

CaSO₄:Dy TL 물질에 Li 화합물을 첨가한 중성자 측정용 소자의 제작

Development of Li Compound embedded with CaSO₄:Dy TL pellet for neutron measurement

양정선 김두영 김장렬 임길성 장시영
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

중성자는 항상 감마선과 혼합된 형태로 존재하기 때문에 중성자만을 정확히 측정하는 것은 어렵다. 중성자 측정용 소자는 열중성자에 대한 반응 단면적이 커야하므로 주로 LiF 계열 TL 물질이 이용된다. CaSO₄:Dy TL 물질은 감마선이나 하전입자에 대해서는 감도가 높지만 열중성자 반응 단면적이 매우 작아 중성자 측정용 소자로는 쓰이지 않는다. 그러나 CaSO₄:Dy TL 물질에 ⁶Li 과 같은 열중성자 반응 단면적이 큰 물질을 첨가한다면 중성자 측정용 소자로 제작하는 것이 가능하다. 본 논문은 CaSO₄:Dy ⁶Li₂CO₃와 ⁷Li₂CO₃화합물을 첨가한 중성자 측정용 소자를 제작하고(KCT-306,KCT-307) 개발된 소자에 대해 중성자 감도를 측정된 결과를 제시하였다. KCT-306과 KCT-307은 이미 KAERI에서 개발된⁽¹⁾ 고감도의 KCT-300소자에 기반을 두고 개발되었다. 개발된 KCT-306 소자의 순수 중성자에 대한 감도는 상용화된 중성자 측정용 소자인 TLD-600에 비해 2배의 감도를 보였으며 감마에 대한 중성자 감도의 비(N/V 비)는 TLD-600/TLD-700보다 낮은 값을 보였으나 중성자 측정용 개인선량계로 쓰이기에는 충분한 성능을 보인다.

Abstract

Personal neutron dosimetry is quite a difficult area because a neutron is always accompanied with gamma radiation, which is required of a the capability for mixed field dosimetry. CaSO₄:Dy phosphor is known to have a very high sensitivity to gamma, but the neutron capture cross section of the constituents of CaSO₄:Dy are so small that the interactions between the thermal neutron and the phosphor are rare. 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 such as ^6Li . In neutron-gamma mixed radiation fields, if two detectors for the ^6Li - ^7Li compounds embedded $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL pellets are used, a ^6Li -compound embedded pellet can detect the neutron and gamma radiation together, and the other pellet can only detect the gamma radiation. 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⁽¹⁾. This paper presents the development of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL pellets embedded with ^6Li compound for a thermal neutron measurement, and the detection method of the neutron and gamma dose in mixed fields with $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL pellets embedded with a ^6Li compound(KCT-306) and $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL pellets embedded with a ^7Li compound(KCT-307) is introduced. The net neutron sensitivity of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL pellets embedded with ^6Li compound developed in this study is about 2 times higher than that of the TLD-600 (Harshaw Co.) dosimeter which is available in the open market.

1. 서론

최근 원자력 분야의 활용도가 높아지면서 중성자의 이용 분야도 넓어지고 있는 추세를 보인다. 따라서 개인 모니터링 면에서 감마와 베타선에 대한 모니터링이 주를 이루었으나 점차 중성자에 대한 개인 선량 모니터링의 중요성도 커지고 있다. 일반적으로 중성자는 항상 감마선을 동반하기 때문에 정확한 중성자 선량만을 측정하기는 어렵다. 현재까지 중성자 측정용 개인 선량계물질로는 LiF 계열 TL 물질인 TLD-600/TLD-700($\text{LiF}:\text{Mg},\text{Ti}$) 또는 TLD-600H/TLD-700H($\text{LiF}:\text{Mg}, \text{Cu}, \text{P}$)가 널리 쓰이고 있다. $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 계열 TL 물질은 그 감도가 높아 감마/베타 측정용 개인 선량계로는 쓰이고 있으나 열중성자에 대한 반응 단면적이 작아 중성자 측정용 선량계에는 쓰이고 있지 않다. $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질을 열중성자 측정에 적용하기 위한 방법으로는 Li 화합물과 같은 열중성자 반응 단면적이 큰 물질을 첨가하여 $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$ 반응을 일으켜, 이때 방출되는 α 입자를 측정함으로써 열중성자를 측정하는 방법이 있다. 이런 방법을 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질에 적용하여 중성자 측정용 소자를 개발하기 위한 몇몇 연구가 행해졌으며^(2,7) 중성자 측정용 TL 분말을 개발하기도 하였다. 그러나 연구 결과 개발된 TL 분말들은 감도가 낮으며 소자 형태로 제작되지 못하여서 실제 방사선장에서 이용하기에는 제한적이다. 본 논문은 ^6Li 화합물을 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말에 첨가하여 중성자 측정용 소자의 개발에 대해 제시하였다.

