

Development of a TL pellet based on CaSO₄:Dy for Neutron Measurement

Jeong-Seon Yang · Jeong-Il Lee · Jang-Lyul Kim ·
Bong-Hwan Kim · Dong-Sup Sou
Korea Atomic Energy Research Institute

CaSO₄:Dy 물질 기반 중성자 측정용 TL소자 개발

양정선 · 이정일 · 김장렬 · 김봉환 · 소동섭
한국원자력연구소 방사선관리실

(2006년 8월 10일 접수, 2006년 8월 25일 채택)

Abstract - A TL pellet for a neutron dose measurement (KCT-306) by embedding a ⁶Li-compound into a CaSO₄:Dy phosphor was developed based upon the technical information of KCT-300. The KCT-300 is an another kind of CaSO₄:Dy TL detector which was developed at KAERI, in which small amounts of NH₄H₂PO₄ have been emvedded as a binding material.

This paper presented the optimized manufacturing condition of KCT-306 and compared its sensitivity with that of the commercialized neutron TL pellets. CaSO₄:Dy phosphor with grain size ranging less than 45μm are used for the KCT-306. The optimum CaSO₄:Dy TL phosphor, ⁶Li-compounds and P-compound as the binding material are determined as 20-40wt%, 50-70wt% and 20wt%. The TL pellet combination of our KCT-306/KCT-300, TLD-600/TLD-700 and TLD-600H/TLD-700H(Harshaw) have been irradiated in the neutron/gamma mixed fields from a D₂O moderated ²⁵²Cf neutron source. The KCT-300, TLD-700 and TLD-700H were used at the same time as gamma ray discriminators in the neutron/gamma mixed fields. It was found that the neutron/gamma response ratios of KCT-306/KCT-300, which were developed in this study, were approximately 4 times higher than those of the commercial TLD-600H/TLD-700H.

Key words : TLD, CaSO₄:Dy TL phosphor, Neutron, Gamma

요약 - 한국원자력연구소에서 개발한 개인선량계용 KCT-300 소자의 기반물질인 CaSO₄:Dy TL 물질에 ⁶Li 화합물을 첨가하여 열중성자 측정용 소자 (KCT-306)를 개발하였다. 본 논문에서는 KCT-306 소자를 제작하기 위한 최적 조건을 결정하였으며 개발한 소자와 상용화된 소자의 성능을 비교하였다. CaSO₄:Dy TL 분말의 낱알 크기가 45μm 일 경우 KCT-306 소자가 최적의 성능을 보였으며, 소자 제작 조건은 CaSO₄:Dy TL 분말과 열중성자 반응 물질로 첨가되는 ⁶Li 화합물, 그리고 접착매질인 인(P) 화합물의 최적 함량이 각각 20-40 wt%, 50-70 wt%, 그리고 20 wt% 이었다. 동 조건으로 제작한 KCT-306/KCT-300 소자와 상용화된 열중성자 측정용 소자, TLD-600/TLD-700, TLD-600H/TLD-700H(harshaw) 와의 성능을 비교하기 위하여 중수 감속구(직경 30 cm.) ²⁵²Cf 중성자 선원으로 조사시킨 후 감도를 측정하였다. KCT-306 소자는 TLD-600H/TLD-700H에 비해 중성자 및 감마 감도는 낮지만 중성자/감마 감도비는 4배 이상됨을 확인하였고 TLD-600/TLD-700보다는 중성자 및 감마 감도와 중성자/감마 감도비가 높음을 확인하였다.

중심어 : 열형광 선량계, CaSO₄:Dy TL 분말, 중성자, 감마

서 론

최근 원자력의 실용성이 높아지면서 중성자 이용 분야도 넓어지고 있다. 따라서 중성자에 대한 개인 선량 모니터링의 중요성도 점차 커지고 있는 실정이다. $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 계열 TL 물질은 감도가 높아 감마/베타 측정용 개인 선량계 및 환경선량계로 폭넓게 쓰이고 있으나 열중성자에 대한 반응 단면적이 작아 중성자 측정용 선량계에는 쓰이지 않는다. $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 와 같은 반응 단면적이 작은 TL 물질을 이용하여 열중성자를 측정하기 위해서는 ${}^6\text{Li}$ 화합물과 같은 열중성자 반응 단면적이 큰 물질을 첨가하여 ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ 반응에 의해 방출되는 α 입자와 ${}^3\text{H}$ 입자를 측정함으로써 열중성자를 측정하는 방법이 있다. 이런 방법을 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질에 적용하여 중성자 측정용 소자를 개발하기 위한 몇몇 연구가 행해졌으며 실제로 중성자 측정용 TL 분말을 제조하기도 하였다[1-6]. 그러나 연구 결과 제조된 TL 분말들은 열중성자에 대한 감도가 낮으며 소자 형태로 제작되지 못하여 실제 방사선장에서 이용하기에는 제한적이었다.

