

알파 및 베타선 동시측정용 ZnS(Ag)/플라스틱 이중섬광체 검출센서 개발

서범경* · 우주희¹ · 김계홍 · 이근우 · 이동규 · 정종현

한국원자력연구원, ¹한국원자력안전기술원
(2007. 12. 3. 접수. 2008. 3. 27. 승인)

Development of ZnS(Ag)/plastic dual scintillator sheet for simultaneous alpha- and beta-ray counting

Bum-Kyoung Seo*, Zu-Hee Woo¹, Gye-Hong Kim, Kune-Woo Lee,
Dong-Gyu Lee and Chong-Hun Jung

Korea Atomic Energy Research Institute, PO Box 105, Yuseong, Daejeon, 305-353, Korea

¹Korea Institute of Nuclear Safety, PO Box 114, Yuseong, Daejeon, 305-600, Korea

(Received December 3, 2007; Accepted March 27, 2008)

요 약: 표면오염도 측정용 검출소재로 주로 이용되고 있는 알파와 베타선의 동시 측정용 이중섬광체 검출소재를 개발하였다. 본 연구에서는 기존의 열용융 공정이 아닌, 고분자 소재를 용매로 녹여서 검출소재를 제조하는 용매법을 이용함으로써 제조공정을 단순화하였다. 베타선 측정용 플라스틱 섬광체는 유기섬광체, 고분자, 그리고 용매가 혼합된 용액을 도말한 후에 고형화하여 제조하였다. ZnS(Ag) 섬광체는 플라스틱 섬광체 위에 ZnS(Ag), 접착소재, 그리고 용매가 혼합된 용액을 스크린 프린팅 방법으로 도포하여 제조하였다. 제조한 이중섬광체의 알파선과 베타선에 대한 방사능 검출 성능을 평가한 결과 우수한 검출 성능을 확인하였으며, 표면오염도 측정용 소재로 적용이 가능함을 확인하였다.

Abstract: Dual scintillator for simultaneous alpha- and beta-ray counting used by detection materials of a surface contamination monitor was developed. In this study, preparation method was not a heat melting method but a solvent method, by which the counting material was manufactured by dissolving the polymer materials with solvent. It was simplified the preparation process. Plastic scintillator for beta-ray counting was prepared by solidifying the casting solution mixed with organic scintillator, polymer, and solvent. ZnS(Ag) scintillator layer was prepared by screen printing the paste solution mixed with ZnS(Ag), paste, and solvent onto the plastic layer. The good counting ability for alpha- and beta-ray using the ZnS(Ag)/plastic dual scintillator prepared and possibility for the counting material of surface contamination monitor was confirmed.

Key words : dual scintillator sheet, plastic scintillator, ZnS(Ag), phoswich detector

★ Corresponding author

Phone : +82-(0)42-868-8210 Fax : +82-(0)42-868-2499

E-mail : bumja@kaeri.re.kr

1. 서 론

원자력시설의 오염도 측정은 시설 운영뿐만 아니라 제염·해체를 위한 방사선안전관리 측면에서도 지속적인 감시와 관리가 필요하다. 특히, 현재 운전이 종료되어 해체가 진행 중인 연구로 1,2호기와 우라늄 변환 시설의 경우는 해체 과정 중의 작업의 안전성과 오염의 확산을 방지하기 위한 시설의 오염도 측정과 더불어 해체 시 대량으로 발생하는 폐기물을 분류하기 위한 기준의 설정을 위하여 정확한 오염도 측정이 선행되어야 한다.

표면오염은 고착성(fixed)과 유리성(removable)으로 나눌 수 있으며, 이들 둘의 합을 총표면오염도라고 정의한다. 표면오염도는 휴대용 서베이미터를 이용하여 대상 표면에 접촉하여 총표면오염도를 측정하는 직접 측정법과 스메어(smear) 법을 이용하여 대상 표면의 시료를 채취하여 계측기로 측정하여 유리성 오염도를 측정하는 간접측정법이 있다. 직접측정법은 고착성과 유리성 오염도를 구분할 수 없으며, 주위의 백그라운드 값이 높은 경우에는 정확한 오염도 측정을 할 수 없는 단점이 있지만, 측정이 쉬우면서 신속한 오염도 평가가 가능하기 때문에 현장에서 주로 이용되고 있는 방법이다. 이러한 직접법을 이용한 표면오염도 측정은 일반적으로 기체검출기 또는 섬광검출기를 이용하여 측정하며, 최근에는 알파선과 베타선의 오염도를 동시에 측정할 수 있는 대면적 섬광검출기가 많이 이용되고 있다.

