

2003 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

중성자 변환 도핑에서 Co 및 Zr을 이용한 중성자 조사량 측정

Measurements of Neutron Fluence by Using Co and Zr in Neutron Transmutation Doping

김명섭 · 진병진

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

중성자 변환 도핑을 위한 중성자속 모니터로 Co 및 Zr을 사용하여 중성자 조사량을 측정하였다. NTD용 중성자속 모니터로서 여러 시료의 특성을 조사하였으며, 방사화 단면적, 물리적 특성, 방출되는 방사선 등을 고려하여 하나로에서의 NTD에 적합한 시료로 Co와 Zr을 선정하였다. 하나로 NTD 조사공에서 Si 단결정과 Co, Zr을 함께 조사하여 각각으로 측정된 중성자속을 비교하였다. 그 결과, Co로부터 결정된 중성자속의 불확실도는 Zr으로부터 결정된 중성자속의 불확실도 보다 매우 작지만 Co 시료는 Zr 시료보다 취급에 있어 매우 불편함을 확인하였다. Co와 Zr으로 결정된 중성자속의 비를 정한 후, Zr 시료와 이 비율을 이용하여 최종 중성자속을 결정하였다. 이러한 중성자속 결정 방법을 이용하여 목표 조사량에 $\pm 3\%$ 이내로 NTD 조사를 수행할 수 있었다.

Abstract

The neutron fluence is measured by using the Co and Zr as the neutron flux monitor for the neutron transmutation doping. As the neutron flux monitor for NTD, the characteristics of the various samples are investigated, and with considering of radiative capture cross section, physical properties and emitted

radiations, the Co and Zr are selected as the sample for NTD at HANARO. At HANARO NTD irradiation hole, the Co and Zr are irradiated with Si crystal, and the neutron fluxes deduced from each sample are compared. As the result, it is confirmed that the uncertainty of neutron flux deduced from Co is much smaller than that from Zr, but the Co sample is much more inconvenient in manipulation than the Zr sample. After the ratio of the neutron fluxes from the Co and Zr samples is settled, the final flux is determined by using Zr sample and the ratio. By this determination methodology of neutron flux, we can adjust the NTD irradiation to target fluence within $\pm 3\%$.

1. 서 론

중성자 변환 도핑(Neutron Transmutation Doping, NTD)은 고순도의 반도체에 중성자를 조사시켜 n-형 반도체를 얻는 방법이다. NTD는 비저항의 균일도가 매우 높은 반도체를 생산할 수 있기 때문에, 원자료를 이용해야 한다는 제약 조건에도 불구하고, 반도체 산업에서 고유의 영역을 확보하고 있다.

하나로에는 NTD를 위한 2개의 조사공이 있으며 이를 이용한 Si 반도체의 NTD 연구가 진행되어 왔다[1-4]. NTD를 위한 중성자 조사에서 특히 중요한 두가지 요건은 조사되는 단결정 전체에 대한 중성자 균일 조사와[5] 목표 비저항을 정확하게 달성하도록 조사량을 조정하는 것이다. 목표 조사량에 정확히 도달하기 위해서는 조사중에 SPND(self powered neutron detector)로 중성자속을 측정하여 조사 시간을 결정하며, 이를 위해서는 SPND 측정값과 Si 단결정 조사 위치에서의 중성자속 사이의 관계를 정확하게 확정할 필요가 있다. 또한 조사량을 최종적으로 확인하기 위하여 단결정의 각 위치에 중성자속 측정용 시료를 설치하여 단결정과 함께 조사시킨 후 시료의 방사능을 측정하여 조사량을 확인해야 한다. 일반적으로 목표 비저항에 대응되는 목표 조사량의 허용 범위는 엄격한 경우에는 $\pm 3\%$ 에 이르며, 이러한 정확도를 유지하도록 조사가 수행되어야 하므로 중성자속을 정밀하게 측정하는 것이 매우 중요하다.

이에 따라 본 연구에서는 중성자속을 정밀하게 측정하기 위한 시료 무게 측정의 정밀도 확인, 계측기의 효율 검정 등을 수행하였으며, 중성자속 측정용 조사 시료의 종류를 결정하였고, 실제 조사 시험을 통해 중성자속 측정 방법론을 확립하였다.

