

중성자 선량측정을 위한 Bubble-Damage Polymer Detector의 개발*

강영호·우 흥
경북대학교 물리학과

김도성
대구대학교 물리교육과

加藤和明
高エネルギー物理學研究所

요 약

중성자선량측정을 위하여 방사선과의 상호작용으로 인한 과열된 액체의 기화를 원리로 하는 bubble-damage polymer detector를 개발하였다. acrylamide와 글리세린으로 만든 중합체에 과열상태의 Freon12 액체방울을 분산시켜 검출기를 제작하였으며 중성자 조사에 의해 형성된 기포는 즉각적인 육안 관측이 가능하였다. 검출기의 중성자감도는 Am-Be중성자에 대해 4~7bubbles/10 μ Sv이었다.

I. 서 론

원자력시설과 입자가속기의 확대보급과 더불어 방사선 안전관리의 관점에서 보다 신뢰성 있는 개인용 중성자선량계의 개발이 요구되고 있다. 그러나 측정대상의 중성자의 에너지범위가 매우 넓으며 중성자에 의한 핵반응으로부터의 선에너지전이(linear energy transfer)가 에너지에 따라 크게 다르므로 개인용으로 적합한 중성자선량계를 개발하는 것은 매우 어려운 과제이다. 특히 수keV 이상의 속중성자의 선량측정은 현재까지도 완전히 해결되지 않은 방사선 선량측정분야의 중요 연구 과제의 하나이다[1].

현재까지 가장 일반적으로 사용되고 있는 개인용 중성자선량계로서는 neutron film type A (NTA), 열형광선량계(TLD), 핵분열비적 및 반도체 양성자

비적의 검출을 원리로 한 고체비적검출기(SSNTD) 등이 있다. 이들은 중성자 검출원리가 서로 상이하여 측정가능한 에너지영역이 다르며, 선량평가를 위해 중성자 조사후의 별도의 처리과정을 필요로 할 뿐만아니라 중성자 반응곡선이 국제방사선방어 위원회(ICRP)에서 권장하는 선량당량곡선과 큰 차이를 나타내므로[2] 개인용 중성자선량계로서 적합하지 않다.

1979년 Apfel[3, 4]은 과열된 액체방울을 검출기 액체로 하고 이것을 검출기 매질인 gel상태의 점성체에 분산시킨 후 중성자 조사에 의해 과열된 액체방울의 기화로 형성되는 기포(bubble)의 검출을 원리로 한 Superheated Drop Detector (SDD)를 개발하였다. 이 SDD는 종래의 중성자선량계에 비해 1) 7선에 대한 감도가 없고[5] 2) 측정가능한 중성자의 에너지영역이 넓고 저선량의 측정이 가능하며 3) 중성자 조사와 동시에 즉각적인 선량평가가 가능하여 경보선량계로 사용할 수 있으며 4) 중성

*이 논문은 1986년도 문교부 자유과제 학술연구 조성비에 의하여 연구되었음.

자 반응폭선이 ICRP의 권장폭선과 유사하다는(2) 등의 장점을 갖는다.

한편 1984년 Ing과 Birnboim(6, 7)은 Apfel이 개발한 SDD와 원리적으로는 동일하나 과열된 액체방울을 분산·고정시키기 위한 검출기 매질로서 투명한 탄성중합체를 사용한 Bubble-Damage Polymer Detector (BDPD)를 개발하였다. BDPD는 투명한 탄성중합체를 사용함으로써 중성자 조사로 형성된 기포가 형성위치에서 장기간 고정되어 있으며 기포의 육안관측이 가능하여 선량평가가 더욱 편리하게 되었다.

본 연구에서는 검출기 매질인 탄성중합체의 중합조건을 구하고 BDPD를 직접 제작하여 속중성자에 대한 선량의존성과 감쇠율등의 검출기 특성에 대한 기초적인 실험결과를 고찰하여 개인용 중성자선량계로서의 가능성을 검토하였다.