2. 실험 및 결과

2. 1. TL 분말 및 Li 화합물의 결정

본 실험에 이용된 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말은 KAERI에서 자체 제조한 분말이다⁽⁸⁾. 중성자 측정용 소자의 경우는 중성자와 감마를 동시에 측정하긴 하지만 중성자 측정에 더 중점을 두므로 알파 입자에 대한 감도가 커야한다. 비정이 큰 감마선의 경우는 grain size에 상관없이 TL 분말의 부피에 대해 반응을 하고 비정이 짧은 알파입자의 경우는 TL 분말 입자의 표면과 반응을 한다. 이러한 이유로 grain size가 작을수록 감마에 대한 감도는 감소하지만 중성자 측정을 위한 알파입자에 대한 감도는 증가하게 된다⁽⁹⁾. 따라서 일반적으로 감마 베타용 TL 소자인 KCT-300의 경우에는 grain size가 63-100 μm 의 TL 분말을 이용하지만 본 논문이 제시하는 중성자 측정용 소자의 제작에서는 45 μm 이하의 TL 분말을 이용하였다.

열중성자 반응 물질로 첨가하는 6Li 화합물의 종류를 결정하기 위해 여러 가지 화합물을 이용하여 실험한 결과 TL 소자의 기계적 강도 및 glow 곡선의 형태를 고려하였을 때 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 와 ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 의 혼합물이 가장 적합함을 알 수 있었다. $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말과 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물의 혼합물에 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 를 첨가하여 일부의 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 를 ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 로 만든다. 첨가되는 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 의 양은 위의 물질을 증류수로 혼합하였을 때 절반정도의 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물이 ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 로 변할 수 있는 양이다.

2. 2. ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물의 최적 함량 결정

6Li 화합물을 첨가한 소자를 제작하기 위해서는 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물의 최적 함량을 결정해야한다. ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물의 최적 함량은 소자의 중성자 감도 및 감마에 대한 중성자 감도 비(N/v 비)를 고려하여 결정된다. 그림1은 6Li 화합물을 첨가한 KCT-306소자에 대해 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물의 함량 변화에 따른 중성자 및 감마 감도를 측정한 결과이고 그림 2는 N/v 비를 나타내었다. 그림 1에서 보면 중성자 감도는 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물의 함량이 25wt% 가 될 때까지 비례적으로 증가하다가 함량이 25wt%보다 높아지면 급격히 감소한다. 그리고 그림 2에서 보면 순수 중성자 측정에 적용되는 N/v 비는 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물의 함량이 50wt%일때 최고가 됨을 볼 수 있다. 그림 1과 그림 2가 보여주는 결과로부터 KCT-306 소자에 열중성자 반응 물질로 첨가되는 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물의 최적 함량은 50wt%로 결정하였다. 그리고 중성자 감마 혼합장에서 감마 구별을 위해 이용하는 KCT-307 소자에 첨가되는 ${}^7\text{Li}_2\text{CO}_3$ 의 최적 함량은 35wt%로 결정하였다. 35wt%의 ${}^7\text{Li}_2\text{CO}_3$ 이 첨가된 KCT-307소자는 감마에 대한 감도가 50wt%의 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물이 첨가된 KCT-306소자와 같은 양의 감마에 대해 같은 감도를 보인다. KCT-306과 KCT-307의 동일한 양의 감마에 대해 동일한 감도를 보일때 중성자 감마 혼합장에서 순수 중성자 측정이 간단해진다.

