

博士學位論文

P-化合物을 接着物質로 利用한 방사선
측정용 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 素子の 開發 및
線量計的 特性에 관한 研究



濟州大學校 大學院

에너지工學科

梁 貞 先

2004年 12月

Study on the Development and Dosimetric
Properties of New $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ TL Detectors
Bonded by P-compounds for Gamma, Beta
and Neutron Measurement

Jeong-Seon Yang

(Supervised by Professor Jae-Woo Park)



A THESIS SUBMITTED IN PARTIAL FULFILLMENT OF
THE REQUIREMENTS FOR THE DEGREE OF DOCTOR
OF ENGINEERING

DEPARTMENT OF NUCLEAR AND ENERGY
ENGINEERING
GRADUATE SCHOOL
CHEJU NATIONAL UNIVERSITY

2004. 12

SUMMARY

A thermoluminescence dosimeter (TLD) has been generally accepted as the most accurate and reliable method of personal dosimetry because of its superior and long term stability comparing with other type dosimeter, such as Film Badge. Among many TL (thermoluminescence) materials investigated and suggested so far, the $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL material has been most widely used as a personal or environmental dosimeter because of its high sensitivity and low fading. A solid or crystalline form dosimeter is generally preferred for routine dosimetric applications since it has an advantage of handling convenience over the loose TL powder. For this reason, sintered TL pellets are usually used. However a difficulty is still in manufacturing the dosimeter in the form of sintered pellets in which the TL characteristics of original powder remain unchanged. It is not possible to make a solid dosimeter composed of 100 % pure $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL powder. One of the most frequent methods is mixing $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL powder with binding substances. A Teflon is a good binding material currently used because it does not change the TL characteristics of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL powder. In the case of the Teflon pellet, due to the reduction of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ powder content by 15 ~ 20 wt% in TL pellets, the TL sensitivity of the Teflon pellet accordingly decreases, and moreover the re-usability of this Teflon pellet is not sufficient due to its color changing. To overcome this disadvantage, many researchers have prepared $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL pellets by mixing the

powder with different binding substances. But even with these efforts, they could not significantly improve the TL intensity and other TL characteristics required for radiation dosimeter. In Korea, studies on the development of high sensitivity TL pellet using CaSO₄:Dy TL material have been conducted in Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI).

This thesis presents the development of CaSO₄:Dy TL pellet by bonding the TL powder with small amount of P-compounds designated as KCT-300 (KAERI CaSO₄:Dy TLD). Dosimetric properties of the KCT-300 TL dosimeter have been investigated by using the method presented in the IEC 1066 international Standard. The sensitivity of the KCT-300 was about 6 times higher than that of the Teflon CaSO₄:Dy TL dosimeter (Teledyne, USA). The dose response of KCT-300 was linear over the range from 10⁻⁵ Gy to 10 Gy and supralinear at higher dose. The energy response of the KCT-300 has been also investigated for photon energies from 20 keV to 663 keV. The result of strong energy dependence below 100 keV is attributed to the high effective atomic number of CaSO₄. Hence, when the CaSO₄:Dy pellet is used for a personnel dosimeter, energy-compensation filters should be considered for the low energy region. The coefficients of variation for KCT-300 did not exceed 0.075, which the IEC requires as a standard value. This means that reproducibility of the KCT-300 well satisfies the IEC requirements. The lower limit of detection (LLD) of the KCT-300 was 0.6 μ Gy, which was measured by Harshaw 4500 TLD Reader.

When CaSO₄:Dy TL material is used to measure the thermal neutron, it cannot be

directly applied to the thermal neutron dosimeters in spite of its good TL characteristics because the thermal neutron capture cross section of the constituents of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ is small. One method to enhance the neutron interaction is obtained by introducing an element of ${}^6\text{Li}$ into TL powder because ${}^6\text{Li}$ has a large thermal neutron capture cross section and acts as a neutron absorption centre. Several studies for thermal neutron dosimetry using $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TLD have been performed so far. Most of the neutron dosimetry results reported in the literature have been obtained by using powder type $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL dosimeters rather than pellet type dosimeters.

In this thesis a development of pellet type TL dosimeters for neutron measurement, designated as KCT-306 has been presented. If a ${}^6\text{Li}$ -compound is embedded in $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL phosphor as a thermal neutron absorption material, α particle and ${}^3\text{H}$ particle are produced via the ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ reaction when exposed to thermal neutron, and their energies are absorbed by the $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL phosphor to produce a TL.

The TL pellets combination of our KCT-306/KCT-300, the commercially available TLD-600/TLD-700, and TLD-600H/TLD-700H (Harshaw, USA) have been irradiated in the neutron/gamma mixed fields of a D_2O moderated (30 cm dia.) ${}^{252}\text{Cf}$ neutron source in KAERI. The TLD-700, TLD-700H and KCT-300 were used at the same time for gamma ray discriminators in the neutron/gamma mixed fields. It was found that the neutron/gamma response ratio of KCT-306/KCT-300, which is developed in this study, was about 4 times higher than that of the commercial TLD-600/TLD-700 or TLD-600H/TLD-700H. This means that the KCT-306 in combination with KCT-300 could be used as a thermal neutron dosimeter in a mixed

radiation field.

The TL materials KCT-300 and KCT-306 developed in this study could be utilized in a more precise measurement and evaluation of the personal as well as environmental radiation doses by using TLD.



List of Figure

Fig. 1. Various application fields of TLD	3
Fig. 2. A simple model of thermoluminescence emission	12
Fig. 3. Schematic drawing of an albedo neutron dosimeter consisting of a boron plastic encapsulation and a card containing two chips each of ^6LiF and ^7LiF	25
Fig. 4. Sulfate evaporation equipment used to preparation of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL phosphor ·	27
Fig. 5. Schematic diagram of the sample preparation	28
Fig. 6. Schematic diagram of preparation process of KCT-300	30
Fig. 7. Electric furnace used to sintering of KCT-300	33
Fig. 8. Thin $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL dosimeter using Kapton film	39
Fig. 9. Schematic diagram of preparation process of KCT-306	41
Fig. 10. ^{252}Cf Neutron source of KAERI (with D_2O moderator of 30 cm dia.)	43
Fig. 11. Neutron spectrum from a ^{252}Cf spontaneous fission source	44
Fig. 12. Neutron spectrum from a ^{252}Cf spontaneous fission source in the centre of a D_2O sphere with a diameter of 30 cm	44
Fig. 13. Basic TLD Reader	50
Fig. 14. The glow curves of various kinds of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL phosphors	52
Fig. 15. The glow curves of non-crystallized powder and crystallized-TL phosphor ·	53
Fig. 16. Photomicrographs of SEM of the $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ crystallized-TL phosphor (left) and non-crystallized-powder (right)	53

Fig. 17. Dependence of the main peak intensity of CaSO ₄ :Dy TL phosphor on annealing temperature	54
Fig. 18. Dependence of the main peak intensity on NH ₄ H ₂ PO ₄ concentration (wt%)	57
Fig. 19. Surface of KCT-300 without pre-heat treatment (left), with pre-heat treatment (right) (NH ₄ H ₂ PO ₄ : 25 wt%)	57
Fig. 20. Dependence of main peak and low temperature peak intensity on sintering temperature	58
Fig. 21. The glow curves of CaSO ₄ :Dy TL phosphor and KCT-300	60
Fig. 22. The glow curves of KCT-300 and Teflon pellet (KAERI & Teledyne)	61
Fig. 23. Dose linearity of KCT-300	63
Fig. 24. The glow curves of KCT-300 at low dose (1 μGy) and background dose	64
Fig. 25. Relative energy response of KCT-300	66
Fig. 26. Fading rate of KCT-300	67
Fig. 27. Reusability of KCT-300	69
Fig. 28. The glow curves of CaSO ₄ :Dy TL phosphor and Kapton film TL pellet	71
Fig. 29. The beta energy response of Kapton film TL detectors	73
Fig. 30. The beta energy response of Teflon TL detectors	74
Fig. 31. The beta energy response of KCT-300	75
Fig. 32. The glow curves of CaSO ₄ :Dy TL pellet embedded various Li-compounds	76
Fig. 33. Dependence of the main peak intensity of thermal neutron detector on ⁶ Li ₂ CO ₃ concentration	78
Fig. 34. Dependence of the main peak intensity of KCT-306 on ⁶ Li ₂ CO ₃ -compound and CaSO ₄ :Dy TL phosphor concentration	80

Fig. 35. Dependence of the main peak intensity of KCT-306 on P-compounds
concentration 82

Fig. 36. Dependence of the main peak intensity of KCT-306 on grain size of
CaSO₄:Dy TL phosphor 84



List of Table

Table 1. Comparison of dose limit (ICRP 26 and ICRP 60)	2
Table 2. General characteristics of various TL materials	4
Table 3. Student's t distribution	22
Table 4. Relative dose response function $f(D)$ of KCT-300	63
Table 5. Relative energy response of KCT-300	66
Table 6. Reusability of KCT-300	69
Table 7. Relative TL intensity to neutron and gamma mixed field	78
Table 8. Relative TL intensity of KCT-306 and TLD-600 with grain size of CaSO ₄ :Dy TL phosphors	84
Table 9. Relative neutron response of KCT-306 and Harshaw neutron TLD (TLD-600 and TLD-600H)	85

목 차

SUMMARY	i
List of Figure	v
List of Table	viii
I. 서 론	1
1. 연구배경	1
2. 국내 연구 현황 및 연구 목적	7
II. 이론적 배경	11
1. TL 원리 및 현상학적 모델	11
2. 열발광 선량계의 선량계적 특성	17
1) 감도 (Sensitivity)	17
2) 선량 선형성 (Dose linearity)	17
3) 에너지 반응도 (Energy response)	18
4) 감쇠 (Fading)	19
5) 선량 측정 하한치 (Lower Limit of Detection : LLD)	20
6) 반복 사용성 (Reusability)	21
3. 중성자 측정 방법	23

III. 물질의 제조 및 실험 방법	26
1. 감마선 및 베타선 측정을 위한 KCT-300 소자의 제조 과정	26
1.1 고감도 CaSO ₄ :Dy TL 분말의 제조	26
1.2 CaSO ₄ :Dy TL 분말의 최적 열처리 조건	29
1.3 KCT-300 소자의 제조	29
1) 혼합 분말의 최적 열처리 조건	31
2) P 화합물의 함량 결정	32
3) KCT-300 소자의 열처리 조건	32
1.4 KCT-300 소자의 선량계적 특성 실험 방법	34
1) 감도 (Sensitivity)	34
2) 선량 선형성 (Dose linearity)	34
3) 에너지 반응도 (Energy response)	35
4) 감쇠 (Fading)	35
5) 선량 측정 하한치 (LLD)	36
6) 반복 사용성 (Reusability)	36
1.5 베타선 측정을 위한 얇은 TL 소자의 제조 과정	38
1) 얇은 TL 소자의 제조	38
2) 베타선에 대한 에너지 반응도	40
2. 중성자 측정을 위한 KCT-306 소자의 제조 과정	40
2.1 KCT-306 소자의 최적 제작 조건	40
1) 열중성자 반응 물질인 ⁶ Li 화합물의 결정	45
2) ⁶ Li 화합물 및 CaSO ₄ :Dy TL 분말의 최적 함량 결정	46
3) 접착물질 P 화합물의 최적 함량 결정	46
2.2 CaSO ₄ :Dy TL 분말의 낱알 크기 (grain size)와 중성자 반응도의 영향	47

2.3 KCT-306 소자의 증성자 반응도 비교 실험 방법	47
3. 열발광 소자의 발광곡선 측정	48

IV. 결과 및 토의

1. 감마선 및 베타선 측정을 위한 KCT-300 소자	51
1.1 CaSO ₄ :Dy TL 분말의 감도 비교	51
1.2 CaSO ₄ :Dy TL 분말의 최적 열처리 조건	54
1.3 KCT-300 소자의 최적 제작 조건 결정	55
1) 혼합 분말의 최적 열처리 조건	55
2) P 화합물의 최적 함량	55
3) KCT-300 소자의 최적 열처리 조건	58
1.4 KCT-300 소자의 선량계적 특성	59
1) 감도 (Sensitivity)	59
2) 선량 선형성 (Dose linearity)	62
3) 에너지 반응도 (Energy response)	65
4) 감쇠 (Fading)	67
5) 선량 측정 하한치 (LLD)	68
6) 반복 사용성 (Reusability)	68
1.5 베타선 측정을 위한 얇은 TL소자	70
1) 베타선 측정용 소자의 감도 비교	70
2) 베타선에 대한 에너지 반응도	72
2. 열중성자 측정을 위한 KCT-306 소자	76
2.1 KCT-306 소자의 최적 제작 조건 결정	76
1) 열중성자 반응 물질 ⁶ Li 화합물	76

2) ${}^6\text{Li}$ 화합물 및 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말의 최적 함량	79
3) 접착물질 P 화합물의 최적 함량	81
2.2 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말의 난알크기에 따른 중성자 반응도의 변화	83
2.3 KCT-306 소자의 중성자 반응도 비교	85
V. 결론 및 향후 연구방향	86
1. 결 론	86
2. 향후 연구	88
 참고문헌	 90
특허 현황	98
감사의 글	99



I. 서론

1. 연구배경

최근 들어 방사선을 비롯한 원자력의 응용 분야가 빠른 속도로 발전하고 있는 실정이다. 방사선 응용 분야는 의료 뿐 아니라 살균 소독 및 연대 측정을 비롯하여 그 범위가 광범위하며 발전 속도가 빠르다. 따라서 관련 분야에 종사하는 작업자의 수도 늘어나고 있는 실정이며 작업 환경 또한 다양해지고 있다. 이런 응용 분야의 확장과 더불어 방사선 관리에 대한 관심 및 중요도도 높아지고 있다. 특히 1990년 국제방사선방어위원회 (International Commission on Radiological Protection : ICRP)에 의해 제안되고 2003년 우리나라에서 채택한 ICRP 60에서 선량 한도가 더 낮아지면서 개인 피폭 관리의 체계가 강화되고 있다. Table 1에 ICRP 60 이전에 우리나라에서 채택하여 쓰던 ICRP 26과 ICRP 60의 선량 한도를 간단히 비교하여 나타내었다. 또 ICRP 60에서는 선형무발단 (linear non-threshold) 선량 가설에 바탕을 둔 확률적 영향 (stochastic effects)의 발생을 제한하기 위하여, 합리적으로 달성할 수 있는 한 충분히 낮게 (as low as reasonably achievable : ALARA) 선량을 유지하는 것을 요구하고 있다. ALARA를 유지하기 위해서는 저선량 영역에서 보다 정밀하고 정확한 선량평가를 필요로 한다. 그러나 ICRP에서 권고하고 있는 인체 및 환경이 받는 피폭방사선량의 평가를 위한 유효선량 (effective dose)은 원칙적으로 측정 불가능한 양이다. 따라서 국제 방사선 단위측정위원회 (International Commission on Radiation Units and Measurements : ICRU)에서는 유효선량을 물리적으로 측정 가능한 실용량 (operational quantity)인

주변선량당량(환경) $H^*(d)$ 과 개인선량당량(개인) $H_p(d)$ 으로 측정할 것을 제안하였다. $H^*(d)$ 및 $H_p(d)$ 를 정확하게 측정·평가하기 위해서는 선량당량의 측정기술, 관련 교정기술, 개인선량 산정 및 평가기술, 선량평가 알고리즘의 개발 및 검증 등을 주요 내용으로 하는 개인 방사선 도시메트리 기술의 개발, 자립, 선진화가 필요하다. 다른 원자력 선진국의 경우 개인 방사선 도시메트리 기술을 발전시켜 자립화 및 상용화 하고 있으나 원자력 산업 종사자의 수가 급격히 증가하는 우리나라의 경우 이러한 기술이 거의 전무한 상태로서 전적으로 해외 기술에 의존하고 있는 실정이다.

Table 1. Comparison of dose limit (ICRP 26 and ICRP 60)

	작업자		일반인	
	ICRP 26	ICRP 60	ICRP 26	ICRP 60
유효선량	50	20	5	1
등가선량				
수정체	150	150	50	15
단일장기 또는 조직	500	-	50	-
피부	500	500	50	50
손, 발	500	500	-	-

개인 및 환경 모니터링을 통한 관리를 요하는 방사선을 측정하기 위해서는 별도의 장비가 필요하게 된다. 특히 개인피폭선량 측정을 위해 사용하는 장비를 개인선량계라 한다. 그 중에서도 열발광 선량계 (Thermoluminescence Dosimeter : TLD)는 크기와 형태를 임의로 제작할 수 있어서 필름이나 전리조 등 다른 선량계로는 측정이 불가능한 인체조직 내의 내부 피폭선량 측정에 이용할 수 있고, 선량 측정 범위가 넓으며 공간 분해능이 좋아 선량 변화가 심한 영역에서 선량 분포 측정이 용이하다. 또한 환경인자의 영향이 적고 장기간의 집적선량 측정이

가능하므로 개인 피폭선량 측정이나 환경 방사능 측정에 사용할 수 있다. TLD는 판독 과정이 비교적 간단하고, 적절한 열처리를 통해 반복사용이 가능하다는 이점이 있을 뿐 아니라 측정 대상이나 환경에 따라 열발광체를 선택할 수 있으므로 그 응용범위가 넓다. Fig. 1에 TLD의 응용 분야(Mckeever 등 1995)를 나타내었다. 앞에서 제시한 장점들로 인하여 TLD는 1950년대 Farrington Daniels 등에 의해 처음으로 제안되어 방사선량 평가에 적용된 이후 다양한 물질들이 개발되어 개인 피폭선량, 환경 방사선량 및 의료용 방사선량 측정 등에 널리 이용되고 있으며, 고감도의 새로운 TL 물질 개발에 대한 연구가 계속되고 있다 (Mckeever 등 1995). Table 2에는 현재까지 개발되어 일반적으로 쓰이고 있는 TL 물질과 특성들을 간단히 나타내었다.

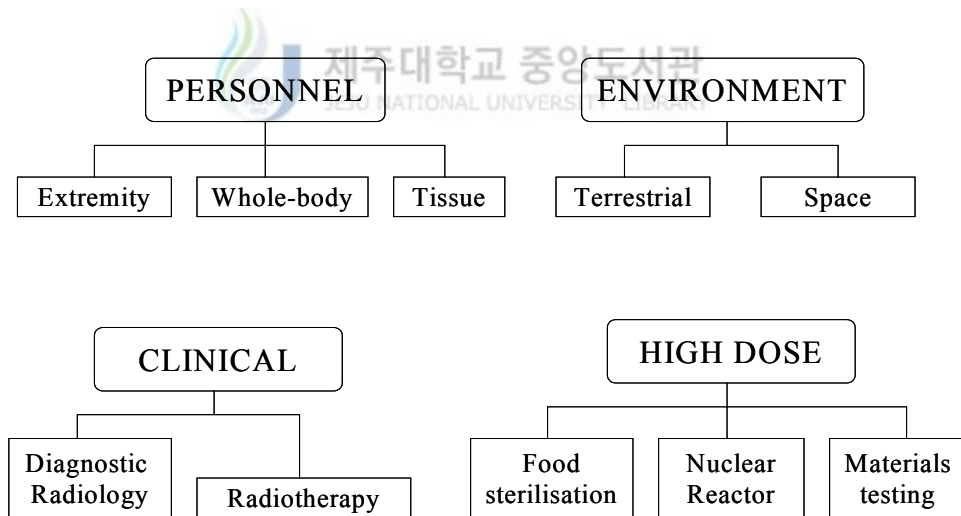


Fig. 1. Various application fields of TLD

Table 2. General characteristics of various TL materials

TL material	Z_{eff}	Main Peak (°C)	Emission Maximum (nm)	Relative Sensitivity	Fading
LiF:Mg,Ti (TLD-100)	8.3	200	400	1	5 %/ year
LiF:Mg,Cu,P (GR-200)	8.3	230	370	30	negligible
Li ₂ B ₄ O ₇ :Mn (TLD-800)	7.3	220	605	0.5	10 %/ 1month
Li ₂ B ₄ O ₇ :Cu	7.3	205	368	3	9 %/ 2months
MgB ₄ O ₇ :Dy	8.4	210	480, 570	7	10 %/ 1month
BeO	7.1	180-220	200-400	0.5-2	8 %/ 2months
CaF ₂ :Mn (TLD-400)	16.3	260	500	5	16 %/ 2weeks
CaF ₂ :Dy (TLD-200)	16.3	215	480, 570	15	13 %/ 1month
CaSO ₄ :Dy (TLD-900)	14.4	210	480, 570	30	1-2 %/ 1month

현재 우리나라에서는 법정 선량계로 필름벡지와 TLD를 정하고 있으나 일반적으로 TLD를 이용하고 있다. TL 물질에는 크게 인체의 유효원자번호 ($Z_{\text{eff}}=7.42$)와 비슷한 조직 등가물질인 LiF 계열의 TL 물질과 뼈의 유효원자번호 ($Z_{\text{eff}}=15$)와 비슷한 CaSO_4 계열의 TL 물질이 있다 (McKeever 등, 1995).

방사선에 대한 감도가 높은 TL 물질인 CaSO_4 계열의 경우, 환경 선량 측정에 유리하여 이미 환경 선량계로 널리 쓰이고 있다. 이 물질은 유효원자번호가 비교적 높아 개인 선량계로 사용할 경우 적합한 필터가 요구되는 번거로움이 있을 수 있다. 그러나 개인피폭관리의 대상이 되는 작업자의 작업환경에서의 선량 준위가 낮고 길게는 3개월간의 집적 선량을 측정하는 것을 고려할 때, $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질의 고감도와 낮은 감쇠율 특성은 개인선량계에 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질을 선택하는 타당한 이유가 된다. 그리고 ICRP 35에서는 정기적으로 연간 선량한도에 해당하는 피폭 가능성이 있는 작업자에 대해 입사 방사선의 선질 및 입사 방향과 같은 부가적 정보를 제공할 수 있는 선량계를 사용하여 피폭된 장기의 실질적 등가선량을 평가하도록 권고하고 있다. 이는 심한 에너지 반응도로 인해 개인피폭 선량계로 제한성을 보이는 비조직등가 물질인 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질이 오히려 개인피폭 선량계로서 큰 장점으로 적용될 수 있음을 의미한다.

$\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질에 대한 연구는 Yamashita 등 (1971)에 의해 Dy를 활성체로 첨가한 안정적인 발광 곡선을 갖는 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말이 제조된 후부터 활기를 띠기 시작하였다. 그러나 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질은 분말 자체만으로는 사용하기에 편리한 고형화된 형태로 제작할 수 없고 반드시 접착물질을 첨가해야 한다. TL 분말의 고형화를 위해 첨가하는 접착물질은 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말과 별도의 화학적 반응을 일으키지 않아야 하며 또한 선량계적 특성에 영향을 주지 않아야 한다. 현재 상용화된 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 소자의 경우 이런 조건에 가장 잘 부합하는 접착물질로서 Teflon을 쓰고 있으나, 다음과 같은 몇 가지 단점을 보인다.

- 1) Teflon은 상온에서 점성을 갖기 때문에 TL 분말과 고르게 섞기 어렵다. 따라서 액체 질소 온도 (77 K)에서 미세한 분말로 만든 후 TL 분말과 혼합해야한다.
- 2) Teflon과 혼합된 분말 또한 점성을 갖기 때문에 일정한 질량으로 상온 압축하여 소자화 하기에 어려움이 있다.
- 3) 소자의 전체 질량 중 75 - 85 wt%가 접착물질이어서 고감도의 특성을 제대로 발휘하지 못한다.
- 4) Teflon은 열에 약하므로 반복 사용시 변색되어 소자의 감도를 저하시키는 요인으로 작용한다.
- 5) 재사용을 위한 열처리시에도 최대온도가 300 ℃를 넘지 못하므로 고선량 조사시 잔류선량을 완전히 제거하기 어렵다.

이러한 단점들을 보완하기 위해 새로운 접착물질을 찾기 위한 연구가 계속되었지만, Teflon을 대체할 수 있을 정도의 우수한 성능을 갖는 접착물질을 발견하지 못하였다 (Webb, 등 1972, Shastri, 등 1980, Morata, 등 1982, Axofin, 등 1986).

2. 국내 연구 현황 및 연구 목적

인체 및 환경이 받는 피폭선량의 평가를 위해서는 개인선량계와 선량계 판독 장비의 사용이 필수적이다. 원자력 선진 각국에서는 개인선량 평가기술을 자립화 한 것은 물론 개인선량 평가를 위한 개인선량계 및 선량판독장치와 관련 전산 S/W 프로그램 등을 개발하여 상용화하고 있다. 그러나 국내에서는 아직 개인 선량계 및 선량 판독장비가 생산되고 있지 못하며 전적으로 외국에서 수입하여 해외 기술에 의존하고 있는 실정이다. 따라서 국내에서는 선량 평가기술의 자립화를 위한 연구의 필요성으로 인해 최태진 등 (1986)에 의해 개인 및 환경 선량 측정에 유리한 고감도의 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질 제조에 대한 연구가 시작 되었으나 TL 발광 곡선이 안정적이지 못해 더 이상의 연구가 진행되지 못하였다.

