

고체트랙 검출기를 이용한 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 반응의 알파트랙 검출 연구

Study on the Detection of Alpha Track from $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ Reaction Using the Solid Track Detectors

표 형열, 손 세철, 지 광용, 김 원호

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

$^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 반응은 열중성자 흡수 단면적이 매우 높다. 이 반응에서 나오는 알파입자를 고체트랙기입방법으로 측정하여 보론을 분석하는데 이용할 수 있다. 본 연구에서는 보론의 알파트랙을 검출하는데 적합한 고체트랙 검출기를 선정하기 위한 실험을 수행하였다. 사용한 고체트랙 검출기로는 Lexan, CR-39, CN-85 및 LR-115와 같은 플라스틱 재질의 검출기를 사용하였다. 실험 결과 Lexan 트랙검출기가 다른 검출기에 비해 보론의 알파트랙 검출에 가장 적합함을 알 수 있었다. 본 실험결과는 평면상 시료에 존재하는 미량의 보론 분포를 예측하는데 매우 유용하게 적용될 수 있을 것으로 생각된다.

Abstract

The cross section for the $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ reaction is very high(3800 barns) in regard to thermal neutrons. Measurement of the alpha emission by solid state track registration technique method offers the greatest promise for boron analyses. We examined the suitability of various plastic solid track detectors(Lexan, CR-39, CN-85, LR-115) for recording alpha tracks and concluded that Lexan was superior. This result offers significant possibilities in the study of dealing with the spatial distribution of trace amounts of boron.

1. 서론

열중성자와 반응하거나 자발적 핵분열(U-238의 자발적 붕괴 등)에 의해 운동에너지를 갖고 튀어나온 알파 또는 핵분열 입자들은 고체트랙 검출기에 그들의 비적을 생성한다. 즉, 이들 입자들은 고체트랙 검출기 내부로 침투하여 cone형태의 흔적을 남기게 된다. 알파 또는 핵분열 트랙을 얻기 위해서는 운모, 유리, polycarbonate 또는 cellulose nitrate 계통의 고체트랙 검출기를 사용한다. 트랙기입 효율은 Lexan(poly bis-phenol acetone carbonate, $C_6H_{14}O_3$), Macrofol KG, CR-39(poly diethylene glycol bis ally carbonate), CN-85(cellulose nitrate, $C_6H_8O_9N_2$), LR-115 등 제품의 특성에 따라 약간씩 차이가 있는 것으로 알려져 있다. 이들 고체트랙 검출기들은 화학적 및 물리적 특성과 방사선에 대한 내성이 다르며 에칭조건도 약간씩 다르다고 보고되어 있다. 따라서, 트랙기입 분석기술에서는 이러한 고체트랙 검출기의 특성과 관련하여 접촉하고 있는 물질의 농도, 에칭용액의 종류와 농도 및 온도 등과 같은 에칭 조건과 중성자 선속밀도 등이 고려되어야 한다. 또한, 트랙 계수시 우주선과 같은 자연적 영향(natural background) 등에 의해서도 트랙이 생성되므로 현미경 관찰과 이들에 의한 영향도 같이 고려해야 한다.