한국원자력연구소에서는 P 화합물을 접촉매질로 첨가한 고감도 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 소자인 KCT-300소자를 개발하였으며[7] 이를 기반으로 한 열중성자 측정용 소자의 개발을 위한 연구 결과, $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말에 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 와 ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 화합물

을 같은 함량비로 첨가한 열중성자 측정용 소자 C-KCT306 소자를 개발 한 바 있다[8]. 이후 순수 열중성자에 대한 감도를 높이면서 중성자/감마 감도비의 값도 되도록이면 높은 값을 갖는 중성자 측정용 소자를 제작하기 위한 연구가 계속되었다. 연구 결과 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말과 ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 와 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 를 혼합하여 제작한 KCT-306 중성자 측정용 소자를 개발하였다.

KCT-306 소자의 경우 ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 화합물 중 ${}^6\text{Li}$ 원소가 열중성자에 의해 ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ 반응이 일어나게 된다. ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ 반응에 의한 α 입자와 ${}^3\text{H}$ 입자의 에너지가 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말입자에 의해 TL로 방출된다. 즉 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말을 이용하여 열중성자 측정용 소자를 제작 할 때는 열중성자 반응 물질로 첨가되는 ${}^6\text{Li}$ 화합물의 함량 및 TL 측정을 위한 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말의 함량 및 낱알크기도 영향을 미치게 된다.

본 논문에서는 열중성자 측정용 소자 KCT-306 소자의 제작을 위해 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL분말의 최적 낱알 크기를 결정하였으며, $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말의 함량 및 ${}^6\text{Li}$ 화합물과 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 화합물의 함량에 따라 소자의 감도 및 중성자/감마 감도비가 어떻게 변하는지를 실험하고 그 결과에 따라 최적 제작 조건을 결정하였다. 또한 최적 조건에 의해 제작한 KCT-306 소자의 성능을 상용화된 중성자 측정용 소자와 비교하였다.

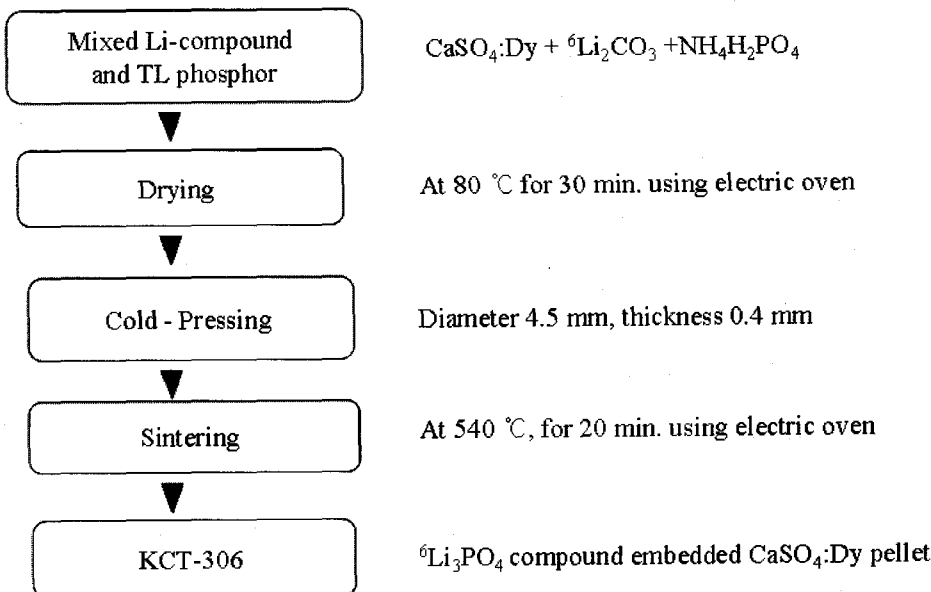


Fig. 1. Schematic diagram of the preparation process of KCT-306.