알파선과 베타선의 동시 측정이 가능한 표면오염도 측정용 섬광검출기는 베타선의 측정이 가능한 얇은(두께 0.25 mm) 플라스틱 섬광체 위에 ZnS(Ag) 섬광체를 코팅하여 제조한다¹⁻³. 본 연구에서도 알파선과 베타선 오염도 측정용 소재로 적용이 가능한 이중섬광체 검출소재를 제조하였다. 이중섬광체는 지지체 역할을 하는 베타선 측정용 유기섬광 플라스틱 소재 위에 알파선 측정이 가능한 ZnS(Ag) 섬광체 분말을 도포하여 제조하였다. 지지체 역할과 베타선 검출용의 플라스틱 검출소재는 여러 가지 고분자 소재를 이용하여 용매법을 이용하여 제조하였다. 또한, 알파선 측정용 ZnS(Ag) 섬광층은 인쇄 기법을 이용하여 ZnS(Ag) 섬광체 분말을 접착제와 혼합하여 플라스틱 검출소재 위에 도포하여 제조하였다. 제조한 이중섬광체의 알파와 베타선에 대한 검출 성능을 평가하여 기존의 상용 제품과 비교하였다.

2. 실험 방법

2.1. 이중섬광체 검출센서 제조

알파선과 베타선 오염도의 동시 검출이 가능한 이중섬광체를 제조하였으며, 제조 과정은 Fig. 1과 같다. 먼저 베타선 검출용 섬광층은 고분자 소재와 섬광체로서 제1용질 및 제2용질로 구성된 플라스틱 섬광체이다. 플라스틱 섬광체에서 방사선이 고분자 물질에 입사하면 불안정해진 고분자는 에너지를 방출하며 안정한 상태가 되고, 이때 방출된 에너지를 제1용질이 전달받아 자외선 영역의 섬광을 방출한다. 이러한 자외선 영역의 파장은 측정용 광전자증배관(photomultiplier tube : PMT)의 섬광 응답특성에 부합하지 않으므로 PMT에 적합한 파장으로 이동시키는 역할을 하는 파장 이동체인 제2용질을 사용한다⁴. 본 연구에서 고분자 소재로서 polysulfone(PSF), polystyrene(PS), Estyrene, 그리고 Poly(Bisphenol A Carbonate) (PBAC)를 사용하였고, 유기섬광체인 제1용질로 2,5-diphenyloxazole (PPO)과 p-terphenyl 그리고 파장 이동체인 제2용질은 1,4-bis[5-phenyl-2-oxazol]benzene(POPOP)를 사용하였다. 용매인 Methylene Chloride(MC) 80 g에 PPO와 POPOP를 각각 0.7과 0.06 g을 용해시킨 후에 고분자 소재를 25 g 넣어서 25°C에서 24시간 교반(rpm 150)하여 섬광체 혼합용액을 준비하였다. 용액 내에서 산소 소광(quenching)을 일으킬 수 있는 기포와 용액의 투명성을 확인한 후, Doctor Blade를 사용하여 일정한 두께로 유리판 위에 도말하였다. 이때, 고형화 후 고분자막의 두께에 대한 베타선의 (에너지에 따른) 최대 비정을 고려한 도말두께는 800에서 2500 μm로 변화시키면서 제조하였다. 마지막으로 도말한 고분자 막을 24시간 동안 대기 중에서 방치하여 용매를 완전히 증발시켜 고형화하였다⁵. 고형화 후의 두께는 마이크로미터(Mitutoyo)를 이용하여 측정하였다.