알파입자의 검출효율은 CN-85가 Lexan에 비해 0~5.5 MeV 에너지 영역에서 월등히 우수하다. 그 이유는 알파선에 대한 CN-85의 감도가 Lexan에 비해 좋을 뿐만 아니라 에너지 의존성이 CN-85가 Lexan에 비해 낮기 때문인 것으로 판단된다. CN-85는 알파선의 유도 에너지가 약 1.8 MeV이고, Lexan은 약 3.0 MeV에서 검출효율이 최대인 것으로 나타났다[1]. 또한, CR-39 형태의 고체트랙 검출기를 이용하면 특별한 화학적 조작 없이도 alpha particle spectrometry를 수행할 수 있다[2]. Zamani 등[3]은 100 μ m 두께의 CN-85를 이용하여 NaOH와 KOH 용액으로 에칭한 후 에칭 시간과 알칼리 농도에 따른 알파 트랙의 모양을 비교한 바 있다. 이 경우에 KOH 용액을 이용하면 NaOH 용액에서 보다 크기가 큰 트랙을 얻을 수 있었으나, 트랙의 모양이 일정하지 못한 결과를 얻은 바 있다. Fujii 등[4]은 sulphonate group을 가진 또 다른 구조의 SR-86을 만들어 검출효율이 좋은 CR-39와 6 MeV 에너지를 가진 알파입자에 대한 검출효율을 비교하여 SR-86이 CR-39보다 3배 이상 높은 검출효율이 있다고 보고한 바 있다. 또한, Blue 등[5]은 CR-39를 고체트랙 검출기로 사용하여 생체시료 속의 보론 분포를 측정하는 바 있다. 이 때 TEL(tissue equivalent liquid) 혹은 ^{10}B 이 95 %이상 포함된 붕산을 혈액에 섞어 조사한 후, 70 °C의 6.3 M NaOH 용액에서 4 \pm 0.5 시간동안 에칭하고 트랙을 개수하여 검량선을 작성한 실험결과, CR-39는 optical quality, uniformity of response, low-threshold LET 등의 이유로 트랙감지는 월등하나 시료 속에 질소가 존재하면 $^{14}N(n, p)^{14}C$ 반응에 의한 proton 트랙이 생기므로 방해가 될 수 있다. 또한, Misdaq 등[6]은 CR-39와 LR-115 고체트랙 검출기의 알파트랙 검출효율 측정결과 CR-39는 알파입자의 에너지 증가에 따라 검출효율이 증가하나, LR-115는 4.62 MeV 에너

지까지는 증가하다가 그 이후로는 효율이 떨어짐을 알 수 있었다.

본 연구에서는, 보론에 중성자를 조사하여 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 반응을 일으켜 나오는 알파입자를 검출하기 위한 실험을 수행하였다. 고체트랙 검출기로는 알파입자에 대한 선택성이 좋은 poly-carbonate 재질의 Lexan 및 CR-39와 cellulose nitrate 재질의 CN-85 및 LR-115를 사용하였으며, 알파 입자에 대한 각각의 고체트랙 검출기에 대한 중성자 조사시간, 에칭조건 및 알파트랙 확인과 이 방법을 통하여 보론의 정량 가능성을 검토하였다.

2. 실험

2.1 시약

본 연구에서는 Table 1에 나타낸 바와 같은 Lexan plate(GE사의 model 8010 polished film, 두께 = 0.5 mm)를 고체트랙 검출기로 사용하였으며, 보론 용액을 점적하기 위해 filter paper(지름 = 42.5 mm, Whatman filter paper No. 42)를 지름 7 mm 정도의 원형으로 잘라서 사용하였다. 실험에 사용한 시약은 NaOH(Aldrich, 97 %)와 KOH(Merck EP, 99-100 %)이었고, 보론 용액은 보론 표준용액(1000 mg/L, Spex)을 이용하여 1, 10, 100 mg/L 농도로 제조하여 사용했다.

2.2 기기

본 연구에서는 Optical Microscope(LEICA DMLP, MZ6 with Digital image analysis system)와 Thermostatic water bath을 사용하였으며, 중성자 조사는 한국원자력연구소의 하나로 연구용 원자로를 이용하였다.

2.3 실험 방법

2.3.1 중성자 조사시간 변화에 따른 트랙검출기 특성조사

보론 농도가 0, 1, 5, 10, 50 및 100 mg/L인 용액을 각각 $10\mu\text{L}$ 씩 취해 지름 7 mm 정도의 여과지(Whatman no. 42)에 점적하고 자연 건조 시킨 후 고체트랙 검출기(Lexan, CR-39, CN-85 및 LR-115)를 위에 덮고, 일정시간 중성자 조사시킨 다음 $60\text{ }^\circ\text{C}$ 의 2.5 N NaOH 용액에서 에칭시간을 늘여가면서 고체트랙 검출기의 무게감소와 알파트랙을 관찰하였다.

2.3.2 Lexan을 이용한 박막 제조 후 중성자 조사 및 에칭

Lexan을 잘게 자른 다음 8 wt% Lexan/1,2-dichloroethane 용액이 되도록 한 후 잘 저어주면서 녹여 유리판 위에 Lexan 박막을 만들었다. 보론 용액(0, 10, 100 및 1000 mg/L)을 $10\mu\text{L}$ 씩 취해 지름 7 mm 정도의 여과지(Whatman no. 42)에 각각 점적한 다음 자연 건조 시켰다. 1분간 중성자 조사시키고 $55\text{ }^\circ\text{C}$ 의 6 N KOH 용액에서 50분간 에칭한 다음 트랙을 관찰하였다.