그 후 한국원자력연구소 (Korea Atomic Energy Research Institute : KAERI)는 방사선 방호실용량 평가 및 측정 표준기술 개발 (1998) 과제를 수행하면서 방사선 방호 및 도시메트리 기술의 해외 의존도 탈피 및 확보를 위해 TL 물질에 대한 연구를 시작하였다. 1999년에 상용화된 Teledyne사 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말 감도의 90%의 감도를 보이는 물질을 제조하였고 제조한 TL 분말을 이용하여 기존의 Teflon 함량 (80 wt%)보다 낮은 함량 (70 wt%)을 갖는 TL 소자를 개발하였다 (양정선 등 2002). 개발된 소자는 기존의 Teflon 소자보다 높은 감도를 보이긴 하였으나 여전히 Teflon을 접착물질로 사용하는 데서 오는 문제점들을 해결하지 못하였다.

고감도의 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질을 이용하여 보다 정확한 개인 선량 평가 기술을 확보하기 위해서는 Teflon이 아닌 다른 접착물질을 이용하면서 우수한 선량계적 특성을 유지하는 소자를 개발할 필요가 있다. 본 연구에서는 Teflon을 대체할 수 있는 접착물질로서 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 를 이용하여 고감도의 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 소자 (KAERI $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$

TLD : KCT-300 소자)를 개발하고 KCT-300 소자의 최적 제조 조건을 결정하였다. 또한 KCT-300 소자의 선량계적 특성들을 IEC (International Electrotechnical Commission) 1066 표준에서 제시하는 실험 방법에 따라 조사하였다.

한편, 베타선 측정을 위해 개인피폭선량계인 TLD를 이용하여 피폭 선량을 측정할 때, 감마선과 X-선 및 비교적 에너지가 높은 베타선은 소자의 두께에 대한 에너지 의존성이 낮지만 1 MeV 이하의 저에너지 베타선은 비정이 짧아 소자의 두께에 대한 에너지 의존도가 커져 정확한 선량 측정이 어렵다. KCT-300 소자를 이용하여 베타선을 측정할 경우 저에너지 베타선의 경우 정확한 선량측정에 한계가 있다. 따라서 보다 정확한 베타선량 측정을 위해서는 얇은 두께의 소자를 제조할 필요가 있다. 본 연구에서는 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질의 고감도 특성을 이용하기 위해 캡톤 필름 (Kapton film)을 이용한 얇은 두께의 소자를 개발하였다. 현재 많이 쓰이는 베타 선원인 800 keV의 ^{90}Sr - ^{90}Y 와 240 keV의 에너지를 갖는 ^{204}Tl 선원을 이용하여 제조한 캡톤 필름 소자의 에너지 반응도를 측정하고, KCT-300과 Teledyne사의 베타 측정용 소자의 베타에너지 응답성과 비교하였다.

중성자는 전하량이 없기 때문에 중성자 측정 방법은 감마나 베타선량의 측정과 다르다. 따라서 중성자 선량 평가를 위해서는 중성자 측정만을 위한 별도의 소자가 필요하다. $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질은 감도가 높아 개인 및 환경 선량계로 각광 받는 물질임에도 불구하고 중성자 반응 단면적이 매우 낮아 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질 자체만으로는 중성자 측정에 쓰이지 않지만, 현재 Teledyne 사에서 Teflon을 접착물질로 이용한 소자에 ^6LiF 를 중성자 반응 물질로 첨가한 소자를 제조하여 사용하고 있다. 그러나 Teflon을 접착물질로 첨가한 중성자 측정용 소자의 중성자에 대한 감도가 매우 낮아 정확한 선량 측정이 어렵다는 단점이 있다. 이러한 단점을 극복하고 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질에 열중성자 반응 물질을 첨가하여 중성자 측정용 소자를 제조하기 위한 연구가 시도되고 있다.

본 연구에서는 소량의 접착물질을 첨가한 KCT-300 소자의 제조 방법을 기반으로 하여 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질에 열중성자 반응 물질로 ^6Li 화합물을 첨가한 중성자 측정용 소자 (KCT-306)를 개발하였다. $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질은 중성자 반응 단면적이 극히 낮기 때문에 ^6Li 화합물과 같은 열중성자 반응 단면적이 큰 물질을 첨가하여 중성자 측정용 소자를 제조한다. 소자에 입사된 중성자는 ^6Li 화합물과 $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$ 반응에 의해 α 입자와 ^3H 입자를 방출하고, $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질이 α 입자 및 ^3H 입자와 반응하여 방출되는 TL의 양으로 중성자 선량을 측정한다. 이런 방법을 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질에 적용하여 중성자 측정용 소자를 개발하기 위한 몇몇 연구가 수행되어 중성자 측정용 TL 분말을 개발하기도 하였다 (Mayhugh 등, 1971; Morgan 등, 1984; Lakshmanan and Bhatt 1977; IGA 등, 1977; Mutsuo Takenaga, 1977; Beachand Huang, 1976).

본 연구에서는 중성자 측정용 소자의 개발을 위해 중성자 반응 물질로 이용하는 ^6Li 화합물의 종류를 결정하기 위한 실험을 수행하여 최적의 성능을 보이는 ^6Li 화합물을 선택하였다. KCT-306 소자의 최적 제조 조건을 결정하기 위해 KCT-306 소자의 구성물인 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말, 열중성자 반응 물질인 ^6Li 화합물, 접착물질로 첨가되는 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 화합물의 함량을 변화시키면서 소자의 중성자 반응도를 측정하여 최적 제조 조건을 결정하였다. 최적 제조 조건에 따라 제조한 중성자 측정용 소자 KCT-306 소자와 중성자장에 혼합되어 있는 감마선량 측정을 위한 KCT-300 소자를 이용하여 중성자/감마 혼합장에서의 중성자 반응도를 측정하고 상용화된 중성자 측정용 소자인 LiF 계열의 TLD-600/TLD-700 (LiF:Mg, Ti), TLD-600H/TLD-700H (LiF:Mg, Cu, P)와 비교하였다.

본 논문의 구성은 I 장 서론 부분에서 본 연구 배경 및 국내 연구현황과 목적에 대해 서술하였고, II 장 이론적 배경 부분에서는 열발광의 현상학적 모델과 TLD의 기본적인 선량계적 특성 및 알베도 선량계를 이용한 중성자 측정에 대해 소개하였다. 그리고 III 장 물질의 제조 및 실험 방법에서는 감마 베타 측정용 소자인 KCT-300의 제조

과정 및 선량계적 특성 실험 방법과 증성자 측정용 소자인 KCT-306의 제조과정과 증성자 반응도 측정 방법에 대해 기술하였다. IV장 결과 및 토의 에서는 앞 장에서 제시한 실험 결과들에 대해 논의 하였고, V 장에서는 본 연구의 실험에 대한 결론을 내리면서 향후 연구 계획에 대해 제시하도록 구성하였다.



II. 이론적 배경

1. TL 원리 및 현상학적 모델

절연체나 반도체 등의 물질이 방사선에 조사된 후 열을 가하였을 때 빛을 방출하는 현상을 열발광(Thermoluminescence : TL) 또는 열자극 발광(Thermally Stimulated Luminescence : TSL)이라고 한다(Reuvenchen and McKeever, 1997, Mahesh 등 1989). TL은 1663년 Robert Boyle에 의해 천연 다이아몬드에서 처음으로 관측되었다. 그러나 실질적으로 열발광 물질에 대한 과학적인 연구는 1895년 Wiedemann과 Schmit에 의해 시작되었으며, 이때 전자빔으로 조사된 시료와 시료에 열을 가하는 동안 방출된 빛 사이의 관계를 조심스럽게 제시하였으며 흡수된 방사선의 양과 물질의 특성에 대한 관심이 증대되기 시작했다.

TL을 운동론적으로 기술하기 위한 간단한 모델을 Fig. 2에 나타내었다. 금지대가 큰 물질의 결정 성장과정, 혹은 결정 성장 후 열적 또는 화학적 처리 등에 의해 물질 내에 결정 결함이 생성 되면 금지대 내에 트랩준위가 형성된다. 그림에서 먼저 외부에서 높은 에너지를 가진 방사선 등에 의해 가전자대의 전자가 전도대로 올라간다. 이때 일부분은 극히 짧은 시간에 제자리로 되돌아오고 일부분이 불순물, 결합 등에 의한 금지대내에 있는 트랩준위에 포획되어 상당히 긴 시간동안 안정된 상태를 유지한다. 외부의 가열 등의 자극이 주어지면 트랩준위의 전자는 전도대로 올라간다. 이 전자는 금지대내에 있는 재결합준위에서 정공(hole)과 재결합하여 TL을 발생한다. 이때 방출되는 TL의 양은 전자-정공쌍의 수에 비례하게 되며 전자-정공쌍의 생성은 방사선 조사량에 비례하므로 열발광 선량계를 방사선량 측정기로 사용 할 수 있게 된다. 가열 등의 자극에 의해 전자

가 전도대로 재여기 될 때 전도대의 전자는 정공과 재결합하면서 TL을 방출하거나 광자방출 없는 천이 또는 가시광선보다 에너지가 높은 빛을 방출하면서 천이한다. TL의 방출 메카니즘을 간단히 도식화하여 Fig. 2에 나타내었다.

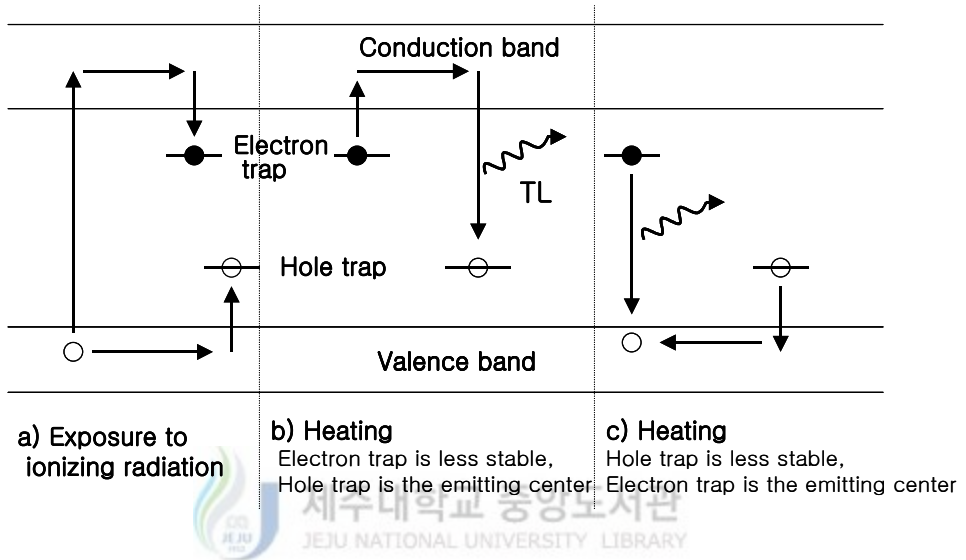


Fig. 2. A simple model of thermoluminescence emission

Fig. 2에서와 같이 트랩준위가 하나인 단순한 상황에 대하여 열자극에 의한 발광 과정 관계식을 구성하면 연립미분방정식이 된다. 어떤 시각의 재결합 준위의 정공농도를 m , 트랩준위에 트랩되어 있는 전자농도를 n , 전도띠내의 자유전자농도를 n_c 라 하자. 이들의 시간 변화율은 다음과 같이 주어진다.

$$-\frac{dm}{dt} = A_m m n_c \quad (1)$$

$$-\frac{dn}{dt} = s n \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) - A_n (N - n) n_c \quad (2)$$

$$\frac{dn_c}{dt} = \frac{dm}{dt} - \frac{dn}{dt} = sn \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) - n [mA_m + (N-n)A_n] \quad (3)$$

N = 트랩의 농도

A_m = 재결합 확률 ($\text{cm}^3\text{sec}^{-1}$)

A_n = 재트랩 (retrapping)될 확률 ($\text{cm}^3\text{sec}^{-1}$)

s = 진동수 인자 (frequency factor) (sec^{-1})

k = Boltzman 상수 (eV K^{-1})

E = 열적 활성화 에너지 (eV)

이때 TL의 세기 I 는 재결합준위의 정공 농도의 시간적 변화율 $-\frac{dn}{dt}$ 에 비례한다. 이와 같은 시스템에서는 트랩의 에너지 준위가 하나의 값 E 를 가지고 있으므로, 발광량은 온도를 증가시키기에 따라 한 번의 피크를 이루게 된다. 한편 트랩의 에너지 준위가 여러 다른 계수들을 가지고 있으면 위의 연립방정식은 원수(미지수의 수)가 증가하게 된다. 보통의 발광체의 발광곡선은 여러 온도에서 피크를 가지고 있으므로 여러 개의 트랩을 가지고 있어 엄밀하게는 이를 모두 감안한 모델을 세워야 할 것이다. 두 개의 트랩을 가지고 있는 경우에 발광곡선의 초선형의 형태를 분석한 연구가 있다. 그러나 여러 트랩준위들 사이에 상당한 에너지 차이가 있다면 하나의 트랩을 가진 시스템들의 단순 결합으로 취급할 수 있다. 이러한 경우에는 연립방정식이 서로 분리되어 특정한 온도에서 피크를 갖는 몇 개의 발광이 중첩된다. 특히 이 경우에는 시료를 특정한 온도에서 열처리하여 그 온도값 이하의 에너지 값을 갖는 트랩을 비워버림으로서 직접 피크를 분리할 수 있게 된다. 한편 트랩준위와 재결합준위만을 생각하는 이 모델을 더 일반화시킨 모델들도 있다. 예를 들어 정공 트랩의 존

재를 도입하여 정공이 열 에너지에 의해 방출되어 트랩된 전자와 재결합하는 것을 고려한 모델이 있다. 식 (1), (2) 및 식 (3)의 연립미분방정식은 일반적인 경우에 대하여는 해석적인 풀이가 불가능하다. Boltzman 인자에 들어 있는 온도 T 가 시간에 따라 선형으로 증가하는 경우의 근사해에 대한 연구가 많이 이루어져 있는데 특히 $R=A_n/A_m$ 이 매우 작거나, 1인 경우에는 거의 해석적인 해가 밝혀져 각각 1차 운동 모형 (first order kinetic model), 2차 운동 모형 (second order kinetic model)이라 한다. 거의 해석적인 해라함은 Boltzman 인자를 온도 T 에 대하여 적분한 적분함수 형태로 표현되기 때문이다.

보편적으로 전도띠의 전자농도는 트랩의 전자농도에 비하여 훨씬 적다. 즉

$$n_c \ll n \quad (4)$$

으로 가정할 수 있고, 또한 이것들의 시간 변화율도

$$\left| \frac{dn_c}{dt} \right| \ll \left| \frac{dn}{dt} \right| \quad (5)$$

으로 가정할 수 있다.

한편 위 두 가정은 서로 별개인데 $m=n+n_c$ 관계를 이용하여

$$n \approx m \quad (6)$$

$$I = -\frac{dm}{dt} \approx -\frac{dn}{dt} \quad (7)$$

으로 둘 수 있어 앞의 연립방정식을 오직 n 만으로 정리할 수 있다. 즉 식(8)로 나타낼 수 있다.

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = \frac{sn^2 e^{-E/kT}}{n + R(N-n)} \quad (8)$$

이 n 에 관한 미분방정식을 풀어서 발광강도 I 를 구하게 된다. 비록 온도 T 가 시간에 대해 선형이라 해도 이를 풀 수는 없고 단지 R 이 0이거나 1인 경우에 대하여 더 전개가 가능하다. R 이 거의 0인 경우는 $A_n \ll A_m$ 으로서 열에 의해 들뜬 전자가 트랩으로 다시 되돌아 갈 확률을 상대적으로 무시할 수 있는 경우이다. 이를 1차 운동 모형이라 한다 (Chen, R. and Y. Kirsh, 1981). 이 경우 앞의 미분방정식은

$$I = -\dot{n} = pn \quad (9)$$

이다. 여기서,



제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

$$p = s e^{-E/kT} \quad (10)$$

이다. 이로부터,

$$I = n_0 p e^{-\int_0^t p dt} \quad (11)$$

가 구해진다. 한편 R 이 1인 경우는 $A_n \approx A_m$ 으로서 열에 의해 들뜬 전자가 트랩으로 다시 되돌아 갈 확률이 재결합 확률과 엇비슷한 경우이다. 이를 2차 운동 모형이라 한다 (Chen, R. and Y. Kirsh, 1981). 이 경우는

$$I = -\dot{n} = \frac{pn^2}{N} \quad (12)$$

$$I = \frac{n^2 p}{\left(N + n_o \int_0^t p dt\right)^2} \quad (13)$$

이다. 1차, 2차 두 경우 모두 p 에 대한 적분이 있는데 이 p 가 온도의 함수이어서 온도를 선형으로 증가시키면 다음과 같은 적분이 관련된다.

$$\int_0^t p(T) dt = s \int_0^t e^{-\frac{E}{k(T_o + \beta t)}} dt = \frac{s}{\beta} \int_{T_o}^T e^{-\frac{E}{kT}} dT \quad (14)$$

여기서 β 는 단위시간당 온도증가율이다. 이 적분이 명확하므로 1차, 2차의 경우의 근사해는 행태가 잘 연구되어 있다.

한편 두 경우를 일종의 해석적접속(analytic continuation)하여 일반차 근사해를 도입하기도 하였다(May, C. E. and J. A. Partridge, 1964). 일반차 (β 차)를 포함하여 결과를 정리하면 발광강도 I 는 다음과 같다. 1차 또는 2차 운동 모델이 적용되기 어려운 경우에 일반차 운동 모델을 적용하여 해석하는 방법이 제안되고 있다(Furetta.C and Weng.P.S, 1998; McKeever. S.W.S 등 1995; Mahesh.K 등 1989).

$$I_{1차}(T) = n_o s e^{-\frac{E}{kT}} e^{-\frac{s}{\beta} \int_{T_o}^T e^{-\frac{E}{kT}} dT} \quad (15)$$

$$I_{2차}(T) = \frac{n_o^2 s}{N} \frac{e^{-\frac{E}{kT}}}{\left[1 + \frac{n_o s}{N\beta} \int_{T_o}^T e^{-\frac{E}{kT}} dT\right]^2} \quad (16)$$

$$I_{b차}(T) = \frac{n_o^b S}{N} \frac{e^{-\frac{E}{kT}}}{\left[1 + \frac{(b-1)n_o^{b-1} S}{N\beta} \int_{T_0}^T e^{-\frac{E}{kT}} dT \right]^{\frac{b}{(b-1)}}} \quad (17)$$

위의 b 차 식은 1차, 2차의 것을 포함하고 있다.

2. 열발광 선량계의 선량계적 특성

1) 감도 (Sensitivity)

감도란 단위 흡수 선량당의 발광량을 말하며 (McKeever 등 1989), 온도에 대한 발광량을 상대적인 수치로 나타내는 곡선을 발광곡선 (glow curve) 이라고 한다. 발광 곡선에서 저온 영역에서 나타나는 피크는 TL 물질 내에서 낮은 전자 트랩으로부터 방출되는 것으로 선량 평가시에는 제외하는 것이 정확하다. 주피크가 나타나는 온도는 TL 물질에 따라 다르지만 CaSO₄:Dy TL 분말의 경우는 대략 220 °C 이다. 감도를 수치적으로 나타낼 때는 대체로 발광 곡선의 전체 적분 면적으로 표시한다. 그러나 감도 측정시 절대 광량으로 측정하기에는 오차요인이 많으므로 일반적으로 TL 물질의 감도는 TLD-100 (LiF:Mg,Ti)과의 상대적인 감도로 정의한다.

2) 선량 선형성 (Dose linearity)

선량 선형성은 측정된 TL 강도의 흡수선량에 대한 반응도로 정의된다. 일반적으로 TL 물질의 발광량은 조사 선량에 비례하여 적분값이 증가하다가 고선량 영역에서는 초선형 (supralinear), 버금선형 (sublinear), 포화 (saturate)의 양상을 보인다.

다.

선량 선형성 함수 $f(D)$ 는 다음과 같이 정의된다.

$$f(D) = \frac{(F(D)/D)}{(F(D_i)/D_i)} \quad (18)$$

여기서 $F(D)$ 와 $F(D_i)$ 은 각각 선량 D 에서의 반응도 및 선량 선형성이 선형성을 보이는 영역에서의 임의의 선량 D_i 에서의 선량 반응도를 의미한다. 선량 선형성 함수 $f(D)$ 가 1을 보인다는 것은 선량에 관계없이 단위 선량당 TL 감도가 일정하다는 것을 의미하며, 이때 선량 선형성은 선형성을 보인다고 말한다. $f(D)$ 가 1보다 커지는 영역은 초선형성 (supralinearity) 영역이라고 하고 1보다 작아지는 영역은 버금선형성 (sublinearity) 영역이라고 한다.

3) 에너지 반응도 (Energy response)

TL 물질에 방사선을 같은 선량으로 조사하였을 경우 물질이 흡수하는 에너지의 양은 조사되는 방사선의 에너지에 따라 달라진다. 그러므로 물질의 방사선 에너지에 따른 흡수계수 (absorption coefficient)의 변화가 중요하게 된다. 광자 조사(γ -선, x-선)일 경우 에너지 반응도는 기준물질 (공기 또는 인체조직)에 대한 질량 에너지 흡수계수 (mass energy absorption coefficient)에 대한 비로 정의되는 광자 에너지 반응도 $S(E)$ 로 표현한다. 즉 광자 에너지 반응도는 식 (19)와 같다.

$$S(E) = \frac{(\mu_{en}/\rho)_m}{(\mu_{en}/\rho)_{ref}} \quad (19)$$

여기서 μ_{en} 은 선형 흡수계수 (linear absorption coefficient)이고, ρ 는 밀도이다. 물질이 여러 가지 원소로 구성된 복합 구성물질 경우 위의 질량 에너지 흡수계수 $(\mu_{en}/\rho)_m$ 는 다음과 같이 주어진다.

$$(\mu_{en}/\rho)_m = \sum_i (\mu_{en}/\rho)_i W_i \quad (20)$$

여기서 W_i 는 i 번째 구성 원소의 무게비이다.

질량 에너지 흡수계수는 방사선 에너지가 물질에 의해 흡수되는 과정에 관계되는데, 그 과정은 주로 쌍생성 (pair production), 콤프턴 산란 (Compton scattering) 및 광전효과 (photoelectric effect)에 의해 일어난다. 물질에 방사선의 에너지가 흡수될 때 위의 과정들의 기여도는 방사선의 에너지와 물질의 원자번호 Z 에 따라 달라진다. 물질의 유효원자번호가 낮을 경우 15 keV 이하의 광자에 대해서는 광전효과가, 15 keV 이상 10 MeV 이하의 광자에 대해서는 콤프턴 산란이 주된 과정이다. 물질의 원자번호가 높아지면 대략 10^2 keV 까지는 광전효과가 주된 과정이다. 이 때문에 물질의 유효 원자 번호가 큰 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질은 100 keV 이하에서 큰 에너지 반응도를 보인다.

이러한 광자 에너지 반응도는 보통 주어진 광자 에너지 (1.25 MeV ^{60}Co γ -선 또는 662 keV ^{137}Cs γ -선)에 대한 상대적 에너지 반응도 (Relative Energy Response : RER)로 나타낸다.

$$(RER)_E = \frac{S_E(E)}{S_E(1.25\text{MeV } ^{60}\text{Co})} \quad (21)$$

4) 감쇠 (Fading)

방사선에 의해 에너지를 얻음으로써 생성된 전자-정공 쌍의 평균 수명은 온도에 의존하기 때문에 시간이 경과함에 따라 포획된 전자수는 감소하게 된다. 트랩준위에 포획된 전자의 열적인 여기정도에 대한 시상수 (time constant)는 다음과 같이 주어진다.

$$\tau = p^{-1} = s^{-1} \exp(E/kT) \quad (22)$$

따라서 이론적인 측면으로 볼 때 감쇠율 (fading rate)은 트랩의 에너지 깊이

E 와 진동수 인자 s 에 따라 예측될 수 있다. 그러므로 특정 TL 물질에 대하여 E 와 s 를 구하는 것은 TL 물질의 특성 평가에 있어 매우 중요한 일이다. 진동수 인자 s 가 일정하다고 볼 때 트랩의 에너지 깊이 E 가 낮을수록 감쇠율은 증가할 것이고, 트랩의 에너지 깊이가 같더라도 진동수 인자가 커지면 감쇠율도 증가한다. TL 물질이 가지는 트랩들 중 에너지 깊이가 낮은 트랩에서 기인하는 발광 피크들은 시간에 따른 감쇠가 심하므로 실제 선량계 피크로 활용하기가 어렵다. 그러므로 적당한 에너지 깊이와 진동수 인자를 가지는 TL 물질이 선량계적 특성적으로 우수하다고 할 수 있다. 그러나 대부분의 TL 물질은 최소 하나이상의 트랩이 존재한다. 실제 TL 물질의 사용시 이들 트랩들 중 낮은 에너지 깊이를 가지는 트랩의 영향을 없애기 위하여 판독전 가열 (preheating)을 실시하거나, 감쇠가 충분히 일어날 정도로 충분한 시간인 1일 후의 감도를 판독하는 방법을 사용하고 있다 (Burgkhardt 등 1976).



