2003 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

고체트랙검출기에 의한 알파트랙 검출특성

Detection Properties of Alpha Tracks by Solid State Nuclear Track Detectors

손세철, 표형열, 박용준, 지광용, 김원호

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

수용액 시료에 포함된 미량의 보론 함량을 분석하는데 적합한 고체트랙 검출기를 선정하기 위하여 알파복합선원 등을 이용하여 검출능력을 비교 검토하였다. 보론의 알파트랙 검출에는 polycarbonate **재질**(Lexan **및** CR-39)**과** cellulose nitrate **재질**(CN-85 **및** LR-115))**의 고체트랙 검출기를 사용하였다. 알파입자 방출물질로는 복합알파선원, 금속 우라늄 입자 및 보론 표준용액을 사용하였다. 본 연구에서는 에칭조건 및 중성자 조사조건 등에 따른 검출기의 특성을 비교하였으며, 실험 결과 보론 정량에는** CN-85 **검출기가 가장 적합한 것을 알 수 있었다. 또한, 선정된 검출기를 이용하여 수용액 매질에 포함된 미량의 보론을 알파트랙 기입방법으로 측정한 실험결과에 대해 검토하였다.**

Abstract

The detection efficiencies of the several solid track detectors were investigated for the determination of boron content in aqueous solution by using the alpha muti-RI source. Polycarbonate (Lexan and CR-39) and cellulose nitrate (CN-85 and LR-115) were selected as materials for alpha track detection of boron. Alpha muti-RI source, uranium metal particles and boron standard solution were used for alpha emission. In this study, four solid track detectors(CN-85, LR-115, Lexan and CR-39) were characterized under various etching conditions as well as neutron irradiation conditions. As a result, the CN-85 was turned out to be best to provide good efficiency among the four detectors. The selected solid track detector was utilized for the determination of trace amount of boron in aqueous sample and its results were discussed in the text.

1. 서 론

열중성자와 반응하거나 ^{238}U의 붕괴 등과 같은 자발적 핵분열에 의해 운동에너지를 갖고 방출되는 알파 또는 핵분열 입자들은 고체트랙 검출기 내부에 침투하여 cone 형태의 알파트랙 또는 핵분열트랙을 생성시킨다.[1] 이와 같은 알파 또는 핵분열트랙을 얻기 위해서는 일반적으로 운모, 유리, polycarbonate 또는 cellulose nitrate 재질의 고체트랙 검출기가 사용된다.[2,3,4] 고체트랙 검출기의 트랙기입 효율은 검출기의 재질 특성에 따라 약간씩 차이가 있는 것으로 알려져 있다. 그 이유는, 이들 고체트랙 검출기들의 화학적 및 물리적 특성이 서로 다르고 방사선에 대한 내성도 각각 다르며 에칭조건에서도 또한 차이가 있기 때문이다.[2]

보론의 안정한 동위원소는 ^{10}B과 ^{11}B으로 자연에서 이들의 존재 비는 각각 19.9%와 80.1%이다. 이들 중에서 ^{10}B의 경우는 열중성자와 $^{10}B(n, \alpha)^7Li$ 반응을 한다. 보론의 이와 같은 중성자 핵반응 특성과 핵분열트랙기입 방법을 동시에 적용하여 미량의 보론을 분석하는데 이용할 수 있다. 즉, 보론이 함유된 시료를 고체트랙 검출기에 부착하고 열중성자를 조사하면, $^{10}B(n, \alpha)^7Li$ 반응에 의해 발생된 알파입자가 트랙검출기를 손상시키게 된다. 알파입자에 의해 손상된 검출기는 광학현미경으로 트랙 관찰이 가능하도록 적절한 농도의 알칼리용액 내에서 에칭과정을 통해 처리한 다음, 알파트랙의 수를 측정하여 보론 농도를 분석하거나 보론 분포도를 측정한다.[5] 이와 같은 분석방법은 생체시료 또는 금속합금을 비롯한 고체 시료에 포함된 보론 분포도 또는 보론 함량 측정에 적용한 예가 주로 보고되어 있으며,[6-9] 수용액 시료에 포함된 미량의 보론 분석에 적용한 연구 결과는 보고 된바가 극히 적다.[10]