2.3.3 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 반응을 위한 중성자 조사 후 Lexan 및 CR-39 트랙검출기 에칭

청정지역(clean room)에서 보론 용액(0, 10, 100 및 1000 mg/L)을 각각 $10\mu\text{L}$ 씩 취해 지름

7 mm 정도의 여과지(Whatman no. 42)에 점적한 다음 자연 건조 시킨 후 고체트랙 검출기(Lexan 및 CR-39)를 위에 덮었다. 1분간 중성자 조사시킨 다음 CR-39는 55 °C의 6 N KOH 용액에서, Lexan은 60 °C의 6.25 N NaOH 용액에서 에칭시간을 늘어가면서 에칭하고 각각의 경우에 대하여 알파트랙과 바탕트랙을 관찰하였다.

2.3.4 중성자 조사시간에 따른 Lexan 검출기의 알파 검출효과 조사

보론 용액(0, 10, 100 및 1000 mg/L)을 각각 10 μL 씩 취해 지름 7 mm 정도의 여과지(Whatman no. 42)에 점적하고 자연 건조 시킨 후 Lexan 검출기를 위에 덮었다. 1, 3, 5 및 10분간 중성자 조사시킨 다음 60 °C의 6.25 N NaOH 용액에서 에칭시간을 늘어가면서 에칭하고 각각의 경우에 대하여 알파트랙과 바탕트랙을 관찰하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 중성자 조사시간 변화에 따른 트랙검출기 특성조사 결과

중성자 조사시간 변화에 따른 트랙검출기의 특성은 보론의 농도별로 제조한 시료를 트랙 검출기와 함께 10분간 중성자(neutron flux = 10^{13} n/cm² · sec) 조사한 후 검토하였다. CN-85와 LR-115 검출기의 경우에는 60 °C의 2.5 M NaOH 용액을 사용한 에칭조건에서 5분 경과 시 전면 에 작은 기공들이 생겨 우유 빛을 나타내는 바탕트랙이 관찰되었다. 이 트랙은 에칭속도가 매우 빨라 30분 경과 후에는 완전히 녹아 없어졌다. CR-39 검출기의 경우에는 10분간 에칭한 후 전면 에 바탕트랙을 나타냈으며, Lexan 검출기의 경우에는 40분간 에칭 후 전면이 손상됨을 보였다. 중성자를 1분간 조사한 경우에, CN-85 검출기는 2.5 M NaOH, 60 °C의 에칭조건에서 10분 경과한 후, CR-39 검출기는 60분간 에칭한 후, Lexan 검출기는 60분간 에칭한 후 전면에서 바탕트랙이 관찰되었다. 이와 같은 실험 결과로부터, $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 반응에서 나오는 알파트랙 만을 구분하여 관찰할 수 없었으며, 분열성 핵 물질 오염에 의한 핵분열 트랙만이 선명하게 관찰되었다. 이와 같은 결과는 연질의 고체트랙 검출기가 중성자 조사시간 경과에 따른 손상과 $^{14}\text{N}(n, \alpha)^{11}\text{B}$, $^{16}\text{O}(n, \alpha)^{13}\text{C}$, $^{12}\text{C}(n, n')^3\alpha$ 및 ^{12}C 의 elastic scattering[7]과 같은 부 반응에 의한 고체트랙검출기의 손상 및 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 반응에서 나오는 알파트랙의 혼재에 의해 트랙검출기 전면 에 바탕트랙이 생겨 현미경 관찰 시 전면 에 작은 기공들이 보이는 것으로 생각된다. 특히, CN-85와 LR-115는 재료의 분자구조에 질소를 함유하고 있어서 $^{14}\text{N}(n, \alpha)^{11}\text{B}$ 반응에 의한 손상과 약한 결합을 하고 있는 NO₃가 방사선에 의해 쉽게 손상을 받아 알칼리 용액에서 빨리 용해되기 때문인 것으로 생각된다[8]. 중성자 조사시간을 줄여 1초씩 조사하고 CR-39는 표면보강을 위해 6 N KOH, 70 °C 용액에서 10분간 담근 후 사용하고[9], 또한, 부 반응에 의한 표면손상을 방지하고자 CR-39를 mylar film(2 μm)으로 미리 씌운 후 중성자 조사하였으며, 서서히 에칭이 일어날 수 있게 낮은 온도인 6