2. 무게 측정 및 효율 검정

원자료에서 t_r 시간 동안 중성자를 조사시킨 시료를 $t=t_r$ 에 꺼내어 $t=t_r+t_{m2}$ 에 감마선 측정을 시작한 후 $t=t_r+t_{m2}$ 에 측정을 종료하였다면 포화 방사능 A_∞ 는

$$A_\infty = \frac{4\pi}{p\varepsilon\Omega(1-a)} \frac{\lambda G}{(1-e^{-\lambda t_r})(e^{-\lambda t_{m1}} - e^{-\lambda t_{m2}})} \quad (1)$$

가 된다. 여기서,

G : 스펙트럼상의 피크 면적,

p : 각 감마선에 대한 붕괴당 방출 확률(emission probability),

λ : 붕괴 상수(decay constant),

ε : 고유 효율(intrinsic efficiency),

Ω : 입체각 (solid angle-steradian),

a : $\frac{T-L}{T}$ (T: true time , L: live time)

이며, 따라서 적분 열중성자속은

$$\phi_{th} = \left(1 - \frac{1}{R_{Cd}}\right) \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{A}{bwN_a g_w \sigma_{th}} A_\infty \quad (2)$$

와 같다. 여기서,

g_w : Westcott g-factor,

σ_{th} : kT에서의 중성자 방사화 단면적,

R_{Cd} : Cadmium ratio,

b : 원소 존재비(abundance),

w : 시료의 질량(g),

N_a : 아보가드로수,

A : 시료의 원자량

을 각각 나타낸다. 윗 식으로부터 알 수 있듯이 중성자 조사량을 정확하게 측정하기 위해서는 감마선 스펙트럼의 면적, 계측 효율, 시료의 질량 등을 정확하게 결정해야 하고, 존재비, 단면적 등 기초 자료의 불확실도가 작아야 한다.

고출력 조사 시험의 경우 사용할 수 있는 시료의 질량이 매우 작기 때문에 시료 무게 측정의 오차가 전체 조사량 측정에 미치는 영향이 매우 크다. 이에 따라 현재 사용이 가능한 정밀 저울에 대해 무게 측정의 정밀도를 확인하였다. 이를 위하여 수백 μg 정도의 시료 여러 개의 무게를 각각 측정한 후, 이들의 개수를 누적해 나

가면서 측정된 결과와 각각 측정된 결과의 합을 비교하는 방법을 사용하였다. 사용된 저울은 METTLER TOLEDO 사의 MT5로서 Readability는 1 μg , Repeatability는 0.8 μg , Linearity는 $\pm 4 \mu\text{g}$ 이다. 여러 시료의 무게를 각각 측정된 경우와 이들의 개수를 누적해 나가면서 측정된 결과를 그림으로 나타내면 그림 1과 같다. 그림에서 알 수 있는 바와 같이 100 mg 정도의 무게까지 두 결과의 선형성이 잘 유지된다. 따라서 수백 μg 영역과 그 이상의 무게 측정 영역에 대한 저울의 측정 bias는 없는 것으로 판단되며, 이에 따라 100 mg까지의 무게 측정에서 신뢰성을 확인하였다.

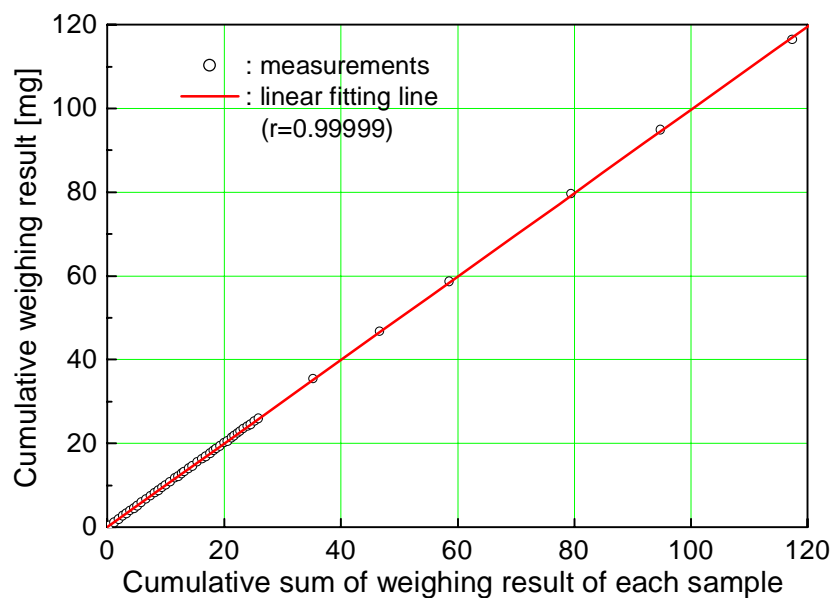


그림 1. 각 시료 무게의 누적 합과 시료를 누적하여 측정된 무게와의 비교.

방사화 시료의 감마선 측정에 사용한 HPGe 검출기는 상대 효율이 15 %인 closed-ended coaxial 형 검출기이며, 절대 방사능은 상대적으로 간편한 방법인 표준 선원을 이용한 효율 검정 방법을 이용하여 측정하였다. Eu-152 및 Co-60을 이용하여 측정된 절대 효율과 이를 이용해 구한 검정 곡선은 그림 2와 같다.

그림에서 Eu-152로 측정된 절대 효율이 Co-60으로 측정된 절대 효율보다 약간 작게 나타남을 알 수 있는데 이는 여러개의 감마선을 동시에 방출하는 Eu-152의 동시 중첩 효과 때문으로 생각된다[6].