II. 검출기의 동작원리

일반적으로 액체는 준안정상태인 과열상태로 존재할 수 있으며 과열된 액체는 방사선과의 상호작용이나 미시적인 공기 기포의 존재 또는 분자적 규모의 밀도의 요동등에 의해 기화하여 기체로의 상전이가 일어난다. 또한 액체의 비등점보다 낮은 온도 또는 증기압보다 높은 압력하에서 매질내에 방울로 분산시킨 후 온도를 상승시키거나 압력을 낮춤으로써 서로 섞이지 않은 액체나(8) 점성의 매질(4) 또는 중합체에(6) 과열된 액체방울로 분산·고정시킬 수 있다. BDPD(또는 SDD)는 중성자와의 상호작용에 의해 매질내에 분산된 과열된 액체방울의 기화로 형성되는 기포의 검출을 원리로 한다. 따라서 통상의 거품상자와(9) 유사하나 각각의 액체방울이 최소단위의 거품상자의 역할을 하며, 거품상자에서의 재가압과정이 필요치 않다(4).

그림 1은 BDPD의 기본구조이다(6). 검출기 액체인 과열된 액체방울이 탄성중합체의 검출기 매질에 균일하게 분산되어 있으며, 중성자 조사에 의해 형성된 기포가 중합체내에 포획되게 된다.

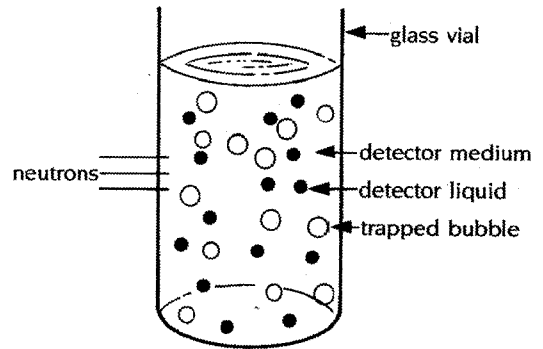


Fig. 1. Schematic diagram of the bubble-damage polymer detector.

한편 검출기 액체인 과열된 액체방울의 기화를 야기시키는데 필요한 에너지는 열중성자의 경우는 주로 (n, p) 핵반응으로 생성된 양성자의 에너지전달로 이루어지며(2, 5), 속중성자의 경우는 중성자와 핵과의 탄성산란에 의한 반도핵의 에너지전달로 이루어진다(2, 3). 에너지 E_n 의 중성자와의 탄성산란에 의해 질량 A 의 원자핵이 받는 최대 반도 에너지는

$$E_{\text{recoil}} = 4En \frac{A}{(A+1)^2}$$

이며, 이 에너지를 가진 반도핵은 검출기 액체의 저지능에 따라 과열된 액체방울에 에너지를 전달하게 된다.

또한 에너지 E_n 의 입사 중성자의 선속밀도를 ϕ ($n/cm^2 \cdot sec$), 검출기 액체인 과열 액체의 전체적용 V , 액체의 밀도를 ρ , 분자량을 M 이라 할 때 중성자와의 상호작용으로 인한 기포의 생성률 ϕ (bubbles/sec)는 검출기 액체의 총분자수 ($V\rho N_0/M$)와 선속밀도 ϕ 및 유효 반응단면적 $\sigma(E_n)$ 의 곱으로 주어진다(2, 3). 즉,

$$\phi = \phi \cdot V \cdot \sigma(E_n) \cdot N_0 \cdot \rho / M.$$

단 N_0 는 아보가드로수이다. 유효 반응단면적 $\sigma(E_n)$ 은 통상적인 중성자의 핵반응 단면적뿐만 아니라 검출기 액체의 비등점과 검출기의 사용온도와의 온도차와 중합체의 강도등에 따른 검출기 액체의 과열상태 및 검출기 액체의 종류등에 의해 결정된다.

따라서 기포의 생성율은 중성자 에너지에 따른 유효 반응단면적과 검출기 액체의 체적에 의존하며 액체방울의 수가 충분히 많으면 방울크기의 균일성에는 의존하지 않는다[2].