N KOH, 55 °C에서 10분간 에칭한 다음 현미경으로 관찰한 결과, 조사시간이 극히 짧아 조사 공에 먼저 들어간 부위에 현저한 바탕트랙이 관찰되어 현 상태로는 중성자 조사시간을 1초로 하는 것이 무리가 있는 것으로 판명되었다.

3.2 Lexan을 이용한 박막제조 후 중성자 조사 후 에칭 결과

Solares 등[10]이 사용한 방법을 적용하여 부반응의 트랙은 감지하지 않고 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 반응의 알파입자들만 검출하기 위하여 알파입자에 감도가 낮은 Lexan 박막을 만들어 사용하였다. 그러나 보론 용액의 점적 부위에서 알파트랙들은 관찰할 수는 있었으나 박막의 두께를 측정할 결과 60-100 μm 정도로 고르지 못한 이유로 트랙의 밀도가 고르지 못하였고, 따라서 바탕트랙들도 같이 관찰되었다.

3.3 중성자 1분간 조사 후 Lexan 및 CR-39 트랙검출기 에칭 결과

CR-39는 앞서의 실험에서와 같이 보론 용액 점적 부위가 구분은 되나 바탕트랙이 심하였으며 6 N KOH 용액의 55 °C 에칭조건에서 CR-39는 30분 경과 후 전면에 작은 기공들이 생기는 현상을 보였다. Lexan은 20분 에칭 후 보론 농도별 구분이 가능하고 비교적 바탕트랙이 적게 나타났다. 그러나 알파트랙을 개수하여 보론 함량분석에 적용하기에는 너무 많은 트랙으로 곤란하였으나, 보론 분포 관찰에는 적용이 가능할 것으로 생각된다.

3-5 중성자 조사시간에 따른 Lexan 검출기의 알파 검출효과 조사

각각의 Lexan 검출기를 6.25 M NaOH, 60°C에서 30분간 에칭한 결과 Fig. 1과 같은 형태를 나타냈다. 10분간 조사한 것은 부반응에 의한 트랙이 전반적으로 나타나 과도한 중성자 조사를 보였으며, 1분간 중성자 조사한 것은 100 mg/L 이하의 영역이 명확하게 보이질 않았다. 5분 조사한 것은 1000 mg/L 영역에서는 에칭에 의해 나타난 알파트랙이 과도한 에칭으로 인하여 함몰되어 없어지는 양상을 보였다. Fig. 1에서와 보는바와 같이 적정의 중성자 조사시간은 중성자 flux가 $10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 일 때 3분이 적당함을 보였다.

4. 결론

여러 종류의 고체트랙 검출기를 이용하여 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 반응에 의한 알파트랙 검출성능을 알아보기 위하여 중성자 조사시간, 에칭조건의 시간, 알칼리용액 농도와 온도를 변화시키며 실험을 하였다. 실험결과 CN-85, LR-115는 검출기 차체에 존재하는 NO_3 로 인한 부 반응과 감마선과 proton에 의한 손상으로 알파입자에는 탁월한 검출능력을 보였으나 중성자를 조사하여 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 반응에서 나오는 알파입자의 검출에는 부적절함을 보였다. CR-39는 중성자 조사로 인한 부 반응에는 CN-85, LR-115 보다는 안정하였으나, Lexan 보다는 심하였다. Lexan 검출기를 이용한 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 반응에 의한 알파트랙 검출에 대한 적정의 중성자 조사조건은 중성자 선속이

10^{13} n/cm⁻²·sec일 때 3분 조사, 에칭조건은 6.25 N NaOH, 60 °C에서 30분간이 적당함을 알았다. 이 조건에서 보론 농도에 따른 정성분석은 가능하나 Fig. 2에서 보여주는 바와 같이 정확한 알파 트랙의 개수가 불가하였다. 따라서 이 방법을 이용한 보론의 정량을 위해서는 좀더 미량의 보론 농도 구간에서 실험이 추후 진행하여야 할 것으로 판단된다.