본 연구에서는, 여러 가지 검출기 중에서 수용액 시료에 포함된 미량의 보론 함량을 분석하는데 적합한 고체트랙 검출기를 선정하기 위한 실험결과에 대해 검토하였다. 보론의 알파트랙 검출에는 polycarbonate 재질과 cellulose nitrate 재질의 고체트랙 검출기를 사용하였으며, 중성자 조사조건 및 에칭조건 등에 따른 검출기의 특성을 비교하고 보론 정량에 적합한 고체트랙 검출기를 선정하였다. 또한, 수용액 매질에 포함된 미량의 보론 정량에 알파트랙 기입방법을 적용하여 얻은 실험결과에 대해 검토하였다.

2. 실 험

시약 및 재료. 고체트랙 검출기로는 Lexan(한국 GE-plastics, Korea), CR-39(TASTRACK, UK), CN-85(DOSIRAD, France) 및 LR-115(DOSIRAD, France)를 사용하였다. 고체트랙 검출기

의 알파트랙에 대한 검출 특성을 측정하기 위해 금속우라늄 입자(지름 = 10 50 ㎛)와 복합알파선원(^{239}Pu-^{241}Am-^{244}Cm Mixed alpha standard B 860, 1.67×10^{5} alpha particles per minute, Amersham)을 자발적 알파입자 방출 선원으로 사용하였다. 또한, 보론의 핵반응으로 직접 생성된 알파입자에 대한 고체트랙 검출기의 알파트랙에 대한 검출 특성을 비교하기 위해서, 지름이 7 mm인 원형의 여과지(Whatman No. 42)에 보론 표준용액을 점적하여 사용하였다. 알파트랙의 에칭에 사용한 에칭용액은 NaOH(Aldrich, 97%)로 제조하였으며, 보론 표준용액은 ICP-AES용 표준용액(SPEX, 1,000 mg/L, ^{10}B content = 19.8%)을 필요에 따라 1 100 mg/L 농도로 희석하여 사용하였다.

기 기. 고체트랙 검출기 표면상에 나타난 알파트랙을 관찰하기 위해 Optical microscope (LEICA DMLP, MZ6) 및 영상분석 장치를 이용하였으며, 트랙 검출기의 에칭에는 항온수조 장치를 이용하였다. 일부 시편에 대한 중성자 조사에는 한국원자력연구소의 HANARO 연구용 원자로를 이용하였다.

3. 결과 및 고찰

복합알파선원에 의한 알파트랙 검출. 고체트랙 검출기인 CN-85, LR-115, CR-39 및 Lexan을 복합알파선원에 각각 10분간 접촉시킨 다음 NaOH 용액에서 에칭하고 검출기 표면상에 나타난 알파트랙을 광학현미경으로 확인하였다. 우선, 복합알파선원에 각각 10분간 접촉시킨 CN-85와 LR-115 검출기를 60 ℃의 2.5 M NaOH 용액에서 에칭하고 검출기 표면에 생성된 트랙의 형태 및 크기를 광학현미경으로 확인하였다. 그 결과, CN-85 검출기의 경우에는 *Fig*. 1에 나타낸 바와 같이 알파트랙이 트랙검출기 표면상에 다양한 모양을 나타내며 기입되었음을 관찰할 수 있었다. 알파트랙의 모양이 다양하게 나타난 것을 복합알파선원으로부터 방출된 알파입자가 여러 가지 입사각도에서 입사되어 트랙검출기 표면에 기입되었기 때문으로 생각된다. 즉, 알파트랙의 모양이 원형을 나타내는 것은 알파입자가 90°에 가까운 각도로 트랙검출기 표면에 입사된 것으로 보이며, 타원형의 꼬리를 갖는 형태를 보이는 것은 트랙검출기 표면에 사각으로 입사된 알파입자에 의해 생성된 알파트랙으로 판단된다. CN-85 고체트랙 검출기 표면에 나타난 알파트랙은 에칭시간을 길게 할수록 알파트랙의 크기도 약간씩 커지는 경향을 나타냈으며, 트랙의 형태도 점차 선명하게 나타나는 것을 알 수 있었다. 알파트랙의 크기는 에칭시간에 따라 약간씩 차이가 있었으나 전체적으로 2 3 ㎛ 크기를 나타냈으며 1 ㎛ 이하의 크기를 나타내는 트랙은 알파입자에 의해

