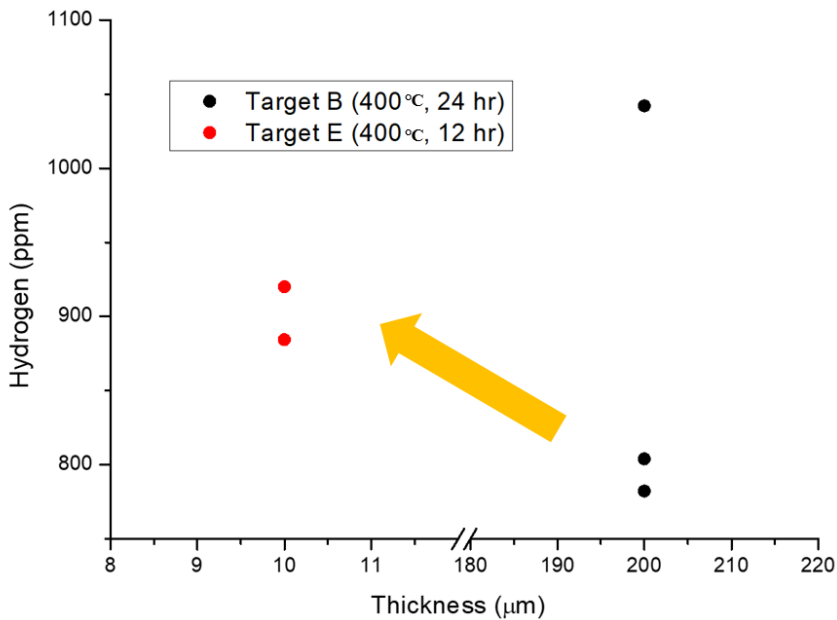


그림 22. 티타늄 호일 두께에 따른 H/Ti 값

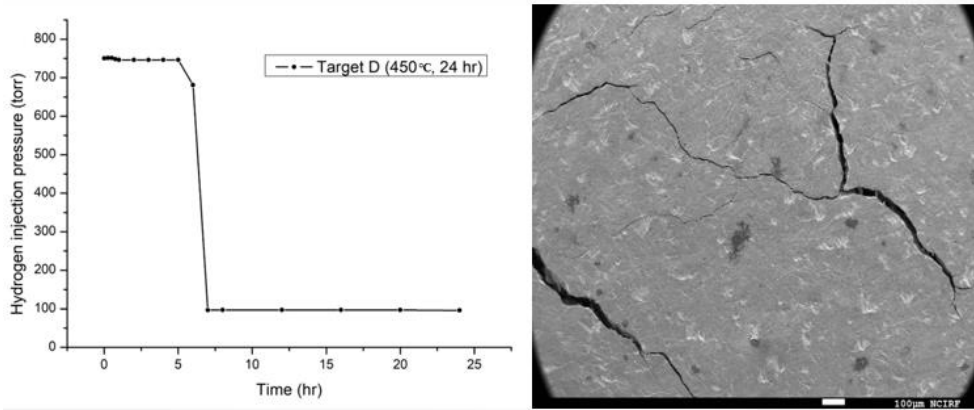


그림 23. (좌) 200 μm 티타늄 호일의 시간에 따른 수소 반응용기 압력 변화
(우) 24시간 수소 노출 후 티타늄 호일 FE-SEM 관찰

2. 티타늄 박막 수소 흡장 결과

구리로만 구성된 부분과 티타늄 박막이 증착된 부분으로 구성된 티타늄 타겟에 대한 수소 흡장을 진행한 후 각 부분의 수소 흡장량을 ONH-2000 장비를 이용해 H/Ti 값을 도출하였다. Cu 부분에서의 평균 수소 흡장량은 3.9 ppm 이며 이를 통해 티타늄 박막의 자체 수소 흡장량은 $4.13627 \mu\text{g}$, H/Ti 값은 1.21139로 추정하였다.