III. 실험

1. 검출기의 제작

과열상태의 검출기 액체방울을 탄성중합체의 검출기 매질내에 분산시키기 위해서는 검출기 매질로 사용하는 중합체가 중합되기 전의 유체상태에서 검출기 액체를 분산시켜야 하며, 중합체로 사용할 단량체 용액은 검출기 액체와 서로 혼합되어 섞이지 않는 것이어야 한다.

본 실험에서는 acrylamide($\text{CH}_2=\text{CHCONH}_2$)와 methylenebisamide(BIS, $(\text{CH}_2=\text{CHCONH}_2)_2\text{CH}_2$) 및 glycerine을 물에 녹여 원액으로 사용하고 tetramethyl ethylene diamine(TEMED, $(\text{CH}_3)_2\text{NCH}_2\text{CH}_2\text{N} \cdot (\text{CH}_3)_2$)와 ammonium peroxydisulfate(AP, $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$)를 중합 촉매제로 첨가하여 중합체를 만들었다. 중합체는 원액 성분의 중량비에 따라서 그 강도가 변화하였으며 강도가 너무 크면 과열된 액체방울의 기화가 일어나지 않으며 강도가 약하면 과열상태를 유지할 수 없었다. 본 실험에서는 검출기 제작을 위한 원액의 적정중량비를 acrylamid:BIS:glycerine:H₂O=9.5:0.5:100:20으로 정하였다. 또한 촉매제로 첨가한 AP의 양이 증가하면 중합속도가 증가하므로 검출기 액체의 분산을 위한 작업시간을 고려하여 AP의 양을 조절하였다.

한편 검출기 액체로서는 Freon12(CCl_2F_2 , b.p \cong -30°C), Freon142B($\text{C}_2\text{H}_3\text{ClF}_2$, b.p \cong -9°C), Freon114($\text{C}_2\text{Cl}_2\text{F}_4$, b.p \cong 4°C), isobutane(C_4H_{10} , b.p \cong -10°C) 등이 사용되고 있으나[3-7] Freon12가 비등점이 낮아 측정가능한 에너지범위가 넓고[5] 중성자 감도가 높으므로 본 실험에서는 Freon12를 검출기 액체로 선택하였다.

검출기를 제작하기 위하여 7cc screw cap septum vial에 먼저 원액 4g을 넣고 TEMED 8 μ l와 A-

P 15 μ l를 마이크로피펫으로 정량하여 첨가하였다. 그리고 Freon12의 볼베에 연결한 주사기 바늘을 vial의 cap에 꽂아 Freon12를 수십 μ l정도 주입한 후 vial을 흔들어 중합되기 전에 Freon12가 충분히 분산되도록 하였으며 이 모든 과정은 드라이아이스를 이용하여서 -70°C 정도의 온도에서 수행하였다. Freon12를 주입한 후에는 vial을 약 15분간 실온에 두어 중합반응이 빨리 일어나게 하였다.

제작한 검출기는 중합체위에 Freon12를 약간 더 부어서 vial내의 압력을 증가시킨 후 보관하였으며 중성자 조사시에는 vial을 열어 중합체 위의 Freon12를 부어낸 후 사용하였다.

2. 중성자 조사

본 연구에서는 100mCi의 Am-Be중성자선원(한국표준연구소)으로부터의 속중성자를 제작한 BD-PD에 조사하였다. Hot cell내에서 중성자선원으로 부터 일정간격의 거리(10cm~200cm)를 두고 검출기를 설치한 후 일정시간 노출함으로 중성자선량을 변화하였다. 또한 각 검출기표면에 0.5cm \times 0.7cm 크기의 CR-39플라스틱비적검출기를[11] 부착하고 중성자 조사후 이를 6.8N, 70°C NaOH용액에서 18시간 부식하여[12] 측정된 비적밀도로부터 조사된 중성자선량을 평가하였다.

IV. 결과 및 고찰

1. 검출기의 감응특성

사진 1은 중성자 조사전의 BDPD의 중합체내에 분산된 과열상태의 Freon12 액체방울의 저배율(\times 50) 현미경사진으로서 방울크기는 약 100 μ m였으며 액체방울은 중합체내에 거의 균일하게 분포하였다.