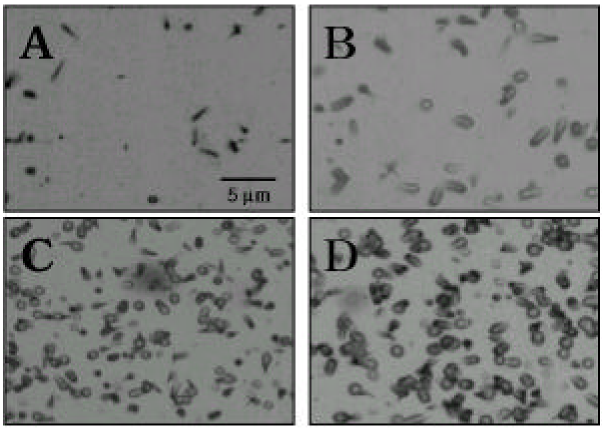

Fig. 1. Alpha tracks on CN-85 detector with various etching times. Etching condition; 2.5 M NaOH, 60℃. Etching time(min); 10(A), 20(B), 30(C), 40(D). Magnification; ×200.

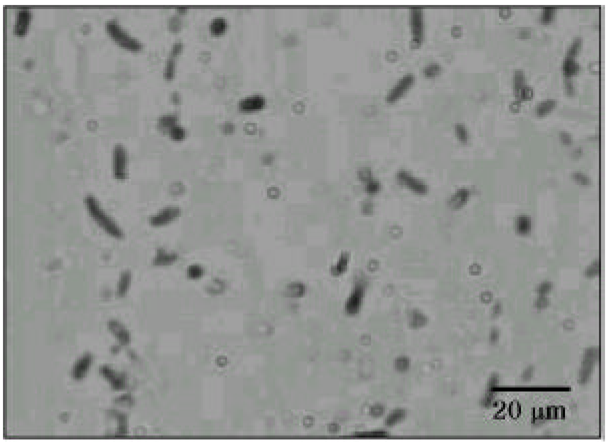

Fig. 2. Alpha tracks on LR-115 solid state nuclear track detector Etching condition; 2.5 M NaOH, 60℃. Etching time(min); 90. Magnification; ×200.

생성된 트랙이기보다는 트랙검출기 자체에서 일어난 반응으로 생성된 바탕트랙인 것으로 생각된다. 복합알파선원에 10분간 조사하고 60 ℃의 2.5 M NaOH 용액에서 에칭한 경우에 나타난 CN-85 검출기의 알파입자 검출특성을 검토한 결과, 에칭시간을 30분으로 하였을 경우에 알파트랙의 크기와 형태를 확인하기가 가장 적합하다는 결과를 얻을 수 있었다. LR-115 검출기를 사용한 경우에도 역시 *Fig*. 2에 나타낸 바와 같이 알파트랙이 트랙검출기 표면상에 다양한 모양을 나타내며 기입되었음이 관찰되었다. 알파트랙의 모양이 다양하게 나타난 것은 CN-85 검출기를 사용한 경우에서와 마찬가지로 복합알파선원으로부터 방출된 알파입자가 여러 가지 입사각도에서 입사되어 트랙검출기에 기입되었기 때문인 것으로 생각된다. LR-115 고체트랙 검출기 표면에 기입된 알파트랙도 역시 에칭시간을 길게 할수록 알파트랙의 크기도 점점 커지는 경향을 나타냈다. 알파트랙의 형태 및 크기를 측정한 결과, *Fig*. 2에 나타낸 바와 같이 에칭시간을 90분으로 하였을 경우가 알파트랙의 확인이 가장 적합하다는 결론을 얻을 수 있었다. 알파트랙이 1 2 ㎛ 이하의 크기를 나타내는 것은 알파입자에 의해 생성된 트랙이기보다는 트랙검출기 자체에서 생성된 바탕트랙인 것으로 생각된다. CR-39와 Lexan 검출기의 경우에도 복합알파선원에 10분간 조사하고 60 ℃의 2.5 M NaOH 용액에서 에칭한 다음 검출기 표면에 나타난 알파트랙을 관찰한 결과, 에칭시간을 3시간이상 길게 하여도 알파트랙을 확인할 수 없었다.