알파선 검출용 섬광층은 제조과정도 Fig. 1에 나타내었으며, 그 제조과정은 다음과 같다. 알파선 측정용 섬광층은 screen printing 기법을 이용하여 제조하였다. Screen printing 방법은 망사형 틀 위에 도포 용액을 부은 후 스퀴즈를 이용하여 혼합용액을 도포하는 방법이다. 섬광층 제조는 용매인 Dimethylformamide (DMF) 7.5 g에 접착용 소재(PSF 또는 cyano resin) 3 g을 넣어서 70°C의 전기로에서 5시간 이상을 녹인다. 여기에 평균 직경이 3~4 μm인 분말 상태의 ZnS(Ag) 섬광체(Phosphor technology, GL47) 18 g을 첨가하여 균일하게 교반하여 섬광체

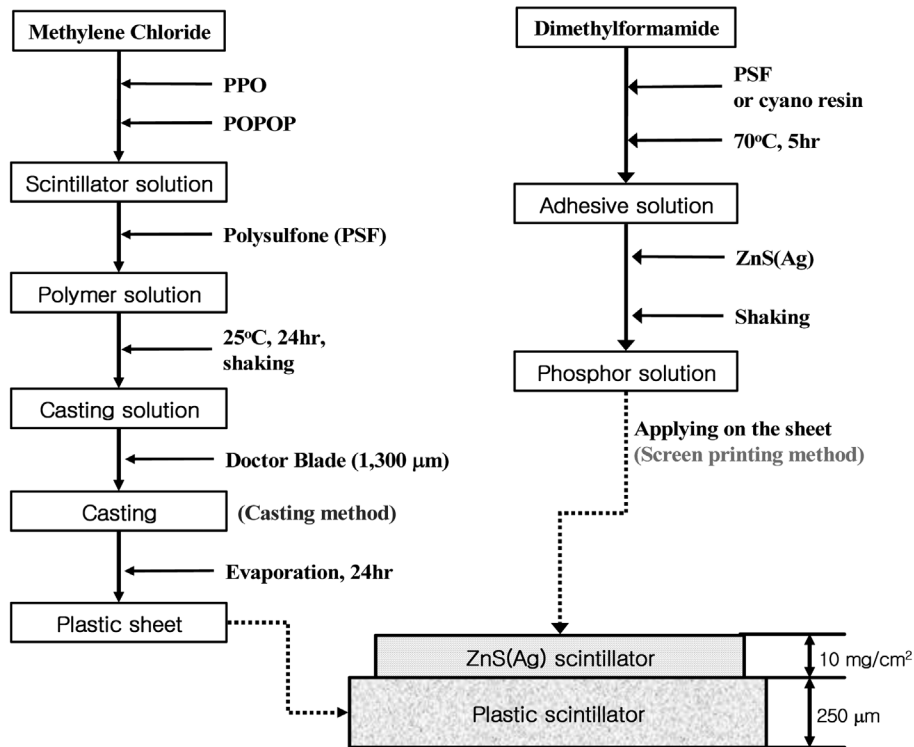


Fig. 1. Preparation process of the ZnS(Ag)/plastic dual scintillator sheet for alpha- and beta-ray simultaneous counting.

용액을 준비하였다. 앞서 제조한 베타선 측정용 플라스틱 검출 소재 위에 300 mesh의 screen printer를 올려놓고 그 위에 ZnS(Ag) 혼합용액을 부어서 스크린으로 압착시킨다⁶. 도포한 ZnS(Ag) 섬광체 용액을 대기 중에 방치하여 용매를 완전히 증발·건조시키면 최종적으로 알파선과 베타선을 동시에 측정 가능한 이중섬광체가 제작된다.

2.2. 방사선 검출 성능 평가

제조한 이중섬광체의 방사선 검출 성능을 평가하기 위하여 알파선 방출핵종인 ²⁴¹Am(반감기 : 432년, 알파선 에너지 : 5.44, 5.48 MeV)과 베타선 방출핵종인 ⁹⁰Sr/⁹⁰Y(반감기 : 28.78년, 베타선 최대에너지 : 2.28 MeV) 방사선원을 이용하였다. 제조한 검출센서의 방사선 검출 성능을 평가하기 위하여 직경인 50 mm로 잘라서 방사선원을 도포하여 실온에서 건조시켰다. 선원이 도포된 검출센서는 측정용 PMT(Hamamatsu Photonics K. K., R329-02)와 동축으로 배치하여 방사선과 섬광체의 상호작용에 의하여 생성된 섬광을 측정하여 검출 성능을 평가였다.