효율 검정 곡선은 p-형 검출기에 대해 최적화된 아래와 같은 fitting식을 사용하였다[7],

$$\varepsilon = \exp \left(\sum_{i=1}^6 c_i E^{2-i} \right) \quad (3)$$

여기서 ε 는 에너지 E (MeV)에서의 효율을 나타낸다. 효율 측정의 오차에 가장 큰 영향을 주는 것은 표준 선원의 초기 방사능의 오차로서 1.2 %이내이다.

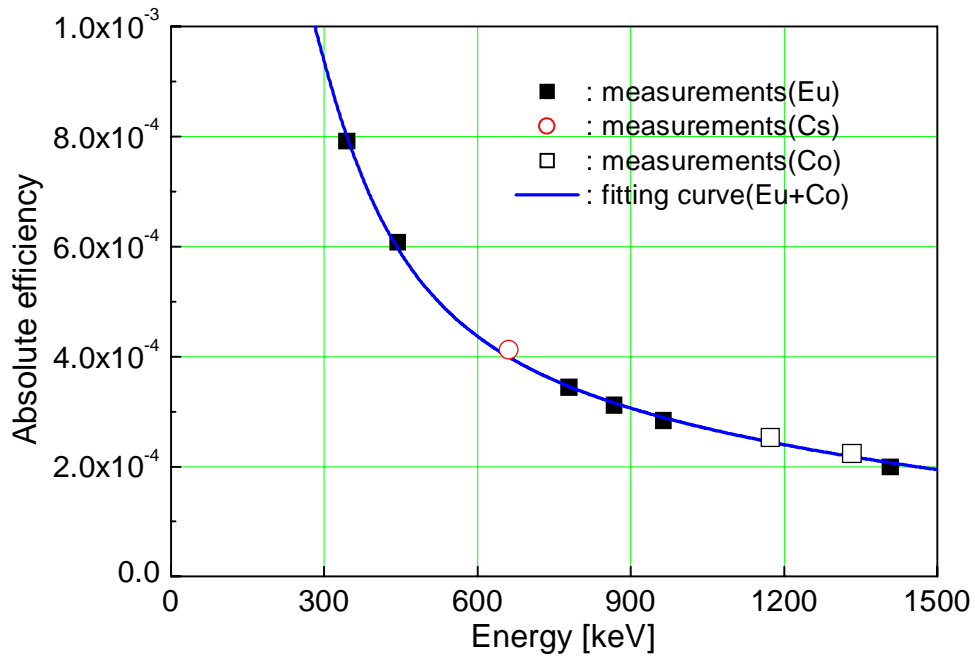


그림 2. 선원과 검출기사이의 거리가 245 mm일 때, 감마선 에너지에 따른 효율 검정 곡선.

3. 중성자속 측정용 방사화 시료의 선택 및 특성

하나로 NTD 조사공에서 조사량을 측정하기 위한 방사화 시료의 요건은 아래와 같다.

1. 중성자 에너지에 따른 흡수 단면적 변화 경향이 Si-30과 비슷하여야 한다.
2. 조사 시간에 비하여 반감기가 충분히 길어서 조사량과 방사능의 비례 관계가 어느 정도 유지되어야 한다.
3. 물 속에서 안정하여야 한다.
4. 조사후 방사능이 측정에 적절한 조건이 되는 무게를 정밀하게 측정할 수 있어

야 한다.

5. 절대 방사능 측정을 쉽고, 정확하게 할 수 있어야 한다.

6. 핵적, 물리적 자료의 불확실성이 작아야 한다.

열중성자 측정용으로 사용할 수 있는 여러 가지 방사화 시료에 대해 위와 같은 조건을 고려하여 하나로 NTD 조사에 사용할 수 있는 지를 검토한 결과, 반감기와 방사화 단면적을 고려하여 선정된 시료는 저출력 실험에서는 Au, 고출력 실험에서는 Co, Fe, Zr 등이며, 이중 Fe의 경우에는 물에 접촉하여 산화되는 문제와 함께 측정에 사용하는 Fe-58의 존재비에 대한 불확실성이 커서 사용하지 않기로 하였다. Zr은 안정된 모니터로 파악되었으나 계측 효율 교정과 관련된 정밀 분석이 필요하였다. 고출력 조사에 적용될 각 시료의 방사화 특성은 표 1과 같다[8].

표 1. NTD용 중성자속 모니터로 사용될 시료의 성질.

