

LiF:Mg,Cu,Na,Si TL소자의 에너지의존성 및 선형성

Energy Response and Dose Linearity of LiF:Mg,Cu,Na,Si TL detector

김범열*, 이원근*, 이정일**, 양정선**, 김장렬**, 장시영**

*경희대학교 (경기도 용인시 기흥읍 서천리 1번지)

**한국원자력연구소 (대전광역시 유성구 덕진동 150번지)

요 약

LiF : Mg,Cu,Na,Si TL소자의 광자 에너지의존성은 X선 발생장치(20-118 keV)와 ^{137}Cs 조사장치를 이용하여 측정하였으며 ^{137}Cs 에 대한 상대적 에너지 반응값으로 규격화했을 때 20 keV에서 0.825였다. 선량의존성은 $10^{-4}\text{Gy} - 20\text{Gy}$ 까지는 선형적이었으나 20Gy 이상에서는 sublinearity를 나타내었다.

Abstract

The photon energy response of LiF : Mg,Cu,Na,Si thermoluminescence detector was measured using X-ray generator(20-118 keV) and ^{137}Cs irradiator and its relative energy response appeared to be 0.825 for 20 keV photon normalized to that of ^{137}Cs photon. The dose response was linear within the range of $10^{-4}\text{Gy} - 20\text{Gy}$, but shows sublinearity above 50Gy.

1. 서 론

방사선 방호목적으로 사용된 열발광선량계(TLD)는 많은 이점으로 인해 개인 피폭선량 측정이나 환경방사능 측정에 이용되어 왔다.[1] 지금까지 열발광선량계로 사용하기 위해 개발된 열발광체는 유효원자번호(Z_{eff})가 공기($Z_{\text{eff}}=7.64$)나 인체 연조직($Z_{\text{eff}}=7.42$)과 등가인

물질(LiF등)과 뼈($Z_{\text{eff}}=14$)와 등가인 물질(CaSO_4 등)로 크게 구별된다. 유효원자번호가 인체조직과 유사하여 개인 피폭선량측정에 가장 적합한 LiF($Z_{\text{eff}}=8.14$)는 에너지 의존성이 좋은 반면 다른 계열(CaSO_4 등)의 물질들에 비해 감도가 나쁘기 때문에 감도가 높은 열발광물질을 개발하기 위한 연구가 진행되어 왔다.[2] Cameron은 LiF : Mg,Ti를, Nakajima는 LiF : Mg,Cu,P를 개발하였고 중국의 Wang Shoushan[3]은 같은 활성체를 사용하여 LiF : Mg,Cu,P (GR-200)을 개발하였다. 국내에서는 도시홍등[4]에 의해 LiF : Mg,Cu,Na,Si를 개발하여 제작하였다.

본 연구에서는 기존에 비해 낮은 농도로 활성체를 첨가하여 제작된 고감도의 LiF : Mg,Cu,Na,Si TL소자에 대한 광자에 대한 에너지 의존성과 선량 의존성에 대하여 연구하였다. 에너지 의존성에 관한 실험에서는 X선 발생장치와 ^{137}Cs 조사장치를 이용하여 6개의 에너지를 선택해서 특성을 조사하였으며, 선형성에 관한 선량 의존성 실험에서는 ^{137}Cs 조사장치와 ^{60}Co 조사장치를 이용하여 10개의 선량 영역을 선택해서 그 특성 실험을 조사하였다.

2. 재료 및 방법

TL소자

한국원자력연구소(KAERI)에서 제조한 LiF(Mg,Cu,Na,Si) TL소자는 LiF에 활성체로서 $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 및 $\text{Na}_2\text{O} \cdot 2\text{SiO}_2 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ 를 mole비로 $\pm 10^{-6}\text{g}$ 의 정밀도를 가진 전자저울로 무게를 측정하여 최적화된 활성체 농도인 0.2 mol%의 Mg와 0.05 mol%의 Cu 그리고 0.9 mol%의 Na,Si를 이온교환수에 넣어 열판(hot plate)에서 80°C 로 혼합하였다. 혼합된 시료를 다시 열판에서 180°C 로 건조시킨 후, 백금도가니(platinum crucible)에 담아 질소(N_2)분위기의 전기로(Electric Furnace)에서 840°C 온도로 30분간 소성하여 활성화시켰다. 활성화된 시료는 상온에서 구리동판으로 급냉한 후 단단한 덩어리 형태로 된 시료를 수정 mortar로 분쇄하여 표준망체로 낱알크기(grain size) $200\mu\text{m}$ 이하인 결정체를 선택하여 추출하였다. 추출한 시료는 확산되지 못한 여분의 첨가물들을 녹이기 위한 방법으로 5N 염산(HCl)용액으로 2분동안 세척한 후 1분동안 이온교환수(증류수)에 침전시키고 3회정도 반복후 아세톤으로 처리하여 오븐에서 80°C 로 30분동안 건조시켜 분말을 완성시켰다.