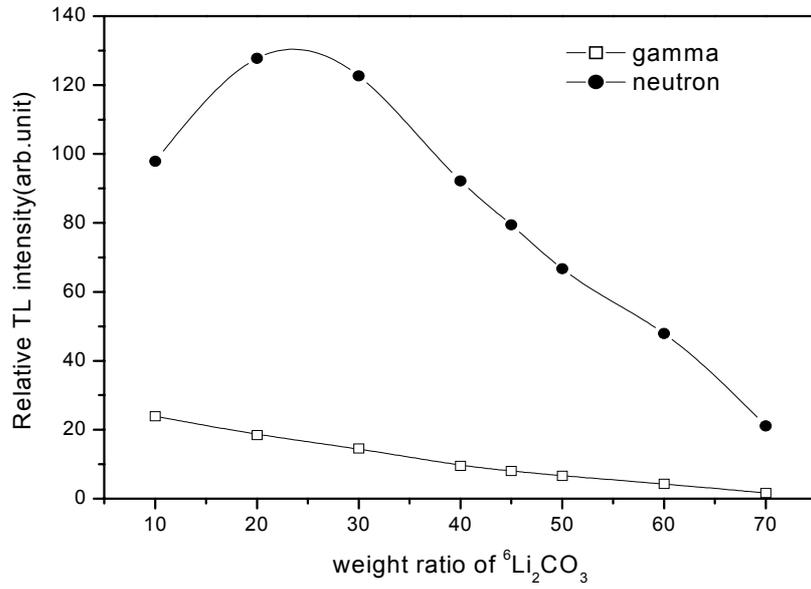


Fig.1. TL response to neutron and gamma of the KCT-306 with weight ratio of ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ compound

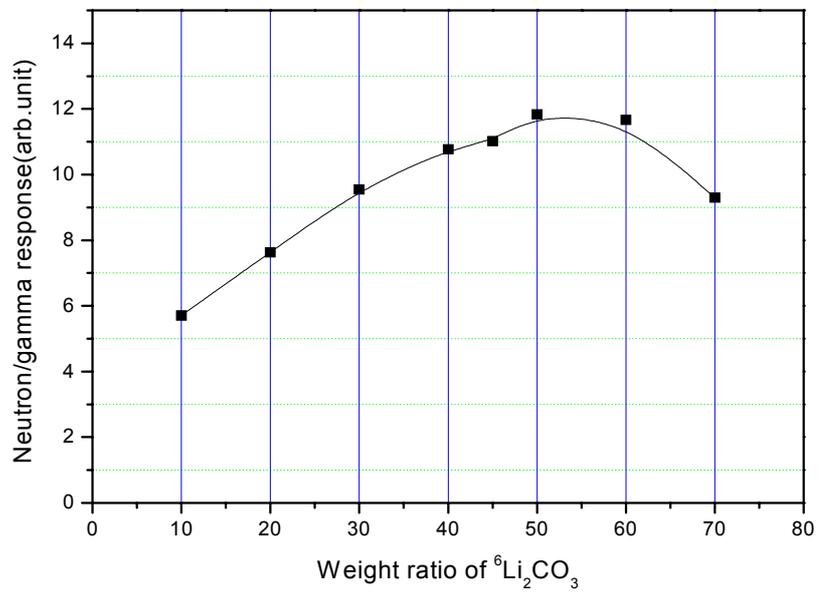


Fig.2. Neutron response to gamma response ratio

3. 소자의 제작 과정

그림 3은 KCT-306 소자의 제작 과정을 간단하게 나타낸 것이다. CaSO₄:Dy TL 분말에 50wt%의 ⁶Li₂CO₃ 화합물과 NH₄H₂PO₄ 화합물을 혼합한 분말은 소량의 증류수를 이용하여 혼합하며 상온에서 압축 성형된다. 소자의 sintering 조건은 소자의 기계적 강도 및 감도를 고려하여 결정된 값이다. KCT-307 소자의 제작 과정도 KCT-306의 제작 과정과 동일하며 단지 ⁶Li₂CO₃ 화합물 대신 ⁷Li₂CO₃ 화합물이 첨가된다.