후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었음.

참고문헌

1. Y. W. Park and H. S. Yang, *J. Korean Asso. Radiat. Prot.*, **21**, 167, (1996).
2. O. A. Bondarenko, Pu future-the science, poster sessions, 291-292pp.
3. M. Zamani et al., *Nucl. Instru. and Methods Phys. Res.*, **A244**, 547, (1986).
4. M. Fujii, R. Yokota and Y. Atarashi, *Nucl. Tracks. Radiat. Meas.*, **15**, 107, (1988).
5. T. E. Blue et al., *Nuclear Technology*, **77**, 220, (1987).
6. M. Izerrouken et al., *Radiation Measurements*, **31**, 141, (1999).
7. M. Lelental, *Anal. Chem.*, **44**, 1270, (1972).
8. S. Mayaki, A. O. Dasilva, and A. Tidjani, *Radiation Measurements*, **26**, 657, (1996).
9. R. Ilic, E. S. Kristof, R. Dijanosic, J. Skvarac, and R. Dobnikar, *Radiation Measurements*, **25**, 453, (1995).
10. G. R. Solares and R. G. Zamenhof, *Radiation Research*, **144**, 50, (1995).

Table 1. Summary of etching conditions depend on the difference of detector

Detector	Composition	Etching Condition	Remark
CR-39	Poly-diethylene glycol bis-ally carbonate	6 N NaOH, 70°C	Pershore-Moulding Ltd (UK)
Lexan	Poly-bis-phenol-aceton carbonate, (C ₆ H ₁₄ O ₃)	6.25 N NaOH, 70°C	한국 GE-plastics
LR-115	Cellulose nitrate	2.5 N NaOH 50°C, 3h	Kodack-Pathe (France)
CN-85	Cellulose nitrate (C ₆ H ₈ O ₉ N ₂)	2.5 N NaOH 60°C, 20-30 min.	Kodack-Pathe(France)