완성된 분말은 소자화하기 위한 pellet 형태로 만들기 위하여 프레스에서 초경재질의 지름 4.5 mm의 금형틀에 넣어 지름 4.5 mm, 두께 0.8 mm의 디스크형태로 압축성형하였다. 압축성형한 시료는 고형화(sintering)하기 위해서 다시 백금도가니에 담아 질소가 3L/분의 비율로 흐르는 전기로에서 827°C 온도로 10분동안 소성하여 상온에서 구리동판으로 급냉시킨후 마지막으로 252°C 온도로 10분동안 열처리하여 완성된 TL소자를 제조하였다. 그림1은 소자의 제조과정을 간단히 도식화한 것이다.

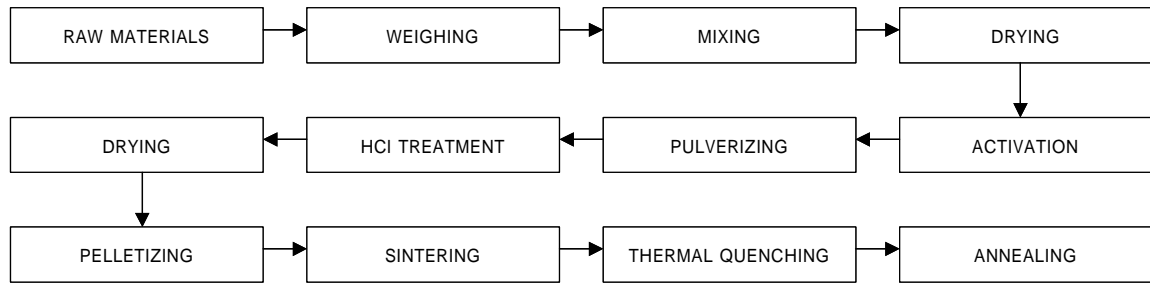


그림 1. 제조과정의 순서도

조사시설

TL소자의 특성실험을 위하여 한국원자력연구소에 설치된 고에너지 기준 감마선장과 엑스선장을 이용하였다.[5] 감마선장은 1대의 ^{137}Cs 조사장치(독일, Ruchler)에 100, 5, 0.1Ci (3.7G Bq, 185G Bq, 3.57T Bq)의 3개의 선원이 장전되어 있으며 공압실린더(pneumatic cylinder)에 의해 개개의 선원을 조사위치로 이동시키며 조사거리는 1m를 기준으로 선량율의 범위는 0.3 에서 310 mSv/hr 까지 측정이 가능하다. 방사선 조사 시스템은 조사장치, 원격이동 조사대, 전리전류 측정시스템으로 구성되어있다.

엑스선장은 2대의 저에너지 엑스선 발생장치(HF-75c, 영국, EGG, Pantak)와 중경 엑스선 발생장치(MG-325, 독일, Philips, PTW)로 구성되어 있으며 저에너지 엑스선 발생장치의 경우 3kW급의 최대 관전압 75kV_p, 최대 관전류 40mA로서 고유필터는 1mm Be을 사용하였으며 조사기의 개폐는 공압실린더를 이용한 상하 구동방식이고 에너지의 범위는 10에서 48keV, 조사거리는 1.5m를 기준으로 선량율의 범위는 30 mR/hr에서 500 R/hr 까지 측정이 가능하다. 그리고 중경 엑스선 발생장치는 3.2kW급의 최대관전압 320kV_p, 최대 관전류 30mA로서 고유필터는 1mm Be + 1.5mm Al을 사용하였으며 조사기의 개폐는 전자석식으로 개폐시간은 0.1초이고 에너지의 범위는 37에서 167keV, 조사거리는 1.5m를 기준으로 선량율의 범위는 50 mR/hr에서 500 R/hr까지 측정이 가능하다.

광자 에너지의존성 연구를 위해 미국 ANSI[6]에서 제시한 선질 5종에 의해 제작된 기준 엑스선장을 표1에 나타내었다.