실험 및 방법

중성자 측정용 소자의 제작에 쓰이는 CaSO₄:Dy TL 분말은 한국원자력 연구소에서 자체 제조한 TL 분말을 사용하였다[9]. 새로 개발된 KCT-306 소자의 분말의 혼합 방법 및 기본적인 제작 과정은 KCT-300 소자와 동일하며 Fig. 1에 KCT-306 소자의 제조 과정을 나타내었다. 감마선이나 베타선에 비해 비정기 짧은 α 입자를 측정하는 중성자 측정용 소자의 경우 TL 분말의 난알크기에 따라 감도가 달라질 수 있기 때문에[10] 본 논문에서는 TL 분말의 난알크기별로 소자를 제작하고 감도를 측정하여 최적의 난알크기를 결정하였다. 또한 KCT-306 소자의 제작과정 중 CaSO₄:Dy TL 분말에 첨가하는 ⁶Li₂CO₃ 화합물과 P 화합물의 함량을 변화시키면서 제조하였으며 pressing 후 540 °C에서 20분간 열처리 하여 제작하였다. 제작된 소자는 한국원자력연구소의 ²⁵²Cf 중성자 선원을 이용하여 조사 하였으며 중성자와 동반되어 방출되는 감마선의 선량을 구분하기 위하여 열중성자에 대한 반응이 거의 없는 KCT-300 소자를 이용하였다.

보통 감마 베타 측정용 소자인 KCT-300 소자를 제작할 때는 63-100 μm의 grain size를 갖는 분말을 이용하여 소자를 제작하지만 중성자 측정용 소자의 경우 분말의 grain size가 작을 때 중성자 감도가 높으므로 45 μm이하의 분말만을 선택하여 사용하였다.

1. TL 분말의 난알 크기에 따른 감도변화

KCT-306 소자는 ⁶Li(n, α)³H 반응에 의한 α 입자와 ³H 입자의 에너지가 CaSO₄:Dy TL 분말에 주어질 때 방출되는 TL의 양으로써 중성자 선량을 측정한다. α 입자의 비정기는 10 μm, ³H 입자의 비정기는 50 μm로서 감마선이나 다른 베타선에 비해 비정기가 짧다. 따라서 비정기가 짧은 α 입자나 ³H 입자가 TL 분말과 반응할 때 TL 분말 난알의 크기가 α 입자나 ³H 입자의 비정기에 비해 클 때 측정 효율이 떨어질 수 있다. 서로 다른 난알 크기의 CaSO₄:Dy TL 분말을 이용하여 제조한 KCT-306 소자와 상용화된 TLD-600 소자의 ²⁵²Cf 선원에 대한 중성자 감도 및 ⁹⁰Sr-⁹⁰Y 감마 선원에 대한 감마 감도와 중성자/감마 감도비 변화의 측정 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 그림에서 보면 중성자 및 감마 감도는 CaSO₄:Dy TL 분말의 난알크기가 45 μm 부터는 포화된 상태를 보였으나 중성자/감마 감도비가 급격히 감소하므로

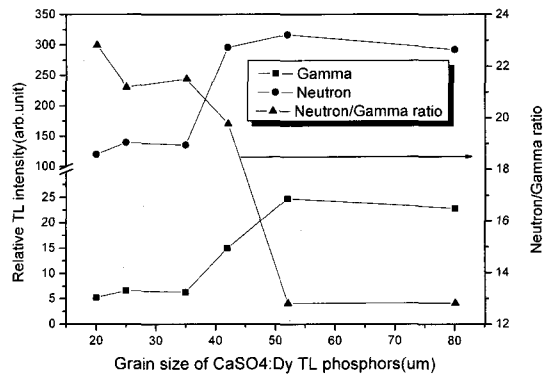


Fig. 2. Dependence of the main peak intensity of KCT-306 on grain size of CaSO₄:Dy TL phosphor.