3. 결과 및 고찰

알파선과 베타선을 동시에 측정할 수 있는 이중섬광체를 제조할 경우 중요한 요인으로는 방사선에 대한 검출성능과 더불어 섬광체로서의 투명도와 기계적 강도를 들 수 있다. 특히 본 연구에서 적용한 용매법은 고분자 소재를 용매로 녹여서 제조하는 방법으로 용매로 녹일 수 있는 고분자 소재 중에서 방사선의 에너지를 효율적으로 전달할 수 있고, 고형화 후에 기계적 강도가 우수한 고분자 소재를 선정하여야 한다. 이러한 목적에 적합한 상용 고분자 소재 중에서 고분자 구조와 비점 등의 기본적인 특성을 조사하여 PSF, PS, Estyrene, 그리고 PBAC를 선정하였다. 이중에서 PS의 경우는 플라스틱 섬광체의 기저 고분자로 많이 이용되고 있는 소재로서, 단량체인 styrene을 열중합 반응시켜 PS으로 제조한다⁷⁻⁸. 이러한 열중합 반응을 이용할 경우에는 플라스틱 섬광체를 제조하기가 어려울 뿐만 아니라 bulk type으로만 제조가 가능하다. 그러나, 본 연구에서는 과립형으로 제공되는 PS를 이용하여 용매법으로 제조하였다.

Table 1. Preparation condition of the plastic scintillation sheet for beta-ray counting

Solvent (g)	Polymer (g)	1st solute (g)	2nd solute (g)	Casting thickness (μm)	Solidification thickness (μm)
				800	135.6
80	25	0.7	0.06	1,300	252.8
				1,800	316.8
				2,500	447.5

용매법을 이용하여 제조한 플라스틱 섬광검출소재의 제조조건은 Table 1과 같으며, 모든 고분자 소재들에 대하여 동일한 조건으로 제조하였다. 용매, 고분자 소재 그리고 섬광체의 양은 이전의 연구⁵에서 결정된 농도를 그대로 이용하였으며, 플라스틱 섬광체의 두께 변화에 따른 베타선의 검출 성능을 평가하기 위하여 도말 두께를 변화시키면서 제조하였다. 고형화 후의 플라스틱 섬광체의 두께는 용매 증발로 인하여 도말 두께에 비하여 1/5에서 1/6 정도로 감소되었다. 그러나, PS의 경우는 고형화 후에 제조된 플라스틱 섬광체의 기계적인 물성이 취약하여 실제적인 섬광체로 적용하기에는 어려웠다.

제조한 섬광체의 베타선에 대한 검출 성능을 평가하기 위하여 스펙트럼을 측정하였으며, 그 결과는 Fig. 2와 같다. PS의 경우는 플라스틱 섬광체로 제조는 어려웠지만 검출 성능을 비교하기 위하여 측정하였으며, 다른 고분자 소재들에 비하여 검출 성능은 2 배 정도 우수하였다. PSF, Estyrene, 그리고 PBAC는 거의 유사한 검출 성능을 보였으나, PBAC의 경우는 용매를 이용하여 녹이기가 상대적으로 어려워 최종적으로 용매법을 이용하여 제조가 용이한 PSF과 Estyrene을 기본 고분자 소재로 선정하였다.

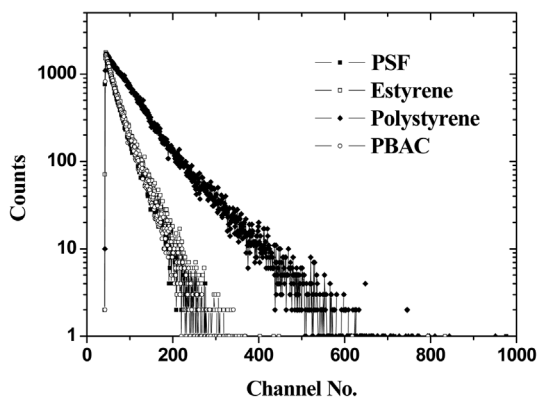


Fig. 2. Beta-ray spectrum of the plastic sheet for beta-ray counting according to polymer materials.