판독장치

TL소자의 판독(readout)을 위해 사용된 판독기(TLD reader)는 미국에서 제작한 Teledyne system 310[7]을 이용하였고 판독 프로그램은 다음과 같은 순서로 고정하였다. 낮은 온도의 피크를 제거하기 위한 예열(preheat)부분은 10.21°C/s의 비율로 245°C까지 온도를 높이고 24초동안 유지하였으며 판독(readout)부분은 245°C온도에서 32초동안 유지시켰다.

KAERI				
	가 (mm)	1st HVL (mm)	(%)	E_{ave} (keV)
M30	0.374 Al	0.36 Al	63.4	19.9
M60		1.67 Al	68.2	34.6
M100	3.67 Al	4.91 Al	74.4	54.2
M150	0.31 Cu + 4.07 Al	10.26 Al	87.8	76.7
H150	1.51 Sn + 4.94 Cu + 3.93 Al	2.41 Cu	95.2	118.7

표 1. KAERI의 기준 엑스선장.

3. 결과 및 검토

광자 에너지 의존성

TL소자의 에너지 의존성은 동일한 선량으로 조사시킬 때 흡수된 방사선의 에너지의 함수[2]를 의미한다. 선량계 목적에서는, 넓은 에너지 영역에서 X선이나 γ 선에 대한 에너지 의존성이 일정한 것이 바람직하다.[1] 실험에 사용한 소자는 각 9개씩 총 6개 그룹으로 나누어 10 mGy(1rad) 동일한 선량으로 공기중에서 조사시켰으며 광자에너지 20 keV에서 118 keV 범위에서 5개 에너지를 선택하여 X선 발생장치를 이용하였고 감마선원으로는 662 keV의 에너지를 갖는 ^{137}Cs 조사장치를 이용하였다. X선에 대해서는 전자평형을 보상하기 위한 재생(buildup)물질을 사용하지 않았으며 ^{137}Cs 에 대해서는 2 mm 두께의 PMMA(polymethyl methacrylate) 물질을 덮어서 조사하였다.[1] 그림2는 LiF : Mg,Ti (TLD-100,미국)와 LiF : Mg,Cu,P (MCP-N,폴란드) 2개의 소자와 서로 비교한 것으로 상대적 TL강도가 1에 가까운 것을 알 수 있다. 아래의 식은 에너지가 E인 광자선에 대하여, TL물질의 662keV ^{137}Cs γ 선에 대한 상대적 에너지반응(RER : relative energy response)[2]을 나타낸 것으로 여기서 $S_E(E)$ 는 TL물질의 질량에너지 흡수계수를 표준물질인 공기의 질량에너지 흡수계수로 나눈 값이다.

$$(RER)_E = \frac{S_E(E)}{S_E(662\text{keV } ^{137}\text{Cs})}$$

표2는 ^{137}Cs 을 기준으로 각 에너지별 상대적 에너지반응값을 나타낸 것으로 ISO[8]에서는 15keV에서 3MeV범위내의 광자에너지를 조사시킬 때 평균TL반응값이 기준값에 대해

±50% 범위내에 있어야 한다고 권고하고 있으며 LiF : Mg,Cu,Na,Si TL소자의 광자에너지 의존성은 ISO 성능기준을 잘 만족하는 것을 알 수 있다.

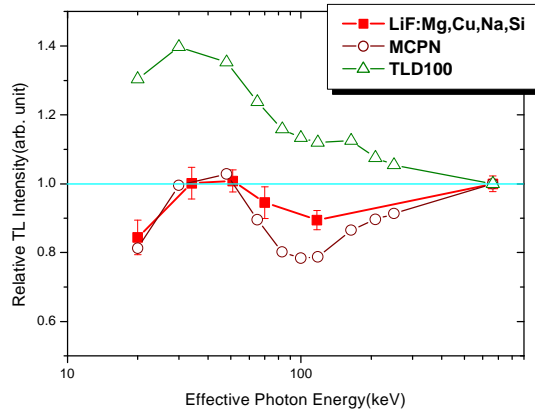


그림 2. 광자에너지에 대한 상대적 TL감도

	(keV)					
	662	118	73	53	35	20
(RER) _E	1.0	0.887	0.920	1.004	0.991	0.825
TL (a.u.)	233022	206792	214573	233984	230886	192279