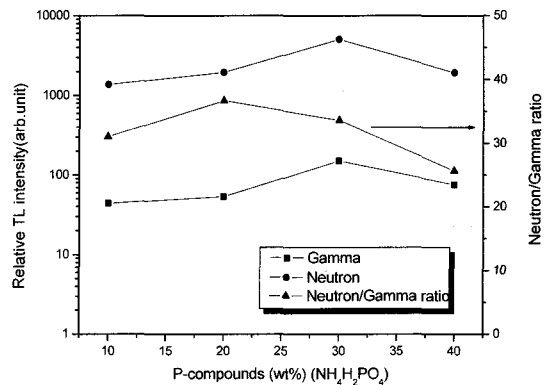


Fig. 3. Dependence of the main peak intensity of KCT-306 on P-compounds content.

KCT-306 소자를 제조할 때는 45 μm이하의 분말을 선택하여 사용하기로 결정하였다.

2. P 화합물의 함량변화

KCT-306 소자의 제조 과정에서 CaSO₄:Dy TL 분말에 ⁶Li₂CO₃ 화합물과 과량의 NH₄H₂PO₄ 화합물을 첨가시키면 ⁶Li₂CO₃ 화합물은 전부 ⁶Li₃PO₄로 변환되고 NH₄H₂PO₄의 나머지는 P 화합물의 형태로 존재하여 접착매질로 작용한다.

CaSO₄:Dy TL 분말 및 P 화합물의 함량은 고정시킨 후 ⁶Li₂CO₃ 화합물의 첨가량을 변화시키면 ⁶Li₂CO₃와 반응하고 남은 P 화합물의 함량이 조절된다. 첨가하는 ⁶Li₂CO₃ 화합물의 함량에 따라 중성자 반응도가 어떻게 변하는지를 알아보기 위해 ⁶Li₂CO₃ 화합물의 함량을 변화시키면서 소자를 제작한 후 소자의 중성자와 감마에 대한 감도 및 중성자/감마 감도비를 측정하였다. Fig. 3은 CaSO₄:Dy TL 분말과 NH₄H₂PO₄를 각각 20 wt%와 80

wt%로 고정시키고, ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물의 함량을 변화시키면서 P 화합물 함량이 변하는 것에 따른 중성자와 감마에 대한 감도 및 중성자/감마 감도비를 측정된 결과를 보여준다. Fig. 3에서 보면 P 함량이 너무 낮을 때는 중성자 감마 감도 및 중성자/감마 감도비가 높아지다가 P 함량이 높아지면 다시 낮아지는 경향을 보인다. 그러나 P 함량이 낮을 때는 TL 소자의 기계적 강도가 약해지는 것을 알 수 있었다. KCT-306의 경우 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 화합물이 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 와 화학반응을 일으켜 ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 를 생성한 후 남은 P 화합물만이 KCT-300의 경우처럼 접착제 역할을 하기 때문이다. 즉 반응 후 접착매질로 작용하는 P 화합물의 함량이 너무 낮으면 기계적 강도가 약해지게 된다. 따라서 소자의 기계적 강도와 중성자, 감마 감도 및 중성자/감마 감도비를 고려한 최적의 P 화합물 함량은 20-30 wt% 로 결정하였다.

3. $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ TL 분말의 함량 변화

$\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ TL 분말을 이용하여 열중성자를 측정하는 이론적 배경은 ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ 반응에 근거한다. 따라서 열중성자 반응 물질인 ${}^6\text{Li}$ 화합물이 첨가되는 것도 중요하지만 ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ 반응에 의해 방출되는 α 입자와 ${}^3\text{H}$ 입자를 $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ TL 물질이 얼마나 효율적으로 받아들일 수 있는지도 중요한 요인이다. Fig. 4는 P 화합물의 함량은 10 wt%로 고정시키고 첨가되는 $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ TL 분말의 함량을 변화시키면서 소자를 제작하고 열중성자에 대한 감도와 감마 감도 및 중성자/감마 감도비를 측정하여 나타낸 것이다. 그림에서 보면 접착물질인 P-화합물의 함량이 고정되었을 때,

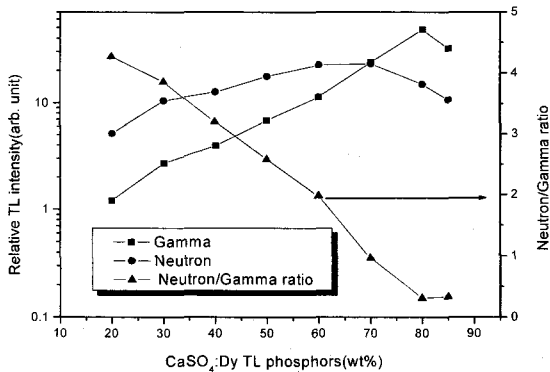


Fig. 4. Dependence of the main peak intensity of KCT-306 on ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ -compound and $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ TL phosphor concentration (${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ compound + $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ TL phosphor =90wt%).