표 13. 티타늄 타겟의 구리 부분 수소 흡장량

Sample ID	Hydrogen	Weight
Cu_1	4.2 ppm	412.7 mg
Cu_2	3.5 ppm	313.7 mg
Average: 3.9 ppm		
Deviation: 0.5 ppm		

표 14. 티타늄 타겟의 구리와 티타늄 박막의 수소 흡장량

Sample ID	Hydrogen	Weight
Ti_Cu_1	11.7 ppm	185.9 mg
Ti_Cu_2	9.0 ppm	146.5 mg
Ti_Cu_3	9.8 ppm	199.6 mg
Ti_Cu_4	8.8 ppm	155.4 mg
Average: 9.8 ppm		
Deviation: 1.3 ppm		

이와 동일한 분석 방안을 통해 티타늄 박막 증착 조건별로 수소 흡장 실험을 진행하였다. 그림 23과 같이 특정 조건에서 증착된 박막의 경우 450 °C에서 수소 흡장이 이루어질 시 박막의 박리현상이 발생하는 것을 확인했다. 50, 200, 300 W 조건에서 박리현상이 관찰되었다. 50 W 조건을 제외한다면 스퍼터링 파워가 커질수록 표면의 벗겨짐 정도가 더 커지는 것을 확인할 수 있으며 이는 앞서 FE-SEM으로 표면을 확인하였듯이, 박막의 균일함이 떨어지며 접착력 또한 부족하여 고온에서 박리 현상이 이루어짐을 예상할 수 있다. 하지만, 50 W의 조건에서 증착된 박막의 경우 낮은 파워로 증착이 되었지만 대부분의 티타늄 박막이 벗겨진 것을 확인했다. 이는 과잉 수소 흡장 반응 시 낮은 공극률로 인해 균열이 발생하고 박리현상이 이루어졌음이 예상된다.

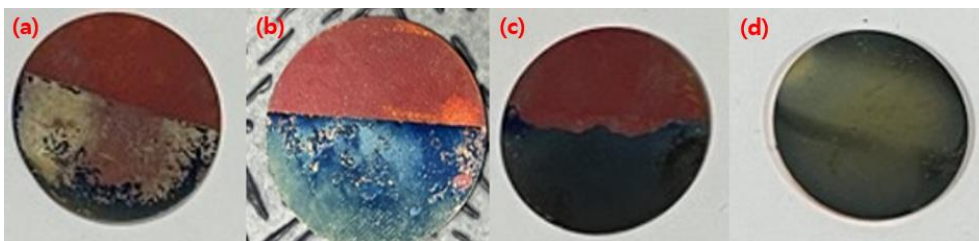


그림 24. 증착 조건 변화에 따른 수소 흡장 시 타겟 표면: (a) 50 W, 300 °C (b) 300 W, 200 °C (c) 200 W, 300 °C (d) 100 W, 300 °C

표 15는 각 박막 증착 조건에 따른 수소 흡장 결과이다. 기존 티타늄 박막의 수소 흡장량 계산은 균일한 1 μm 두께의 티타늄 박막을 가정하였기 때문에 박리현상이 이루어진 300 W, 200 W의 티타늄 타겟의 경우 계산된 H/Ti 값보다 미세하게 높을 수 있다. 50 W의 경우 대부분의 티타늄 박막이 벗겨졌기 때문에 분석이 불가능했다. 100 W, 300 $^{\circ}\text{C}$ 그리고 0 rpm 조건에서 가장 높은 H/Ti 값을 확인하였으며 이를 통해 박막의 품질이 향상될수록 H/Ti 값 증가가 예측된다.

표 15. 티타늄 박막 증착 조건에 따른 수소 흡장 결과

DC Power	Temp.	Rotation speed	H/Ti
300 W	200 $^{\circ}\text{C}$	3 RPM	0.9241
300 W	300 $^{\circ}\text{C}$	3 RPM	1.0450
200 W	300 $^{\circ}\text{C}$	3 RPM	1.1152
100 W	300 $^{\circ}\text{C}$	3 RPM	1.2967
100 W	300 $^{\circ}\text{C}$	0 RPM	1.3572
50 W	300 $^{\circ}\text{C}$	3 RPM	측정 불가
50 W	300 $^{\circ}\text{C}$	0 RPM	

3. 티타늄 박막 중수소 흡장 결과

앞서 수소 흡장 실험과 동일한 방법으로 중수소 흡장 실험을 진행하였다. 표 16은 동일한 방식으로 진행하여 도출한 D/Ti 값이며 기존 H/Ti 값보다 작은 값이 도출됨을 확인했다. 이는 중수소가 수소에 비해 일반적으로 산화막의 영향을 더 많이 받아 동일 조건에서도 흡장량이 다소 떨어지는 것으로 예상된다.