한편, 에칭용액의 NaOH 농도를 진하게 하여 60 ℃의 6.25 M NaOH 용액에서 검출기를 에칭하고 트랙검출기 표면에 나타난 알파트랙의 형태를 관찰한 결과, CN-85와 LR-115의 경우에는 각각 10분과 40분 동안 에칭 한 경우에 광학현미경으로 측정이 가능한 1 ㎛ 크기 이상의 선명한 알파트랙을 확인할 수 있었다. CR-39 검출기의 경우에는 120분을 에칭 한 결과 *Fig*. 3에 보여주는 바와 같은 알파트랙을 확인할 수 있었다. 검출기 표면에 나타난 알파트랙의 모양은 CN-85에 나타난 알파트랙의 모양과 유사하였으나 동일표면적 상에 기입된 알파트랙의 수는 CR-39 검출기의 경우가 상당히 작음을 알 수 있었다. 알파트랙의 크기도 다양한 것으로 나타났으며, 이 역시 알파입자의 입사각도 차이에 의한 것으로 생각된다. 반면에, Lexan 검출기의 경우에는 동일 에칭용액에서 180분 이상 에칭하여도 알파트랙을 확인할 수 없었다. Lexan의 경우에 알파 트랙을 확인할 수 없었던 것은 검출기 자체의 재질이 견고하여 낮은 에너지를 갖는 알파입자가 검출기 표면에 침투하지 못한 결과로 판단된다. 복합알파선원을 이용하여 트랙 검출기의 검출 특성을 비교한 결과, 보론의 알파트랙 검출에는 cellulose nitrate 재질의 검출기가 적합하며, cellulose nitrate 재질 중에서는 LR-115보다 CN-85가 알파트랙 검출에 더 적합하다는 것을 알 수 있었다.

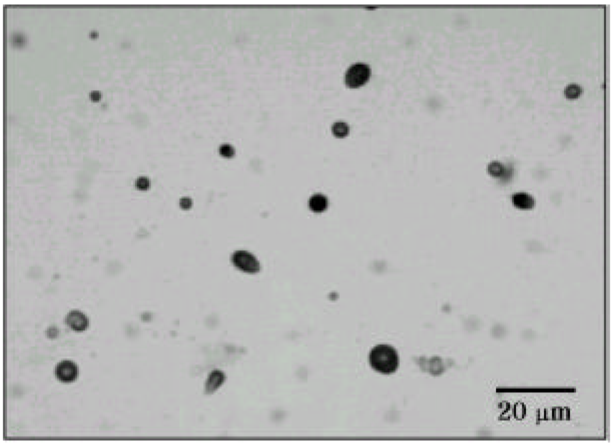

Fig. 3. Alpha tracks on CR-39 solid state nuclear track detector Etching condition; 6.25 M NaOH, 60℃. Etching time(min); 120. Magnification; ×200.

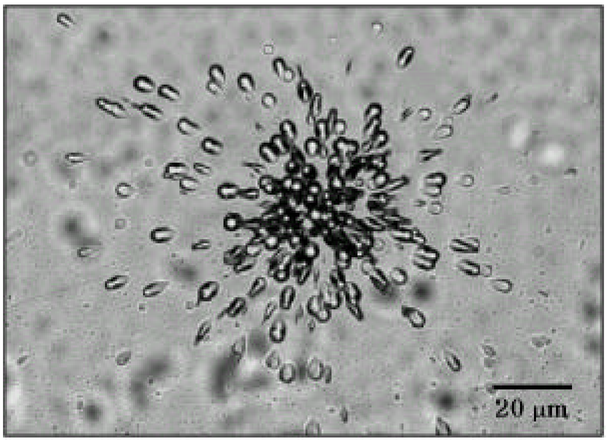

Fig. 4. Alpha tracks produced by uranium metal particle on Lexan detector. Etching condition; 6.25 M NaOH, 60℃, 10 min. Magnification; ×200.