5) 선량 측정 하한치 (Lower Limit of Detection : LLD)

환경 선량이나 개인 피폭선량은 일반 환경에서 그렇게 크지 않다. 따라서 TL 선량계를 개인 선량계 및 환경 선량계로 사용하기 위해서는 저선량을 어느 정도까지 정확하게 측정 할 수 있는지가 중요하다 (Lakshman and Bhatt, 1982). 저선량 영역에서는 TLD의 TL 신호와 판독 장치가 본질적으로 가지는 잡음 (noise)과 구분하기가 쉽지 않으므로 실험을 통하여 저선량 측정 한계를 알기는 매우 어렵다. IEC 표준에서는 저선량 측정 한계치를 다음과 같이 정의하고 있다.

$$LLD = t_n \cdot \sigma \quad (23)$$

여기서 n 은 테스트에 사용된 소자의 개수이고, t_n 은 $n-1$ 의 자유도에 대

한 Student's t 분포의 값이며 Table 3으로 주어진다. σ 는 측정치의 표준편차이다.

6) 반복 사용성 (Reusability)

TL 선량계의 장점중 하나가 반복 사용이 가능하다는 것이기 때문에 이상적인 TL 물질은 조사, 판독, 열처리로 반복되는 반복 사용시 판독치의 변화가 없어야 하고 소자 감도의 재현성이 좋아야 한다. 그러나 TL 물질에 따라 조사, 판독이 반복되면 물질에 가해지는 열자극이 결정내의 불순물의 배위 상태 등에 영향을 주어 발광곡선의 구조나 TL 강도가 변할 수 있다. 이는 적합한 최대 판독 온도의 설정과 판독 후 적합한 열처리 과정에 의해 어느 정도 회복될 수 있다. 재현성은 TLD 소자가 조사 판독 후 열처리 과정을 거쳐 어느 정도 원래 감도를 회복하는지를 나타내는 특성이다.

소자의 반복 사용시 감도의 반복 사용성을 알아보기 위해 열발광선량계에 대한 IEC 표준에서는 10회 반복 사용시 소자 각각에 대한 변동계수와 소자의 집합에 대한 변동계수 (coefficient of variation)를 제시하고 있으며 두 개의 변동계수가 0.075 이하일 것을 요구하고 있다.

Table 3. Student's t distribution

n	t_n
2	12.71
3	4.30
4	3.18
5	2.78
6	2.57
7	2.45
8	2.37
9	2.31
10	2.26
15	2.15
20	2.09
25	2.06
30	2.05
40	2.02
60	2.00
120	1.98
∞	1.96



3. 중성자 측정 방법

중성자는 전하량이 없기 때문에 물질과의 반응 메커니즘이 감마선이나 베타선과는 다른 형태를 보이며 그에 따라 측정방법도 다르다. 중성자장에서의 개인선량 평가는 다음과 같은 이유들로 인해 어렵다(ORNL-6593, 1989). 첫째, 중성자 에너지의 범위가 0.025 eV에서부터 10 MeV로 범위가 너무 넓고 서로 다른 중성자 반응 단면적을 갖는다. 두 번째, 중성자는 선원과 차폐체 각각에서 충돌에 의해 감속되기 때문에 중성자의 에너지와 방향 스펙트럼이 너무 넓다. 세 번째, 관심 영역에서의 fluence to dose equivalent 변환인자, 또는 quality factor의 변동 범위가 크다. 네 번째, 중성자는 항상 감마선을 동반하므로 혼합장에서의 선량 측정이 요구된다.

이렇게 열중성자 에너지에서 수 MeV까지의 광범위한 영역에 걸쳐 존재하는 에너지 스펙트럼을 보이는 중성자선장의 선량을 단일 검출기로 측정하는 것은 거의 불가능하다. 이러한 경우 중성자를 효과적으로 측정하는 방법은 적절한 감속재를 사용하여 고속 중성자를 열중성자화 한 후, 열중성자와 민감하게 반응하는 물질로 이를 측정하는 것이다. 고속 중성자 감속재는 흡수 단면적보다 산란 단면적이 큰 가벼운 원소로 구성된 물질이므로, 이를 지나가는 동안 고속중성자는 탄성 및 비탄성 산란을 통하여 자신의 에너지를 잃고 열중성자화 되고 이 열중성자를 측정함으로써 중성자 선량을 측정할 수 있다.

또 중성자선장은 항상 감마선을 포함하기 때문에 개인 피폭 선량 평가시 중성자선량과 감마선량을 구분하여야 한다. 현재까지 중성자에 대한 개인 피폭선량 측정에 쓰이는 선량계로는 크게 TLD를 이용한 알베도 도시미터(albedo dosimeter)와 에칭 도시미터(etched-track detectors)가 이용되고 있다. 에칭 도시미터는 감마에 대한 감도가 낮아 중성자선량에 대한 감마선량의비가 높은 선장에

서 주로 쓰이며 일반적으로 TLD를 이용한 알베도 도시미터가 가장 많이 쓰이고 있다. 알베도 도시미터는 ${}^6\text{Li}$ 이나 ${}^{10}\text{B}$ 같은 물질을 포함한 TLD가 인체나 팬텀에 반사되어 방출되는 열중성자화 된 알베도 중성자를 측정하는 원리의 도시미터이다. 열중성자 측정에 가장 많이 쓰이는 물질은 ${}^6\text{Li:Mg, Ti}$ 물질을 이용한 TLD-600과 ${}^6\text{Li:Mg, Cu, P}$ 물질을 이용한 TLD-600H 등이 있다.

감마선장이 혼합된 중성자선장에서 TLD를 이용한 알베도 도시미터를 이용할 때 TLD가 감마에 대해 민감하기 때문에 중성자 감마 혼합장에서는 중성자선의 순 선량만을 계산하는 방법이 필요하다. 그 방법 중 하나는 열중성자에 대해 민감한 TLD와 민감하지 않은 TLD를 한 쌍으로 사용하는 것이다. 즉, ${}^6\text{LiF:Mg, Ti}$ (TLD-600)와 광자에 대해 비슷한 감도를 보이지만 열중성자에 대해서는 감도가 없는 ${}^7\text{LiF:Mg, Ti}$ (TLD-700)를 사용한다. 두 가지 TLD에서 TLD-600은 열중성자와 감마에 대한 감도를 보이고 TLD-700은 감마에 대해서만 감도를 보인다. TLD를 이용하여 열중성자를 측정할 경우 중성자와 감마를 분리해내는 또 다른 방법으로는 발광 곡선을 분석하는 방법이 있다. TL 물질의 경우 중성자 반응에 의해 생성되는 α 입자나 ${}^3\text{H}$ 입자와 같은 고-LET (linear energy transfer) 입자들은 발광 곡선에서 광자와의 반응에 의한 저-LET 입자들에 비해 고온 영역의 피크에 영향을 준다. 이렇게 발광곡선의 서로 다른 피크의 적분값으로 정의되는 상대적 감도로서 중성자와 감마에 의한 신호를 분리해 낼 수 있다. 그러나 이 방법을 적용하기에는 피크의 위치변동이 커서 어려움이 있고, 피크 위치의 온도에 따라 같은 조건에서도 감쇠가 일어나는 정도가 다르기 때문에 어렵다. 또 다른 형태의 중성자 측정 방법으로는 Gibson 과 Piesch에 의해 제안된 방법으로 radiophotoluminescent glass detectors를 이용하는 방법이 있으나 그 감도가 TLD보다 낮다. 그리고 최근에 optically stimulated luminescence (OSL)을 이용하는 방법이 제안되고 있으나 아직 중성자 측정에 쓰일 수 있는 단계는 아니다.

Fig. 3은 TLD를 이용한 알베도 도시미터를 대략적으로 보여준다. 알베도 도시미터에는 두 쌍의 ${}^6\text{Li}$ - ${}^7\text{Li}$ 화합물이 첨가된 소자가 이용된다. 한 쌍은 도시미터의 외부창을 통해 외부에서 입사되는 열중성자를 측정하고, 다른 한 쌍은 선량계의 내부창을 통해 인체 또는 팬텀에서 반사되는 알베도 중성자를 측정한다. 각각의 소자 쌍에서 ${}^6\text{LiF}$ 가 첨가된 소자는 열중성자와 감마 선량을 동시에 측정하고 ${}^7\text{LiF}$ 가 첨가된 TL 소자는 감마 선량만을 측정한다. 이 두 TL 소자간의 감도차를 이용하여 중성자 선량을 측정할 수 있다.

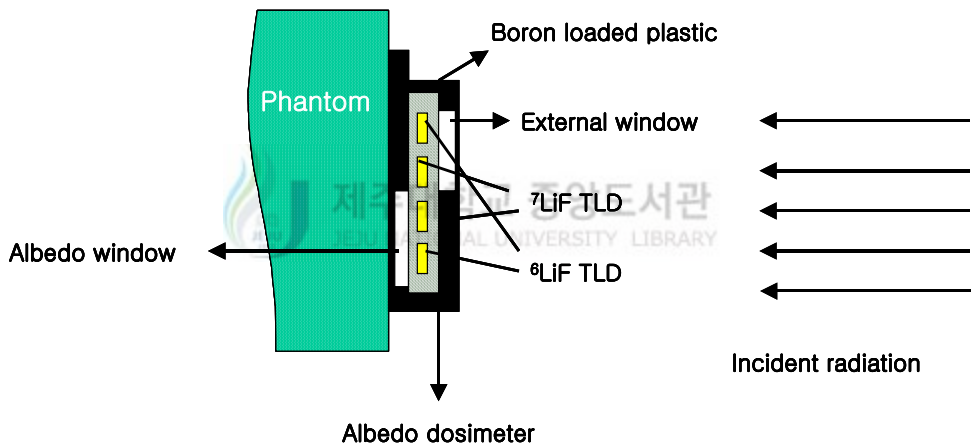


Fig. 3. Schematic drawing of an albedo neutron dosimeter consisting of a boron plastic encapsulation and a card containing two chips each of ${}^6\text{LiF}$ and ${}^7\text{LiF}$

III. 물질의 제조 및 실험 방법

1. 감마선 및 베타선 측정을 위한 KCT-300 소자의 제조 과정

1.1 고감도 CaSO₄:Dy TL 분말의 제조

상용화된 CaSO₄:Dy TL 분말과 비슷한 감도를 갖는 고감도의 TL 물질인 CaSO₄:Dy TL 분말은 이미 국내에서 Yamashita 방법으로 제조하고 있다 (양정선 석사학위논문, 2001). Fig. 4는 Yamashita 방법으로 CaSO₄:Dy TL 분말을 제조하는 황산 증발 장치를 보여주며 TL 분말의 제조 과정을 Fig. 5에 간단히 나타내었다. 플라스크에 진한 황산을 붓고, 활성체로 첨가하는 Dy의 최적 농도인 0.1 mol% Dy₂O₃를 묽은 황산에 용해시킨 후 진한 황산이 들어있는 플라스크에 넣는다. 원료시약으로 사용되는 Ca(NO₃)₂(4H₂O)를 진한 황산이 들어있는 플라스크에 넣은 다음 Dy의 최적 첨가 온도인 320 °C로 맞추어진 isomantle에서 황산이 모두 증발될 때까지 약 6시간 가열하면 CaSO₄:Dy 결정체가 플라스크 벽에 형성된다. 이렇게 형성된 CaSO₄:Dy 결정체에 남아있는 황산을 제거하기 위해 증류수로 몇 번 씻고 200 °C 온도에서 건조시킨 후 덩어리진 결정체를 분쇄하여 분말로 만든다. 이와 같이 제조된 TL 분말에는 TL 특성이 좋지 못한 일부 비결정체가 섞여 있으므로 결정이 잘 형성된 분말과 잘 형성되지 않은 분말의 비중 차를 이용하여 분리한다. 이 과정을 두 번 정도 반복하여 얻어진 TL 분말은 증류수로 세척하기 전 TL 분말에 비해 약 10 % 정도의 TL 감도가 향상된다. 제조한 TL 분말과 Teledyne 사의 CaSO₄:Dy TL 분말을 준비하여 실험실 내의 ⁹⁰Sr-⁹⁰Y 베타 선원을 이용하여 조사시키고 판독하여 감도를 비교하였다. 판독시 온도 조건은 320 °C까지 20 °C/sec의 가열율로 선형적으로 가열하였으며 주피크와 저온 피크

의 영향을 동시에 알아보기 위해 계단식 가열이 아니라 선형적으로 가열하여 감도를 비교하였다.



Fig. 4. Sulfate evaporation equipment used to preparation of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL phosphor

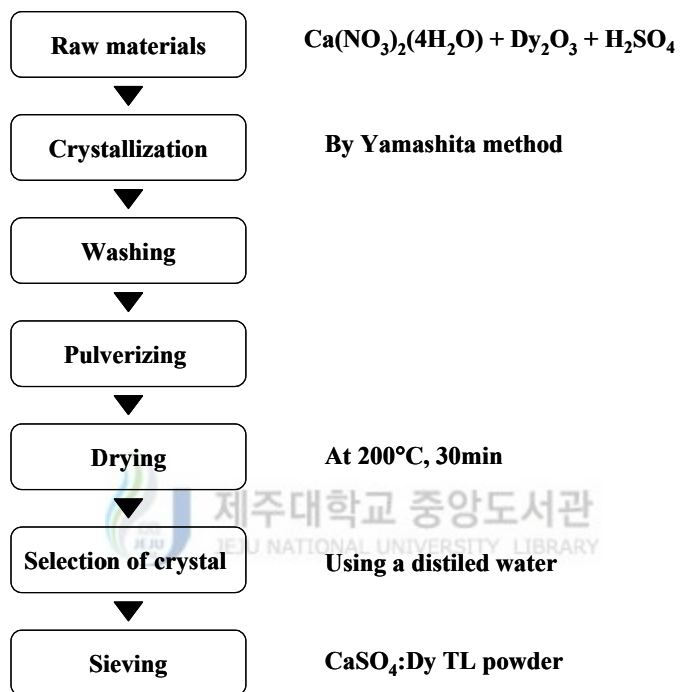


Fig. 5. Schematic diagram of the sample preparation

1.2 CaSO₄:Dy TL 분말의 최적 열처리 조건

위의 방법에 따라 제조하여 추출된 결정체의 TL 분말은 고온열처리 과정을 통해 전자트랩이 안정된다. 최적 열처리 온도를 알아보기 위해 제조된 TL 분말을 체로 쳐서 45 μm 이하, 45~63 μm , 63~100 μm 의 입자 크기로 나누고 각각의 그룹에 대해 열처리 온도를 400 °C~800 °C까지 변화시키면서 1시간씩 열처리를 하여 주피크의 감도 변화를 측정하여 최적의 열처리 조건을 결정하였다. 관독 온도 조건은 선형적인 가열 방식을 선택하였다.

1.3 KCT-300 소자의 제조

KCT-300 소자의 제작에 쓰이는 TL 분말은 앞에서 제시된 자체 제조한 고감도의 CaSO₄:Dy TL 분말을 이용하였다. CaSO₄:Dy TL 분말의 특성상 분말만으로는 고형화 되지 않아 접착물질을 첨가하여 소자를 제작하는데 현재까지 가장 일반적으로 쓰이는 접착물질은 Teflon이다. 그러나 Teflon을 접착매질로 이용한 소자의 경우 감도가 낮고 제조상의 번거로움 등의 문제점이 있다. 본 논문에서는 새로운 접착물질로서 소량의 P 화합물을 첨가한 CaSO₄:Dy 소자를 제조하였다. 소자 질량의 대부분을 차지하던 Teflon 에 비해 P 화합물은 극히 소량만 첨가하여도 소자의 TL 특성에 영향을 주지 않으면서 고형화 할 수가 있었다. Fig. 6에 KCT-300 소자의 제작 과정을 간단히 나타내었다.

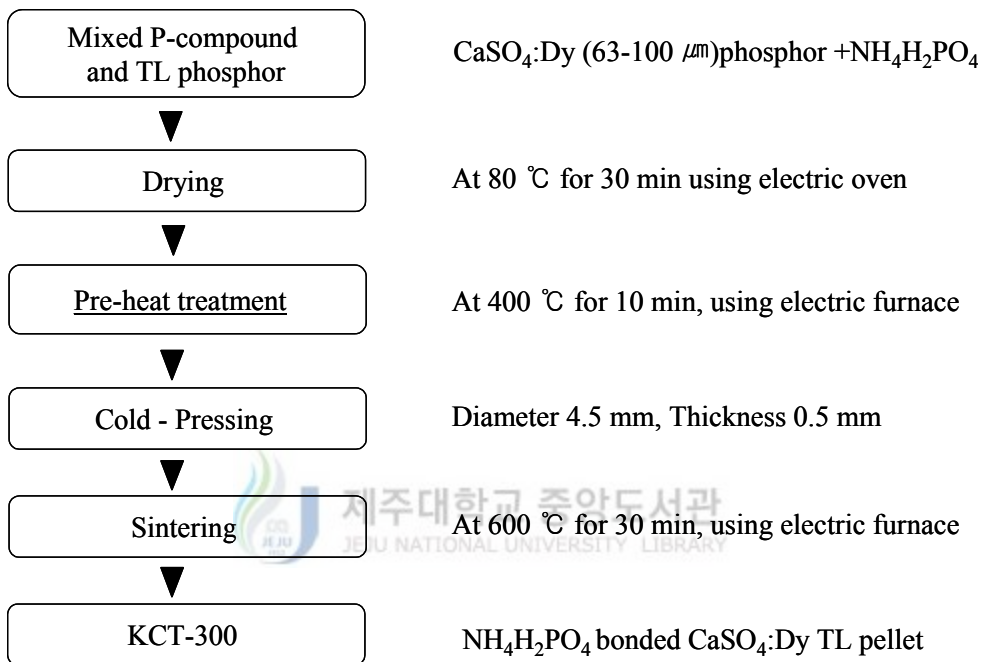


Fig. 6. Schematic diagram of preparation process of KCT-300

그러나 KCT-300 소자의 초기 제작 과정에서 접착물질인 P 화합물의 함량은 일정량 이상 첨가되면 소결 (sintering) 과정에서 소자의 표면이 변형되면서 만족할 만한 기계적 강도를 얻기 힘들었다. 이후 소자의 기계적 강도를 향상시키기 위해 다른 첨가물을 첨가하는 등 여러 가지 연구를 행하였으나 고감도를 유지하면서 소자의 기계적 강도를 증가시키는 방법을 찾지 못하였다. 즉 KCT-300 소자의 기계적 강도를 높이기 위해서는 P 화합물의 함량을 증가시켜도 표면이 부풀어 오르지 않고 소자의 모양을 유지할 수 있도록 해야 한다. 표면이 변형되는 문제를 해결하기 위해 원인을 추적해 본 결과 증류수를 사용하여 P 화합물의 모물질인 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 화합물의 첨가하고 건조시키는 과정에서 미처 증발하지 못한 NH_3 와 H_2O 등이 소자의 압축 성형 후 소결 단계에서 갑자기 증발하면서 발생하는 현상이 그 원인으로 파악되었다. 이러한 현상을 해결하기 위해 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 와 TL 분말을 혼합하고 건조시킨 후 혼합 상태의 분말을 소결 온도보다 낮은 온도에서 소자 성형 전 열처리 과정을 거치게 하였다. 이 과정에서 NH_3 와 H_2O 를 먼저 증발시킨 후 분말을 압축 성형하고 소결처리 함으로써, 접착물질인 P 화합물 함량이 높아짐에 따라 소자의 표면이 부풀어 오르는 현상을 해결하면서 고감도의 KCT-300 소자를 제작할 수 있었다.

1) 혼합 분말의 최적 열처리 조건

접착물질로 P 화합물을 첨가한 KCT-300 소자의 제작에 있어서 P 화합물의 함량이 높아질 때 소자의 표면이 부풀어 오르는 현상을 해결하기 위해 P 화합물의 모물질인 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 와 TL 분말을 혼합한 후 성형 전 열처리 과정을 추가하였다. 혼합 분말의 성형 전 열처리 과정의 최적온도를 알기 위하여 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 분말의 함량을 변화시키면서 소자를 제작할 때 혼합 분말의 성형 전 열처리 온도를 건조온도 (80 °C)와 소결온도 (600 °C) 사이인 200 °C부터 500 °C 사이에서 온도를 변화시키면서 열처리를 실시하여 소자를 제작하였다. 제작한 KCT-300 소자는 ^{90}Sr - ^{90}Y 선원을

이용하여 조사시켰으며 관독온도 조건은 120℃까지 선형 가열 후 120℃에서 8초간 유지하여 관독전 열처리 (pre-heating)과정을 거친 후 320℃까지 20℃/sec의 가열율로 선형 가열하고 320℃에서 6초간 유지시켜 관독 후 열처리 과정 (Reader-annealing)을 거치는 계단식 가열 방식으로 관독하였다. 여기서 관독전 열처리 과정은 시간에 따라 감쇠가 빨라 선량 평가에서 제외되는 저온 피크의 영향을 제거하기 위함이며, 이후 소자의 관독 온도 조건으로는 계단식 가열 방식으로 통일하였다.

2) P 화합물의 함량 결정

CaSO₄:Dy TL 분말에 P 화합물을 접착제로 첨가하여 KCT-300 소자를 제작하기 위해서는 우선 기계적 강도 및 TL 감도를 고려하여 최적의 P 함량을 결정해야 한다. CaSO₄:Dy TL 분말과 접착물질인 NH₄H₂PO₄ 분말을 혼합한 후 성형 전 열처리 조건에 맞춰 400℃에서 10분간 열처리 한 후 소자로 제작할 경우 표면이 부풀어 오르는 현상이 없이 접착물질의 함량을 증가시킬 수 있다. 소자의 기계적 강도를 향상시키기 위해 접착물질의 함량을 20 wt% (4:1), 25 wt% (3:1), 33 wt% (2:1), 50 wt% (1:1), 66 wt% (2:1)로 변화시키면서 400℃에서 10분간 성형 전 열처리 한 후 소자를 제작하고 감도를 측정하여 최적의 P 화합물 함량을 결정하였다.

3) KCT-300 소자의 열처리 조건

KCT-300 소자의 압축 성형시의 압력은 성형된 소자가 소결 전 취급 과정에서 쉽게 부서지지 않을 정도의 압력이면 충분하며 고온 열처리 과정을 거쳐 P 화합물은 소자에서 접착물질로 작용하게 된다. 또한 고온 열처리 과정에서 소자의 불안정한 전자트랩이 안정되고 불순물이 제거되어 안정된 TL 물질로서의 특성을 보이게 된다.

KCT-300 소자의 최적 열처리 조건을 알아보기 위해 열처리 온도를 300 °C에서부터 800 °C까지 변화 시키면서 30분간 열처리 하였을 때 감도 변화를 측정하고 최적의 열처리 조건을 결정하였다. Fig. 7은 KCT-300 소자의 열처리에 이용되는 고온 전기로의 모델이다.



Fig. 7. Electric furnace used to sintering of KCT-300

1.4 KCT-300 소자의 선량계적 특성 실험 방법

1) 감도 (Sensitivity)

제조한 KCT-300 소자가 CaSO₄:Dy TL 분말의 감도를 충분히 발현하고 있는지 알아보기 위해 KCT-300 소자와 CaSO₄:Dy TL 분말의 감도를 비교하였다. KCT-300 소자는 두께 0.8 mm, 질량 25 mg, 직경 4.5 mm의 소자를 이용하였다. 소자와의 감도 비교를 정확히 하기 위해 TL 분말의 측정 양은 소자와 동일하게 25 mg을 준비하였다. 준비된 TL 분말과 KCT-300 소자를 동시에 조사시킨 후 판독하여 그 결과를 비교하였다. 판독 온도 조건은 판독전 열처리 과정을 거치는 계단식 가열 방식을 선택하였다. 또 KCT-300 소자의 감도를 현재까지 가장 많이 쓰이고 있는 접착물질인 Teflon을 첨가한 CaSO₄:Dy TL 소자와 비교해 보았다.

본 논문에서는 이미 CaSO₄:Dy의 감도와 TLD-100 (LiF:Mg, Ti)과의 상대적인 감도를 Table 2에서 제시하였으므로 같은 계열의 TL 소자인 Teflon 소자와의 감도 비교에 중점을 두었다. Teflon 소자는 Teledyne 사의 Teflon을 첨가한 CaSO₄:Dy TL 소자를 이용하였다. Teflon 소자는 두께 0.4 mm, 질량 14 mg, 직경 4.5 mm로서 KCT-300 소자와 차이가 있으므로 보다 정확한 비교를 위해 단위 질량당의 감도로서 비교하였다.