표 16. 최적 박막 증착 조건에서의 중수소 흡장 결과

DC Power	Temp.	Rotation Speed	D/Ti
100 W	300 ° C	0 RPM	1.2113
100 W	300 ° C	0 RPM	1.2461
100 W	300 ° C	0 RPM	1.2521
100 W	300 ° C	3 RPM	1.2101
100 W	300 ° C	3 RPM	1.1994

제 5 장 결론 및 제언

중성자 발생장치 타겟의 수명을 연장시키기 위해서는 높은 수소 흡장량을 갖는 타겟이 필수적이다. 이러한 티타늄 타겟의 흡장량을 높이기 위한 방안으로는 크게 수소 흡장을 위한 최적의 티타늄 박막 제조가 필요하며, 많은 장입이 이루어질 수 있는 최적의 수소와 중수소 장입 공정 과정이 필요하다. 하지만, 국내에서는 타겟의 중수소의 흡장률을 높이기 위한 연구가 진행된 바가 없기에, 티타늄 호일을 이용한 수소 장입 공정에 따른 수소 흡장량 평가 및 티타늄 박막 제작 조건에 따른 수소 흡장량 평가를 진행하였고 최종적으로 가장 최적화된 박막 제작 조건 및 수소 흡장 조건을 적용하여 높은 중수소 흡장량을 갖는 타겟을 제작할 수 있었다. 본 연구에서 도출한 결과를 요약하면 다음과 같다.

1. Geant4 시뮬레이션을 이용한 D-T 타겟을 위한 최적 중수소 이온빔 에너지와 티타늄 타겟 두께를 추정하였다. 120 keV의 중수소 이온빔 입사시 타겟 내의 D-T 반응률이 가장 높았으며, 해당 에너지의 중수소 이온빔 입사시 모든 반응은 1.2 μm 내에서 발생하는 것을 확인하였다. 이에 따라, 티타늄 박막의 두께는 1.2 μm 만 되어도 충분한 중성자 수율을 보일 수 있음을 확인했다.
2. 티타늄 호일을 이용한 수소 흡장 실험을 진행하여, 수소 흡장 공정의 주요 변수로 수소 흡장 온도, 수소 노출 시간이 수소 흡장률이 미치는 영향을 확인했다. 고온 그리고 장시간 노출 시 수소 흡장률이 최대 5배 이상 증가하는 것을 확인했다. 이를 통해 산화막이 급격하게 성장되지 않는 450 °C의 수소 장입 온도와 수소 취화를 막기 위해 12시간의 수소 노출 시간을 최적의 수소 장입 조건으로 선정하였다.

3. 티타늄 박막이 증착되는 구리의 표면 상태에 따른 증착 이후 티타늄 박막의 표면 관찰을 통해, 전처리의 중요성을 관찰하였다. 전처리를 거치지 않은 티타늄 박막의 경우 구리 표면의 상태와 유사하게 박막이 증착되며 높이 차이 또한 $3 \mu\text{m}$ 이상임을 확인하였으며 이는 박막의 박리 현상을 유발한다는 것을 확인하였다. 전처리 과정을 통해 박막이 균일하게 증착됨을 surface profiler로 관찰할 수 있었다.
4. 박막 증착 과정에서 박막의 퀄리티에 영향을 주는 주요한 두 변수는 DC 파워와 기저물질의 온도임을 확인하였다. 두 변수의 조건에 따라 표면을 관찰한 결과, 고온 그리고 낮은 DC 파워로 박막을 증착 시 더 작은 입자 크기와 더 많은 다공성을 갖는 박막이 증착됨을 확인할 수 있었다. 또한, 박막 전체의 저항값을 측정한 결과, 표면 관찰 결과와 동일하게 고온 그리고 낮은 DC 파워로 박막 증착 시 박막에 더 적은 공동들이 존재함을 알 수 있었다.
5. 마지막으로, 박막 증착 조건에 따른 박막의 퀄리티와 수소 흡장률 간의 관계를 확인하기 위해 박막 증착 조건 별로 제작된 박막에 최적화된 수소 흡장 공정을 적용하여 수소 흡장률을 평가하였다. 앞서 표면 관찰과 저항 측정으로 높은 퀄리티의 박막이라 평가된 박막들이 높은 수소 흡장률을 갖는 것을 결과로 확인할 수 있었다.