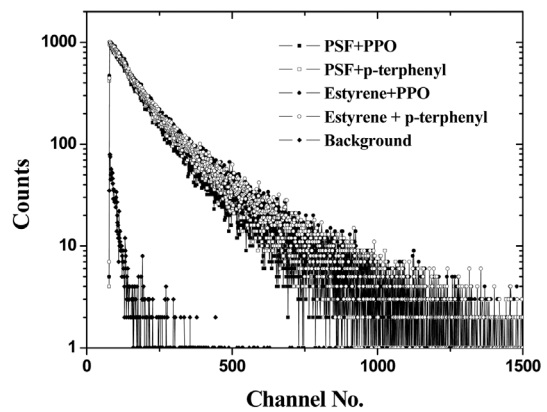


Fig. 3. Beta-ray spectrum of the plastic sheet for beta-ray counting according to 1st solute and polymer.

위에서 선정한 PSF과 Estyrene 기저 고분자 소재의 차이에 따른 검출 성능과 제1용질로서 주로 이용되고 있는 PPO와 p-terphenyl의 검출 성능을 비교하기 위하여, 동일한 조건으로 플라스틱 검출소재를 제조하여 베타선 검출 성능을 평가하였으며, 그 결과는 Fig. 3과 같다. 동일한 제1용질에 대하여 PSF과 Estyrene의 경우 검출 성능은 5% 범위 이내였으며, 동일한 고분자 소재에 대한 PPO와 p-terphenyl의 경우도 5% 이내였다.

플라스틱 검출소재의 두께에 대한 베타선 검출 성능을 평가하기 위하여 플라스틱 섬광체의 두께를 135 μm 에서 447 μm 까지 변화시키면서 제조하였다. $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 표준선원을 이용하여 베타선 검출 성능을 평가한 결과, 섬광체의 두께가 252 μm 일 때, 약 10% 정도 우수한 검출 성능을 보였으며, 이는 기존의 상용 제품과도 동일한 결과였다.^{2,3} 플라스틱 섬광체의 두께는 방사선 검출 성능에 가장 큰 영향을 미칠 수 있는 요인으로서, 본 연구에서는 플라스틱 섬광체의 두께 편차는 5% 이내였다.

알파선 검출용 섬광체는 베타선 측정용 플라스틱 섬광체 위에 ZnS(Ag) 섬광체를 screen printing 방법으

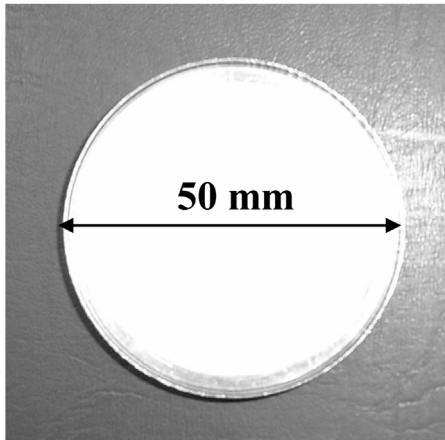


Fig. 4. A photograph of the ZnS(Ag)/plastic dual scintillator for alpha- and beta-ray counting.

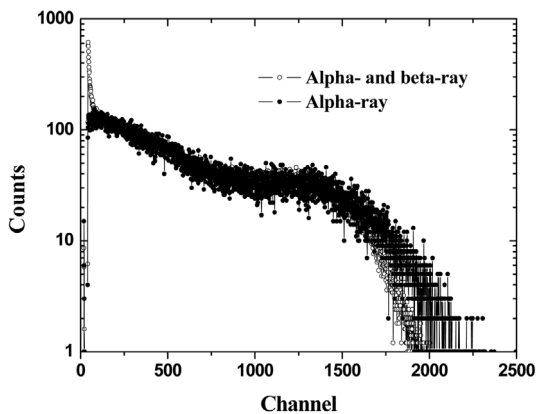


Fig. 5. Simultaneous alpha- and beta-ray pulse height spectrum measured by ZnS(Ag)/plastic dual scintillator sheet.

로 도포하여 제조하였다. 2차 섬광층의 제조 시 접착용 소재는 기저 고분자 소재와 동일한 PSF과 접착용 소재인 cyano resin을 사용하여 제조하였으며, PSF과 cyano resin 둘 다 ZnS(Ag) 섬광체를 접착시키는데 모두 우수하였다. 그러나, 실제 제조 시 용매를 이용하여 녹이기가 쉬운 cyano resin을 접착용 소재로 선정하였다.