Isotope	Abundance [%]	Radiative capture cross-section			g-factor	Induced activity	Half-life
		at 0.0253 eV	Max. avg. at 0.0253 eV	Resonance integral			
Co-59	100	37.18 b	32.96 b	75.51 b	1.0005	Co-60 (Co-60m)	5.28y (10.4m)
Zr-90	51.45	11.12 mb	9.862 mb	173.6 mb	1.0003	Zr-91	stable
Zr-91	11.22	1.247 b	1.106 b	6.943 b	1.0003	Zr-92	stable
Zr-92	17.15	229.2 mb	203.2 mb	713.9 mb	1.0003	Zr-93	1.53×10^6 y
Zr-94	17.38	49.81 mb	44.16 mb	320.7 mb	1.0003	Zr-95	64.02 d
Zr-96	2.80	22.80 mb	20.22 mb	5.863 b	1.0007	Zr-97	16.90 h

NTD에서 핵변환 도핑에 사용되는 원소인 Si-30의 방사화 단면적은 1~10 keV 사이에 두 개의 공명 흡수 피크가 있을 뿐이고, 100 keV까지 1/v 특성을 갖는다. 따라서 Si-30에 조사되는 중성자의 조사량을 평가하기 위해서는 시료가 높은 에너지까지 1/v 특성을 가지는 것이 좋다. Co-59는 10 eV까지 1/v 특성을 가지며, 하나로 NTDII 조사공에서 10 eV 이상의 에너지를 갖는 중성자속은 매우 작기 때문에 Si-30의 중성자 흡수량을 잘 예측할 수 있다고 판단된다.

Co-59의 중성자 방사화 반응은 $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$, $^{59}\text{Co}(n,\nu)^{60}\text{Co}$ 와 같은 두 종류가 있으며, 이 두 반응에 의해 발생하는 Co-60의 냉각 시간에 따른 방사능은 그림 3, 4와 같다. 그림에서 근사로 나타낸 것은 준안정 상태의 반감기보다 매우 긴 시간 후의 방사능 근사값이다.

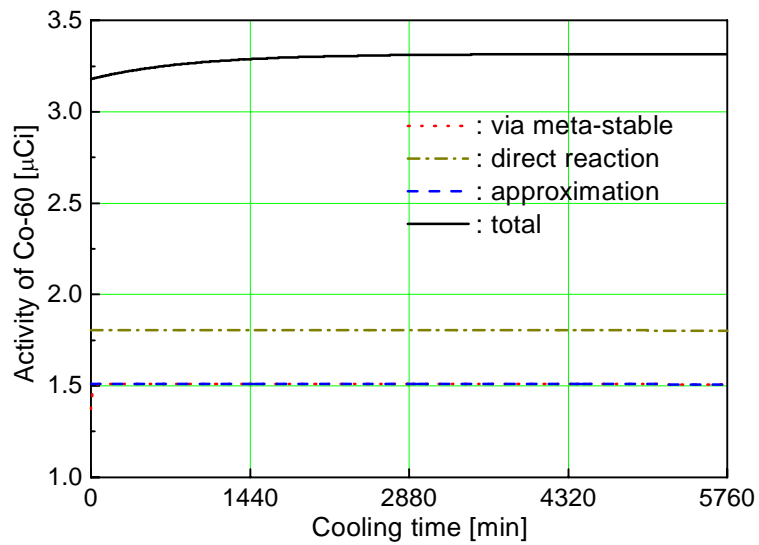


그림 3. 냉각 시간에 따른 Co-60 방사능.

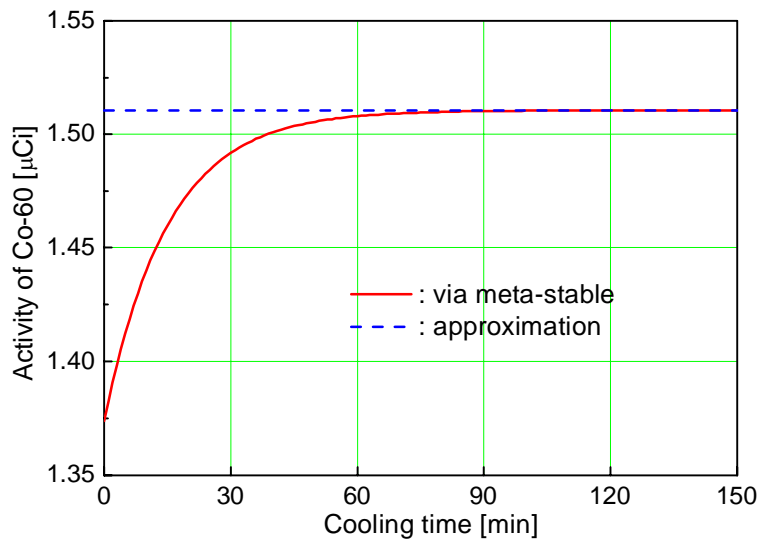


그림 4. 준안정 상태 반응에 의한 Co-60 방사능.

그림에서 알 수 있는 바와 같이 조사가 끝난 뒤 2시간 정도 지나면 Co-60의 방사능만을 측정하여 조사량을 결정할 수 있다.