2) 선량 선형성 (Dose linearity)

KCT-300 소자를 방사선 측정 선량계로 사용하기 위해서는 감도가 선량에 대해 선형적이어야 하며 그 선형성을 유지하는 구간이 넓을수록 유리하다. 본 연구에서는 KCT-300 소자의 선량 선형성을 알아보기 위해 다음과 같은 방법으로 실험을 수행하였다. KCT-300 소자는 12개 그룹으로 준비하고 각각의 경우 소자를 5개씩 준비하였다. 준비된 소자는 10⁻⁶ Gy부터 10⁴ Gy까지 조사시키는데 10⁻⁶ Gy부터 1 Gy까지는 ¹³⁷Cs 선원을 이용하여 조사하였고 1 Gy부터 10⁴ Gy까지는 ⁶⁰Co 선원을 이용하여 조사

하였다. 이때 선원이 달라짐에 따라 오는 선량의 차이를 보정하기 위해 1 Gy의 선원을 중복 조사시켜 보정인자를 구하였으며, 전자 평형을 위해 build-up 물질로 PMMA (Polymethyl Methacrylate) 판을 덮어서 조사하였다. 선량 선형성을 비롯한 이후의 선량계적 특성 평가시 판독 온도 조건은 주피크만을 고려하기 위해 판독전 가열 과정을 거치는 계단식 가열 방식을 택하기로 한다. 선량 선형성 영역은 상대적 선량 선형성 함수 $f(D)$ 를 구하고 IEC 표준에 따라 $f(D)$ 가 0.9 와 1.1 사이에 있는 영역으로 결정하였다.

3) 에너지 반응도 (Energy response)

KCT-300 소자의 에너지 반응도를 측정하기 위해 다음과 같은 실험을 수행하였다. 소자를 11개 그룹으로 준비하고 각각의 경우 5개의 소자로 구성하였다. 준비한 시료의 조사는 ANSI 기준에 의해 장시영 등 (1996)에 의해 한국원자력 연구소에 제작된 기준 X-선장을 이용하였다. 에너지의 범위는 20 keV 에서부터 250 keV 사이의 에너지 중 20 keV, 34 keV, 48 keV, 65 keV, 83 keV, 100 keV, 118 keV, 164 keV, 208 keV 그리고 250 keV 의 10개 에너지를 선택하여 공기중에서 조사하였고, 조사선량은 2 mGy로 설정하였다. 그리고 기준 광자선원으로는 ^{60}Co 선원이나 ^{137}Cs 선원에 대한 값을 이용하는데, 본 연구에서는 ^{137}Cs 에 대한 값을 기준으로 하여 상대적 에너지 반응도 (Relative Energy Response : RER)를 구하였다. ^{137}Cs 선원을 이용하여 조사 할 때는 PMMA 판을 덮어 조사하였다.

4) 감쇠 (Fading)

TL 소자의 감쇠 특성 실험은 측정 기간이 길기 때문에 소자의 보관 상태 및 판독기의 조건을 항상 동일하게 유지하면서 측정하는데 어려움이 있다. 따라서 보다 정확한 측정을 위해 다음과 같은 방법으로 감쇠 특성 실험을 수행하였다. KCT-300 소자를 70

개씩 두 그룹으로 준비하여 하나의 그룹은 ^{137}Cs γ 선량 10 mGy 로 조사시킨 후 보관하고 또 하나의 그룹은 조사를 시키지 않은 상태의 기준집단 (Reference group)에서 같은 조건에서 보관한다. 본 연구에서는 IEC에서 요구하는 조건 중 상온, 상대습도 40 % 이하, 90일 보관의 조건에 따라 90일 동안 소자를 보관하면서 매 감쇠 특성 판독 시점에서 기준집단에서 5개의 소자를 선택하여 10 mGy 조사시키고 이미 10 mGy 조사시켰던 소자 5개와 같이 판독하였다. 매 판독시마다 기준집단의 소자 측정값을 기준 값으로 하여 KCT-300 소자의 감쇠율을 측정하였다. 이 방법은 시간이 지남에 따라 소자에 축적되는 환경 선량의 영향을 동일하게 적용시키고 항상 동일한 판독기 조건을 적용할 수 있다.

5) 선량 측정 하한치 (LLD)

선량 측정 하한치란 TL 물질을 이용해서 측정할 수 있는 선량의 최소량을 의미하지만 실제로 그 한계치를 측정하는 것은 매우 어렵기 때문에 이론적 배경에서 이미 언급한 선량 측정 하한치를 구하는 식 (23)을 이용하여 구하였다. KCT-300 소자의 선량 측정 하한치를 측정하기 위해 조사되지 않은 소자 10개를 준비하고 영선량 (TL 소자의 열처리 후 방사선을 쬐이기 전 소자의 고유 선량)을 판독하고 표준편차를 구하여 선량 측정 하한치를 계산하였다.

6) 반복 사용성 (Reusability)

본 연구에서는 KCT-300 소자의 반복 사용성 평가를 위하여 다음과 같은 실험을 수행하였다. 4개의 KCT-300 소자들을 준비하여 동일한 조건에서 조사, 판독 및 열처리를 소자 각각에 대하여 10회 반복하였다. 조사는 ^{137}Cs γ 선장을 이용하여 10^{-2} Gy 조사하였다.

IEC표준에서는 소자 각각에 대하여 (each dosimeter separately) 뿐만 아니라

소자 집합 (all dosimeter collectively)에 대해서도 평가를 요구하고 있다.

먼저 각각의 소자에 대하여 판독치 E_j 를 결정하였다. 여기서 j 는 j 번째 소자를 의미하고, i 는 i 번째 조사를 의미한다. 4개의 소자 집합으로 평가를 하기 위하여, 10회의 조사에 대하여 E_i 의 평균 \overline{E}_i 와 표준편차 σ_{E_i} 를 계산하여 변동계수를 다음 식에 의해 계산하였다.

$$\frac{\sigma_{\overline{E}_i} + I_i}{\sum_{i=1}^{10} \overline{E}_i / 10} \quad (24)$$

여기서 I_i 는 $\sigma_{\overline{E}_i}$ 의 신뢰구간 (confidence interval)이다.

소자 각각에 대한 평가를 위하여, 각 소자의 E_j 의 평균 $\overline{E}_j = \frac{1}{10} \sum_{i=1}^{10} E_{ij}$ 와 표준편차 σ_{E_j} 를 계산하고 변동계수를 다음 식에 의해 계산하였다.

$$\frac{\sigma_{E_j} + I_j}{E_j} \quad (25)$$

여기서 I_j 는 σ_{E_j} 의 신뢰구간이다. 위 식에서 I_i 와 I_j 는 Table 3으로부터 t_n 을 구하고 식 $I = \frac{t_n \cdot s}{\sqrt{n}}$ 으로부터 구한다. $t_{n_1} = 2.26$ 과 $t_{n_2} = 3.18$ 의 값을 적용하여 변동계수를 구하였다.

1.5 베타선 측정을 위한 얇은 TL 소자의 제조 과정

KCT-300 소자를 이용하여 베타선을 측정할 때 고에너지의 베타선은 아무런 문제가 없지만 저에너지의 베타선인 경우에는 소자의 두께에 대한 에너지 의존성이 커져서 측정효율이 떨어진다. 따라서 베타선의 에너지에 관계없이 정확한 베타선량 측정을 하기 위해서는 보다 얇은 두께의 소자가 요구된다. 본 연구에서는 고감도의 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말을 그대로 이용하는 방법으로써 접착성이 있는 켈톤 필름을 이용하여 얇은 소자를 제조하였다.

1) 얇은 TL 소자의 제조

얇은 두께의 베타 측정용 소자를 제작하기 위해서 자체 제조한 고감도의 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말을 준비하였다. 자체 제조한 TL 분말은 현재 상용화되어 널리 쓰이고 있는 Teledyne사 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말의 감도와 비교했을 때 같거나 그 이상의 감도를 보인다(양정선 등, 2001). 이때 분말의 나알크기는 $45\ \mu\text{m}$ 이하이고 $700\ ^\circ\text{C}$, 1시간 열처리하여 이용하였다. 나알크기가 $45\ \mu\text{m}$ 이상인 경우 켈톤 필름에 접착시 접착력이 떨어지기 때문에 $45\ \mu\text{m}$ 이하의 TL 분말이 적당하다. 준비된 TL 분말을 켈톤 필름의 접착면에 고르게 퍼 바른 후 그 위로 켈톤 필름을 다시 덧붙여서 샌드위치 타입으로 제조한다. 이렇게 제조된 TL 분말이 접착된 켈톤 필름을 $5 \times 5\ \text{mm}$ 크기로 자른 후 $280\ ^\circ\text{C}$ 에서 10분간 열처리하였다. Fig. 8에 제조된 켈톤 필름을 이용한 얇은 소자의 모습을 나타내었다. 켈톤 필름의 녹는점이 약 $300\ ^\circ\text{C}$ 정도이므로 $280\ ^\circ\text{C}$ 의 열처리 온도는 켈톤 필름이 녹기 전의 온도로서 TL 분말과 켈톤 필름 간의 접착력을 좋게 하여 여러 번 반복 사용하여도 접착성이 떨어지지 않게 하는 단계이다. 이런 TL 소자 하나에 첨가되는 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말의 양을 알아보기 위해 TL 분말을 첨가하지 않은 켈톤 필름 두 장을 접착 시켜 얇은 두께의 TL 소자와 동일한 크기로 자른 것을 준비하고, TL 분말

이 첨가된 TL 소자와 질량을 비교하였다. 그 결과 소자 하나에 첨가되는 TL 분말의 양은 약 1 mg이었으며 두께는 0.15 mm에 해당하였다. 새로운 베타 측정용 TL 소자의 제작에 이용된 캡톤 필름은 국내에서 제조된 접착제가 포함된 테이프로 그 두께는 약 55 μm 정도이다. 캡톤 필름을 이용하여 제조한 얇은 두께의 베타 측정용 소자는 캡톤 필름 고유의 색으로 인해 소자의 감도가 감소하고 발광 곡선이 변할 수 있으므로 제조된 소자와 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말을 ^{90}Sr - ^{90}Y 베타선원을 이용하여 약 5 mGy 조사후 판독하여 감도를 비교해보았다. 판독시 가열 온도 조건은 10 $^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ 의 가열율로 290 $^{\circ}\text{C}$ 까지 선형적으로 가열한 후 7초간 유지시켜 판독하는 조건으로 정하였고, 베타 측정용 소자에 대해서는 같은 가열 온도 조건을 적용하였다.

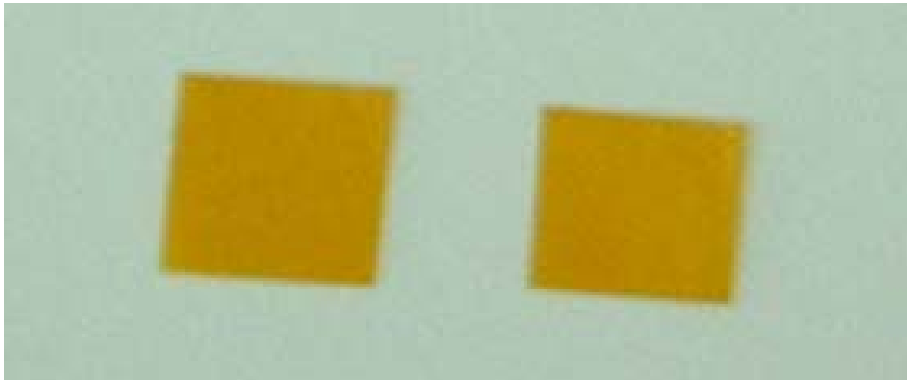


Fig. 8. Thin $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL dosimeter using Kapton Film

2) 베타선에 대한 에너지 반응도

얇은 두께의 베타 측정용 소자의 베타선에 대한 에너지 반응도를 알아보기 위해 새로 제작된 TL 소자를 280 °C에서 10분 열처리하여 준비하였고, 비교용으로는 역시 새로 개발한 KCT-300소자 (0.8 mm) 그리고 Teledyne사에서 제조된 CaSO₄:Dy Teflon 소자 (0.4 mm)를 각각 7개씩 준비하였다. 준비된 소자는 한국 원자력 연구소가 보유한 베타조사장치로 800 keV 에너지의 ⁹⁰Sr -⁹⁰Y 와 240 keV 에너지의 ²⁰⁴Tl 선원을 이용하여 각각 5 mGy를 조사시켜 판독하여 서로 다른 에너지의 베타선에 대해 동일한 감도를 보이는지 측정하였다. 조사시 TLD는 15 cm 두께의 PMMA 팬텀에 부착하여 조사시켰다.

2. 중성자 측정을 위한 KCT-306 소자의 제조 과정

CaSO₄:Dy TL 물질은 베타선 및 감마선에 대한 감도가 높지만 열중성자 반응 단면적이 매우 작아 중성자 측정용 소자로는 이용되지 못하였다. CaSO₄:Dy TL 물질을 이용하여 중성자 측정용 소자를 제조하기 위해서는 중성자 반응 물질을 첨가하여 (n, α)반응에 의한 하전입자를 측정하는 방법을 이용한다. Teflon을 접착물질로 이용하는 기존의 방법에 중성자 반응 물질을 첨가할 경우 TL 분말의 함량이 낮아 감도가 저하되는 단점이 있다. 그러나 본 연구에서는 소량의 접착 물질을 이용한 KCT-300 소자의 개발을 기반으로 하여 열중성자 반응 물질을 첨가한 고감도의 중성자 측정용 CaSO₄:Dy TL 소자를 제조할 수 있었다.

2.1 KCT-306 소자의 최적 제작 조건

열중성자 반응단면적이 작은 CaSO₄ 계열 TL 물질을 이용하여 중성자 측정용 소자를 제조하기 위해서는 열중성자 반응단면적이 큰 ⁶Li 화합물을 첨가하여 소

자를 제작하는 방법을 사용하였다. KCT-306 소자를 제조하기 위해서 열중성자 반응 물질로 혼합하는 모물질을 우선적으로 선택하여야 한다. KCT-306 소자의 제조 과정은 KCT-300 소자를 기반으로 한 것이므로 거의 KCT-300 소자의 제조 과정과 유사하며, Fig. 9에 간단히 도식화하여 나타내었다.

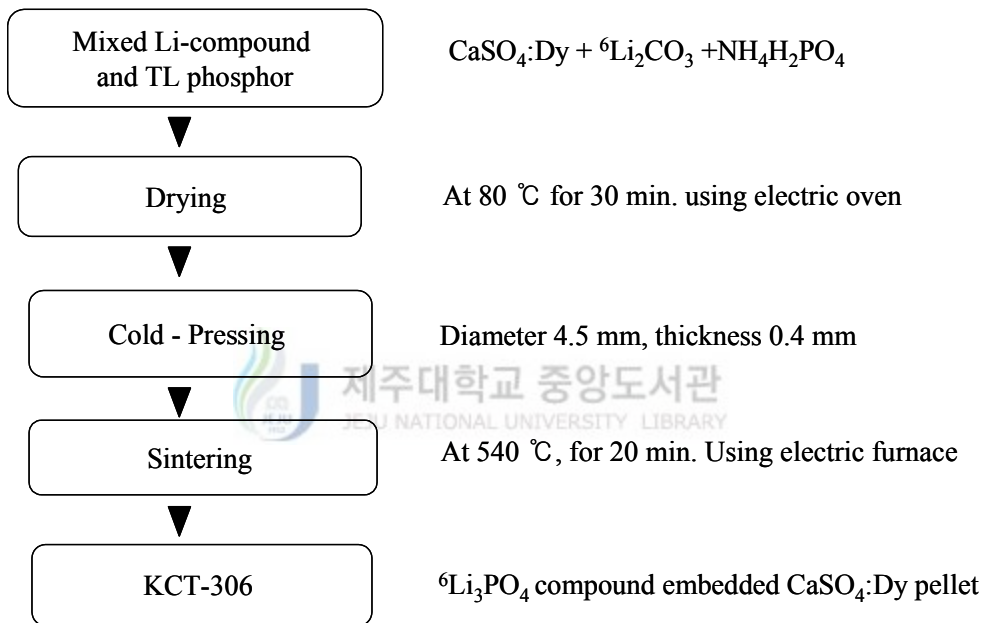


Fig. 9. Schematic diagram of preparation process of KCT-306

본 실험에서는 열중성자 반응 물질로 첨가하는 ${}^6\text{Li}$ 화합물의 종류를 결정하기 위해 Li 화합물의 원시시료로서 LiF, Li_2SO_4 , Li_2CO_3 , Li_3PO_4 등의 물질을 이용하여 소자를 제작하고, 원자력연구소 내의 ${}^{252}\text{Cf}$ 중성자 선원으로 조사시켜 감도를 측정하였다. ${}^{252}\text{Cf}$ 중성자 선원에서 방출되는 중성자는 고에너지의 중성자이기 때문에 열중성화 하기위해 직경 30 cm의 D_2O 감속구를 이용하여 조사하였다. Fig. 10에 원자력 연구소의 ${}^{252}\text{Cf}$ 를 이용한 중성자 조사 장치를 나타내었다. Fig. 11과 Fig. 12는 ${}^{252}\text{Cf}$ 중성자 선원의 에너지 스펙트럼과 직경 30 cm의 D_2O 감속구가 있을 때의 에너지 스펙트럼을 나타낸 것이다. ${}^{252}\text{Cf}$ 중성자 선원에 조사된 KCT-306 소자는 Harshaw 4500 모델 TLD 판독기를 이용하여 판독하였다. 소자의 판독 온도 조건은 $120\text{ }^\circ\text{C}$ 에서 6초간 유지하면서 판독전 열처리하여 저온 피크의 영향을 최소화하였고 $320\text{ }^\circ\text{C}$ 까지 선형적으로 가열하여 8초간 열처리 하는 방식을 택하였고 이후 중성자 측정용 소자의 판독 온도 조건은 모두 동일하게 설정하였다.

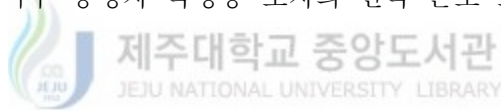




Fig. 10. ^{252}Cf Neutron source of KAERI (with D_2O moderator of 30 cm dia.)

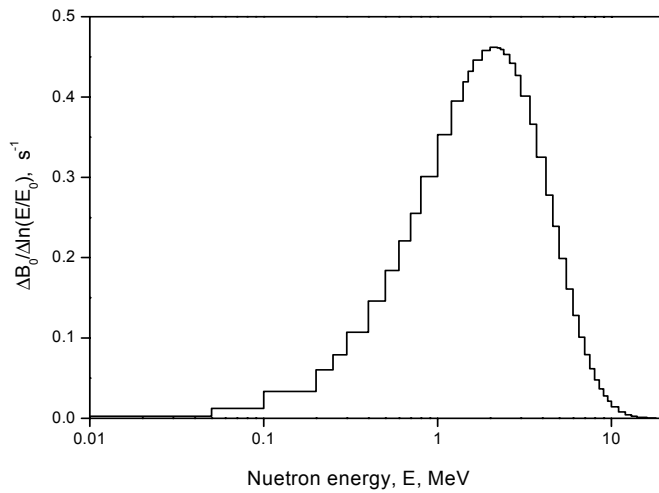


Fig. 11. Neutron spectrum from a ^{252}Cf spontaneous fission source

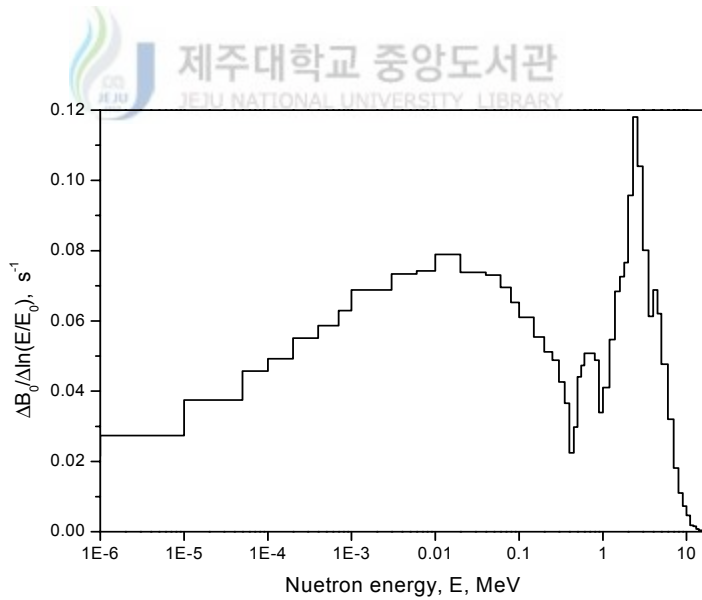


Fig. 12. Neutron spectrum from a ^{252}Cf spontaneous fission source in the centre of a D_2O sphere with a diameter of 30 cm

중성자는 항상 감마를 동반하기 때문에 중성자 측정용 소자는 중성자/감마 혼합장에서 감마선량만을 측정하는 소자를 동시에 사용하여 감마 선량값을 고려해 주어야 한다. 즉 열중성자 반응 물질이 첨가된 소자는 중성자 선량과 감마 선량을 동시에 측정하게 되고 열중성자 반응 물질이 첨가되지 않은 소자는 감마 선량만을 측정하게 되므로 두 소자간의 감도차를 이용해 순수 열중성자 선량만을 측정하게 된다. 중성자/감마 혼합장에서 감마 선량에 대한 순수한 중성자 반응도의 비를 중성자/감마 감도비라고 하며 이 값은 중성자 측정용 소자의 성능을 평가하는 중요한 값이다. 따라서 본 연구에서는 중성자 측정용 소자를 제작하여 중성자, 감마 감도 및 중성자/감마 감도비를 측정함으로써 중성자 측정용 소자의 성능을 평가하였다.

1) 열중성자 반응 물질인 ${}^6\text{Li}$ 화합물의 결정

$\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말에 열중성자 반응 물질로 혼합하는 ${}^6\text{Li}$ 화합물을 결정하기 위해 우선적으로 농축 ${}^6\text{Li}$ 화합물이 아닌 천연 Li 화합물을 이용하여 소자를 제작하고 소자의 강도 및 감마에 대한 감도를 측정하는 실험을 수행하였다. 천연 Li 화합물에는 ${}^6\text{Li}$ 의 양이 약 7% 정도가 존재하기 때문에 중성자에 대한 선량계적 특성은 차이가 있지만 물리, 화학적 특성은 거의 유사하므로 소자의 강도 및 감마감도를 측정하여 Li 화합물의 종류를 결정하는 실험을 수행하였다. 본 연구에서는 Li 화합물의 원시시료로서 LiF , Li_2SO_4 , Li_2CO_3 , Li_3PO_4 등의 물질을 이용하여 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 와 혼합하여 상온에서 압축 성형하여 서로 다른 온도, 시간에서 소결하는 방법으로 $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{Li}$ 화합물 소자를 제작하여 발광 곡선 모양과 TL 감도를 측정하고 비교하여 Li 화합물을 선택하였다.

2) ${}^6\text{Li}$ 화합물 및 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말의 최적 함량 결정

${}^6\text{Li}$ 화합물을 결정하는 단계에서 최적의 ${}^6\text{Li}$ 화합물은 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 와 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물을 동시에 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말에 혼합했을 때 화학반응에 의해 생성되는 ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 화합물로 결정되었다. KCT-306 소자의 제조 과정에서 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말에 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물과 과량의 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 화합물을 첨가시키면 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 는 전부 ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 로 변환되고 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 의 나머지는 P 화합물의 형태로 존재하게 된다. KCT-306 소자의 제작에 있어서 P 화합물의 함량을 고정시키고 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말의 함량을 변화시키면 ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 화합물의 함량도 동시에 변하게 된다. 본 연구에서는 최적의 ${}^6\text{Li}$ 화합물과 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말의 함량을 알아보기 위해 P 화합물의 함량을 10 wt%로 고정시키고 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말의 함량과 ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 화합물의 함량을 합이 90 wt%가 되도록 변화시키면서 소자를 제작하고 열중성자에 대한 감도와 감마 감도 및 중성자/감마 감도비를 측정하여 최적의 ${}^6\text{Li}$ 화합물과 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말의 함량을 결정하였다.

3) 접착물질 P 화합물의 최적 함량 결정

KCT-306 소자의 제조 과정을 나타낸 Fig. 8의 첫 번째 단계에서 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말 및 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 화합물의 함량을 고정시키고 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물의 함량을 변화시키면 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 와 반응하고 남는 P 화합물의 함량이 조절된다. 본 연구에서는 접착물질인 P 화합물의 최적 함량을 결정하기 위해 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말 및 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 화합물의 함량을 고정시키고 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물의 첨가량을 변화시켜 최종적으로 P 화합물의 함량을 변화시키면서 중성자 측정용 소자를 제조하고 소자의 중성자와 감마에 대한 감도 및 중성자/감마 감도비를 측정하여 최적의 P 화합물 함량을 결정하였다.

