

CaSO₄:Dy TL 분말의 grain size에 따른 열중성자 측정용
소자(P-KCT306)의 중성자 감도 및 중성자/감마 감도비 변화

Change of the Neutron Sensitivity and Neutron/Gamma Value
of CaSO₄:Dy Thermal Neutron TL Pellet(P-KCT-306) with the
Grain Size

양정선 김두영 김장렬 김봉환 임길성 장시영
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150
방사선 안전관리실

요 약

CaSO₄:Dy 계열 TL 물질은 감마와 베타에 대해서 높은 감도를 보이지만 열중성자에 대한 반응 단면적이 너무 작아 중성자 측정용 소자로는 사용되지 않는다. 최근 한국 원자력연구소는 P화합물을 접착매질로 한 고감도의 CaSO₄:Dy TL 소자(KCT-300)을 개발하였다. 그 후 KCT-300소자를 기반으로 하여 CaSO₄:Dy TL 물질을 이용한 중성자 측정용 소자를 개발하기 위한 연구를 수행하였다. 감마선에 대해 감도가 높은 CaSO₄:Dy TL 분말에 ⁶Li 화합물 같은 열중성자 반응 단면적이 큰 물질을 첨가하여 ⁶Li(n, α)³H에 의해 방출되는 α입자와 ³H입자를 측정하는 방법을 적용하였다.

본 논문에서는 열중성자 반응 물질로 ⁶Li₃PO₄ 화합물을 첨가하여 새롭게 개발한 중성자 측정용 소자(P-KCT-306)의 제작과정과 CaSO₄:Dy TL 분말의 grain size에 따라 P-KCT-306소자의 중성자, 감마 감도 및 중성자/감마 감도비의 변화를 측정한 결과를 제시하였다.

Abstract

CaSO₄:Dy phosphor is known to have very high sensitivity to gamma, but the neutron capture cross section of the constituents of CaSO₄:Dy are so small that the interactions between thermal neutron and the phosphor are rare. So, CaSO₄:Dy TL material cannot be applied to neutron dosimeter in spite of good TL characteristics for beta and gamma radiation. One method to improve the

neutron interaction is by introducing an impurity ion with a large thermal neutron captures cross section into the phosphor to act as a neutron target centre. ${}^6\text{Li}$ has much more sensitivity to thermal neutron than to fast neutron or photons, due to the large cross-section reaction ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$. Thermal neutron is detected indirectly by detecting α -particle and ${}^3\text{H}$. Making this material enriched by ${}^6\text{Li}$ isotopes can further enhance the sensitivity of TL material to thermal neutrons. Recently Korea Atomic Energy Research Institute (KEARI) has developed a new type of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL materials embedded with phosphorous (KCT-300) to detect beta and gamma radiation with a very high sensitivity. This paper presents the development of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL pellets embedded with ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ compound for a thermal neutron measurement(P-KCT-306). And this paper presents the change of neutron sensitivity and neutron/gamma value with grain size of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL phosphors too.

1. 서론

$\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말은 열중성자 반응 단면적이 작아 중성자 측정용 소자로는 거의 쓰이지 않는다. 한국원자력연구소에서는 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말을 이용하여 감마/베타에 대한 고감도의 KCT-300^[1] 소자를 개발한 이후 중성자 측정용 소자의 제작에 대한 연구를 계속하여 수행하였다. 감마선에 대한 감도가 높은 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질을 열중성자 측정용 소자로 제작하기 위해 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말에 열중성자 반응 물질로서 ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 화합물을 첨가하고, 분말만으로는 고형화 되지 못하는 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말의 특성에 따라 접착매질로는 KCT-300과 같이 P 화합물을 첨가한 열중성자 측정용 소자인 P-KCT-306(${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 화합물이 첨가된 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL pellet) 소자를 개발 하였다^[2]. P-KCT-306 소자는 ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ 반응에 의한 α 입자와 ${}^3\text{H}$ 입자가 TL 물질인 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 물질에 의해 측정됨으로써 열중성자 선량을 측정할 수 있다. 이때 방출되는 α 입자의 에너지는 2.05MeV이며, ${}^3\text{H}$ 입자의 에너지는 2.73MeV이다^[3]. 현재까지 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질을 이용한 열중성자 측정용 소자의 개발에 대해 연구가 많은 행해졌지만 실제 상용화 할 수 있을 정도의 감도를 보이면서 고형화 된 소자는 개발되지 못하였다^[4-9].