표 2. LiF : Mg,Cu,Na,Si TL소자의 상대적 에너지 반응

선량 의존성

열발광 소자가 TLD로서 응용이 가능하기 위해서는 흡수선량에 대한 열발광 신호가 선형적이어야 하며 선형적인 영역이 넓을수록 선량측정 영역이 커진다.[1] 선형성 실험에 사용된 소자는 각 10개씩 총 10개 그룹으로 나누어 ¹³⁷Cs 조사장치를 이용하여 10⁻⁴Gy(10 mrad)에서 1Gy(100rad)까지 5개 그룹을 조사하였고 1Gy에서 100Gy까지 나머지 5개 그룹은 ⁶⁰Co을 이용하여 조사시켰다. ¹³⁷Cs에 대해서는 전자평형을 보상하기 위해 재생물질인 2mm두께의 PMMA판을 덮어서 사용하였으며 ⁶⁰Co은 4mm두께의 PMMA판을 이용하였다. 그림3에서 보듯이 10⁻⁴Gy에서 20Gy까지는 거의 선형성을 보이고 그 이상에서는 sublinearity현상이 나타났다. ISO[8]에서는 선형성을 보는 구간을 선질계수를 고려하지 않을 때 1mGy(10⁻³Gy)에서 1Gy사이에서만 고려하고 있는 점을 감안하면 LiF : Mg,Cu,

Na,Si TL소자가 개인선량계로서 기능을 갖추기 위한 개인 피폭선량 측정 영역이 넓어짐을 알 수 있다.

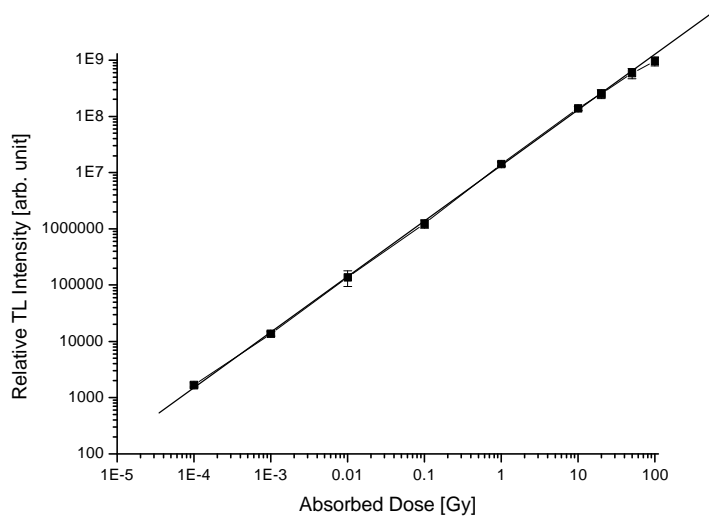


그림 3. 각 선량범위에서의 상대적 TL감도

3. 결론

LiF에 Mg(0.2 mol%), Cu(0.05 mol%), Na(0.9 mol%), Si(0.9 mol%)를 활성체로 낮은 농도로 첨가하여 고감도의 LiF : Mg,Cu,Na,Si TL소자를 개발하였다. 광자에 대한 에너지의 존성은 20% 범위내에서 2개의 다른 LiF계열 소자에 비해 상대적 TL강도가 1에 가까운 것을 알 수 있었고 선형성에 관한 선량의존성은 10^{-4} Gy에서 20Gy까지는 선형적이었으나 20Gy 이상에서는 sublinearity를 나타내었다. 이상의 결과를 볼 때 본 실험에서 개발한 LiF : Mg,Cu,Na,Si TL소자는 개인피폭 선량측정에 폭넓게 사용할 수 있을 것으로 생각되며, 향후 보다 안정된 소자를 개발하기 위한 제조과정의 확립과 성능평가를 위한 정밀한 특성실험을 수행할 예정이다.

참 고 문 헌

1. 장시영외, “방사선방호실용량평가”,KAERI/RR-2019/99 (1999)
2. S.W.S. McKeever,“Thermoluminescence Dosimetry Materials : Properties and Uses”, Nuclear Technology Publishing (1995)
3. Wang Shoushan, “Newly Developed Highly Sensitive LiF (Mg,Cu,P) TL Chips with High Signal-To-Noise Ratio” Radiation Protection Dosimetry Vol.14 No.3 223-227 (1986)

4. 도시홍외, "LiF(Mg,Cu,Na,Si)형광체의 제작 및 열형광 특성", Korean Applied Physics Volume 2, Number 4, 425-431 (1989)
5. 장시영외, "방사선 방어 및 측정기술 개발", KAERI/RR-1739/96 (1996)
6. American National Standards Institute, Inc.(ANSI), "American National Standard for Dosimetry - Personnel Dosimetry Performance - Criteria for Testing", Version HPS N13.11 (1999)
7. Teledyne Brown Engineering, "System 310 TLD User's Guide",
8. ISO-12794, "Nuclear energy - Radiation protection - Individual thermoluminescence dosimeters for extremities and eyes", (2000)