Co를 실제 조사 시험에 이용할 수 있는 시료로는 순수한 Co와 Al에 미량의 Co를 섞어 희석시킨 두 가지가 있으며, 둘 다 물 속에서 안정하다. 희석시킨 제품의

경우에는 공급자가 보증하는 희석률에 오차가 있는 경우에는 이에 의한 측정 오차를 극복할 수 없다. 따라서 순수 Co wire를 이용하는 것이 유리하다. 0.05 mm의 직경을 갖는 Co wire를 사용하는 경우 절대 방사능 측정에 적합한 10 μ Ci의 방사능을 얻기 위해서는 길이가 3 cm 정도되며, 이의 무게는 약 0.5 mg으로 예상된다. 이 정도의 무게 측정은 앞에서 살펴본 바와 같이 큰 오차없이 가능하다. 그러나 0.05 mm의 직경을 갖는 Co wire를 실제 측정에 사용해본 결과 무게 측정 과정 및 조사 준비, 조사 후 시료 회수 및 방사능 측정 등에서 취급이 매우 어려웠다. 직경이 0.381 mm인 Co wire는 0.05 mm wire보다는 취급이 용이하였으나 대량으로 사용하기에는 여전히 취급상의 문제가 있고, 자체 흡수 효과도 검증해야 한다. 또한 Co-60은 반감기가 5년 이상으로 매우 긴 편이어서 조사 후 폐기되는 시료의 처리도 어렵다. 이에 따라 방사화 단면적이 매우 작아 시료의 질량을 크게 유지할 수 있고 위에서 언급한 시료의 조건에 부합되는 시료로서 Zr을 선정하였다.

Co-60의 경우 계측되는 두 감마선 피크의 분석에 그 동안 많은 경험이 축적되어 있지만 Zr을 중성자속 측정용 시료로 사용하는 경우는 거의 없기 때문에 Zr의 방사화 특성을 정확히 조사하는 것이 중요하다. Zr의 경우에는 표 2와 같은 여러 핵종에서 방출되는 여러 감마선이 계측되는데 Zr-97과 Nb-97에서 방출되는 743, 658 keV 감마선이 조사 후 이른 시간 내에 계측이 수행되는 경우 가장 큰 피크가 되지만 743 keV 감마선 피크에 Zr-97과 Nb-97 붕괴시 방출되는 감마선들이 중첩되므로 분석 대상으로 적합하지 않다. 따라서 Zr으로 중성자속을 결정할 때는 Zr-95에서 방출되는 724, 757 keV 감마선 피크를 이용하는 것이 바람직하다. 그러나 724 keV 감마선 피크는 주변에 Nb-97에서 방출되는 720 keV 감마선 피크가 중첩되어 나타나므로 이의 영향에 대한 분석이 필요하다.

Zr은 상대적으로 큰 질량의 시료를 사용할 수 있으므로 사용이 편리하고 조사 후 생성 핵종의 반감기도 짧기 때문에 시료의 재사용도 가능하지만 각 동위원소 존재비, 반응 단면적 등 핵 자료의 불확실성이 Co 보다 매우 큰 편이다. 따라서 Co와 Zr을 NTD 조사공의 동일 조사 조건에서 조사시켜 Zr으로 구한 중성자속을 Co로 검정한 후 이를 Si에 조사되는 중성자 조사량을 구하는데 사용하는 방법을 도입하였다. 이 과정에서 중성자속 결정의 오차가 증가하지만 허용할 만한 수준으로 예상되었다.

표 2. Zr-95, Zr-97 및 딸핵종의 감마선 방출 특성.

Nuclide	Half-life	Main gamma-ray energy (keV)	Emission probability (%)	Daughter				
				Nuclide	Half-life	Main gamma-ray energy (keV)	Emission probability (%)	Daughter
Zr-95	64.02d	724.199	44.12	Nb-95 (99.20%)	34.975d	765.807	99.81	Mo-95 (stable)
		756.729	54.46	Nb-95 (0.8%)	86.6h	235.69	26.14	Nb-95
Zr-97	16.91h	743.36	93.06	Nb-97 (5.30%)	72.1m	657.94	98.44	Mo-97 (stable)
		507.64	5.025	Nb-97m (94.70%)	52.7s	719.53	9.057	Nb-97
		1147.97	2.615			743.4	100	

4. Co, Zr 시료를 이용한 중성자속 측정

두께 0.005 인치(0.127 mm) Zr 박막 15.522 mg과 0.381 mm 직경의 Co wire 0.379 mg을 NTD2 조사공의 동일 위치, 동일 조건에서 조사시켰을 때 두 시료의 감마선 스펙트럼은 그림 5, 6과 같다. 조사 시간은 18076초이며, 선원과 검출기간의 거리는 약 25 cm이다. 감마선 계측 자료는 표 3과 같다.

표 3. Zr-95, Co-60의 감마선 계측 자료.