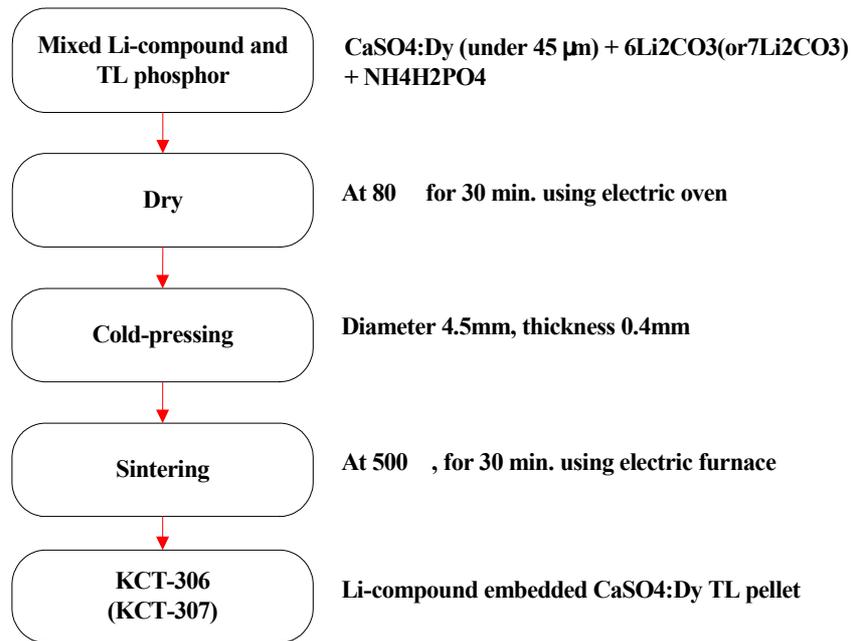


Fig.3.Fabrication processing of KCT-306

그림 4는 새로 개발된 중성자 측정용 소자인 KCT-306 소자와 KCT-300 소자의 발광 곡선을 비교한 것이다. 그림 4에서 보면 CaSO₄:Dy TL 분말을 기반으로 하여 개발된 소자의 경우 중성자에 대해서나 감마에 대해서나 기본적으로 같은 발광 곡선의 형태를 보여주었다.