본 논문에서는 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말을 이용한 P-KCT-306 소자의 제작 과정 및 감도를 측정 한 결과를 제시하였다. 또한 P-KCT-306 소자를 이용해 열중성자를 측정하는 것은 ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ 반응에 의한 α 입자와 ${}^3\text{H}$ 입자의 측정이므로 감마나 베타에 비해 비정규적인 이들 입자의 측정에 있어서 TL 분말의 grain size가 변함에 따라 소자의 열중성자 감도와 중성자/ 감마 감도가 어떻게 변하는지를 실험한 결과를 현재 상용화 되어 널리 쓰이고 있는 TLD-600의 감도와 비교하였다.

2. 실험 및 결과

2.1 P-KCT-306 소자의 제작 및 실험 방법

P-KCT-306 소자의 제작에 쓰이는 $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ TL 분말은 한국원자력연구소에서 자체 제작한 분말이며, P-KCT-306 소자에 첨가되는 열중성자 반응 물질은 ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 화합물을 이용한다. $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ TL 분말의 특성상 접착매질이 없이는 고형화 할 수 없으므로 접착매질로서는 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 를 첨가하여 KCT-300 소자와 같이 P 화합물이 접착매질로 작용하도록 하였다. $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ TL 물질에 열중성자 반응 물질이 처음부터 ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 화합물의 형태로 첨가되는 것이 아니라 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물과 과량의 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 화합물을 첨가하여 ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 화합물이 생성되도록 하였다. 이때 과량 첨가된 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 화합물 중 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물과 반응하여 남은 P 화합물이 접착매질로 작용하게 된다. 첨가되는 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 화합물의 양은 소자의 기계적 강도와 열중성자 감도를 고려했을 때 접착매질로 작용하는 P 화합물의 함량이 20~30wt% 정도일 때가 적당하였다. 본 논문에서 제시한 P-KCT-306 소자의 제작과정 중 $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ TL 분말과 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물, 그리고 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 화합물의 혼합비는 25: 50: 75(wt%)이다. 혼합된 분말은 상온에서 pressing 한 후 고온 전기로에서 540°C에서 20분간 열처리를 거치면 P-KCT306 소자가 된다. Fig. 1은 P-KCT-306 소자의 제작 과정을 간단히 나타낸 것이다.

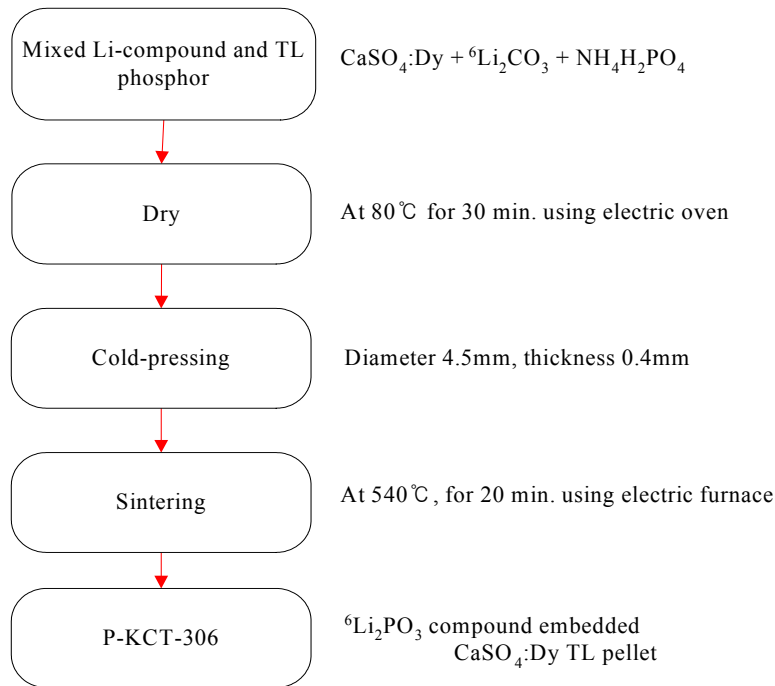


Fig.1. Fabrication processing of P-KCT-306

제작된 P-KCT-306 소자의 열중성자 감도 및 중성자/감마 감도비를 측정하기 위해서 사용한 중성자 선원은 한국원자력연구소가 보유하고 있는 ${}^{252}\text{Cf}$ 선원이며 감마선량을 구분하기 위한 reference 감마 선원으로는 실험실내의 ${}^{90}\text{Sr}$ - ${}^{90}\text{Y}$ 선원을 이용하였다. 중성자 감마 혼합장에서 감마선량을 구분하기 위해서는 열중성자 반응 물질로 ${}^6\text{Li}$ 화합물을 첨가한 P-KCT-306 소자와 열중성자 반응 단면적이 거의 없어 중