Nuclide	Gamma-ray energy (keV)	Collection Time (sec)		Cooling time (sec)	Peak area
		Live	True		
Zr-95	724	4700	5070.70	73024	50472
	757				59982
Co-60	1173	1200	1297.28	83674	90865
	1332				81143

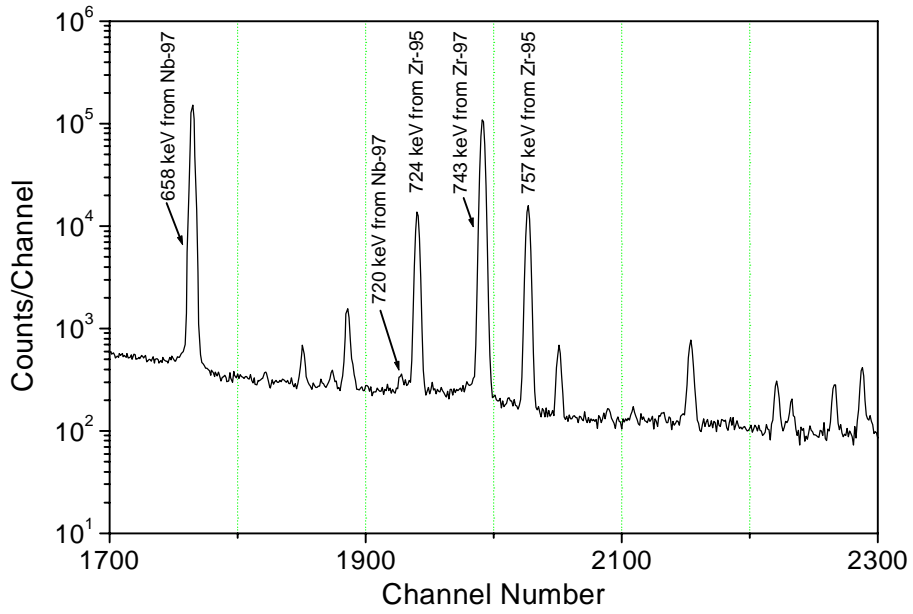


그림 5. Zr 시료로부터 방출되는 감마선 스펙트럼.

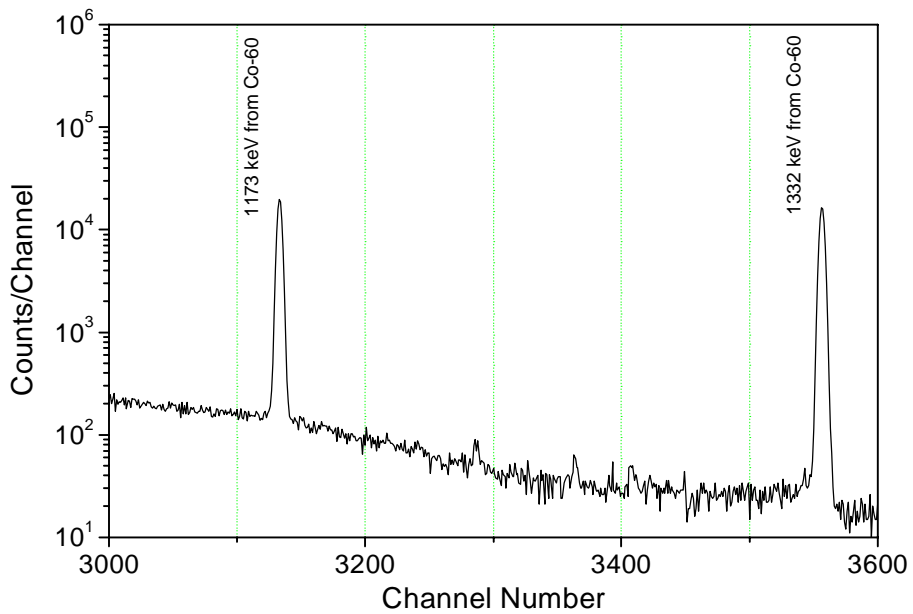


그림 6. Co 시료로부터 방출되는 감마선 스펙트럼.

표 3에서 알 수 있는 바와 같이 두 시료의 계측시 불감 시간을 7~8 % 수준으로 유지시키면서 동일한 피크 면적을 얻기 위한 계측 시간의 차이는 약 6배이다. 따라

서 감마선 계측의 통계 오차를 0.5 % 이하로, 계측 시간을 2400 초 정도로 유지하기 위해서는 동일한 조사 시간에서 시료의 질량이 두 배 가량 커져야 하는데 이 경우에는 계측시 불감 시간이 10 %를 넘게 되어 무작위 중첩 효과에 의한 피크 면적 감소를 무시할 수 없게 된다.

그림 7은 2400 초의 계측 시간 동안 Zr-95 724 keV 감마선 피크가 54,000 정도가 되도록 조사시킨 시료의 감마선을 냉각 시간에 따라 여러 번 측정하여 불감 시간의 변화 경향을 구한 그림이다.