하지만, 해당 연구에서 가장 높은 박막 퀄리티를 보였던 50 W, 300 °C 조건에서의 박막은 수소 흡장 과정에서 티타늄 박막 박리현상이 발견되었다. 이는 수소의 물질은 취화시키는 특성 때문이며 추후 박리현상을 억제해줄 다른 물질들(텅스텐, 팔라듐)을 overcoating하여 더 높은 수소 흡장률을 갖는 타겟을 제작할 수 있을 것이라 예상된다. 또한, 산화막의 영향으로 인해 같은 레시피를 적용하여도 중수소의 흡장률이 다소 낮았으며 이는 또한 산화를 억제해줄 overcoating 물질을 추가한다면 더 좋은 흡장 결과를 얻을 수 있을 것이라 기대된다.

참고 문헌

- [1] F.M. Penning and J.H. Moubis, "Eine Neutronenrohre Ohne Pumpvorrichtung", Physica 4 (1937) 1190.
- [2] J.B. Hourst, M. Rache and J. Morin, "160 kV, 200 mA dc Accelerator for High 14 MeV Neutron Yield", Nucl. Instr. and Meth. 145 (1977) 19.
- [3] R. Booth, J.C. Davis, C.L. Hanson, J.L. Held, C.M. Logan, J.E. Osher, R.A. Nickerson, B.A. Pohl and B.J. Schumacher, "Rotating Target Neutron Generators", Nucl. Instr. and Meth. 145 (1977) 41.
- [4] M.R. Cleland and B.P. Offermann, "The Dynagen IV – a Compact High-Intensity Neutron Source", Nucl. Instr. and Meth. 145 (1977) 41.
- [5] J.H. Deleeuw, A.A. Haasz and P.C. Stangeby, "Canadian Gas Target Neutron Generator Research", Nucl. Instr. and Meth. 145 (1977) 119.
- [6] Kenji Sumita, "Tritium Solid Targets for Intense D-T Neutron Production and the Related Problem", Nucl. Instr. and Meth. A282 (1989) 345-353.
- [7] 이동녕, 장광수, 서두환, "14 MeV 속중성자발생장치에 대한 연구", 원자력연구소 연구진행보고 (1961) 193.
- [8] 이동녕, 서두환, "150 kV 속중성자발생장치", 원자력연구소 연구연보 3권 (1963) 6.
- [9] 김기현, 서두환, "속중성자 발생 장치에 대한 핵반응 연구", 원자력연구소 연구연보 4권 (1964) 23.
- [10] 최병호, 강희동, "D-T 중성자원의 이용과 개발현", 기술현황분석보고서, 한국에너지연구소, 1983.
- [11] I.J. Kim, N.S. Jung, H.D. Jung, Y.S. Hwang, H.D. Choi, "A D-D Neutron Generator Using a Titanium Drive-in Target", Nucl. Instr. and Meth. B 266 (2008) 829-833.
- [12] 오병훈, "대용량 14 MeV 고속중성자기술 개발: 최종보고서", 한국원자력연구원, 교육과학기술부, 2014
- [13] W.R. Wampler, B.L. Doyle, Gyorgy Vizkelethy, E.S. Bielejec, C.S.

- Snow, J.D. Styron, M.J. Jasica, "14 MeV DT Neutron Test Facility at the Sandia Ion Beam Laboratory", Sandia Report (SAND2019-11308)
- [14] D. J. Malbrough, J.T. Molloy, and R.H. Becker, "Thick Target D-T Neutron Yield Measurements Using Metal Occluders of Scandium, Titanium, Yttrium, Zirconium, Gadolinium, Erbium, Hafnium, and Tantalum at Energy From 25 to 200 keV", No. GEPP-TM-911, General Electric Co., Largo, FL (United States), Neutron Devices Dept., 1990
- [15] Carole Monnin, Pierre Bach, P.A. Tulle, Marc van Rompay, Anne Ballangeret, "Optimisation of the manufacturing process of tritide and deuteride targets used for neutron production", Nucl. Instr. and Meth. A 480 (2002) 214-222
- [16] A. San-Martin and F.D. Manchester, "The H-Ti (Hydrogen-Titanium) System", Bull. Alloy Phase Diagr.:. 1987, 8(1) 30-41.
- [17] J.S. Sheng, L.J. Huai, W.J. Qing, H. Ming, W.S. Yong, Z.H. Tao, Y.S. He, and Z.Y. Gang, "Measurement of Anomalous Nuclear Reaction in Deuterium-Loaded Metal", Chin. Phys. B, 2009, 18(4), 1674-1056
- [18] M.C. Burrell and N.R. Armstrong, "Deuterium Uptake in Titanium Thin Films: the Effect of Oxide, and the Metal (Ti and Fe) Overlayers", Surf. Sci., 1985, 160(1) 235-252.
- [19] J.P. Briand, G. Ban, M. Forment, M. Keddou, and F. Abel, "Cold Fusion Rates in Titanium Foils", Phys. Lett. A, 1990, 145(4) 188-191.
- [20] Y.H. Chang, I. Mouton, L. Stephenson, M. Ashton, G.K. Zhang, A. Szczepaniak, W.J. Lu, D. Ponge, D. Rabbe, and B. Gault, "Quantification of Solute Deuterium in Titanium Deuteride by Atom Probe Tomography with Both Laser Pulsing and High-Voltage Pulsing: Influence of the Surface Electric Field", New J. Phys., 2019, 21, 053025.
- [21] J.F. Fernandez, F. Cuevas, M. Alguero, and C. Sanchez, "Influence of the Preparation Conditions of Titanium Hydride and Deuteride $TiH_x(D_x)$ ($x \sim 2.00$) on the Specific Heat Around the Transition", J. Alloys Compd., 1995, 231, 68-73