성자에 대해서는 거의 반응을 하지 않도록 ^7Li 화합물을 첨가한 P-KCT-307을 제작하여 사용하였다. Fig. 2는 실험에 사용한 한국원자력연구소 중성자 조사시설의 모습이다. ^{252}Cf 선원에 조사된 P-KCT-306 소자는 Harshaw 4500 모델 TLD 판독기를 이용하여 판독하였으며 이때 소자의 TTP(Time-Temperature-Profile)는 120°C에서 6초간 유지하면서 preheating 하여 저온 피크의 영향을 최소화하였고 320°C까지 선형적으로 가열하여 10초간 annealing 하는 조건에 따랐다.



Fig. 2. Neutron source ^{252}Cf Neutron source of KAERI
(with D_2O moderator of 30cm)

2.2 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말의 Grain size에 따른 P-KCT-306소자의 감도변화

$\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말은 KCT-300 소자의 경우 63-100 μm 의 분말을 이용하여 제작할 때 감마 및 베타에 대해 최대의 감도를 보였다. P-KCT-306 소자는 $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$ 반응에 의한 α 입자와 ^3H 입자가 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말에 측정되어 방출되는 TL의 양으로써 중성자 선량을 측정한다. α 입자나 ^3H 입자는 물질 내에서의 감마선이나 베타선에 비해 비정이 짧다. 따라서 비정이 짧은 α 입자나 ^3H 입자가 TL 분말과 반응할 때 TL 분말 입자의 크기가 α 입자와 ^3H 입자의 비정에 비해 클 때 계측 효율이 떨어질 수 있다. 즉 TL 분말의 입자크기에 따라 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말을 이용한 중성자 측정용 소자의 중성자 측정 효율이 달라질 수 있다. Grain size의 변화에 따라 P-KCT-306 소자의 중성자 감도 및 중성자/감마 감도비가 변하는 것을 측정하기 위해 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말을 단계별로 63-100 μm , 45-63 μm , 40-45 μm , 30-40 μm , 20-30 μm , 20 μm 이하의 6가지로 구분하여 앞에서 제시한 방법에 따라 소자를 제작하였다. Fig. 3에 서로 다른 grain size의 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말을 이용하여 제작한 P-KCT-306 소자와 상용화된 TLD 600소자의 ^{252}Cf 선원에 대한 중성자 감도 및 ^{90}Sr - ^{90}Y 감마 선원에 대한 감마 감도, 중성자/감마 감도비 변화의 측정 결과를 나

타내었다. Fig. 3에서 보면 grain size가 작아짐에 따라 중성자 감도와 감마 감도는 감소하지만 실제 중성자 선량 평가에 적용되는 중성자/감마 감도비는 증가함을 알 수 있었다.

그리고 Table 1은 P-KCT-306 소자와 현재 상용화되어 널리 쓰이고 있는 TLD600과 성능을 비교한 결과이다. Table 1에 나타난 것처럼 새로 개발된 P-KCT-306 소자의 ^{252}Cf 선원에 대한 중성자 감도는 grain size에 상관없이 TLD-600 소자의 감도 이상을 보이며 중성자/감마 감도비 역시 TLD-600 이상의 값을 보인다.

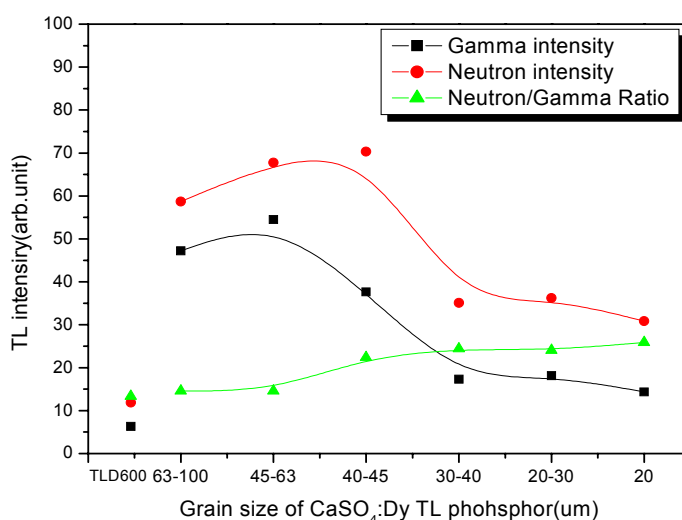


Fig. 3. Neutron and Gamma intensity of P-KCT-306 pellet with grain size of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL phosphors