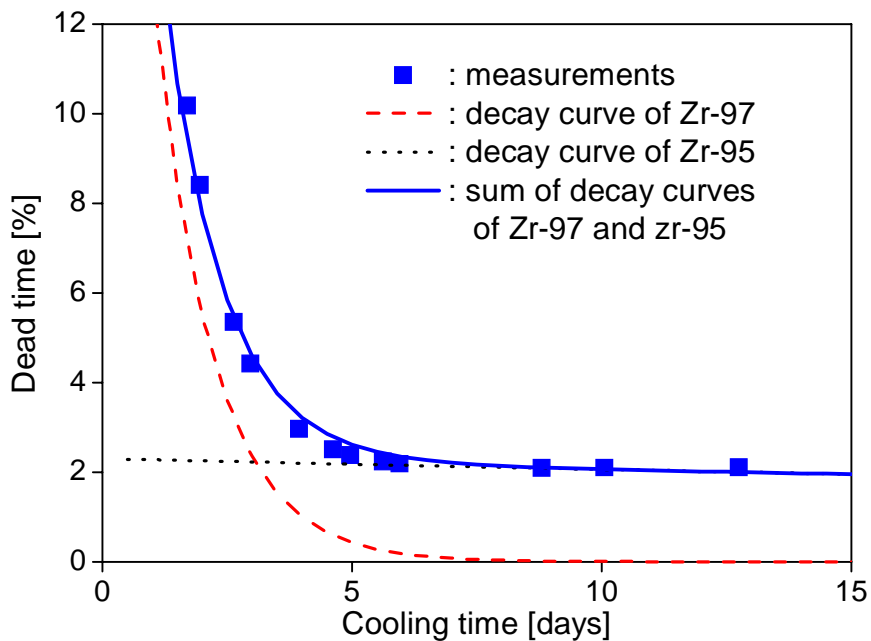


그림 7. 냉각 시간에 따라 측정된 Zr 시료의 불감 시간.

그림에서 알 수 있는 바와 같이 냉각 시간이 5일 이내인 경우에는 불감 시간에 기여하는 감마선은 주로 Zr-97의 붕괴에 의해 발생하며, 50 시간 정도 지나면 불감 시간이 8 %이내가 되어 측정에 적합함을 알 수 있다.

표 4는 하나로 NTD 조사공에서 Si 단결정을 조사시킬 때 Co와 Zr을 동일 조건에서 함께 조사시켜 구한 적분 중성자속을 나타낸다. 원자로 출력은 24 MW이다.

표에서 알 수 있는 바와 같이 Zr으로 측정된 중성자속은 0.381 mm 직경의 Co-wire로 측정된 중성자속보다 18.39~20.19 % 크게 나타났고 0.05 mm 직경의 Co-wire로 측정된 중성자속보다는 15.21~16.67 % 크게 나타났다. Co-wire의 직경에 따른 차이는 Co의 자체 흡수 효과 때문이다. Co의 경우 지름 0.05 mm wire와 0.381 mm 두 wire의 자체 흡수 효과를 조사하기 위해 두 wire를 원자로의 동일한

지점에서 동시에 조사시켜 각각의 중성자속을 계산한 결과, 0.05 mm 직경의 wire를 사용한 경우가 0.381 mm 직경의 wire를 사용한 경우보다 중성자속을 1.04941배 높게 평가함을 알 수 있었다. Zr 박막의 경우 자체 흡수 효과는 무시할 만하다.

표 4. Co와 Zr을 동일 조건에서 함께 조사시켜 구한 적분 중성자속.

Date	Neutron flux from Co ^{a)} [n/cm ² sec]		Neutron flux from Zr ^{b)} [n/cm ² sec]	b/a
	Co wire with ø=0.381 mm	Co wire with ø=0.05 mm		
2002/7/16	3.223×10 ¹³		3.815×10 ¹³	1.184
8/9	3.217×10 ¹³		3.847×10 ¹³	1.196
8/13	3.164×10 ¹³		3.803×10 ¹³	1.202
11/6		3.105×10 ¹³	3.577×10 ¹³	1.152
11/8		3.118×10 ¹³	3.638×10 ¹³	1.167
11/12		3.142×10 ¹³	3.654×10 ¹³	1.163

Zr으로 측정된 중성자속이 Co로 측정된 중성자속보다 큰 이유는 Zr-94의 존재비 및 중성자 단면적의 불확실성이나 중성자 방사화 단면적 가운데 고속중성자에 의한 방사화 비율이 Co보다 Zr이 매우 크기 때문으로 생각되며, 현재 정밀 분석중이다.

그림 8은 냉각 시간의 변화에 따른 Zr을 이용하여 측정된 2200 m/s 중성자속의 변화 경향을 나타낸다. 그림에서 알 수 있듯이 8일 이내의 측정값은 그 이후의 측정값에 비해 약 0.3 % 정도 낮게 나타나는데 이는 계수율의 효과 또는 Zr-95의 724 keV 감마선 피크 분석시 영향을 주는 720 keV 피크 때문이라고 생각된다. 724 keV 피크는 냉각 시간이 수일이 지나면 무시할 정도로 작아진다.