또한 사진 2는 제작한 BDPD로서 (a)는 중성자 조사전, (b)는 20 μ Sv, (c)는 70 μ Sv의 중성자를 조사한 것으로서 중성자가 조사되기 전의 검출기에는 기포가 전혀 형성되지 않았으며, 조사된 중성자선량이 증가할수록 형성된 기포의 수가 증가함을 알 수 있었다. 그리고 제작한 BDPD에 형성된 기포

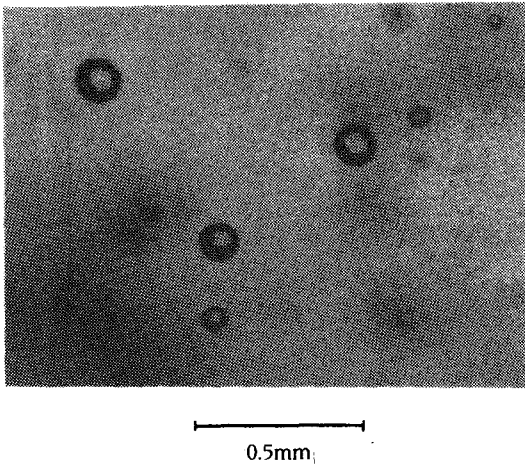


Photo. 1. Superheated Freon12 liquid drops dispersed in polymer.

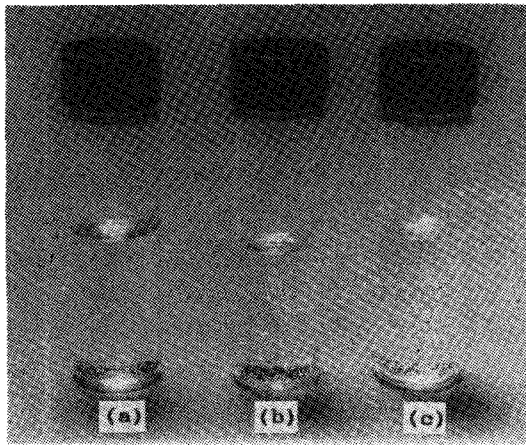


Photo 2. Formation of bubbles in the BDPD : (a) zore dose (b) 20mSv (c) 70mSv.

는 직경이 1~2mm로서 기포의 육안관측 및 계측이 가능하였다.

그림 2는 검출기의 전체적에 형성된 기포의 수를 계측하여 검출기의 감응곡선을 조사한 것으로 (a), (b), (c) 세 특성곡선은 검출기에 주입한 Freon 12의 상대적 체적비가 (a) : (b) : (c) = 1 : 1.3 : 1.6일 때의 감도의 차이를 나타낸다.

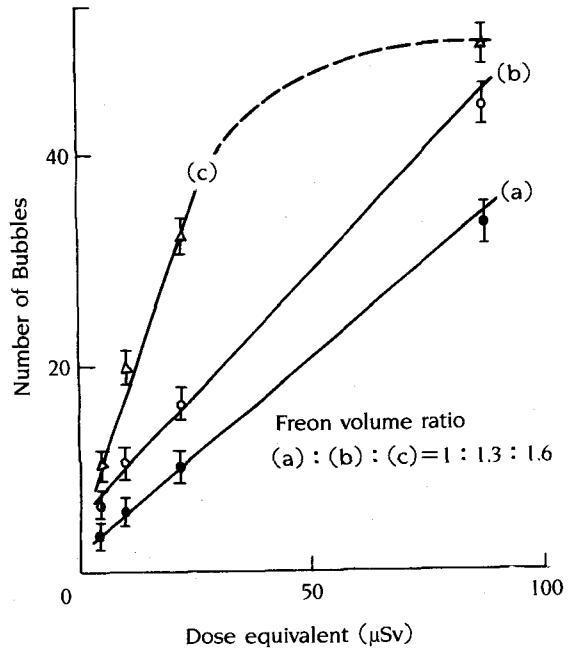


Fig. 2. Detector responses to the Am-Be neutrons (The indicated ratio is the Freon 12 volume ratio).