Table 1. Neutron and Gamma intensity between P-KCT-306 and TLD-600 with grain size of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL phosphors

	TLD-600	P-KCT-306					
		63-100 μm	45-63 μm	40-45 μm	30-40 μm	20-30 μm	20 μm 이하
Neutron	1	2.7	2.93	2.67	1.22	1.25	1.08
Gamma	1	4.15	2.36	2.72	1.15	1.19	0.96
Neutron/ Gamma	1	1.12	1.11	1.71	1.86	1.83	1.97

3. 결론

본 논문에서는 열중성자 반응 단면적이 거의 없어 중성자 측정용으로는 쓰이지

않는 CaSO₄:Dy TL 분말에 열중성자 반응 물질로 ⁶Li₃PO₄ 화합물을 첨가하고 P 화합물을 접착매질로 한 열중성자 측정용 소자 P-KCT-306의 개발에 대해 제시하였다. P-KCT-306 소자는 열중성자를 측정할 때 ⁶Li(n, α)³H 반응에 의해 방출되는 비정인 짧은 α입자와 ³H입자를 측정하게 되는데 이 때의 측정 효율이 TL 분말의 grain size에 따라 변하는 것에 대한 실험 결과를 제시하였다. 개발된 P-KCT-306 소자는 중성자 및 감마 감도가 현재 상용화되어 가장 많이 쓰이고 있는 중성자 측정용 소자인 TLD-600의 감도보다 높은 감도를 보였으며 더욱이, 실제 열중성자 선량 평가에 적용되는 중성자/감마 감도비 값도 TLD-600 보다 높은 값을 보여 성능이 매우 우수함을 알 수 있었다. 본 논문에 제시한 실험 결과를 바탕으로 하여 CaSO₄:Dy TL 분말을 이용한 중성자 측정용 소자의 제작에 있어 최적의 grain size를 선택하고 그에 대한 sintering 조건 및 annealing 조건, 그리고 판독 조건에 대한 추가 실험이 뒷받침 된다면 고감도의 CaSO₄:Dy TL 분말을 이용한 중성자 측정용 소자도 충분히 상용화 할 수 있을 것으로 기대된다.

Reference

1. Jeong-Seon Yang et al. Developmen of Phosphors-compound CaSO₄:Dy (KCT-300) TL pellets. Journal of the Korean Nuclear Society. Vol. 34, No. 2, pp142-145 (2002)
2. 양정선 김두영 김장렬 임길성 장시영. P-KCT-306 중성자 측정용 소자중 ⁶Li 화합물과 P 화합물의 함량 변화에 따른 열중성자 측정감도 변화. 2004 춘계 방사선 방어학회 학술대회. (2004)
3. 고성진 외 3인. 방사선 계측학. 청구 문화사
4. Mayhugh M.R., Watanabe S. and Muccillo R., Proc. Third Int. Conf. Lum. Dosimetry, Riso, Denmark. 3, 1040 (1971)
5. M.D. Morgan,, M. A. Lacombe and T.G. Stoebe. Development of a thermal neutron dosimeter utilizing the CaSO₄:Dy system. Radiat. Prot. Dosim. 6(1-4), 321-324 (1984)
6. K. Ayyangar, B. Chandra and A.R.Lakshmanan. Mixed field dosimetry with CaSO₄:Dy. Phys. Med.Biol. Vol. 19. 5, 656-664 (1974)
7. K. Iga, T.Yamashita, M. Takenaga, Y. Yasuno, H. Oonishi and M. Ikedo. Composite TLD Based on CaSO₄:Tm for γ-rays, X-rays, β-rays and thermal neutron. Health physics Pergamon Press 33, 605-610 (1977)
8. Mutsuo Takenaga. Thermoluminescent Response to thermal neutrons of mixture of CaSO₄:Tm and non-luminous ⁶LiF. Journal of Nuclear Science and Technology, 14(4), 292-299 (1977)
9. J. L. Beach, C. Y. Huang. Mixed Field Dosimetry with CaSO₄(Tm)Li. Health physics Pergamon Press 31, 452-455 (1976)