ZnS(Ag)/플라스틱 이중섬광체는 $10 \times 10 \text{ cm}^2$ 의 크기로 제조하였으며, 이는 적용한 screen printer의 크기에 의존한다. 알파선과 베타선에 대한 방사능 검출 성능을 평가하기 위하여 측정용 PMT의 입사창과 동일한 직경 50 mm로 잘라서 측정하였으며, 측정용 이중섬

광체는 Fig. 4와 같다. 제조한 ZnS(Ag)/플라스틱 이중섬광체를 이용하여 ^{241}Am 알파선원과 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 베타선원에 대한 알파선과 베타선의 스펙트럼을 측정하였으며, Fig. 5와 같다. Fig. 5에서 볼 수 있는 바와 같이, 알파선의 경우는 넓은 에너지 영역에 대하여 넓게 분포되며, 베타선의 경우는 낮은 에너지 영역에서 검출됨을 알 수 있다.

제조한 ZnS(Ag)/플라스틱 이중섬광체를 이용하여 기존의 상용 제품인 EJ-444 (Eljen Technology)과 비교하였다. 알파선에 대한 검출 효율은 약 $85 \pm 5 \%$ 정도로서 거의 비슷한 효율을 얻을 수 있었다. 그러나, 베타선의 대한 검출 효율은 EJ-444의 경우는 약 50%의 효율을 얻었으나, 본 연구에서 제조한 이중섬광체의 베타선 효율은 약 25% 였다. 이는 앞에서 논의한 바와 같이 본 연구에서 제조한 섬광체의 기본 고분자 소재인 PSF이 상용의 기저 고분자 소재보다는 베타선의 에너지 응답 특성이 나쁘기 때문인 것으로 보여진다. 또한, 동일한 조건으로 제조한 ZnS(Ag)/플라스틱 이중섬광체의 방사선 검출 효율을 비교한 결과 약 10% 범위 이내였다.

4. 결 론

본 연구에서는 알파선과 베타선을 동시에 측정할 수 있는 ZnS(Ag)/플라스틱 이중섬광체를 개발하였다. 고분자 소재를 용매로 녹여서 제조함으로써 기존의 열용융 공정과 코팅법에 비하여 아주 쉽고 신속하게 검출소재를 제조할 수 있다. 베타선 측정용 플라스틱 섬광체의 경우는 감마선의 영향을 최소화 하면서 베타선의 검출 효율을 높이기 위하여 $250 \mu\text{m}$ 로 제조하였다. 알파선에 대한 검출 효율은 기존의 상용제품과 거의 유사한 결과를 얻었지만, 베타선의 경우는 기존의 제품에 비하여 효율은 약 1/2로 작았지만, 제조방법이 아주 용이하기 때문에 실제적인 응용 가치는 높을 것으로 보인다. 향후 알파선과 베타선의 신호분리를 통하여 개개의 오염도를 측정에 적용이 가능하며, 오염도 측정용 장비의 알파와 베타선 동시 측정용 검출 소재로서 활용 수 있을 것이다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 중장기 연구사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. <http://www.elimpex.com/products/nuclear-medicine/como170en.pdf>
2. <http://www.ludlums.com/product/m43-89.htm>
3. <http://www.apace-science.com/eljen/ej-444.htm>
4. G. F. Knoll, "Radiation Detection and Measurement", 3rd eds., John Willey & Sons, Inc. New York (1999).
5. B. K. Seo, G. H. Kim, Z. H. Woo, W. Z. Oh, K. W. Lee and M. J. Han, *Anal. Sci. & Tech.* **18**(6), 495-499(2005).
6. B. K. Seo, Y. H. Jung, G. H. Kim, K. W. Lee, C. H. Jung and M. J. Han, *Anal. Sci. & Tech.* **19**(5), 389-393(2006).
7. 이우교, 김용균, 김정복, 정종은, 홍석봉, 한국원자력학회 2003년도 추계학술발표회 논문집 (2003).
8. 박진용, 황상훈, 안정근, *새물리* **48**(6), 606-610(2004).