첨가되는 $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ TL 분말 함량이 70 wt% 까지 증가함에 따라 감마 감도 및 중성자 감도가 증가한다. $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ TL 분말 함량이 70 wt% 이상이 되면 중성자 감도는 감소하고 감마 감도만 증가하다가 $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ TL 분말 함량이 80 wt%부터 감마 감도도 감소한다. $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ TL 분말 함량이 증감함에 따라 중성자/감마 감도비는 감마 감도 증가율이 중성자 감도 증가율보다 크기 때문에 점차 감소하게 된다. 따라서 중성자와 감마 감도 및 중성자/감마 감도비를 고려할 때 $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ TL 분말의 최적 함량은 20 - 40 wt%이고, 이때 대응되는 ${}^6\text{Li}$ 화합물의 최적 함량은 50-70 wt% 로 결정하였다.

4. KCT-306 소자의 성능 테스트

최적 조건에 따라 제작한 KCT-306 소자의 성능을 비교하기 위해 현재 상용화된 TLD-600, TLD-600H 소자를 준비하여 중성자, 감마 감도 및 중성자/감마 감도비를 측정하고 비교하였으며 감마 측정용 소자로는 ${}^7\text{Li}$ 화합물을 첨가한 TLD-700과 TLD-700H를 동시에 사용하였다. KCT-306과 같이 쓰여 감마 선량을 측정하는 소자로는 중성자 반응 단면적이 거의 없는 KCT-300 소자를 이용하였다. 표 1에서 알 수 있듯이 개발된 중성자 측정용 소자 KCT-306/KCT-300 소자는 중성자/감마 감도비가 TLD-600/TLD-700이나 TLD-600H/TLD-700H 보다 높은 값을 보였다. $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ TL 물질은 중성자 반응 단면적이 극히 작기 때문에 감마 감도를 구분하기 위한 소자로 TLD-700이나 TLD-700H 와 같은 ${}^7\text{Li}$ 화합물을 첨가한 소자를 제조하지 않고 KCT-300 소자를 중성자 감마 혼합장에서 감마 선량 측정용 소자로 이용할 수 있었다. 본 연구에서 중성자장에 혼합된 감마선량 구분을 위

Table 1. Relative neutron responses of KCT-306 and Harshaw neutron TLD (TLD-600/TLD-700 and TLD-600H/TLD-700H).

	$\text{N+r}({}^{252}\text{Cf})$	${}^{137}\text{Cs}$	N/r ratio
KCT-306	1.3	1.2	37.24
KCT-300	1.22	42.37	
TLD-600	1	1	27.32
TLD-700	0.04	1.13	
TLD-600H	11.32	41.13	8.1
TLD-700H	1.14	37.73	

해 사용한 KCT-307과 TLD-700 및 TLD-700H의 감도에 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 측정감도에서 KCT-307과 TLD-700 및 TLD-700H의 측정감도를 직접 빼줌으로써 간단히 순수 중성자 감도를 측정할 수 있다. 그러나 일반적으로 ⁶Li 화합물과 ⁷Li 화합물이 혼합된 두 가지 종류의 소자는 감마 감도가 다르기 때문에 기준 감마선원 (¹³⁷Cs)에 대한 감도를 측정하여 보정인자를 구하여 적용하였다. 보정인자를 구하기 위해서 두 가지 종류의 소자를 동시에 감마 선원으로 조사 시킨 후 판독하여 ⁶Li 화합물이 포함된 소자의 감도에 대한 감도를 1로 하여 보정인자를 구한다. 중성자장에 혼합된 감마 선량은 중성자장에서의 ⁷Li 화합물이 혼합된 소자 및 KCT-300 소자의 측정값에 보정인자를 곱하여 산출한다.