중성자감도는 약 100μSv까지의 중성자선량에 대해 선형적인 선량의존성을 보였으며 Freon12의 양이 증가함에 따라 중성자감도도 증가하였으나 Freon12의 양이 일정량 이상으로 증가하면 중성자감도가 포화됨을(그림 2의 (c)) 알 수 있었다. 그리고 제작한 BDPD는 약 20μl의 Freon12를 주입한 경우 Am-Be중성자에 대해 4-7bubbles/10μSv의 중성자감도를 나타내었다. 따라서 측정대상의 중성자선량범위에 따라 Freon12의 양을 적절히 조절함으로 검출기의 중성자감도를 변화시킬 수 있을 것으로 생각된다.

표 1은 본 실험에서 제작한 BDPD와 Apfel[2-5, 10] 및 Ing등[6, 7]의 BDPD를 비교한 것으로 형성된 기포의 크기는 그들의 논문에 명시되어 있지 않으므로 비교할 수 없었으나, 검출기 액체의 방울 크기와 중성자감도는 Apfel의 결과보다는 작으나 Ing의 결과보다는 다소 크게 나타났다.

Table 1. Some characteristics of different BDPD's.

	Apfel [2-5, 10]	Ing [6, 7]	this work
Detector medium	Gelatin Glycerine	Polyacrylamide	Acrylamide Glycerine
Detector liquid	CCl ₂ F ₂ (Freon 12) C ₂ Cl ₂ F (Freon 114) C ₂ H ₃ ClF ₄ (Freon 142) C ₄ H ₁₀ (Isobutane)	Freon 12 Freon 114	Freon 12
Drop size (dia.)	1-3mm	- 25 μ m	- 100 μ m
Bubble size (dia.)	not specified	not specified	1-2mm
# of bubble/10 μ Sv	- 50	1-3	4-7

2. 감쇠율 특성

그림 3은 BDPD를 제작한 후 중성자조사에 사용되기 전까지의 검출기 보관시간이 검출기의 감도에 미치는 영향을 관찰한 결과로 제작후 1개월까지는 중성자에 대한 감도가 큰 차이를 보이지 않았다. 또한 제작한 BDPD는 중성자 조사에 의해 일단 형성된 기포는 1개월 이상 경과하더라도 소실되지 않아 기포의 계속오차범위내에서 중성자감도가 일정하였으므로 제작한 BDPD의 감쇠율은 거의 무시할 수 있었다. 이는 Ing 등[6]의 결과보다 감쇠율이 크게 향상된 것으로 검출기 매질인 중합체 원액의 성분과 중량비 및 제작과정의 차이에 의한 것으로 생각된다.

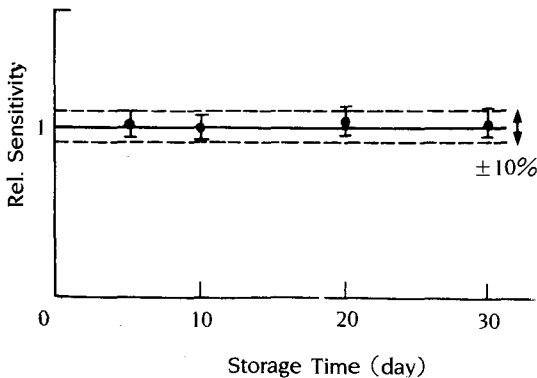


Fig. 3. Detector sensitivity as a function of storage time.

V. 결 론

본 연구에서는 중성자선량측정을 위하여 acrylamide와 글리세린을 중합한 중합체를 검출기 매질로 하고 여기에 과열상태의 Freon12 액체방울을 검출기 액체로 분산시켜 BDPD를 제작하였으며 Am-Be중성자에 대한 4~7bubbles/10 μ Sv의 중성자감도와 감쇠율 특성등을 고려할 때 본 실험에서 제작한 BDPD도 개인용 중성자선량계로서 실용가능성이 큰것으로 생각된다.

