

중성자 모니터링을 위한 전도성 ¹⁰B 박막 개발

임창휘*, 김종열*, 이수현*, 정용주†, 최영현*, 백철하*, 문명국*

*한국원자력연구원, †한국기술교육대학교, ‡동서대학교

2014년 8월 21일 접수 / 2014년 10월 6일 1차 수정 / 2014년 10월 28일 2차 수정 / 2014년 10월 31일 채택

중성자 검출분야에서 ³He는 높은 중성자 검출효율 때문에 아주 많이 사용되고 있다. 하지만 2009년 초반부터 발생하고 있는 전세계적인 ³He의 품귀현상으로 인하여 가격이 급등하고 공급이 어려워졌기 때문에 대체 중성자 검출물질에 대한 필요성이 높아졌다. 그러므로 중성자 검출물질로 사용될 수는 있지만 ³He에 비해 반응효율이 낮아 중성자 검출용으로 주로 사용되지 않던 물질들을 사용하여 검출기를 제작하는 연구가 다시 활발하게 진행되고 있다. BF₃, ⁶Li, ¹⁰B, Gd₂O₃ 등과 같은 ³He 대체 물질들 중 하나인 ¹⁰B은 손쉬운 감마선 구별, 무독성, 낮은 가격 등과 같은 여러 장점으로 인하여 여러 연구그룹에서 연구되고 있다. ¹⁰B 박막을 이용한 중성자 검출은 중성자와 반응하여 발생하는 2차 방사선을 측정하여 간접적으로 중성자를 측정하는 검출기법이다. 반응을 통해 생성된 알파입자의 비정은 고체 내에서 아주 짧기 때문에 ¹⁰B 층은 박막 형태로 얇게 제작해야 한다. 그러므로 중성자와 박막의 반응을 통해 발생하는 알파입자의 검출효율을 증가시키기 위해서는 ¹⁰B 박막의 두께를 얇게 제작하는 것이 중요하다. 하지만 박막의 두께를 얇게 제작하는 것은 중성자와 반응하여 생성되는 알파입자의 수집효율을 증가시키는 장점이 있지만 또한 중성자와 반응할 단면적을 감소시키는 단점이 있다. 본 논문에서는 리튬이온전지에 사용되는 초박막 극판 제조 기술을 이용하여 중성자 검출을 위한 대략 60 μm 두께의 얇은 ¹⁰B 박막을 제작하였다. 그리고 전도성, 분포, 점착력, 유연성과 같은 간단한 물리적 실험을 통해 제작된 ¹⁰B 박막의 물성을 확인하였다. 또한, 제작된 ¹⁰B 박막을 사용하여 중성자 모니터링을 위한 비례계수기 제작하고 이를 이용하여 한국원자력연구원의 중성자 조사시설의 중성자 파고 스펙트럼을 측정하였다. 또한, 중성자 검출효율을 증가시킬 수 있는 방법 중 하나인 다층 박막을 이용한 중성자 측정 방법을 이용하여 박막 층수에 따른 중성자 검출효율의 변화를 몬테칼로 전산모사 기법을 이용하여 계산하였고 실험을 통해 박막층의 증가에 따른 신호변화를 측정하였다.

중심어 : ¹⁰B 박막, 중성자, 비례계수기, MCNP6

1. 서론

일반적으로 중성자 검출은 중성자를 직접 측정하는 방법이 아닌 중성자와 감응물체 사이의 핵반응에 의해 발생하는 하전입자 또는 광자를 측정하는 간접 측정방식이 주로 이용된다[1]. 이러한 중성자 측정을 위해서는 다양한 물질들이 사용되며 그 중 ³He는 높은 중성자 반응, 탁월한 감마선 구별능력, 저렴한 가격 등의 장점들 때문에 중성자 검출을 위해 가장 흔히 사용되고 있다[2,3]. 하지만 2009년 이후 전세계적으로 ³He 부족 현상이 급속히 증가하였고 이로 인하여 가격이 가파르게 상승함으로 인해 기체의 공급이 어려워지면서 ³He 대체 중성자 검출기법 개발과 대체 검출기 상용화를 위한 연구의 필요성이 크게 증가하였다[4-6]. ³He를 대체하여 사용될 수 있는 물질로는 BF₃, ¹⁰B, 섬광체 등이 있으며 이러한 물질

들은 다양한 검출기의 중성자 감응물질로 사용된다[7,8]. 이중 BF₃는 다른 중성자 감응물질에 비해 상대적으로 높은 중성자 검출효율을 가짐에도 불구하고 고압에서 전자의 재결합 현상이 발생이 증가함으로 인해 고효율을 위한 고압의 검출기로 제작하기에는 한계가 있다. 또한 특유의 독성으로 인해 BF₃를 다루는데 있어서 많은 제약이 있다[4,8]. 섬광체의 경우 기체를 이용한 검출기에 비해 대면적으로 제작하기가 쉽지 않고 가격 또한 상대적으로 고가이며 중성자와 감마신호를 구별하기 위해서는 신호 구별을 위한 알고리즘을 개발하여야 하는 등의 복잡한 과정을 거쳐야 하는 단점이 있다[9-11]. 하지만 ¹⁰B의 경우 BF₃에 비해서는 조금 낮긴 하지만 높은 중성자 검출능력을 포함하고 있을 뿐만 아니라 독성이 없는 물질이고 자연계 붕소의 대략 20%가 ¹⁰B이기 때문에 원료 공급 측면에서 큰 장점을 가지고 있다[4]. 또한, 중성자와 감마의 구별능력이 뛰어나기 때문에 중성자 검출기로 사용이 용이하다. 그리고 ¹⁰B을 기체충진형 비례계수기를 이