금속우라늄 입자에 의한 알파트랙 검출. Lexan 검출기를 알파입자 방출체인 금속우라늄 입자에 5일간 접촉시킨 다음 60 ℃의 6.25 M NaOH 용액에서 10분간 에칭하고 검출기 표면에 나타난 알파트랙을 광학현미경으로 확인하였다. *Fig*. 4에는 광학현미경으로 확인한 알파트랙을 나타냈다. Lexan 검출기 표면에 나타난 알파트랙의 형태는 알파방출입자를 중심으로 하여 사방으로 알파입자가 기입되었음을 보여주고 있으며 트랙의 중심에서 멀어질수록 트랙의 꼬리 부분이 길어지는 형태를 나타냈다. 또한, 알파트랙의 크기는 트랙의 중심부보다는 외각부분으로 갈수록 점점 작아지는 경향을 나타냈다. *Fig*. 4에서 확인한 결과로부터, 복합알파선원을 이용한 경우에 알파트랙을 감지하지 못한 Lexan 검출기의 경우도 금속우라늄 입자에 접촉하는 경우에는 금속우라늄에서 나오는 알파트랙을 검출할 수 있었다. 이 결과는, Lexan 검출기의 경우도 장시간 알파입자 방출선원과 접촉하는 경우에는 알파트랙의 검출기로 사용할 수 있다는 것을 말해준다.

에칭시간 변화에 따른 트랙검출기 특성조사. 에칭시간 변화에 따른 트랙검출기의 특성을 조사하기 위해 CN-85와 Lexan 검출기를 이용하여 60 ℃의 2.5 M NaOH 용액과 60 ℃의 6.25 M NaOH 용액에서 시간에 따라 에칭하면서 트랙검출기의 무게 변화를 검토하였으며, 그 결과를 *Fig*. 5에 나타냈다. *Fig*. 5에서 알 수 있듯이 CN-85 트랙검출기의 경우에는 6.25 M NaOH 용액

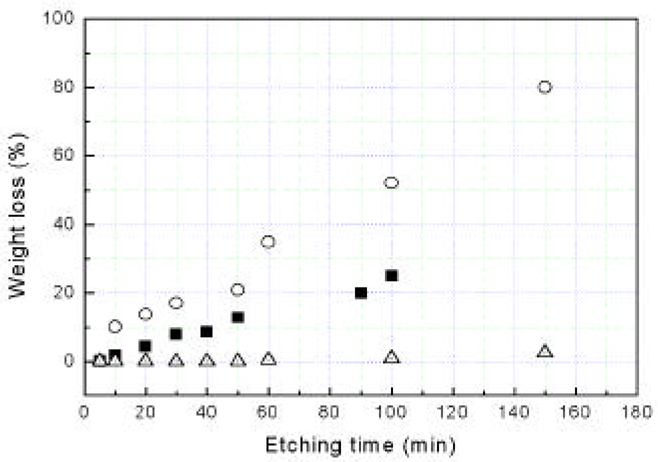

Fig. 5. Weight loss of track detectors as the change of etching times
Etching conditions; (○), (△) = 6.25 M NaOH, 60℃, (■) = 2.5 M NaOH. Detector; (○), (■) = CN-85, (△) = Lexan.

에서 에칭하는 경우가 2.5 M NaOH 용액에서 에칭하는 경우보다 두배 정도 빠른 속도로 에칭되는 것으로 나타났다. 이 결과를 미루어 볼 때, 알파입자의 방출양이 적은 실험조건에서 조사한 경우이거나 보론의 농도가 낮은 시료를 조사한 경우에는 높은 농도의 알카리 용액에서 에칭하는 것이 유리하며 알파입자 방출양이 많은 조사조건이거나 보론의 농도가 높은 시료에 대해서는 낮은 농도의 알카리 용액에서 에칭하는 것이 적합하다는 것을 유추할 수 있다. Lexan 검출기의 경우에는 CN-85 검출기의 경우와는 다르게 6.25 M NaOH 용액에서도 검출기의 에칭속도가 상당히 느려 150분 정도를 에칭해야만 약간의 무게 감소가 일어나는 것으로 나타났다.