2.2 CaSO₄:Dy TL 분말의 낱알 크기 (grain size)와 중성자 반응도의 영향

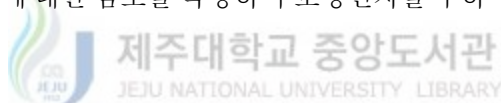
KCT-306 소자는 ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ 반응에 의한 α 입자와 ${}^3\text{H}$ 입자가 CaSO₄:Dy TL 분말에 의해 검출되어 방출되는 TL의 양으로써 중성자 선량을 측정한다. α 입자의 비정은 10 μm , ${}^3\text{H}$ 입자의 비정은 50 μm 로서 감마선이나 다른 베타선에 비해 비정이 짧다. 따라서 비정이 짧은 α 입자나 ${}^3\text{H}$ 입자가 TL 분말과 반응할 때 TL 분말 낱알의 크기가 α 입자나 ${}^3\text{H}$ 입자의 비정에 비해 클 때 측정 효율이 떨어질 수 있다. 즉 TL 분말의 낱알크기에 따라 CaSO₄:Dy TL 분말을 이용한 중성자 측정용 소자의 중성자 측정 효율이 달라질 수 있다. 본 연구에서는 CaSO₄:Dy TL 분말 낱알크기의 변화에 따라 KCT-306 소자의 중성자 감도 및 중성자/감마 감도비가 변하는 것을 측정하기 위해 CaSO₄:Dy TL 분말을 낱알크기별로 63-100 μm , 45-63 μm , 40-45 μm , 30-40 μm , 20-30 μm , 20 μm 이하의 6가지로 구분하고 앞에서 제시한 방법에 따라 소자를 제작하고 중성자 감도 및 중성자/감마 감도비를 측정하여 최적의 낱알 크기를 결정하였다.



2.3 KCT-306 소자의 중성자 반응도 비교 실험 방법

최적 제조 조건에 따라 제조된 KCT-306 소자의 감도를 상용화되어 쓰이고 있는 중성자 측정용 소자와 비교하였다. 비교 소자로는 Harshaw사의 TLD-600 (LiF:Mg, Ti) 와 TLD-600H (LiF:Mg, Cu, P)를 준비하였으며 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. TLD-600은 TL 물질로서는 최초로 상품화된 TLD-100을 기반으로 한 소자이며 TLD-600H는 TLD-100 이후 연구 단계에서 개발된 Mg, Cu, P 를 활성체로 첨가한 고감도의 소자로 H는 High sensitivity를 의미한다. TLD-600은 400 °C에서 1시간 열처리 후 바로 100 °C에서 2시간 열처리 하고 TLD-600H는 240 °C에서 10분간 열처리하여 사용

하였다. 중성자 감도 비교를 위해서 이용된 중성자 선원은 한국원자력연구소가 보유하고 있는 D₂O 감속구의 ²⁵²Cf 선원이다. 중성자 선원을 이용하여 조사시킨 KCT-306 소자는 저온 피크의 영향을 최소화하기 위해 계단식 가열 방식을 택하여 판독하고 TLD-600/TLD-700와 TLD-600H/TLD-700H의 경우 135 ℃에서 6초간 판독전 가열 후 TLD-600/TLD-700은 240 ℃까지, TLD-600H/TLD-700H는 245 ℃까지 선형적으로 가열 후 8초간 유지하는 판독 온도 조건을 적용하였다. 본 연구에서 감마선량 구분을 위해 사용한 KCT-307과 TLD-700 및 TLD-700H의 감마에 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 있지만 일반적으로 두 가지 종류의 소자는 감마 감도가 다르기 때문에 기준 감마선원 (¹³⁷Cs)에 대한 감도를 측정하여 보정인자를 구하여 이용한다.



3. 열발광 소자의 발광곡선 측정

본 연구에서 제조한 TL 물질의 특성 평가는 방사선 조사 후 TLD 판독기를 이용한 판독을 통해 이루어진다. TLD 판독 장치는 크게 가열부 (heating system), 광 검출부 (light detection system), 신호 측정부 (signal measurement system), 기록부 (display and recording system)로 구성된다. Fig. 13에 TLD 판독장치의 구성을 간단히 나타내었다. 가열부에서 TL 소자를 가열하는 방법에는 직접법과 간접법이 있다. 직접법은 소자를 직접 가열하는 방법으로서 유도가열 (dielectric heating)이나 적외선 가열 (infra-red heating)에 의한 것이고, 간접법은 가열된 용기로부터 나오는 열에 의해서 가열되는 방법으로서 가열판 또는 고온 기체를 이용하는 방법이 있다. 광 검출부는 광증배관 (photo multiplier tube : PMT)에 의해 TL을 받아

들이는 부분으로 측정에 유효한 열발광만을 통과하도록 필터를 설치한다. 신호 측정부는 광 검출부에서 전달된 신호를 각각의 목적에 따라 방법을 택한다. 기록부는 신호 측정부에서 측정된 신호를 기록하는 부분으로, TL의 총량은 실온부터 가열 최고온도까지의 적분값으로 나타낸다.

본 논문에서는 제조한 TL 물질의 판독을 위해 Harshaw 4500 TLD 판독장치 (Harshaw Bicron, USA)를 이용하였다. Harshaw 4500의 시료 가열 과정은 질소기체를 가열하여 불어주는 고온기체 가열방식과 시료고정자의 저항 가열방식을 동시에 가지고 있다. 고온기체 가열 모드(mode)는 4개의 TLD 소자로 구성된 TLD 카드선량계를 판독할 경우 사용되고, 저항 가열 모드는 특정 형태로 고정되지 않은 TL 소자를 판독할 경우에 사용된다. 본 연구에서는 카드선량계를 사용하지 않으므로 저항 가열 모드를 사용하였다.



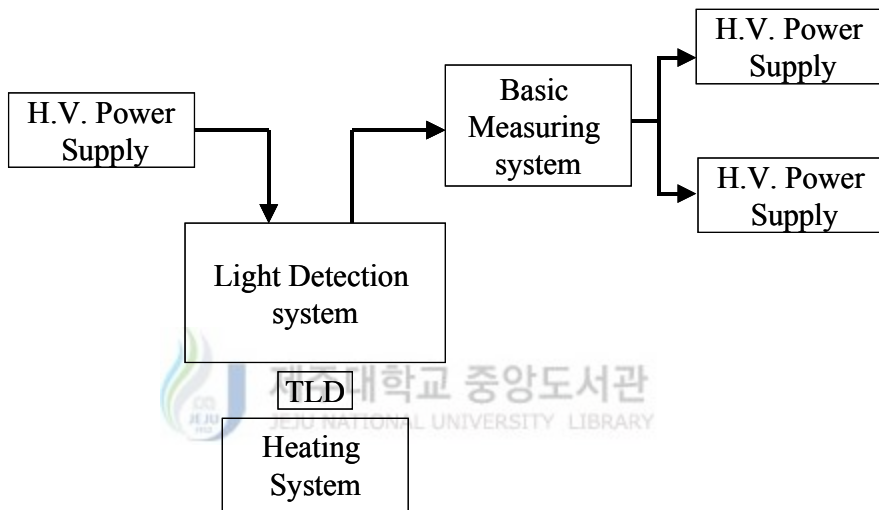


Fig. 13. Basic TLD Reader

IV. 결과 및 토의

1. 감마선 및 베타선 측정을 위한 KCT-300 소자

1.1 CaSO₄:Dy TL 분말의 감도 비교

CaSO₄:Dy TL 분말의 결정체를 분리해 내는 과정 전 후의 TL 분말의 발광 곡선을 Fig. 14에 나타내었다. Fig. 14에서 알 수 있듯이 결정체 분리 후의 분말의 경우가 저온 피크는 감소되고 주피크는 증가하여 TL 특성이 향상됨을 알 수 있다. 결정이 잘 형성된 TL 분말과 결정체가 잘 형성되지 않은 분말을 비중 차를 이용해 분리하는 과정에서 버려진 결정 형성이 잘 되지 않은 분말의 발광곡선을 Fig. 15에 나타내었다. 그림에서 알 수 있듯이 결정체가 잘 형성되지 않은 분말은 저온 피크가 상당히 높아 선량계 물질로는 부적당함을 알 수 있다. Fig. 16은 Fig. 15에서 발광 곡선을 측정한 두 가지 분말의 SEM (Scanning Electron Microscope) 사진으로 결정체의 모습이 정확히 구분됨을 알 수 있다.

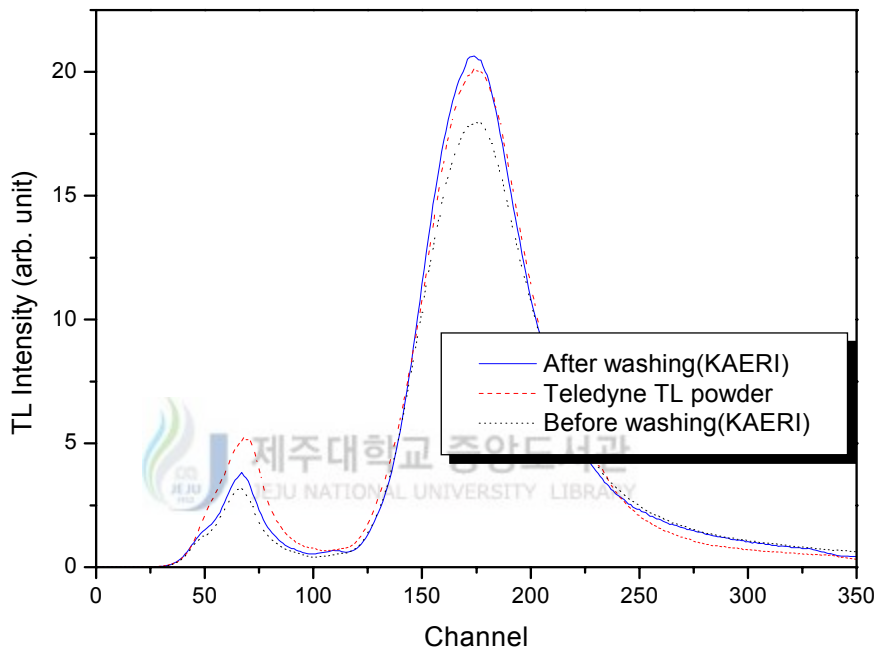


Fig. 14. The glow curves of various kinds of CaSO₄:Dy TL phosphors

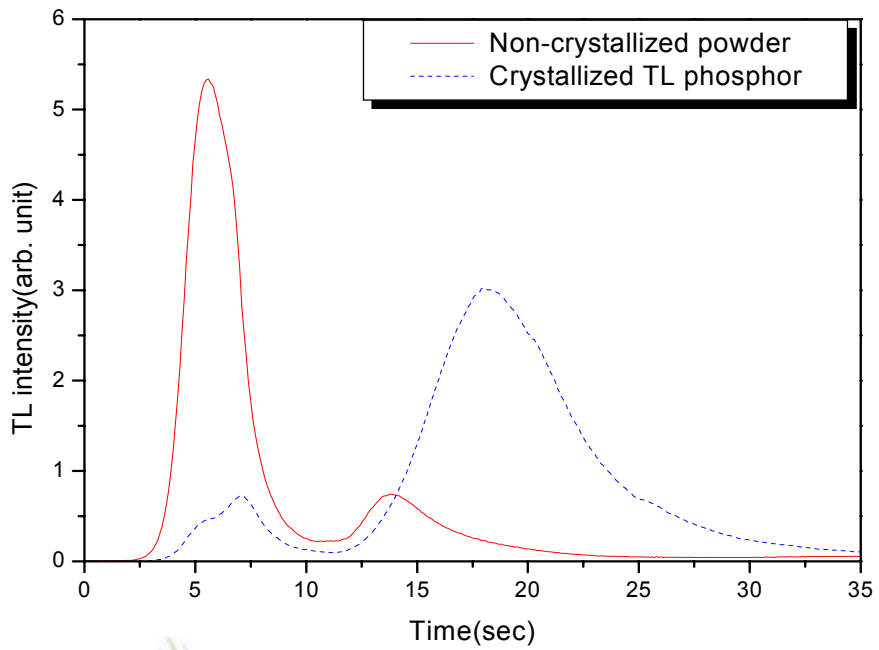


Fig. 15. The glow curves of non-crystallized powder and crystallized-TL phosphor

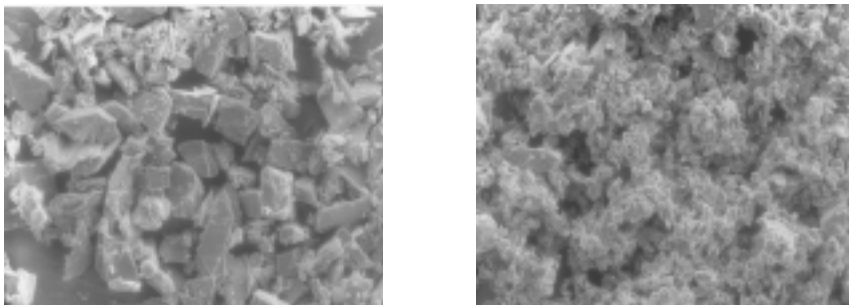


Fig. 16. Photomicrographs of SEM of the $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ crystallized-TL phosphor (left) and non-crystallized-powder (right)

1.2 CaSO₄:Dy TL 분말의 최적 열처리 조건

CaSO₄:Dy TL 분말의 낱알 크기에 따라 열처리 온도를 변화시키면서 감도 변화를 측정한 결과를 Fig. 17에 나타내었다. 그림에서와 같이 전체적으로 열처리 온도가 증가할수록 감도가 증가하며 600 °C에서 점차 포화되는 양상을 보인다. 한편 800 °C에서는 입자 크기가 45 μm 이하인 분말의 경우 감도가 크게 낮아짐을 알 수 있다. KCT-300 소자의 제조에 쓰이는 TL 분말의 낱알 크기는 100 μm 이하의 분말을 사용하기 때문에 최적의 열처리 조건은 세 가지 입자 크기에 대해 감도가 최대가 되는 700 °C에서 1시간으로 결정하였다.

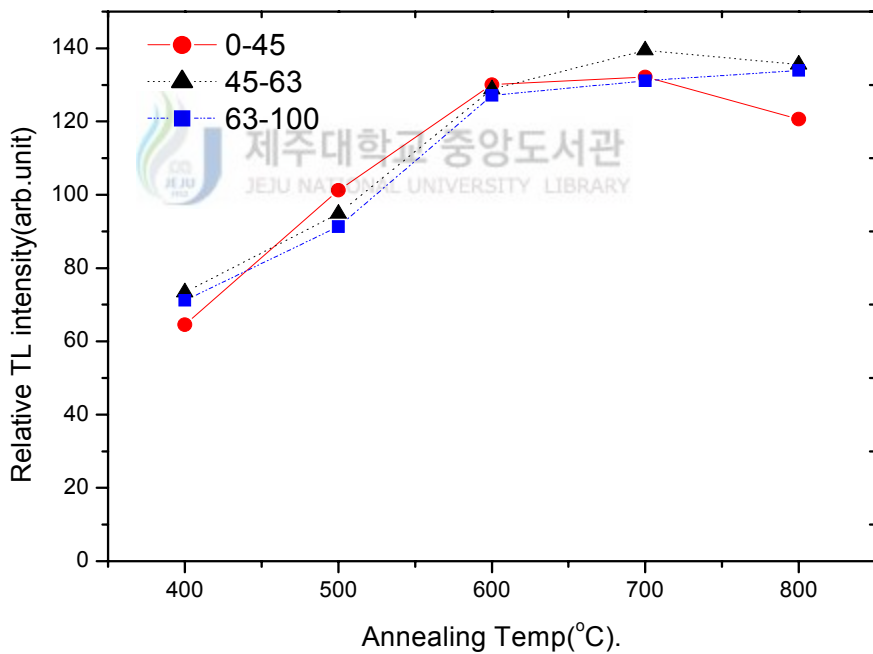


Fig. 17. Dependence of the main peak intensity of CaSO₄:Dy TL phosphor on annealing temperature

1.3 KCT-300 소자의 최적 제작 조건 결정

1) 혼합 분말의 최적 열처리 조건

KCT-300 소자에 접착물질로 첨가하는 P 화합물의 함량이 높아질 때 소자의 표면이 변형되는 문제를 해결하기 위해 $\text{CaSO}_4\cdot\text{Dy}$ TL 분말과 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 분말의 혼합 분말 상태에서 소자로 성형 전 열처리 과정을 추가함으로써 소자 표면의 변형 없이 P 화합물의 함량을 증가 시킬 수 있었다. 혼합 분말의 열처리 조건을 변화시키면서 소자를 제작한 결과 혼합분말을 400 °C에서 10분 열처리를 한 후 소자로 제작한 경우 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 분말의 함량이 33 wt%까지 소자의 표면이 부풀어 오르는 현상이 생기지 않았다. 200 °C에서 350 °C까지는 소자의 표면이 부풀어 오르는 현상이 감소하긴 하였으나 소자로 이용하기엔 부적합한 정도였고, 500 °C에서는 소자의 기계적 강도가 더 약해졌다. 이는 500 °C에서는 소자의 고온 열처리 (600 °C)온도에서 접착물질로 작용하는 P 화합물까지도 일부 제거되기 때문으로 추측되며 정확한 이유에 대해서는 추가적인 화학 분석 등이 요구된다. 따라서 KCT-300 제작 과정 중 접착물질을 혼합한 분말의 열처리 조건은 400 °C에서 10분으로 결정하였다.

2) P 화합물의 최적 함량

접착물질인 P 화합물의 최적 함량을 결정하기 위해 접착물질의 모물질인 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 분말의 함량을 변화시키면서 소자를 제조하고 감도를 측정한 결과를 Fig. 18에 나타내었다. 그림에서 보면 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 분말 함량이 33 wt%까지는 소자의 감도가 증가하다가 이후부터는 급격하게 감소한다. $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 분말 함량이 7.8 wt% 일때는 소자의 기계적 강도가 약하고 접착물질인 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 분말 함량이 20 wt% (4:1)와 25 wt% (3:1)일때 기계적 강도도 향상되고 소자의 감도가 최적을 나타낸다. 그 중에서도 접착물질의 함량이 25 wt%일때의 감도는 20 wt%일때와

크게 다르지 않으면서 기계적 강도는 좋으므로 최적의 P 화합물의 함량을 25 wt%로 결정하였다. Fig. 19는 KCT-300 소자의 제조 과정에 있어 25 wt%의 P 화합물을 혼합하여 소자를 제작할 때 혼합 분말의 열처리 과정이 있을 때와 없을 때 600 °C에서 30분간 소결 후 소자 표면을 비교하여 나타낸 것이다. 여기에서 확연히 알 수 있듯이 혼합분말을 성형 전 열처리 하여 소자를 제작했을 때 표면의 부풀어 오르는 현상이 제거되었음을 알 수 있다.



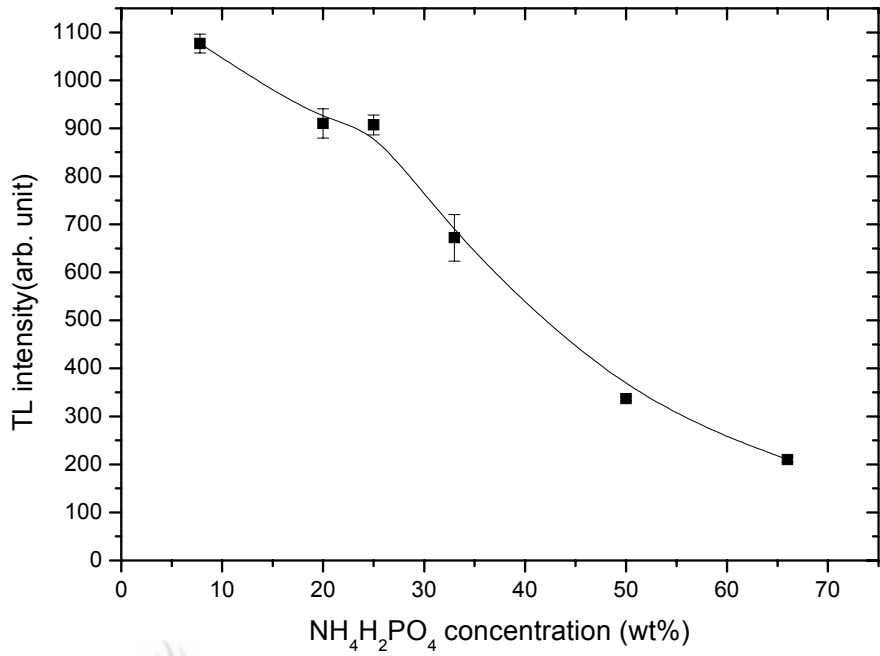


Fig. 18. Dependence of the main peak intensity on NH₄H₂PO₄ concentration (wt%)

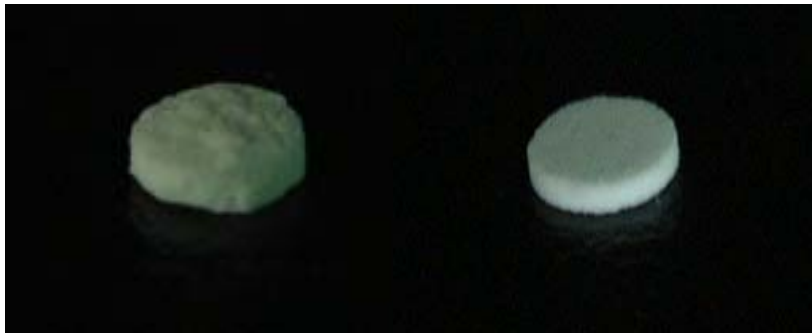


Fig. 19. Surface of KCT-300 without pre-heat treatment (left), with pre-heat treatment (right)(NH₄H₂PO₄ : 25 wt%)

3) KCT-300 소자의 최적 열처리 조건

제조한 KCT-300 소자를 서로 다른 열처리 온도에서 열처리 하고 소자의 감도 변화를 측정 한 결과를 Fig. 20에 나타내었다. 열처리 온도에 따라 KCT-300 소자의 주피크와 저온피크에 미치는 영향이 달라지므로 그래프에서는 KCT-300소자의 저온피크와 주피크로 구분하여 나타내었다. 열처리 온도가 400 °C까지는 소자의 감도가 매우 낮아 열처리 온도로 적당하지 않음을 알 수 있다. 그리고 500 °C- 700 °C까지는 온도가 높아짐에 따라 주피크 감도가 증가한다. 700 °C에서는 주피크 감도가 최대를 보이지만 저온피크 또한 상대적으로 다소 높아지고 기계적 강도도 떨어지기 때문에 최적 열처리 조건은 600 °C, 30분으로 결정하였다.

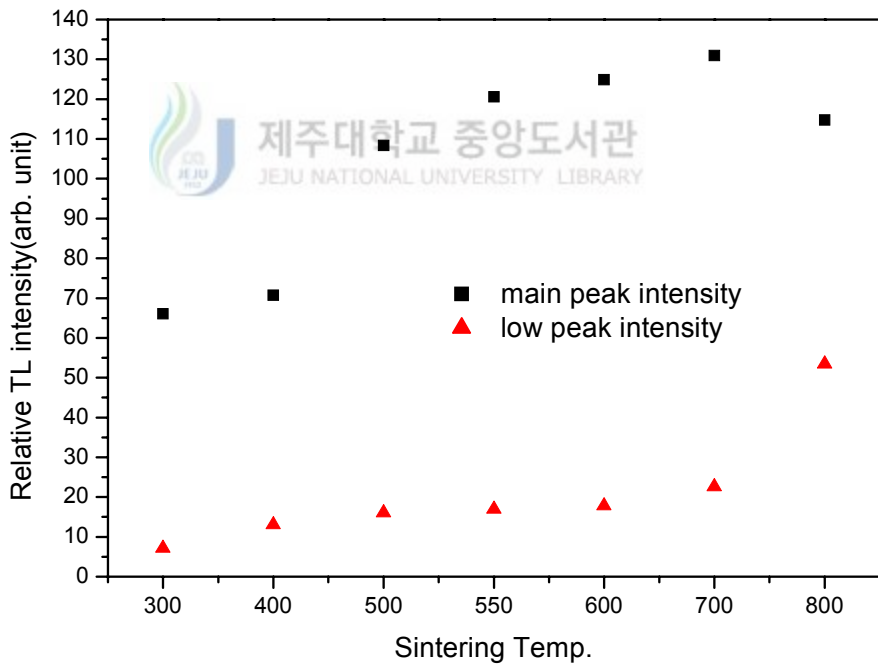


Fig. 20. Dependence of main peak and low temperature peak intensity on sintering temperature

1.4 KCT-300 소자의 선량계적 특성

1) 감도 (Sensitivity)

KCT-300 소자와 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말의 감도를 비교한 발광곡선을 Fig. 21에 나타내었다. 그림에서 보는 것처럼 KCT-300 소자의 감도는 동일 질량의 순수 TL 분말 감도의 거의 90 %로서 TL 분말의 고감도를 충분히 유지하고 있음을 알 수 있었다. Fig. 22에 KCT-300 소자의 감도를 현재 많이 쓰이고 있는 Teledyne사에서 제작한 Teflon을 접착물질로 한 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ Teflon 소자의 감도를 비교하여 나타내었다. Teflon 소자는 두께 0.4 mm, 질량 14 mg, 직경 4.5 mm로서 KCT-300 소자와 차이가 있으므로 그림에서는 감도는 질량에 거의 비례하여 나타난다는 점을 이용하여 보정한 값으로 비교하였다. 그림에서 알 수 있듯이 KCT-300 소자는 Teflon 소자의 감도에 비해 감도가 월등하게 높음을 알 수 있다. 이는 Teledyne사 Teflon 소자의 감도에 비해 6배에 해당하는 값이다. 현재까지 알려진 접착물질로 Teflon이 아닌 물질을 이용한 것으로는 Shastry.S.S 등 (1980)에 의해 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 에 magnesium borate와 silicon oxide 분말 3%를 접착물질로 고르게 섞어서 만들어진 소자가 연구되었으나 이 소자의 감도도 Teflon 소자와 비슷하므로 KCT-300 소자는 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 계열의 TLD 중 감도가 가장 우수하다고 할 수 있다.