이러한 영향에도 불구하고 Zr 박막을 이용하여 측정된 중성자속은 그림에서 알 수 있듯이 ±0.5 % 이내로 재현되었으며, 감마선 측정의 통계 오차 수준이었다. 따라서 표 4에서 구한 Co로 측정된 중성자속의 비율을 이용하면 Si에 조사되는 중성자 조사량을 정확하게 예측할 것이라 생각된다. 조사량 예측의 오차는 Zr, Co의 효율 검정 오차를 포함해서 1.8 %이내가 된다.

위와 같이 결정된 중성자속과 조사 시간을 이용하여 Si에 조사된 중성자의 조사량을 결정하였으며, 조사된 Si 반도체의 비저항을 측정한 결과 중성자 조사량이 목표 조사량에 ±3 % 이내로 잘 일치함을 확인하였다.

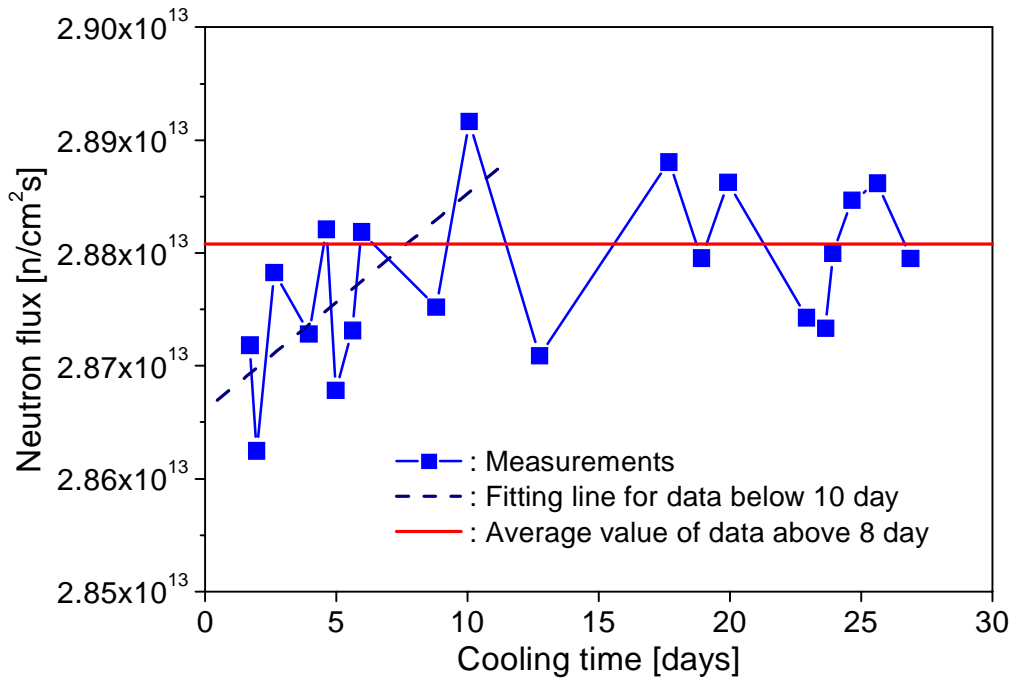


그림 8. 냉각 시간의 변화에 따른 Zr을 이용하여 측정된 중성자속의 변화 경향.

5. 결 론

중성자 변환 도핑을 위한 중성자속 모니터로 Co 및 Zr을 사용하여 중성자 조사량을 측정하였다. 하나로 NTD용 중성자속 모니터로 선정된 Co 와 Zr을 이용하여 중성자속을 정밀하게 측정할 수 있는 방법론을 확립하였으며, 조사량 예측의 오차는 Zr, Co의 효율 검정 오차를 포함해서 1.8 %이내이다. 이러한 중성자속 결정 방법을 이용하여 목표 조사량에 $\pm 3\%$ 이내로 NTD 조사를 수행할 수 있음을 확인하였다.

참 고 문 헌

1. 김현준 외, “중성자 변환법에 의한 실리콘 도핑 기술 개발”, KAERI/RR-797/88, 한국원자력연구소, 1989.
2. 김현준 외, “중성자 빔 이용 재료 물성 연구”, KAERI/RR-1533/94, 한국원자력연구소, 1995.
3. 전병진 외, “NTD-Si의 방사능 예측”, 2000추계학술발표회논문집, 한국원자력학

- 회, 2000. 10.
4. 전병진 외, “하나로에서의 NTD 방안 분석”, 2000추계학술발표회논문집, 한국원자력학회, 2000. 10.
 5. 김명섭 외, “하나로 NTD 조사공에서의 중성자속 측정”, 2002추계학술발표회논문집, 한국원자력학회, 2002. 10.
 6. K. Debertin and R. G. Helmer, “Gamma- and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors”, North-Holland, 1988, p.269.
 7. EG&G ORTEC Software User's Manual, A66-B32.
 8. 장중화, “핵자료표”, KAERI/GP-106/95, 한국원자력연구소, 1995. 7.