중성자 조사에 의한 트랙검출기 특성측정 보론의 농도가 0, 1, 5, 10, 50 및 100 mg/L인 표준용액 10 μℓ를 지름이 7 mm인 일정한 크기의 여과지에 점적하고 CN-85, CR-39 및 Lexan 트랙검출기를 부착한 후 중성자 선속이 $\sim 1\times10^{13}$ n/$cm^2\cdot s$ 인 하나로 원자로에서 10분간 조사하였다. CN-85 검출기의 경우에는 60 ℃의 2.5 M NaOH 용액에서 40분간 에칭한 결과, 검출기가 용해되는 현상이 나타났으며, CR-39 검출기의 경우에도 역시 60 ℃의 2.5 M NaOH 용액에서 10분간 에칭한 결과, 트랙 검출기의 전면이 손상되는 결과를 나타냈다. Lexan의 경우에는 60 ℃의 2.5 M NaOH 용액에서 100분간 에칭한 결과, 트랙 관찰은 불가능 하였으나 재질의 안정성은 가장 좋은 결과를 나타냈다. 한편, 보론의 농도가 0, 10, 50, 100 및 1,000 mg/L인 표준용액 20 μL를 지름이 7 mm인 여과지에 점적하고 CN-85, CR-39 및 Lexan 트랙 검출기를 부착한 후 1분간 중성자 조사하였다. CN-85 검출기의 경우에는 50 ℃의 2.5 M NaOH 용액에서 5분간 에칭한 결과 검출기 표면이 우유 빛으로 변하는 현상이 나타났다. CR-39의 경우에는 50 ℃의 2.5 M NaOH 용액에서 60분간 에칭한 결과 트랙 검출기 전면이 우유 빛으로 변하는 현상이 나타났다. 또한, Lexan의 경우에는 50 ℃의 2.5 M NaOH 용액에서 180분간 에칭 하였으나 트랙이 관찰되지 않는 결과를 나타냈다.

4. 결 론

보론 원자가 열중성자와 핵반응($^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$)을 일으켜 생성되는 알파트랙을 감지를 위해서는, Lexan 또는 CR-39와 같은 polycarbonate 재질보다는 CN-85 또는 LR-115와 같은 cellulose nitrate 재질의 플라스틱 검출기가 우수함을 알았으며, CN-85 검출기의 경우에는 에칭속도를 서서히 진행시키기 위해 50 ℃ 이하의 에칭온도로 2 M NaOH 용액에서 에칭하는 것이 적합하였다. Lexan 검출기의 경우에는 알파트랙을 얻기 위해서는 장시간 알파선원과 접촉이 필요하며, 좀더 빠른 에칭을 위하여 NaOH 용액의 농도는 2.5 M NaOH 보다 진하게 하고 에칭온도도 약간 높여

주는 것이 적합함을 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었으며, 중성자조사에 많은 도움을 주신 하나로 중성자방사화분석실험실 관계자에 감사 드립니다.

참고문헌

1) R. L. Fleischer, *et al*, "Solid state track detectors: Applications to nuclear science and geophysics. A. Rev". Nucl. Sci. 15, 1-28, 1965.

2) R. L. Fleischer, *et al*, "Nuclear Tracks in Solids", Univ. Califonia Press, 1975.

3) T. Tsuruta and M. Yazaki, J. Nucl. Sci. Tech., 14, 816(1977).

4) D. Gabel, I. Hocke, and W. Elsen, Phys. Med. Biol., 28, 1453(1983).

5) Reynaldo Pugliesi, et al, "Characteristics of the solid state nuclear detector CR-39 for neutron radiography purposes" Appl. Radiat.. Isotopes, 50 (1999) 375-380.

6) Z. En, et al, "Use of nuclear track detection technique to study boron and nitrogen distributions in alloys" J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 244, No. 2(2000)435-439.

7) A.A. Qureshi, et al, "Boron determination in tourmaline by neutron induced radiography", Radiat. Meas., 34 (2001) 345-348,

8) S. Kronenberg et al, "Instrument for measuring total alpha particle energies of alpha emitters in ambient air" Nucl. Instr. Meth. A 454 (2000) 520-527.

9) K. OGURA, et al, "Application of CR-39 for alpha-auto-radiography and in vivo detections in tumor bearing mice" Radiat. Meas., 31 (1999) 389-394.

10) Detlef Gabel, " Determination of sub-ppm amounts of boron in solutions by means of solid state track detectors" Phys. Med. Biol., (1983), Vol. 28, No. 12, 1453-1457.