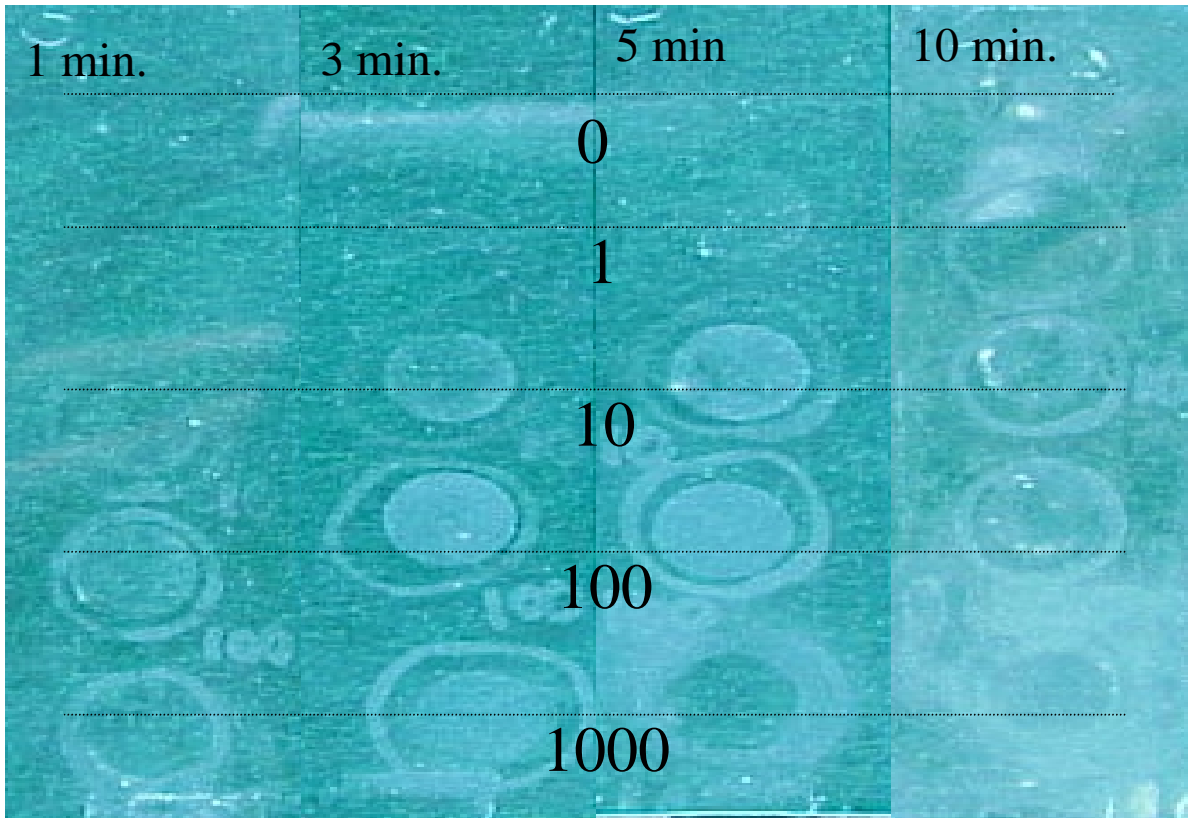


Fig. 1. The changes in alpha track depending on neutron irradiation.

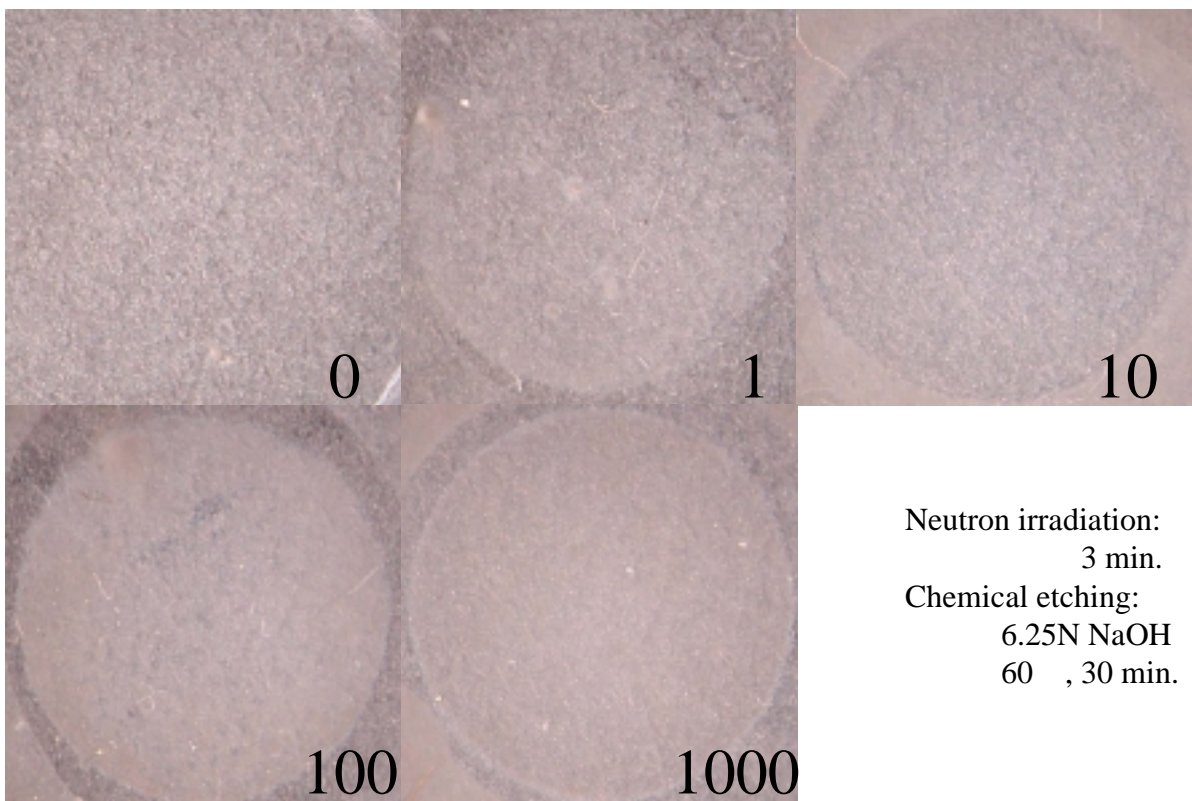


Fig. 2. The density changes of alpha tracks depending on boron concentration.