이러한 검출기의 특성과 아울러 BDPD는 사용시 전원이 필요치 않고 크기가 소형으로 휴대가 간편하고 저렴한 가격으로 제작이 가능하므로 개인용 중성자선량계로서 실용가능성이 충분하다고 판단된다. 그러나 본 실험의 결과는 BDPD의 제작과 선량의존성 및 감쇠율등의 기초적 특성에 관한 연구로서 이를 실용화하기 위해서는 앞으로 온도와 압력변화나, 중성자 에너지의 변화에 따른 검출기의 감응특성과 중성자와 과열상태의 액체와의 상호작용등의 물리적 특성을 확인하여야 할 것이다.

사 사

본 연구의 수행에 있어 연구비를 지원해 준 문교부당국과 중성자 조사에 많은 협조와 조언을 해주신 한국표준연구소 방사선표준실의 황상태 실장님께 심심한 사의를 표합니다.

참 고 문 헌

- 1) R. V. Griffith, D. E. Hankins, R. B. Gammage, L. Tommasino and R. V. Wheeler, Recent Developments in Personnel Neutron Dosimetry-a Review, *Health Phys.* **36**, 235 (1979).
- 2) R. E. Apfel and S. C. Roy, Investigations on the Applicability of Superheated Drop Detectors in Neutron Dosimetry, *Nucl. Instru. Meth.* **219**, 582 (1984).
- 3) R. E. Apfel, The Superheated Drop Detector, *Nucl. Instru. Meth.* **162**, 603 (1979).
- 4) R. E. Apfel, Detector and Dosimeter for Neutrons and Other Radiation, *U. S. Patent* **4**, 143, 274 (1979).
- 5) R. E. Apfel, Photon-Insensitive, Thermal to Fast Neutron Detector, *Nucl. Instru. Meth.* **179**, 615 (1981).
- 6) H. Ing and H. C. Birnboim, Bubble-Damage Polymer Detectors for Neutron Dosimetry, *presented at 5th Sym. on Neutron Dosimetry*, Germany (1984).
- 7) H. Ing and H. C. Birnboim, A Bubble-Damage Polymer Detector for Neutrons, *Nucl. Tracks Rad. Measu.* **8**, 285 (1984).
- 8) V. P. Skripov, *Metastable Liquids*, John Wiley & Sons, N. Y. (1974)p. 182
- 9) D. A. Glaser, Some Effects of Ionizing Radiation on the Formation of Bubbles in Liquids, *Phys. Rev.* **87**, 665 (1952).
- 10) R. E. Apfel and S. C. Roy, Superheated Drop Detector : A Possible Alternative for Neutron Dosimetry, *Rad. Protec. Dosim.* **10**, 327 (1985).
- 11) B. G. Cartwright, E. K. Shirk and P. B. Price, A Nuclear-Track-Recording Polymer of Unique Sensitivity and Resolution, *Nucl. Instru. Meth.* **153**, 457 (1978).
- 12) H. Tawara, H. Takahashi, I. Watanabe, T. Doke, Yung-Ho Kang and M. Miyajima, Low Level Fast neutron Dosimetry Using CR-39 Plastic Sheets, *Nucl. Instru. Meth.* **B23**, 369 (1987).

Development of the Bubble-Damage Polymer Detector for Neutron Dosimetry

Y. H. Kang, U. Hong

*Department of Physics, College of Natural Sciences
Kyungpook National University, Taegu, Korea*

D. S. Kim

*Department of Physics Education, College of Education
Taegu University, Taegu, Korea*

K. Katoh

*National Laboratory for High Energy Physics
Ibaraki, 305 Japan*

ABSTRACT

A bubble-damage polymer detector, which operation principles are based on vaporization of superheated liquid drops by interaction with radiations, is developed for neutron dosimetry. The detectors are fabricated by dispersing the superheated liquid drops of Freon12 into transparent and elastic polymer made of acylamide and glycerine. The bubbles formed by neutron irradiation are immediately visible. The neutron sensitivity of the detectors is 4-7 bubbles/10 μ Sv for Am-Be neutrons.