- [22] M.S. Anzzorena, A.A. Bertolo, L. Galletti, P.A. Gaviola, M.F. del Grosso, and A.J. Kreiner, "Damage Evaluation of Proton Irradiated Titanium Deuteride Thin Films to be Used as Neutron Production Targets", *Appl. Surf. Sci.* 443 (2018) 68–73.
- [23] C. Monnin, P. Bach, P.A. Tulle, M. van Rompay, and A. Ballanger, "Optimisation of the Manufacturing Process of Tritide and Deuteride Targets Used for Neutron Production", *Nucl. Inst. Methods Phys. Res. A* 480 (2002) 214–222
- [24] S.M. Kabir, "Optimum thickness of tritium–titanium targets for the 150 keV deuterons", *Nucl. Inst. Meth.* 109 (1973) 533–536
- [25] S. Falabella, V. Tang, J.L. Ellsworth, J.M. Mintz, "Protective overcoatings on thin–film titanium targets for neutron generators", *Nucl. Instr. and Meth. A* 736(2014) 107–111
- [26] Satoko, S. and Katsutaka, S., "Influence of Sputtering Parameters on the Formation Process of High–Quality and Low–Resistivity HfN Thin Film", *Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 38* (1999) 2097–2102
- [27] Kah–Yoong, C. and Bee–San T., "Atomic force microscopy (AFM) and X–ray diffraction (XRD) investigations of copper thin films prepared by dc magnetron sputtering technique", *Microelectronics Journal* 37 (2006) 1064–1071
- [28] R. M. Wood, "The Lattice Constants of High Purity Alpha Titanium", *Proc. Phys. Soc.* 80 783
- [29] Fukai Yuh, "The metal–hydrogen system: basic bulk properties", *Springer Science & Business Media*, vol. 21, 2006. pp.9–53

Abstract

A Study on the Fabrication Procedure for a Disk-Type Deuterated Titanium Target for a Neutron Generator

Wonsik Jung

Department of Nuclear Engineering

The Graduate School

Seoul National University

This study aims to present thin film deposition and deuterium adsorption procedure to fabricate neutron generator disk-type targets with high D/Ti values and increase their lifespan. The neutron target consists of a titanium thin film with hydrogen loading, and a copper substrate for heat removal. We optimized the incident deuterium ion beam energy and thin film thickness using Geant4 simulations. Additionally, we calculated the expected neutron yield under the optimized conditions. The hydrogen adsorption conditions were optimized by comparing the H/Ti results as per hydrogen adsorption temperature and loading time using titanium foils of different thickness values. Hydrogen (or deuterium) adsorption ratio is strongly influenced by the surface condition and the deposition conditions of the thin film. A titanium film was deposited according to DC power of the plasma and substrate temperature. The quality of the thin film was evaluated through surface roughness evaluation and thin film sheet resistance for each deposition conditions. Subsequently, the hydrogen adsorption results were compared according to the quality of the thin titanium films, and the thin titanium

film deposition conditions with the highest hydrogen adsorption ratio were confirmed. The selected conditions were applied to conduct deuterium adsorption. In conclusion, this study underscores the critical relationship between thin film quality and hydrogen (or deuterium) adsorption ratio, reinforcing the importance of optimizing thin film deposition parameters for the design of neutron generator disk-type targets with high quality of film and extended lifespan.

Keywords: Neutron generator target
Thin titanium film
Hydrogen adsorption ratio
Deuterium adsorption ratio
Film deposition
Hydrogen adsorption procedure

Student Number : 2021-20461