결과 및 논의

본 실험에서는 CaSO₄:Dy TL 분말을 이용한 열중성자 측정용 소자 KCT-306 제작을 위해 CaSO₄:Dy TL 분말과 Li 화합물 함량 그리고 P 화합물의 함량을 변화시키면서 열중성자 감도 및 중성자/감마 감도비가 어떻게 달라지는지에 대해 실험하였다. 실험 결과 CaSO₄:Dy TL 분말과 NH₄H₂PO₄를 고정시켰을 때 ⁶Li 화합물 함량이 높을수록(반응 후 P 화합물의 함량이 낮을수록) 중성자/감마 감도비는 높지만 기계적 강도를 고려한 최적의 ⁶Li 화합물의 함량은 20-30wt% 이다. 그리고 ⁶Li(n, α)³H 반응에 의한 α 입자와 ³H 입자를 측정하기 위한 CaSO₄:Dy TL 분말의 함량을 변화시키면 ⁶Li₃PO₄ 화합물의 함량도 동시에 변하게 되는데 중성자/감마 감도비를 높이기 위해서는 CaSO₄:Dy TL 분말의 함량은 20-40wt%의 범위가 최적범위로 결정되었다. 개발된 KCT-306 소자는 현재 상용화 되어 가장 널리 쓰이고 있는 TLD-600/TLD-700보다 중성자, 감마 감도 및 중성자/감마 감도비가 우수하였고, TLD-600H/TLD-700H에 비해 중성자, 감마 감도는 낮지만 중성자/감마 감도비는 4배 이상 높았다.

결 론

본 실험을 통해 감마 및 베타선에 대해 높은 감도를 보이는 CaSO₄:Dy TL 물질에 소량의 접착 매질을 첨가한 KCT-30 소자를 기반으로 하여 열중성자 측정용 KCT-306 소자를 개발하였다. 상용화된 LiF 계열 열중성자 측정용 소자와 비교했을 때, TLD-600/TLD-700 보다 우수한 성능을 보였으며 TLD-600H/TLD-700H 보다 감도는 낮지만 중성자/감마 감도비가 높아 열중성자 측정용 소자로 활용하는데 충분한 가능성을 보여주었다. 또 CaSO₄:Dy TL 분말 및 ⁶Li₃PO₄ 화합물과 NH₄H₂PO₄ 화합물의 함량을 적절히 조절하여 KCT-306 소자를 제작했을 때 열중성자의 감도와 감마 감도 및 중성자/감마 감도비가 변하는 것을 이용하여 중성자 소자의 사용 환경에 따라 특성화된 열중성자 측정용 소자를 제작하여 사용할 수도 있을 것으로 기대된다.

REFERENCE

1. Mayhugh MR, Watanabe S and Muccillo R. Proc. Third Int. Conf. Lum. Dosimetry, Riso, Denmark. 1971;3:1040.
2. Morgan MD, Lacombe MA, and Stoebe TG. Development of a thermal neutron dosimeter utilizing the CaSO₄:Dy system. Radiat. Prot. Dosim. 1984;6(1-4):321-324.
3. Ayyangar K, Chandra B and Lakshmanan AR. Mixed field dosimetry with CaSO₄:Dy. Phys. Med.Biol. 1974;19(5):656-664.
4. Iga K, Yamashita T, Takenaga M, Yasuno Y, Oonishi H and Ikedo M. Composite TLD Based on CaSO₄:Tm for γ-rays, X-rays, β-rays and thermal neutron. Health physics Pergamon Press 1977;33:605-610.
5. Takenaga M. Thermoluminescent Response to thermal neutrons of mixture of CaSO₄:Tm and non-luminous ⁶LiF. Journal of Nuclear Science and Technology 1977;14(4):292-299.
6. Beach JL, Huang CY. Mixed Field Dosimetry with CaSO₄(Tm)Li. Health physics, Pergamon Press 1976;31:452-455.
7. Yang JS et al. Developmen of Phosphors-compound CaSO₄:Dy (KCT-300) TL pellets. Journal of the Korean Nuclear Society. 2002;34(2):142-145.

8. 양정선, 김두영, 김장렬, 임길성, 장시영. CaSO₄:Dy TL 물질에 Li 화합물을 첨가한 중성자 측정용 소자의 제작. 추계학술발표회 논문집 한국원자력학회 2003.
9. 양정선, 김두영, 김장렬, 이정일, 남영미, 장시영. Fabrication and TL Characteristics of CaSO₄:Dy TL Powder. 한국원자력학회 춘계 학술대회 2001.
10. Shinde SS and Shastry SS. Journal of Applied Radiation and Isotopes. 30:75-77.