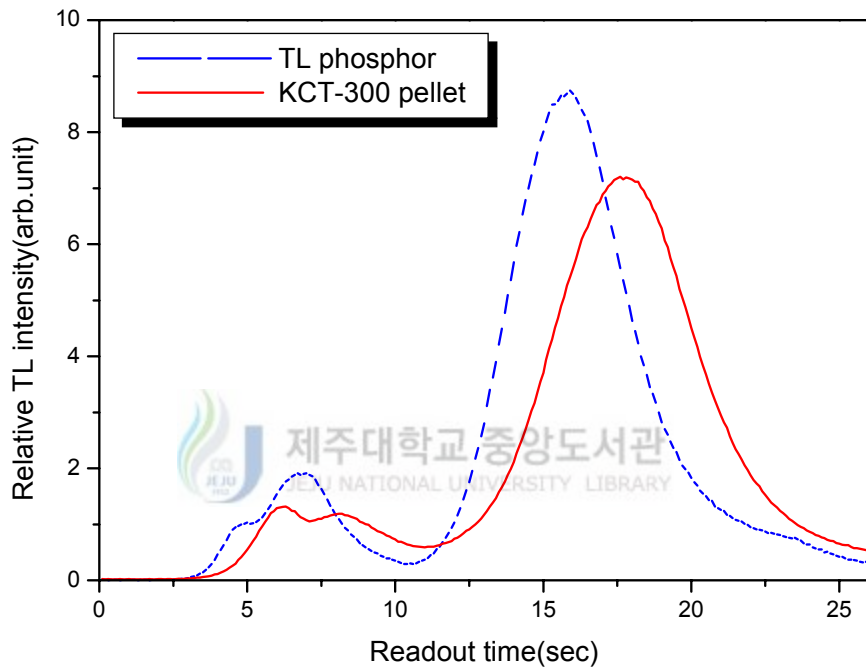


Fig. 21. The glow curves of CaSO₄:Dy TL phosphor and KCT-300

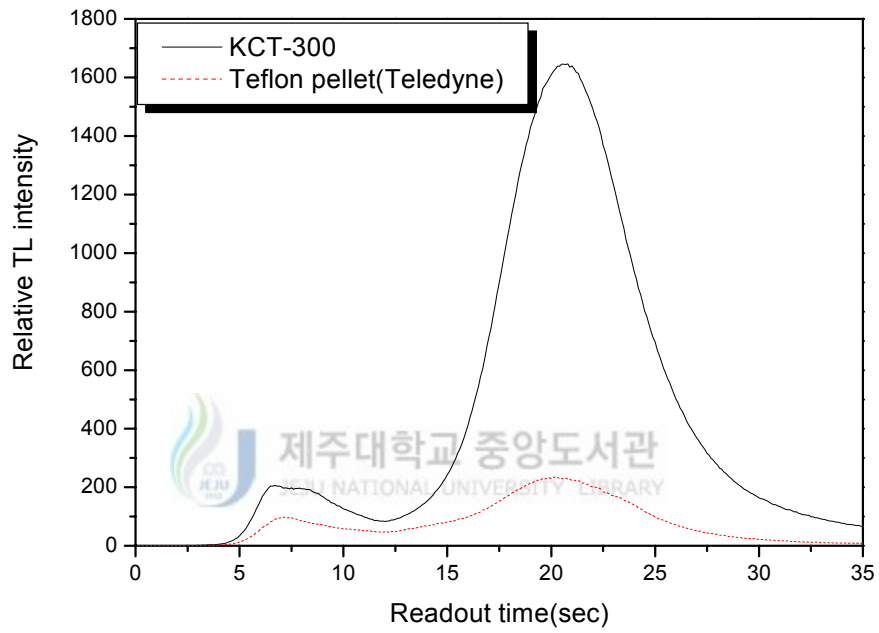


Fig. 22. The glow curves of KCT-300 and Teflon pellet (Teledyne)

2) 선량 선형성 (Dose linearity)

KCT-300 소자의 선량 선형성을 측정된 결과를 Fig. 23에 나타내었다. Table 4는 KCT-300 소자의 선량 선형성 함수 $f(D)$ 를 정의에 의해 구한 값을 나타낸 것이다. 이때 기준이 되는 선량은 선형성을 보이는 중간 지점인 10^2 Gy에서의 응답성을 기준으로 하였다. IEC 표준에 따르면 선형성을 보이는 구간은 상대적 선량 선형성 함수 $f(D)$ 의 값이 0.9에서 1.1 사이에 들것을 요구하고 있다. 따라서 KCT-300 소자의 선량 선형성 구간은 10^5 Gy에서부터 10 Gy까지로 측정되었다. Furreta 등 (1986)에 의하면 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질의 선량 선형성 구간이 10^4 Gy부터 10 Gy까지인데 비해 선량 선형성이 향상되었음을 알 수 있었다. 그리고 10 Gy부터 10^3 Gy까지는 초선형성을 나타내는데 10^3 Gy에서 선량 선형성 함수 $f(D)$ 의 값은 2.0으로서 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말이나 (2.8) $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ Teflon 소자의 값 (2.6)에 비하여 작은 값을 나타내었다. $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말이나 Teflon 소자의 선량 선형성 곡선을 보면 10 Gy 이상에서 급격히 초선형성을 보이다가 10^3 Gy 이상에서 이미 포화되어 고선량 측정에 한계가 있다. 그러나 Fig. 23의 KCT-300 소자의 선량 선형성 결과에서 알 수 있듯이 KCT-300 소자는 포화되는 선량 범위가 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말이나 Teflon 소자에 비해 넓어져 고선량 측정에 유리함을 알 수 있다.

Fig. 24는 KCT-300 소자로 10^6 Gy의 선량을 조사하여 측정된 발광 곡선의 모양을 나타낸 것으로 주피크가 뚜렷하게 나타나 조사시키지 않은 소자의 감도, 즉 배경 선량(background dose)과 구분이 되므로 10^6 Gy 정도의 저선량에서도 선량 평가가 가능하다.

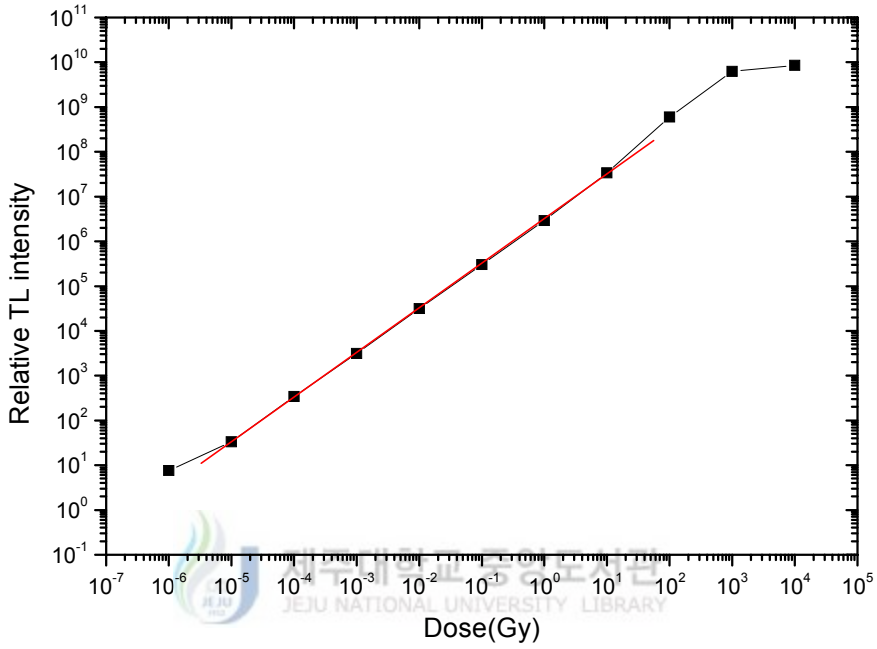


Fig. 23. Dose linearity of KCT-300

Table 4. Relative dose response function $f(D)$ of KCT-300

Dose (Gy)	10 ⁻⁶	10 ⁻⁵	10 ⁻⁴	10 ⁻³	10 ⁻²	10 ⁻¹	10 ⁰	10 ¹	10 ²	10 ³	10 ⁴
$f(D)$	2.42	1.06	1.08	0.98	1	0.96	0.92	1.07	1.9	2.0	0.27

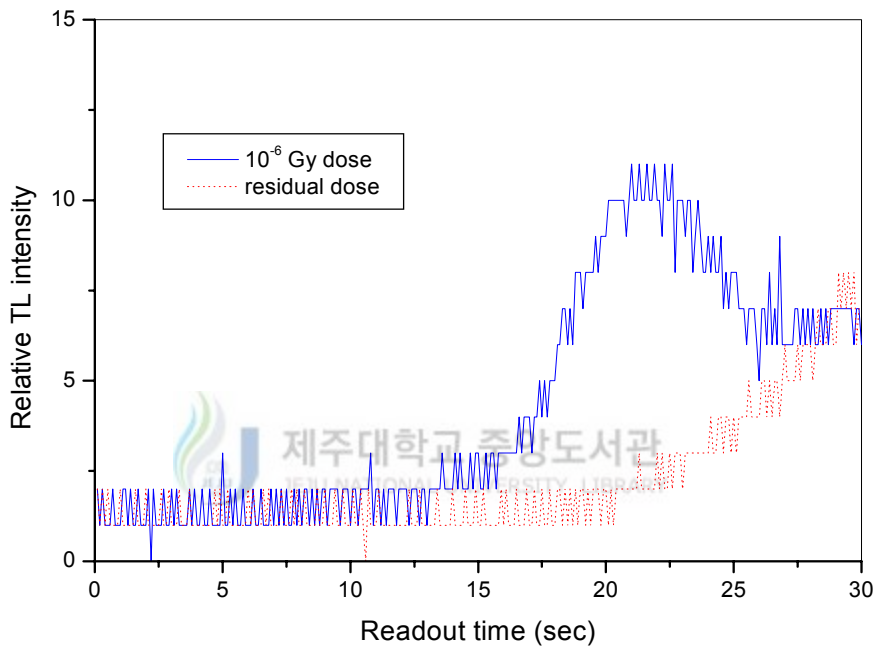
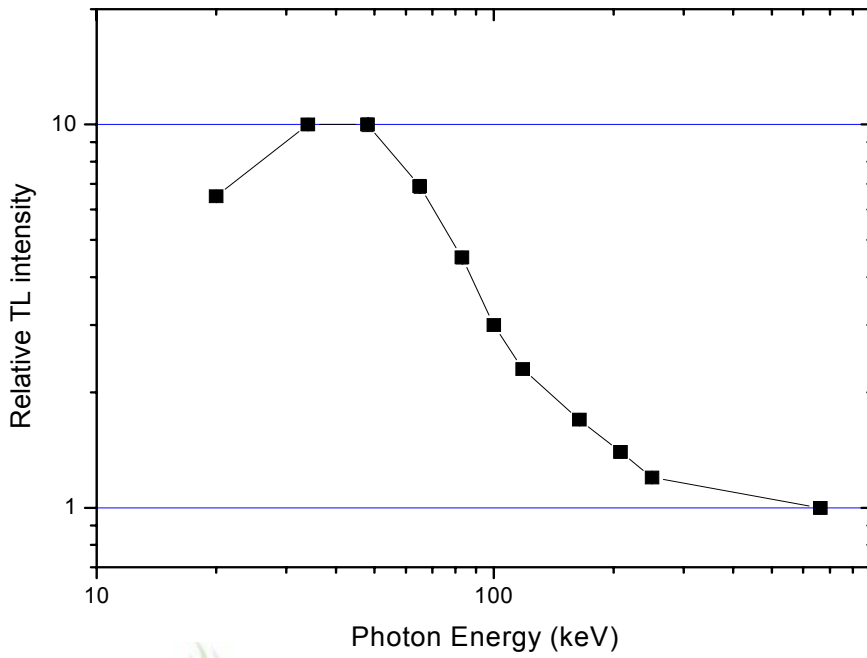


Fig. 24. The glow curves of KCT-300 at low dose ($1 \mu\text{Gy}$) and background dose

3) 에너지 반응도 (Energy response)

KCT-300 소자의 에너지 반응도 결과를 Fig. 25에 나타내었다. KCT-300 소자의 에너지 반응도는 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 계열 TL 물질의 에너지 반응도와 같은 양상을 보인다. 광자에너지가 200 keV 이하일 때는 상대적 에너지 반응도 (Relative Energy Response : RER)가 높아지며 30 -40 keV일 때 최대값인 10에 달한다. $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질의 경우에 저에너지 영역에서 에너지 반응도가 높아지는 이유는 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 계열의 TL 물질은 유효 원자 번호가 높아 저에너지 영역에서는 광전 효과가 지배적이기 때문이다. IEC 표준에서는 에너지 반응도가 30% 이내에 들 것을 요구하고 있으나 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질의 경우는 유효 원자 번호가 높은 물질 고유의 특성이며 이는 개인선량계 배지 설계시 필터를 이용하여 에너지 반응도를 보상할 수 있다. 그러나 앞서서도 밝혔듯이 종사자의 피폭 방사선 에너지를 구분해야 하는 경우에는 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질의 높은 에너지 반응도는 고유한 장점으로 작용할 수 있다.






 제주대학교 중앙도서관
 JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

Fig. 25. Relative energy response of KCT-300

Table 5. Relative energy response of KCT-300

Energy (keV)	20	34	48	65	83	100	118	164	208	250	662
RER	5.6	9.7	10	7	4.3	3	2.3	1.6	1.3	1.2	1

4) 감쇠 (Fading)

KCT-300 소자를 두 달간 보관하면서 측정한 감쇠특성 실험 결과를 Fig. 26에 나타내었다. 소자의 감쇠율은 ~8 %/2 month 로 나타났다. 이 수치는 Teledyne사의 Teflon 소자의 경우 10 %/3 month, 또는 TLD-900 (CaSO₄:Dy 분말 타입) 의 10 %/50day 과 비슷한 값을 보인다.

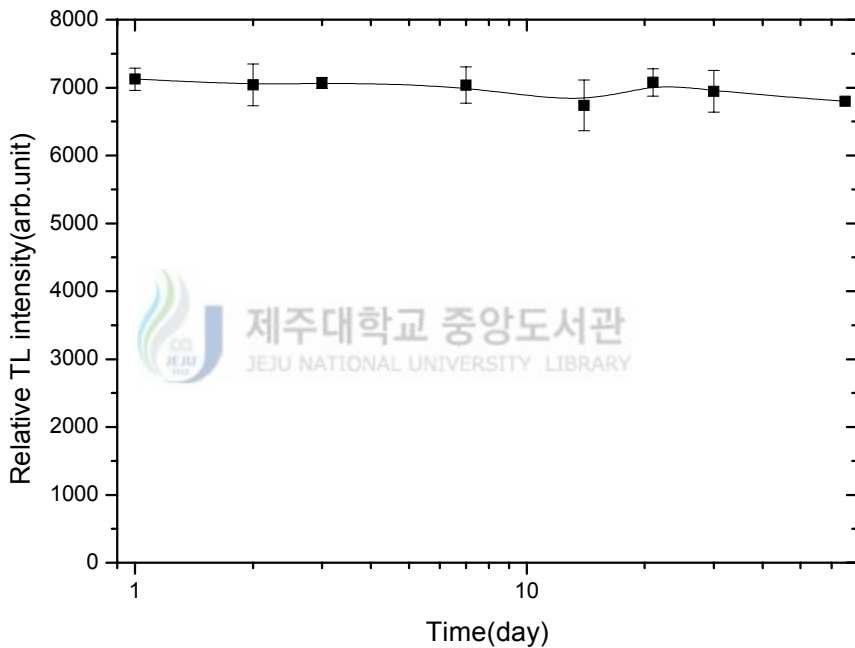


Fig. 26. Fading rate of KCT-300

5) 선량 측정 하한치 (LLD)

LLD는 판독기의 성능에도 매우 민감하게 작용하므로 저선량 영역에 대한 선량 평가시에는 잡음이 적고 안정된 판독기를 사용하는 것이 중요하다. 본 연구에서는 판독기로 Harshaw 4500 (Harshaw Bicron, USA)을 이용하여 측정하였으며 앞에서 제시한 식 (23)에 의해 KCT-300 소자의 $LLD=0.6 \mu\text{Gy}$ 로 계산되었다.

이 값은 상용화된 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질의 $LLD=2.7 \mu\text{Gy}$ 에 비교해 볼 때 저선량 영역에서의 측정 성능이 향상되었음을 나타내며 이는 선량 선형성의 범위가 저선량 쪽으로 확장된 것에도 일치하는 결과로 볼 수 있다.

6) 반복 사용성 (Reusability)

소자의 반복 사용성은 IEC 표준에 따라 실험에 사용된 소자의 집합에 대해서 (all dosimeters collectively) 그리고 사용된 소자 각각에 대해서 (each dosimeter separately) 변동계수를 구하였다.

식 (24)에 의한 소자 집합에 대한 변동계수와 식 (25)에 의한 소자 각각에 대한 변동계수를 Table 6에 나타내었다. 두 가지 경우 모두 변동 계수는 0.075보다 작아 IEC 표준에서 정하는 요구치에 만족함을 알 수 있다. Fig. 27은 KCT-300 소자를 10회 동안 반복 사용하면서 감도의 변화를 측정한 결과를 나타낸 것이다. 그림에서 보면 소자의 10회 사용동안 감도의 변화가 없어 반복 사용성이 우수함을 알 수 있다.

Table 6. Reusability of KCT-300

Each dosimeter separately	
Dosimeter ID	Coefficient of variation
D1	0.06
D2	0.035
D3	0.073
D4	0.035

All dosimeters collectively
Coefficient of variation = 0.018

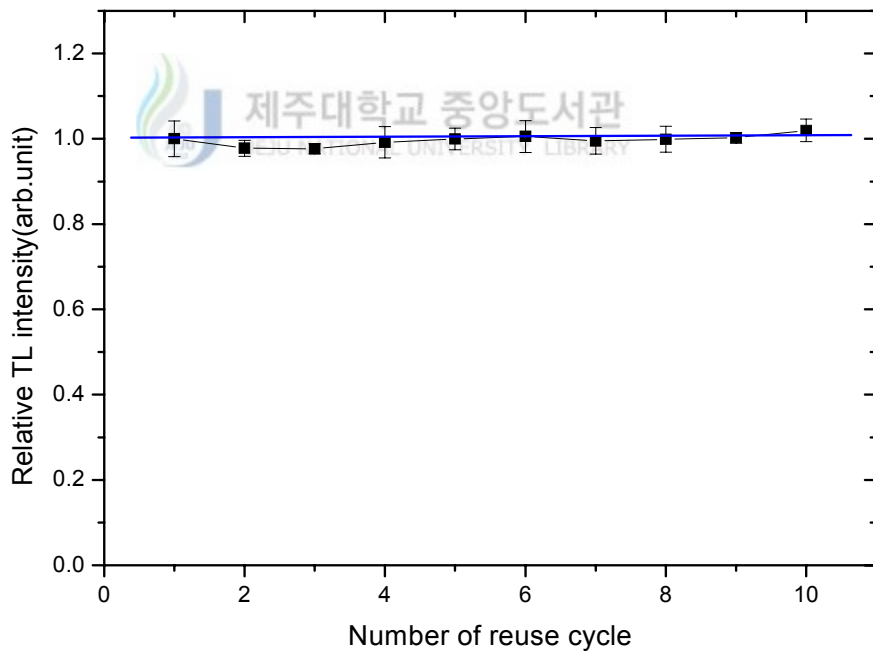


Fig. 27. Reusability of KCT-300

1.5 베타선 측정을 위한 얇은 TL 소자

1) 베타선 측정용 소자의 감도 비교

캡톤 필름을 이용하여 소자를 제조하고 TL에 대한 감도를 비교하여 Fig. 28에 나타내었다. 캡톤 필름을 이용하여 제조한 소자의 경우, 캡톤 고유의 색인 황색으로 인해 절대적인 감도는 떨어지지만 식 (23)에 의해 선량 측정 하한치를 계산해볼 때 LLD는 10^{-4} Gy로 계산되었다. 그림에서 보면 캡톤 테잎을 이용한 베타선 측정용 소자의 감도는 순수한 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말 감도에 비해 약 1/2정도의 감도를 보였다. 그러나 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질의 감도가 매우 높기 때문에 개발된 소자는 베타선 측정용으로 충분한 감도를 가지고 있으며, 발광 곡선의 형태는 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질의 기본 형태를 유지하고 있음을 알 수 있다.



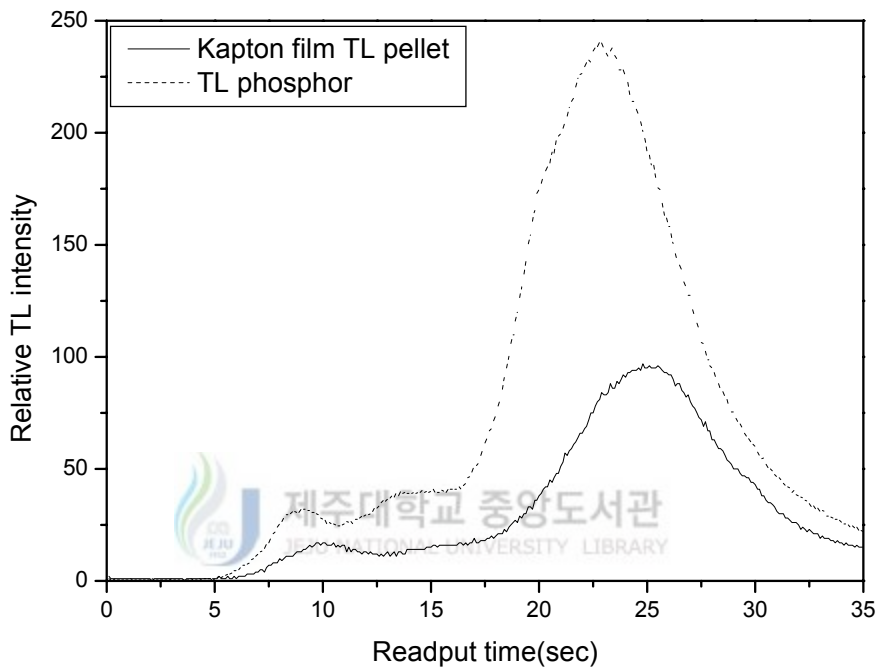


Fig. 28. The glow curves of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL phosphor and Kapton film TL pellet

2) 베타선에 대한 에너지 반응도

캡톤 필름을 이용한 베타 측정용 TL 소자의 ^{90}Sr - ^{90}Y 과 ^{204}Tl 에 대한 베타선 에너지 반응도 측정 결과를 Fig. 29에 나타내었다. 그림에서 알 수 있듯이 캡톤 필름을 이용한 얇은 두께의 TL 소자는 서로 다른 에너지를 갖는 베타선원 ^{90}Sr - ^{90}Y 과 ^{204}Tl 에 대해 거의 비슷한 감도를 나타내었다. Fig. 30에는 Teledyne 사에서 제작되어 쓰이고 있는 0.4 mm 두께의 Teflon 소자의 베타선에 대한 에너지 반응도 나타내었고, Fig. 31에는 KCT-300 소자의 베타선에 대한 에너지 반응도를 측정하여 비교하여 나타내었다. Teledyne사 소자의 경우, 상대적 에너지 반응도 $^{204}\text{Tl}/^{90}\text{Sr}$ - ^{90}Y 는 약 0.58 정도였고, KCT-300 소자의 베타선에 대한 상대적 에너지 반응도 $^{204}\text{Tl}/^{90}\text{Sr}$ - ^{90}Y 은 약 0.4 정도로 측정되었다. 캡톤 필름을 이용한 베타 측정용 TL 소자의 ^{90}Sr - ^{90}Y 에 대한 상대적 에너지 반응도 $^{204}\text{Tl}/^{90}\text{Sr}$ - ^{90}Y 의 값은 약 0.98 정도로 에너지 반응도 특성이 좋음을 알 수 있다.