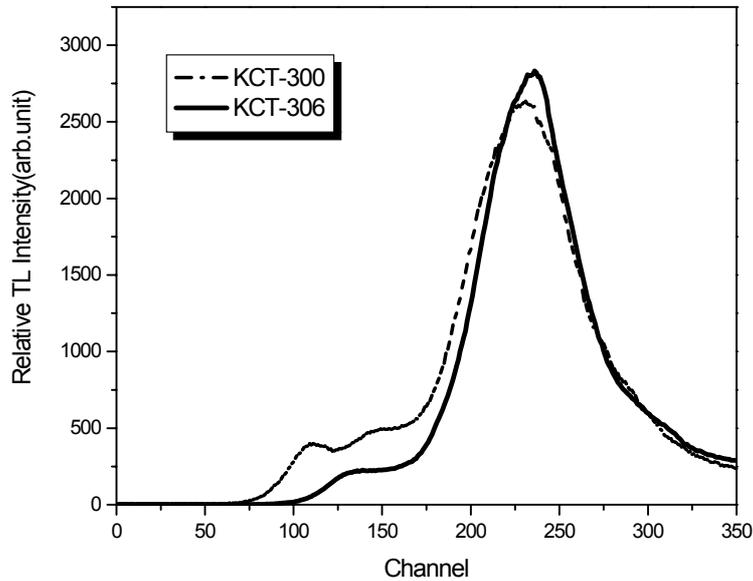


Fig. 4. TL glow curves of KCT-306 to neutron and KCT-300 to gamma

4. 개발된 중성자 측정용 소자의 감도

새로 개발된 KCT-306/KCT-307 소자의 감도를 상용화된 중성자 측정용 소자인 TLD-600/TLD-700(Harshaw.co)과 TLD-600H/TLD-700H(Harshaw.co)와 비교하였다. 중성자 감도 비교를 위해서 이용된 중성자 선원은 한국원자력연구소가 보유하고 있는 D₂O 감속구(15cm dia.)의 ²⁵²Cf 선원이다. 중성자 선원을 이용하여 조사시킨 소자는 Harshaw Model 4500 TLD Reader를 이용하여 판독하였다. 소자 판독 시 TTP(Time-Temperature Profile)는 KCT-306/KCT-307의 경우 125℃에서 6초간 Pre-heating 후 300℃까지 선형적으로 가열 후 8초간 유지하였다. TLD-600/TLD-700와 TLD-600H/TLD-700H의 경우 135℃에서 6초간 Pre-heating 후 TLD-600/TLD-700은 240℃까지, TLD-600H/TLD-700H는 245℃까지 선형적으로 가열 후 8초간 유지하는 TTP를 적용하였다. 본 실험에서 KCT-307과 TLD-700 및 TLD-700H는 중성자 감마 혼합장에서 감마선의 구분을 위해 이용되었다. KCT-307과 TLD-700 및 TLD-700H의 감마선에 대한 감도가 KCT-306과 TLD-600 및 TLD-600H의 동일한 양의 감마선에 대한 감도와 일치하는 경우에는 중성자 감마 혼합장에서 KCT-306과 TLD-600 및 TLD-600H의 감도에서 KCT-307과 TLD-700 및 TLD-700H의 감도를 직접 빼줌으로써 간단히 순수 중성자 감도를 측정할 수 있지만 일반적으로 두가지 종류의 소자의 감마 감도가 다르기 때문에 보정인자를 고려해 준 후 이용한다. 표 1은 개발된 KCT-306/KCT-307과 Harshaw에서 제작되어 상용화된 소자에 대해 ²⁵²Cf 선원을 이용하여 조사시킨

후 중성자/감마 혼합장에서의 감도 및 ^{90}Sr - ^{90}Y 선원을 이용하여 동일한 베타선량을 조사시켰을 때의 감도, 그리고 보정인자를 고려한 KCT-306소자의 감도(γ')와 N/γ 비를 나타낸 것이다.

Table 1. The responses of neutron TL detectors for neutron from a ^{252}Cf neutron source

	$N + \gamma$	γ	γ'	net neutron ($N + \gamma$) - γ	N/γ ratio
KCT-306 (50wt% of ^6Li compound)	61.38	6.01	4.15	57.23	13.79
KCT-307 (50wt% of ^6Li compound)	3.29	4.77			
TLD-600	33.42	1.54	1.56	31.86	20.42
TLD-700	1.17	1.157			
TLD-600H	250.98	29.23	30.98	221.75	7.2
TLD-700H	28.55	26.93			

결론

본 연구를 통한 소자개발의 성과 및 실험 결과는 다음과 같다.

- 1) 감마/베타에 대해서는 감도가 높지만 중성자 반응 단면적이 작은 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말에 중성자 반응 물질로 $^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물을 첨가하여 중성자 측정용 소자인 KCT-306을 개발하였다.
- 2) 개발된 KCT-306/KCT-307 소자의 N/γ 비는 TLD-600H/TLD700H 보다 높고 TLD-600/TLD-700 보다 작은 값을 갖는다.
- 3) 개발된 KCT-306의 순수 중성자에 대한 감도(표 1에서 $(N + \gamma) - \gamma$ 값)는 TLD-600 보다 큰 값을 갖고 TLD-600H보다는 작은 값을 갖는다.

이상의 결과로 보면 KCT-306은 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 분말을 이용하여 개발된 소자 형태로서 중성자 측정용 개인 선량계에 충분히 쓰일 수 있을 정도의 감도를 나타낸다. 그리고 KCT-307과 동시에 이용하여 중성자/감마 혼합장에서 열중성자와 감마선량을 구분해 낼 수 있다.

참고문헌

1. Jeong- seon Yang et al. Development of phosphorus-compound

- CaSO₄:Dy(KCT-300) TL pellet .J. the Korean nuclear society 34, 142-145 (2002)*
2. *Mayhugh M.R., Watanabe S. and Muccillo R., Proc. Third Int. Conf. Lum. Dosimetry, Riso, Denmark. 3, 1040 (1971)*
 3. *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)*
 4. *A. R. Lakshmanan and R. C. Bhatt.) Thermal Neutron Dosimetry with Cadmium Covered CaSO₄:Dy. J. Applied Radiation and Isotopes 28, 665-667 (1977)*
 5. *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)*
 6. *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)*
 7. *J. L. Beach, C. Y. Huang. Mixed Field Dosimetry with CaSO₄(Tm)Li. Health physics Pergamon Press 31, 452-455 (1976)*
 8. *양정선, 김두영, 김장렬, 이정일, 남영미, 장시영 Fabrication and TL Characteristics of CaSO₄:Dy TL Powder. 한국원자력학회 춘계학술대회 (2001)*
 9. *S.S.Shinde and S.S.Shastry, Journal of Applied Radiation and Isotopes. 30, 75-7*