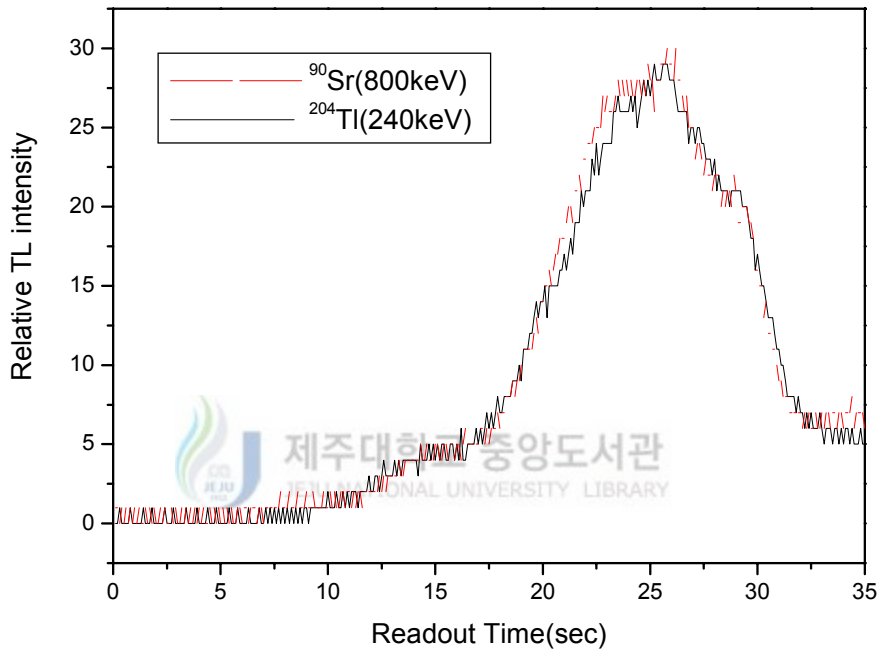


Fig. 29. The beta energy response of Kapton film TL pellets

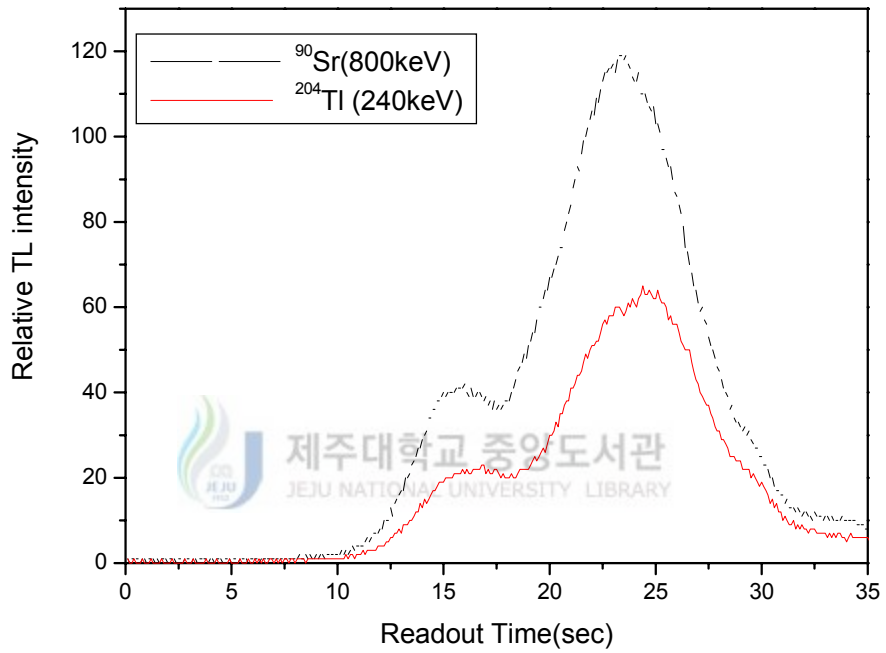


Fig. 30. The beta energy response of Teflon TL detectors

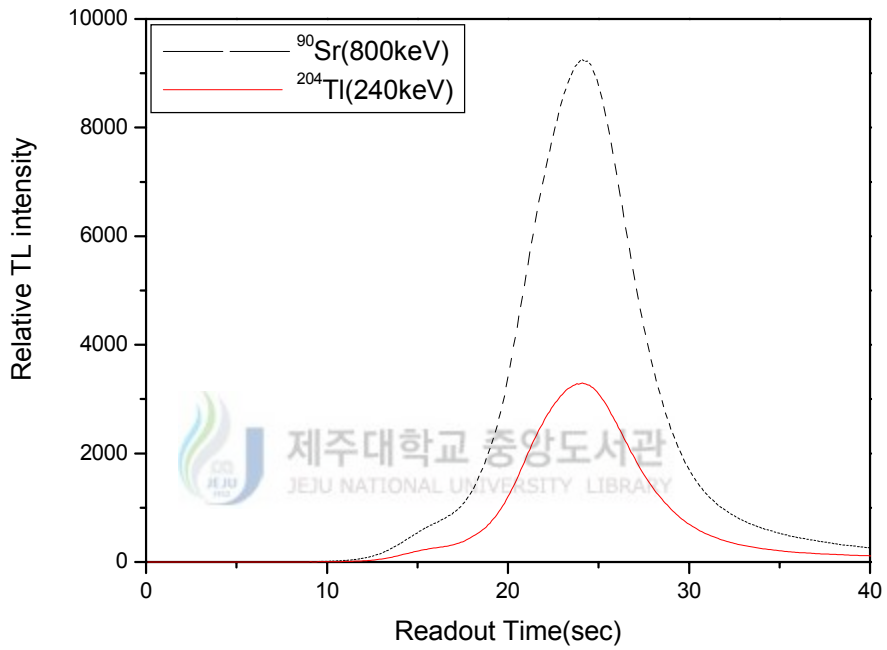


Fig. 31. The beta energy response of KCT-300

2. 열중성자 측정을 위한 KCT-306 소자

2.1 KCT-306 소자의 최적 제작 조건 결정

1) 열중성자 반응 물질 ^6Li 화합물

KCT-306 소자를 제조하기 전에 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질에 열중성자 반응 물질로 첨가하는 ^6Li 화합물을 결정하기 위해 여러 가지 Li 화합물을 첨가하면서 소자를 제작하고 발광 곡선을 측정한 결과를 Fig. 32에 나타내었다.

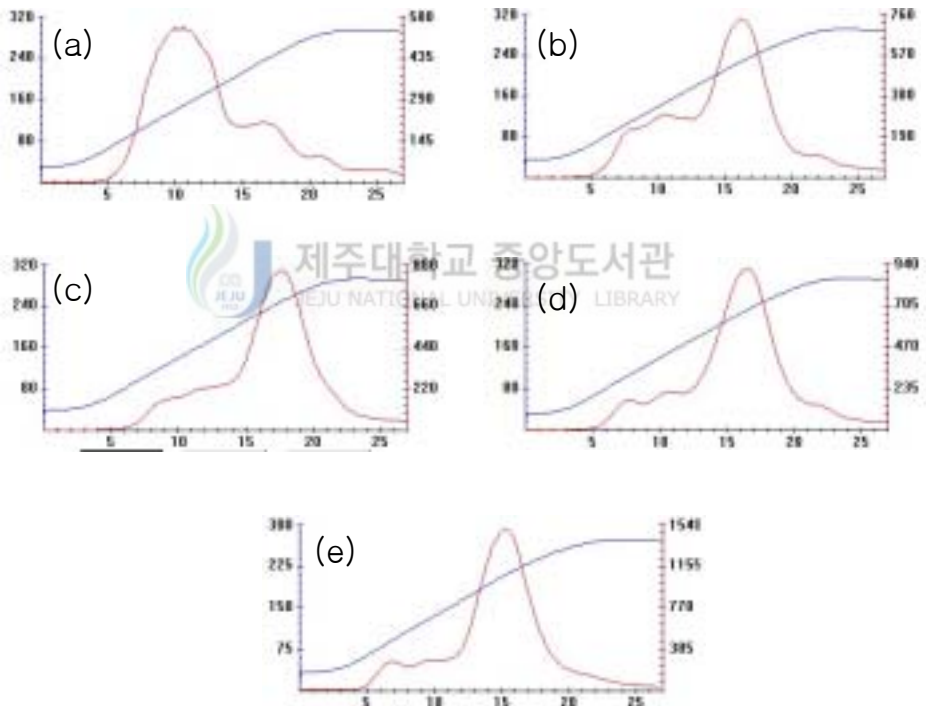


Fig. 32. The glow curves of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL pellet embedded various Li-compounds
 (a) $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{P-LiCO}_3$, (b) $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{LiF}$, (c) $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{Li}_2\text{SO}_4$,
 (d) $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{LiCO}_3$, (e) $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{Li}_3\text{PO}_4$

그림에 나타난 것처럼 Li 화합물에 인 (P)을 혼합하여 제조된 소자는 저온피크가 너무 높고 주피크가 낮아서 (Fig. 32(a)) 사용할 수 없으며, LiF나 Li₂SO₄를 혼합하여 제작한 소자도 저온 피크가 높아 감도가 크므로 부적당하였다 (Fig. 32(b), Fig. 32(c)). Li₂CO₃와 Li₃PO₄를 혼합하여 제작한 경우 (Fig. 32(d), Fig. 32(e)) 소자의 발광곡선 모양은 CaSO₄:Dy의 발광 곡선 모양과 아주 유사하며, Li₃PO₄를 혼합한 소자의 TL 감도가 Li₂CO₃를 혼합한 소자의 감도보다 높아서 Li₃PO₄를 CaSO₄:Dy TL 분말에 혼합하여 열중성자 측정용 소자를 제작하는 원시 시료로 선택하였다. 이 때 ⁶Li₃PO₄와 ⁷Li₃PO₄ 형태의 화합물을 구할 수 없어 화학반응을 통하여 원시시료를 얻었다. ⁶LiOH · H₂O와 ⁷LiOH · H₂O 용액을 각각 NH₄ · H₂PO₄ 용액과 혼합하여 침전시키면 ⁶Li₃PO₄와 ⁷Li₃PO₄가 침전된다. 생성된 ⁶Li₃PO₄와 ⁷Li₃PO₄ 화합물을 CaSO₄:Dy TL 분말과 혼합하여 소자를 제작하기 위한 최적함량을 결정하기 위한 실험 결과를 Fig. 33에 나타내었다. 실험 결과 최적의 ⁶Li₃PO₄ 화합물 함량은 27 wt%로 결정되었다. 최적 함량에 따라 CaSO₄:Dy 분말에 ⁶Li₃PO₄와 ⁷Li₃PO₄화합물을 첨가하여 소자를 제작하고 중성자/감마 혼합장에서 중성자, 감마 감도와 중성자/감마 감도비를 측정하고, 그 결과를 상용화된 중성자 측정용 소자 TLD-600/TLD-700과 비교하여 Table 7에 나타내었다.

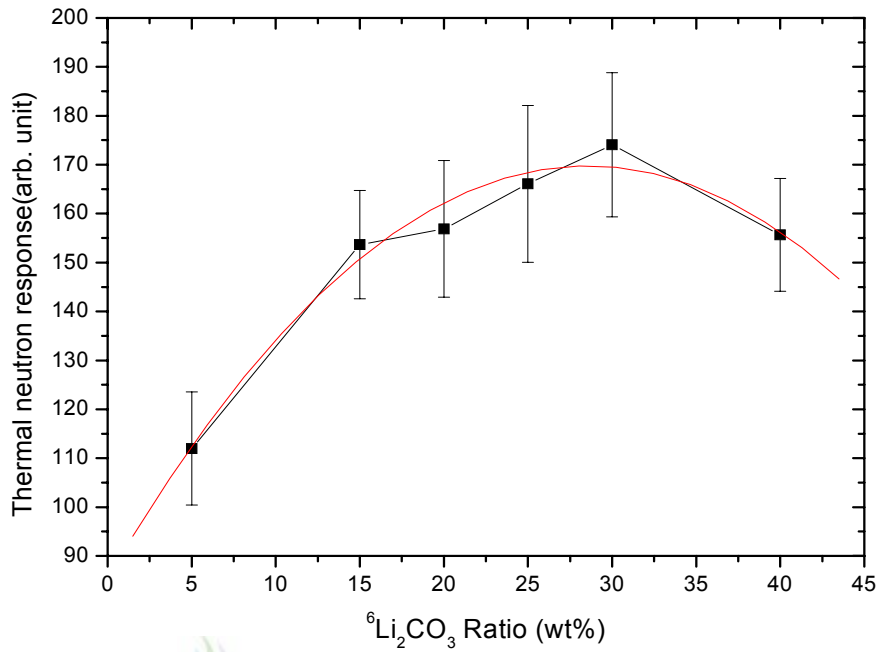


Fig. 33. Dependence of the main peak intensity of thermal neutron detector on ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ concentration

Table 7. Relative TL intensity to neutron and gamma mixed field

	TLD-700	(TLD600)- (TLD-700)	CaSO ₄ :Dy + ⁷ Li ₃ PO ₄	(CaSO ₄ :Dy + ⁶ Li ₃ PO ₄) -(CaSO ₄ :Dy + ⁷ Li ₃ PO ₄)
Neutron		1		12.7
Gamma	1		12.5	
N/γ		1		1.05

Table 7에서 알 수 있듯이 $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + {}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 소자는 중성자 및 감마 감도는 TLD-600/TLD-700에 대해 월등히 높지만 중성자 측정용 소자에서 중요한 인자인 중성자/감마 감도비에서 우수성이 없고 소자의 기계적 강도가 다소 약하였다. 따라서 다음 방법으로 열중성자 반응 물질로는 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 와 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 를 첨가하여 일부의 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물이 ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 화합물을 형성하는 방법으로 소자를 제작하였다. 이 방법으로 소자를 제조할 경우 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말과 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물의 혼합물에 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 를 첨가하여 일부의 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 를 ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 로 만든다. 최적 함량 조건을 결정하기 위해 함량을 변화시키면서 소자를 제조하고 성능을 비교한 결과에 의하면 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 가 과량으로 첨가되어서 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 화합물을 전부 ${}^6\text{Li}_3\text{PO}_4$ 로 변환시키고 일부는 P 화합물을 형성함으로써 KCT-300 소자의 경우처럼 접착물질로 작용하여 소자의 감도 및 기계적 강도가 최적이 됨을 알 수 있다.

2) ${}^6\text{Li}$ 화합물 및 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말의 최적 함량

KCT-306 소자를 제조하는데 있어 접착물질의 함량을 고정시키고 ${}^6\text{Li}$ 화합물 및 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말의 함량을 변화시키면서 소자를 제조하고 중성자 감마 감도 및 중성자/감마 감도비를 측정한 결과를 Fig. 34에 나타내었다. 그림에서 가로축은 ${}^6\text{Li}$ 화합물 및 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말의 함량을 동시에 표시하였으며 그 합은 접착물질인 P 화합물의 함량 10 wt%를 제외한 90%로 일정하다. Fig. 34에서 보면 접착물질의 함량이 고정되었을 때, 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 감

도 및 중성자/감마 감도비를 고려할 때 CaSO₄:Dy TL 분말의 최적 함량은 20 - 40 wt%이고, 이 때 대응되는 ⁶Li 화합물의 최적 함량은 50 - 70 wt% 로 결정하였다.

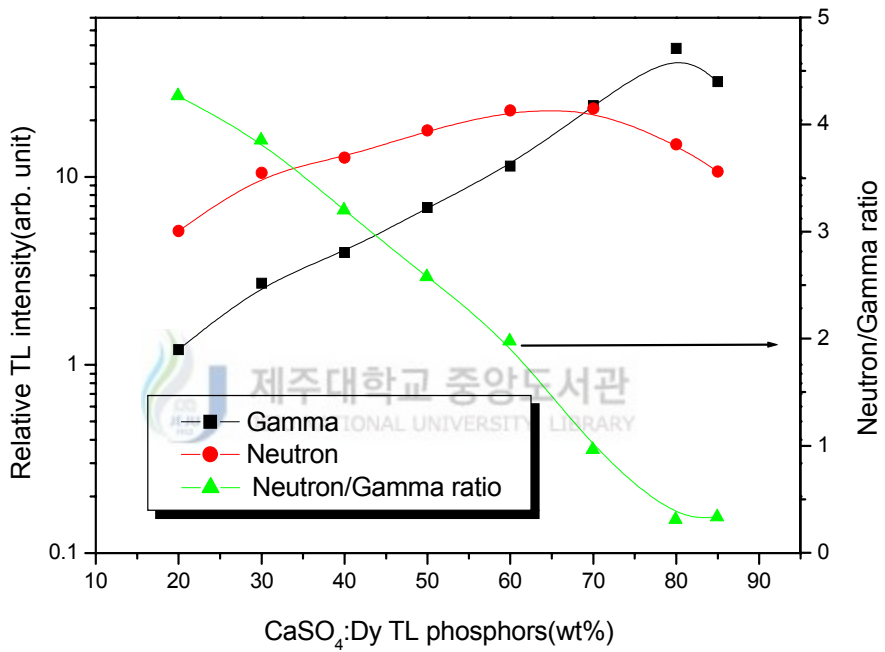


Fig. 34. Dependence of the main peak intensity of KCT-306 on ⁶Li₂CO₃-compound and CaSO₄:Dy TL phosphor concentration

3) 접착물질 P 화합물의 최적 함량

CaSO₄:Dy TL 분말 및 NH₄H₂PO₄ 화합물의 함량을 고정시키고 ⁶Li₂CO₃ 화합물의 함량을 변화시킴으로써 접착물질로 생성되는 P 화합물의 함량을 변화시켜 소자를 제조하고 중성자, 감마 감도와 중성자/감마 감도비를 측정한 결과를 Fig. 35에 나타내었다. 그림에서 보면 P 화합물의 함량이 30 wt% 까지 증가함에 따라 감마 감도 및 중성자 감도는 증가하다가 30 wt% 이후부터 감소한다. P 화합물의 함량이 20 wt% 이상이 되면 감마 감도율의 증가율이 더 커지기 때문에 중성자/감마 감도비는 감소하는 형태를 보인다.

KCT-306소자는 NH₄H₂PO₄ 화합물이 ⁶Li₂CO₃와 화학반응을 일으켜 ⁶Li₃PO₄를 생성한 후 남은 P 화합물만이 KCT-300의 경우처럼 접착제 역할을 하기 때문에 P 함량이 낮을 때는 TL 소자의 기계적 강도가 약하게 된다. 따라서 소자의 기계적 강도와 중성자, 감마 감도 및 중성자/감마 감도비를 고려한 최적의 P 화합물 함량은 20 wt%로 결정하였다.



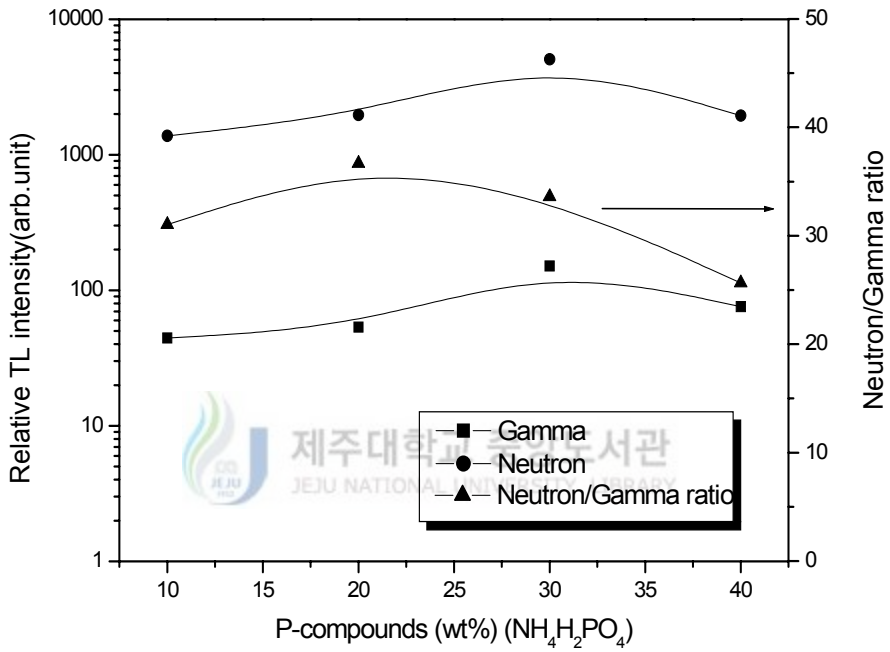


Fig. 35. Dependence of the main peak intensity of KCT-306 on P-compounds concentration

2.2 CaSO₄:Dy TL 분말의 낱알크기에 따른 중성자 반응도의 변화

서로 다른 낱알크기의 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. 36에 나타내었다. 그림에서 보면 CaSO₄:Dy TL 분말의 낱알크기가 작아짐에 따라 중성자 감도와 감마 감도는 감소하지만 실제 중성자 선량 평가에 적용되는 중성자/감마 감도비는 증가함을 알 수 있었다. Table 8은 CaSO₄:Dy TL 분말의 낱알크기에 따라 제조한 KCT-306 소자와 현재 상용화되어 널리 쓰이고 있는 TLD-600과 성능을 비교한 결과이다. 표에 나타낸 것처럼 KCT-306 소자의 ²⁵²Cf 선원에 대한 중성자 감도는 낱알크기에 상관없이 TLD-600 소자의 감도 이상을 보이며 중성자/감마 감도비 역시 TLD-600 이상의 값을 보인다.



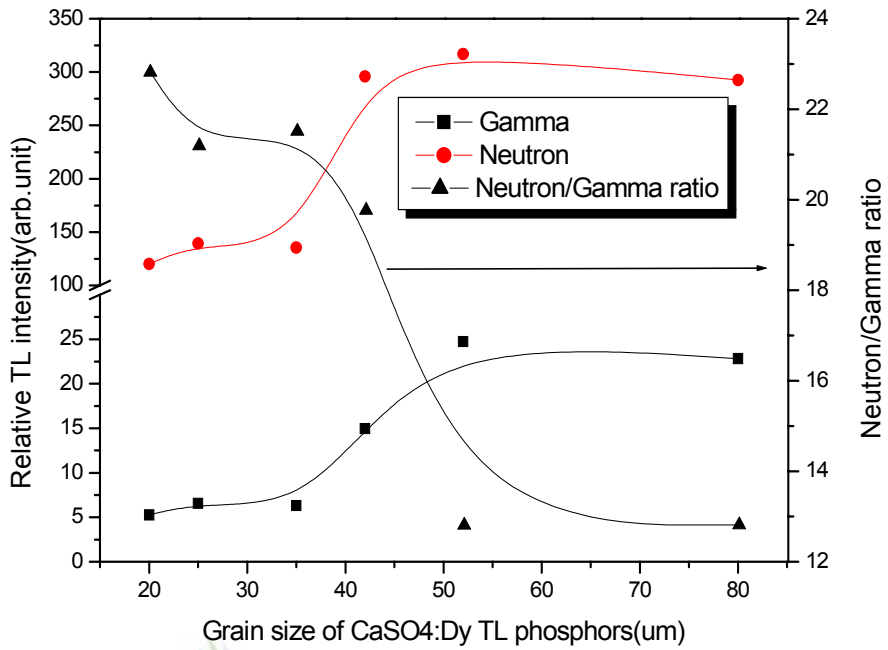


Fig. 36. Dependence of the main peak intensity of KCT-306 on grain size of CaSO₄:Dy TL phosphor

Table 8. Relative TL intensity of KCT-306 and TLD-600 with grain size of CaSO₄:Dy TL phosphors

	TLD -600	KCT-306					
		63-100 μm	45-63 μm	40-45 μm	30-40 μm	20-30 μm	under 20 μm
Neutron	1	2.7	2.93	2.67	1.22	1.25	1.08
Gamma	1	4.15	2.36	2.72	1.15	1.19	0.96
Neutron/ Gamma	1	1.12	1.11	1.71	1.86	1.83	1.97

2.3 KCT-306 소자의 중성자 반응도 비교

제조한 KCT-306/KCT-300과 Harshaw에서 제작되어 상용화된 TLD-600/TLD-700과 TLD-600H/TLD700H 중성자와 감마 감도 및 중성자/감마 감도비를 측정한 결과를 Table 9에 나타내었다. Table 9에서 알 수 있듯이 개발된 중성자 측정용 소자 KCT-306/KCT-300 소자는 중성자/감마 감도비가 TLD-600/TLD-700이나 TLD-600H /TLD700H 보다 높은 값을 보였다. CaSO₄:Dy TL 물질은 중성자 반응 단면적이 극히 작기 때문에 감마 감도를 구분하기 위한 소자로 TLD-700이나 TLD-700H 와 같은 ⁷Li 화합물을 첨가한 소자를 제조하지 않고 KCT-300 소자를 중성자 감마 혼합장에서 감마 선량 측정용 소자로 이용할 수 있었다.

Table 9. Relative neutron response of KCT-306 and Harshaw neutron TLD (TLD-600 and TLD-600H)

	N + γ	γ	N/ γ ratio
KCT-306	1.3	0.18	37.24
KCT-300	1.22	6.34	
TLD-600	1	0.15	27.32
TLD-700	0.04	0.17	
TLD-600H	11.32	6.17	8.1
TLD-700H	1.14	5.66	

V. 결론 및 향후 연구방향

1. 결 론

본 연구에서는 개인 및 환경 선량계에 적용하기 위한 TL 물질로서 고감도의 감마선, 베타선 및 중성자 측정용 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 소자를 개발하였다.

첫째, 고감도의 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말을 이용하여 소량의 P 화합물을 접착물질로 첨가한 KCT-300 소자를 개발하였다. 고감도의 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 특성을 최대한 유지하기 위해 Teflon이 아닌 다른 접착물질을 사용한 소자 개발에 대한 연구가 꾸준히 수행되어 왔지만, 실제로 소자를 제조하고 선량계 물질로 사용할 수 있는 결과는 없었다. 따라서 소량의 P 화합물을 접착물질로 이용하여 본 연구에서 개발한 KCT-300 소자는 방사선 측정 및 선량평가 기술에 있어서 Teflon이 아닌 다른 물질을 접착물질로 이용한 고감도의 TL 소자 개발에 최초로 성공했다는 데 큰 의의를 둘 수 있다. KCT-300 소자의 개발로 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 물질에 Teflon을 접착물질로 첨가하여 소자를 제작하였을 때 제조상의 문제점 및 TL 감도가 저하되는 단점을 해결할 수 있었다.

KCT-300 소자의 개발 단계에서 접착물질인 P 화합물의 함량을 증가시킬 때 소자의 표면이 변형되는 문제점이 생기기도 하였다. 그러나 소자의 제조 과정 중 혼합 분말을 소자의 열처리 온도인 $600\text{ }^\circ\text{C}$ 보다 낮은 온도에서 중간 열처리를 해줌으로써 소자의 모양이 변형되는 문제점을 해결하면서 기계적 강도도 향상된 고감도의 KCT-300 소자를 제조할 수 있었다. 개발한 KCT-300 소자의 선량계적 특성을 정리해보면 TL 감도는 현재 상용화된 Teflon을 접착물질로 한

CaSO₄:Dy TL 소자보다 약 6 배 정도 탁월한 것으로 나타났으며 선량 선형성 역시 선형성을 보이는 구간이 기존의 Teflon 소자가 10⁴ Gy부터 10 Gy였던 것에 비해 10⁵ Gy 까지로서 저선량의 환경 선량 측정에 있어 특히 유리함을 알 수 있었다. 에너지 반응도는 CaSO₄:Dy TL 물질과 비슷한 양상을 보여 100 keV 이하의 저에너지 영역에서 상대적 에너지 반응도 (RER)는 최대값 10으로 측정되었다. 이는 유효 원자 번호가 높은 CaSO₄:Dy TL 물질의 고유한 특성으로서 필터의 설계로 충분히 보상 할 수 있으며 오히려 에너지를 구분해야 하는 경우에는 장점으로 작용할 수 있다. KCT-300 소자의 감쇠 특성은 8 %/2month 로서 문제가 없었으며 선량 측정 하한치는 0.6 μGy로 매우 낮아 선형성이 확장된 점과 더불어 저선량 측정에 유리하다는 것을 재차 확인할 수 있었다. 반복 사용성 역시 소자를 10회 이상 사용하여도 감도 변화가 없는 것으로 측정되어 그 특성이 우수함을 알 수 있었다. 이상의 선량계적 특성은 국제 기준인 IEC 표준에 따라 평가한 값으로 KCT-300 소자의 선량계 물질로서의 우수성을 입증할 수 있었다.

둘째, 고감도의 CaSO₄:Dy TL 분말을 이용하여 베타선에 대해 에너지 반응도를 향상시키기 위해 켈톤 필름을 이용하여 얇은 두께의 소자를 개발하였다. 감마선에 비해 상대적으로 에너지가 낮은 베타선을 보다 정확히 측정하기 위해서는 소자의 두께가 얇을수록 유리하다. 본 연구에서 제조한 켈톤 필름을 이용한 얇은 소자의 베타선에 대한 반응도(²⁰⁴Tl/⁹⁰Sr-⁹⁰Y)는 0.98로 측정되었고 현재 사용되고 있는 Teflon을 접착물질로 한 0.2 mm 두께 얇은 소자의 반응도가 0.85이다. 이 두 소자를 비교해 볼 때 켈톤 필름 TL 소자는 상대적 감도는 낮지만 베타선에 대한 에너지 반응도 특성이 더욱 우수하다.

셋째, KCT-300 소자를 기반으로 하여 P 화합물을 접착물질로 하고 열중성자 반응 물질로서 ⁶Li₃PO₄ 화합물을 첨가한 중성자 측정용 KCT-306 소자를 개발하였다. 열중성자 반응 물질을 CaSO₄:Dy TL 분말에 첨가하여 소자를 제작하는 방

법들 중 Teflon을 접착물질로서 이용하는 방법은 Teflon의 상대적 함량이 높아 TL 소자의 감도가 낮은 단점이 있다. 그러나 본 연구에서는 첨가된 접착물질의 상대적 함량이 대폭 감소된 KCT-300 소자를 기반으로 열중성자 반응 물질을 첨가하는 방법을 적용함으로써 고감도 특성을 보이는 중성자 측정용 소자를 개발할 수 있었다. KCT-306 소자의 최적 제작 조건은, 접착물질인 P 화합물의 함량은 20 wt%, 열중성자 반응 물질인 Li_3PO_4 의 모물질인 Li_2CO_3 는 70~50 wt%, $CaSO_4:Dy$ TL 분말의 함량은 20~40 wt%로 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 높아 중성자 측정용 소자로 활용하는데 있어 충분한 가능성을 보여주었다.

이상의 결과로서, 본 연구에서 개발된 KCT-300 및 KCT-306 소자가 개인 및 환경 선량 평가에 우수한 특성으로 응용될 수 있음을 확인하였다. 또한 측정 용도 및 조건에 맞는 TL 물질을 제작할 수 있는 선진 기술을 확보함으로써 보다 정확하고 체계적인 선량 평가 기술 확립에 크게 기여할 것으로 기대된다.

2. 향후 연구

본 연구에서 개발된 KCT-300 소자는 선량계 물질로서 우수한 선량계적 특성을 보이는 것으로 평가되었으나, 현재 시점에서 소자의 발광 곡선 분석 및 3차원 스펙트럼 등의 물성에 대한 분석은 이루어지지 않은 상태이다. 따라서 향후 연구 과정에서 KCT-300 소자의 물성 분석에 대한 체계적인 연구가 요구된다.

또 선량계적 특성 면에서 볼 때 KCT-300 소자의 선형성 구간이 저선량 영역

으로는 성능이 향상되었으나 고선량 영역에서의 초선형성을 보이는 현상은 여전히 남아있다. 초선형성 현상을 해결하여 고선량 영역으로 선형성이 확장된다면 고선량을 이용하는 작업환경에서의 선량 측정 및 선량 교정 등에도 개발된 소자가 유용하게 쓰일 수 있을 것으로 보인다. 또한 베타선 측정용 소자에 대해 본 논문에서는 ^{90}Sr - ^{90}Y 과 ^{204}Tl 에 대해서만 에너지 반응도를 평가하였으나 국제 규격에 부합하도록 ^{147}Pm 에 대한 에너지 반응도 및 방향성에 대한 특성 평가 실험이 요구된다.

중성자 측정용 소자의 제조에 있어 TL 분말의 낱알 크기에 따른 중성자 반응도에 대한 실험을 본 연구에서도 수행하였으나 보다 체계적인 연구가 필요한 것으로 판단된다. 현재까지 보고된 논문들에 의하면 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL 분말의 낱알 크기가 작을수록 감마 감도는 저하되고 중성자 감도는 높아지는 것으로 보고되어 있다. 이런 결과에 따르면 중성자 측정용 소자 제조시 낱알 크기가 작은 TL 분말을 이용하면 중성자/감마 감도비가 크게 높아질 것으로 기대되었으나, 본 연구에서 여러 차례의 실험 결과 중성자 감도와 감마 감도가 동시에 감소되는 것으로 측정되었다. 따라서 낱알 크기의 영향에 대한 체계적인 연구가 요구된다.

또한 현재 국내에는 정량화된 열중성자 장이 확립되어 있지 않기 때문에 KCT-306 소자에 대한 열중성자 플루언스에 대한 선형성 및 중성자 선량 측정 하한치 등 선량계적 특성에 대한 연구가 이루어지지 못하고 있는 실정이다. 따라서 해외 기관과의 협력을 통한 KCT-306 소자의 선량계적 특성 실험이 반드시 수행되어야 한다.

참고문헌

- Beach, J. L. and C. Y. Huang, 1976, Mixed Field Dosimetry with $\text{CaSO}_4(\text{Tm})\text{Li}$. *Health physics* Pergamon Press 31, 452-455
- Bjarnfard, B. 1965, Use of Mn and Sm-activated calcium sulphate in thermo-luminescence dosimetry. In: Attix FH, editor. Proceeding of 1st International Conference on Luminescence Dosimetry, USA
- Burgkhardt, B., R. Herrera and E. Piesch, 1976, Fading Characteristics of Different Thermoluminescent Dosimeters, *Instrument and Methods*, 137, 41-47
- Budzanowski, M., P. Bilski, P. Olko, T. Niewiadomski, B. Burgkhardt and E. Piesch, 1993, New TL detectors for personal neutron dosimetry, *Radiation Protection Dosimetry*, 47(1-4), 419-423
- Chen, R. and Y. Kirsh, 1981, Analysis of Thermally Stimulated Processes, Pergamon Press, New York
- Campos, L. L., 1993, Graphite mixed $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL dosimeters for beta radiation dosimetry, *Radiation Protection Dosimetry*, 48(2), 205-207
- Da Rora, L. A. R., L.V.F. Caldas and P. G. Cunha, 1986, Thermoluminescence characteristics of ultra-thin $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ for beta radiation detection, *Radiation*

Protection Dosimetry, 41(4), 329-331

Daros, K. A. C., L. L. Campos and R. B. Medeiros, 2001, TL response study of the CaSO₄:Dy pellets with graphite for dosimetry in beta radiation and low-energy photons fields, *Applied Radiation and Isotopes*, 54, 957-960

Driscoll, C. M. H., T. M. Francis and D. J. Richards, 1984, The response of thermoluminescent materials to beta radiation, *Radiation Protection Dosimetry*, 9(4), 295-298

Furetta, C. and J. W. N. Tuyn, 1986, Some thermoluminescent properties of a new preparation of CaSO₄:Dy Phosphor, *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 37(9), 935-939



Furetta, C., J. W. N. Tuyn, F. Louis, J. Azorin-nieto, A. Gutierrez and C. M. Driscoll, 1988, A method for determining simultaneously the dose and the elapsed time since irradiation using TLDs, *Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 39, 59-69

Furetta, C. and P. S. Weng, 1998, Operational Thermoluminescence Dosimetry, World Scientific Publishing Co., Singapore, 252 pp

Guelev, M. G., T. Mesehev, B. Burkhhardt and E. Piesch, 1994, A two-element CaSO₄:Dy dosimeter for environmental monitoring. *Radiation Protection Dosimetry*, 51, 35-40

ICRP, 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, 1991, Pergamon Press, Oxford, New York,

ICRU Report No 66, 2001, Determination of operational dose equivalent quantities for neutrons, *Journal of the ICRU*, 1(3) pp. 1-40

IGA, K., T. Yamashita, M. Takenaga, Y. Yasuno, H. Onishi and M. Ikedo, 1977, Composite TLD based on $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ for γ -rays, X-rays, β -rays and thermal neutron. *Health physics* Pergamon Press, 33, 605-610

IEC(International Electrotechnical Commission)1066, International Standard, 1991, Thermoluminescence dosimetry systems for personal and environmental monitoring, pp. 9-49

Jack Higginbotham. 1996. Applications of New Technology : External Dosimetry. Health Physics Society 1996 Summer School, Medical Physics Publishing Madison, Wisconsin

Lakshmanan, A. R. and R. C. Bhatt, 1977, Thermal neutron dosimetry with cadmium covered $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$. *Journal of Applied Radiation and Isotopes* 28, 665-667

Lakshmanan, A. R., Bhuwan Chandra, A. S. Pradhan, R. K. Kher and R. C. Bhatt, 1979, The development of thin $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ teflon TL dosimeters for beta dosimetry in personnel monitoring, *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 31, 107-110

Lakshmanan, A. R. and R. C. Bhatt, 1982, Low dose measurements with CaSO₄:Dy Teflon dosimeters, *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 33, 707-710

Lakshmanan, A. R. and R. C. Bhatt, 1989, Simultaneous of dose and elapsed time after radiation exposure using CaSO₄:Dy, Na, *Radiation Protection Dosimeter* 27(58), 65-72

Lakshmanan, A. R., Applications of CaSO₄:Dy/Tm TLD phosphors in radiation dosimetry, Health and Safety Division, Indira Gandhi Centre for Atomic Research, 180 pp

Lakshmanan, A. R., 1999, Photoluminescence and thermostimulated luminescence processes in rare-earth-doped CaSO₄ phosphors, Health and Safety Division, Indira Gandhi Centre for Atomic Research, 187 pp



Lakshmanan, A. R. and A. Tomita, 2002, Further studies on the new high sensitive CaSO₄:Dy thermostimulated luminescence phosphor, *Radiation Protection Dosimetry*, 100(1-4), 235-238

Mahesh, K., P. S. Weng and C. Furetta, 1989, Thermoluminescence in solids and its applications, Nuclear Technology Publishing, Ashford, Kent TN 254 NW, England, 306 pp

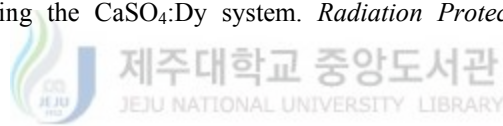
Mayhugh, M. R., S. Watanabe and R. Muccillo, 1971, Proceeding of Third International Conference, Luminescence Dosimetry, Riso, Denmark, 3, 1040 pp

McKeever, S. W. S., 1985, Thermoluminescence of solids, Cambridge university press, pp. 1-19

McKeever, S. W. S., M. Moscovitch, P. D. Townsend, 1995, Thermoluminescence dosimetry materials : properties and uses, Nuclear technology Publishing, 204 pp

Morata, S. P., A. M. P. Gordon, E. N. D. Santos, L. Gomes, L. L. Campos, L. Prado, M. M. Vieira and V. N. Bapat, 1982, Development of a solid state dosimetry based on thermoluminescent CaSO₄ crystals. *Nuclear Instrument and Methods*, 200, 449-455

Morgan, M. D., M. A. Lacombe and T. G. Stoebe, 1984, Development of a thermal neutron dosimeter utilizing the CaSO₄:Dy system. *Radiation Protection Dosimetry*, 6(1-4), 321-324



Mutsuo Takenaga, 1977, Thermoluminescent response to thermal neutrons of mixture of CaSO₄:Tm and non-luminous ⁶LiF. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 14(4), 292-299

Nikodemova, D., A. Hrabovcova, M. Vicanova and S. Kaclik, 1992, Personal albedo neutron dosemeter using highly sensitive LiF TL chips, *Radiation Protection Dosimetry*, 44(1-4), 291-292

Olko, P., M. Budzanowski, P. Bilski, B. Burkhardt and E. Piesch, 1994, ⁶LiF sandwich type detectors for low dose individual monitoring in mixed neutron-photon fields, *Radiation*

Protection Dosimetry, 54(3), 349-352

Piech, E., 1982, Albedo neutron dosimetry, *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 33, 1061-1076

Poul christensen, Lars botter-Jensen and Benny Majborn, 1982, Thermoluminescence dosimetry Applied to Radiation Protection, *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 33, 1035-1050.

Prokic, M., 1991, Thermoluminescent characteristics of calcium sulphate solid detectors. *Radiation Protection Dosimetry*, 37, 271-274

Prokic, M and L. Botter-Jensen, 1993, Comparison of main thermoluminescent properties of some TL dosimeters, *Radiation Protection Dosimetry*, 47(1) 195-199

Reuvenchen and S. W. S. McKeever, 1997, Theory of Thermoluminescence and Related Phenomena, World Scientific, pp 1-311

Shastry, S. S., S. S. Shinde and R. C. Bhatt, 1980, Thermoluminescence response of CaSO₄:Dy sintered pellets. *Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 31 244-245

Shastry, S. S., S. S. Shinde and R. C. Bhatt, 1980, Thermoluminescence Response of CaSO₄:Dy Teflon TLD discs, *Health physics*, 43(3) 391-397

Yamashita, T., N. Nacla, H. Onishi and S. Kitamura, 1971, Calcium sulphate activated by thulium or dysprosium for thermoluminescence dosimetry. *Health Phys.* **21** 295-300

Yang J. S., D. Y. Kim, J. L. Kim, S. Y. Chang, Y. M. Nam and J. W. Park, 2002, Thermoluminescence characteristics of teflon embedded $\text{CaSO}_4::\text{Dy}$ TLD, *Radiation Protection Dosimetry*, 100(1-4) 337-340

Yang J. S., D. Y. Kim, J. L. Kim, S. Y. Chang and Y. M. Nam, 2002, Development of phosphorus-compound $\text{CaSO}_4::\text{Dy}$ (KCT-300) TL pellet, *Journal of the Korean nuclear society* **34** 142-145

Yang J., J. L. Kim, S., D. Y. Kim and S. Y. Chang, 2004, Development of a TL detector for neutron measurement by $\text{CaSO}_4::\text{Dy}$ phosphors, *Radiation Protection Dosimetry*, 110(1-4) 301-304

김창균, 1984, 방사선 계측학, 신광 출판사, 서울, pp. 38-64, pp. 116-129,

양정선, 2001, $\text{CaSO}_4::\text{Dy}$ TL 물질의 제조 및 특성에 관한 연구, 석사학위 논문

양정선 · 김두영 · 이정일 · 남영미 · 김장렬 · 장시영, 2001, $\text{CaSO}_4::\text{Dy}$ TL 분말의 제조 및 TL 특성, 한국 원자력 학회 춘계 학술대회 논문집

양정선, 김두영, 김장렬, 이정일, 남영미, 장시영, 2001, Fabrication and TL

characteristics of CaSO₄:Dy TL powder., 한국원자력학회 춘계학술대회 논문집

최태진, 김도성, 도시홍, 라병욱, 강영호, 1986, CaSO₄:Dy 열발광선량계의 제작과 물리적 특성, 새물리 **26**(6) 506-512

한국원자력 연구소, 1999, 방사선방호 실용량 평가, KAERI/PR-2019/99, 47-74

한국원자력연구소, 2002, 개인 방사선량 측정용 TLD 시스템 개발, KAERI/RR-2281/2002, 1-35



특허 현황

1. 인 화합물이 혼합된 CaSO_4 계열 TL 소자(KCT-300) 및 그 제조 방법
(CaSO_4 based thermoluminescent detector bonded with P-compound(KCT-300) and a method for fabricating thereof)
 - 미국 특허 등록 : 등록번호 6,586,752
 - 일본 특허 출원 : 출원번호 2001-201067
 - 인도 특허 출원 : 출원번호 1254/Del/2001
 - 중국 특허 출원 : 출원번호 01143421.X
2. 결정성이 향상된 CaSO_4 계열 TL 분말의 제조 방법
 - 국내 특허 출원 : 출원번호 10-2001-0078087
3. 중성자 측정용 CaSO_4 계열 TL 분말 소자 (KCT-306)
 - 국내 특허 출원 : 출원번호 2004-63805
4. 사고 발생시 사고시간 측정용 CaSO_4 TL 소자의 제조 방법
 - 국내 특허 출원 : 출원번호 2002-5440



감사의 글

95년 학부에 입학하고 해수를 세어보니 강산도 변하다는 10년의 세월이 흘렀습니다. 학위 논문의 끝장을 펴놓고 보니 과연 내가 자질이 있는가 하는 두려운 맘이 앞섭니다. 모자란 제자에 대해 끝없는 열정으로 석 박사 과정동안 배움의 길로 이끌어주신 지도교수님 박재우 교수님께 맘 속으로부터 감사를 드립니다. 그리고 바쁜 와중에서도 학과 채움 이라는 수석어에 걸맞을 수 있어야 한다시며 질책과 조언을 아끼지 않으시고 끝까지 세심히 심사해 주신 이현주 교수님과 이운진 교수님께 기대에 부응하지 못한것 같아 죄스러움과 함께 깊은 감사를 드립니다. 천원기 교수님과 김신 교수님 정범진 교수님께도 그간의 조언과 가르침에 대해 감사드립니다.

본 연구가 실제적으로 수행될 수 있도록 해주시고 석 . 박사 기간동안 항상 가까이서 지도해주신 한국원자력연구소 방사선관리실 장시영 실장님과 김장렬 박사님께 맘속으로부터 감사드립니다. 지금은 한국에 안 계시지만 같이 만 5년 이상을 같이 실험하면서 너무나 많은 것을 가르쳐주시고 지도해주신 김두영 교수님께 더없는 깊은 감사를 드립니다. 이 분들이 계시기에 이 논문이 나올 수 있었습니다. 같은 방에서 지내면서 많은 도움을 주시고 끝까지 신경 써주시는 이정일 박사님과 연미 언니에게 감사 드리며 그동안 많은 도움을 주신 김봉환 박사님, 임길성 선생님께도 감사 드립니다. 항상 보호자처럼 자상히 챙겨주신 김종수 선생님과 남영미 박사님께 감사 드리며 잊지 않겠습니다. 그 외에도 일일이 나열할 수 없지만 방사선 관리실에 계신 모든 분들께도 감사의 마음을 전합니다.

그리고 학교를 떠나 생활하는 나를 대신해서 여러 가지로 신경 써서 챙겨주신 김지훈 조교선생님과 동기 구원호 조교선생님께도 그간 고맙단 말 제대로 못했는데 이 면을 통해 고마운 맘을 전합니다. 같은 실험실에 있는 착하고 푹푹망망한 후배 찬희와 영애도 그동안 고맙단 말과 함께 항상 열심히 사는 모습으로 좋은 결실 맺기를 바랍니다. 같은 실험실은 아니지만 학교에서 항상 웃는 모습으로 기꺼이 도움을 주었던 후배 두혁이 상혁이 그리고 영주언니 경진이

오빠 보안시오빠 존호오빠 모두 고맙고 좋은 결과 있길 바랍니다.

제주대학교에서 연구소로 나와 같이 부대끼며 지냈던 재광시오빠, 상범오빠, 동기 계홍이, 예쁜 후배 현쫐, 광욱이, 막내 인혁이와 옥이에게도 그동안 그대들이 있어 생활이 즐거웠노란 말과 함께 항상 행복하고 좋은 일만 생기길 기원합니다.

처음 하는 대전 생활에 적응할 수 있도록 도와주신 원우 선배님 내외부RP 이제야 늦은 감사를 드리며 원일 선배님 그리고 정훈 선배님 그 외 일일이 열거하지 못할 많은 선배님들께도 그간 못한 고맙습니다란 말을 이제야 해봅니다. 그리고 같은 실험을 하면서 인연을 맺게 되어 여러 가지로 도움을 주신 김현기 박사님과 영민 언니, 권정완씨, 그리고 항상 웃는 얼굴인 박성호 박사님께도 깊은 감사의 마음을 전합니다. 고등학교 때 만나 지금까지 옆에서 봐주고 챙겨주면서 같이 기뻐하고 같이 슬퍼하는 내 인생의 알토란 같은 친구 정숙이에게 너무나 큰 고마움과 함께 평생지기 벼로 남자고 약속하고 싶습니다.

그리고 여든이 넘으신 연세에도 멀리 떠나 있는 손녀딸이 안스러우신지 항상 볼때마다 보듬어 주시는 사랑하는 두 분 할머니 모두 오래 오래 건강하세요. 우리집 큰딸로 동생들 책임에 여념이 없는 우리 언니와 형부 그리고 쫐카 수민이에게도 고마움과 함께 사랑을 전하며 지금까지 행복가정이 계속되기를 기원합니다. 그리고 항상 있다는것 자체만으로도 든든함이 되어주는 멋진 오빠와 율계언니께도 항상 좋은일만 있길 기원하고 누나로서 항상 어리개만 느껴지지만 반듯하고 든직한 막내 시호한테도 항상 열심히 살라고 말하고 싶습니다. 그 외에 항상 복적대는 대가족이지만 서로 챙겨주는 모습이 너무나 보기 좋은 친척분들과 사촌 형제들에게도 이렇게나마 감사를 드립니다. 그리고 사촌 동생이자 후배로서 학문에 뜻이 깊었지만 지금은 저세상에서 지켜보고 있을 너무나 착했던 재호앞에서 누나가 재호 뉘까지 열심히 하겠노라고 조용히 다짐합니다.

마지막으로 당신들의 삶은 아무런 댓가없이 뒤로 밀어 놓으시고 자식들 뒷바라지에 여념이 없는 사랑하는 나의 부모님. 세상을 통틀어 가장 아름다운 단어인 부모님께 이렇게 글로나마 사랑합니다란 말 한마디 해보면서 이 부족한 논문을 바칩니다.....

살아가면서 항상 난 인복(人福)이 많아 행복한 사람이라 생각하며 살아왔습니다. 부족한 인간으로 살면서 좋은 사람들을 많이 만나 이렇게 부족하나마 하나의 결실을 맺었습니다. 내 주변의 모든 분들께 다시 한번 감사드립니다.