교신저자 : 문명국, moonmk@kaeri.re.kr
대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

용한 중성자 검출기로 사용할 경우 기존의 ³He를 이용한 비례계수기의 신호처리장치를 그대로 사용함으로써 추가적인 비용을 절감할 수 있는 장점이 있다[8]. ¹⁰B을 이용한 중성자 검출은 ¹⁰B과 혼합된 섬광체, ¹⁰B이 코팅된 반도체 혹은 섬광체, 그리고 앞서 설명한 것과 같이 기체 충전형 비례계수기 내부 극판에 코팅된 ¹⁰B 등을 이용하여 수행될 수 있다[3]. 본 논문에서는 중성자 산란 검출, 중성자 모니터링 등에서 사용되는 기체충진형 비례계수관에 ³He 대신 ¹⁰B의 사용가능성을 타진하기 위한 연구를 수행하였다. 비례계수기에 사용되는 ¹⁰B은 중성자와 발생하는 알파입자의 손실을 최소화하기 위해 박막형태로 얇게 제작되어야 한다. 이를 위해서 많은 연구그룹에서는 알곤 스퍼터링 박막증착기법을 이용한 ¹⁰B 박막 개발 기술에 대한 연구를 수행하고 있다[12]. 스퍼터링을 이용한 박막 제작기술은 박막의 두께를 얇고 균일하게 제작하는데 탁월하지만 박막 증착시 보론 타겟의 손실이 많고 대면적으로 박막 제작을 위해서는 대규모의 스퍼터링 장치를 보유하여야 하는 단점이 있다. 이러한 기존 박막제작기법을 대신해 본 논문에서는 리튬이차전지 핵심기술 중 하나인 전도성 박막 제조기술을 응용하여 고전도성 ¹⁰B 박막을 제조하였다. 리튬이차전지에서는 다른 이차전지와 달리 고율특성을 향상시키기 위해 극판을 박막으로 제조한다. 극판의 두께와 전도도는 리튬이차전지의 성능에 크게 영향을 미친다. 일반적으로 양극활물질의 전도도가 매우 낮기 때문에 극판의 전기전도도를 높이기 위해 탄소 나노입자의 첨가가 필수적이다[13]. 붕소(B) 입자와 탄소 나노입자를 적절한 점도의 바인더 용액에 분산시켜 높은 전도도를 보이면서 두께가 얇고 균일한 ¹⁰B 박막을 제조하고, 제조된 박막을 이용하여 중성자 모니터를 제작하여 중성자 검출 능력을 확인하였다. 이러한 얇은 박막을 이용한 중성자 검출은 박막의 두께가 얇기 때문에 반응하는 중성자의 양이 아주 적다. 그러므로 다중구조의 박막을 이용하여 중성자 측정효율을 높이기 위한 방안들이 연구되고 있다[12].

본 논문에서는 비례계수기에서 중성자 변환기로 사용될 수 있는 ¹⁰B 박막을 리튬이차전지 극판제작기술을 이용하여 개발하고 이를 이용하여 중성자 빔 모니터를 제작하여 중성자빔을 측정하였다. 또한, 다층의 ¹⁰B 박막을 이용한 중성자 모니터의 효율변화를 측정하기 위하여 몬테칼로 기법을 이용하는 MCNP6 1.0을 이용하여 모델링과 전산모사를 수행하고 다층 ¹⁰B 박막을 이용한 중성자 검출기를 제작하여 중성자 빔에 대한 응답신호를 측정하였다.

2. 재료 및 방법

2.1 ¹⁰B 을 이용한 중성자 검출

¹⁰B을 이용한 중성자 검출은 입사되는 중성자(n)와 ¹⁰B의 핵반응을 통해 발생하는 알파입자(α)와 리튬 원자핵 ⁷Li를 이용하여 중성자를 검출하는 방법이다. ¹⁰B과 중성자의 반응은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

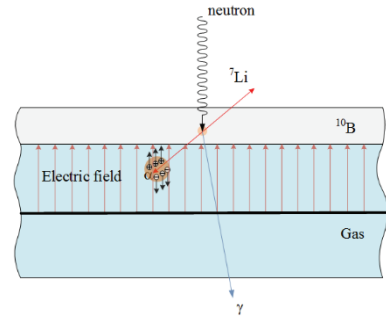
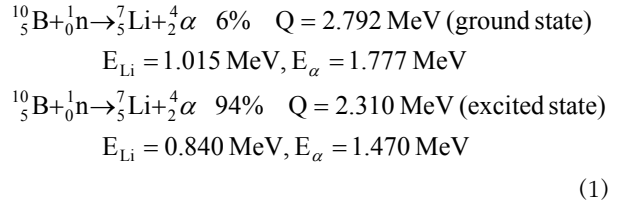


Fig. 1. Basic principle of the ¹⁰B-based neutron detector; as a neutron passed through the ¹⁰B thin film, the secondary particles such as alpha and ⁷Li are produced by nuclear reactions. Then, the ions cause ionization of the irradiated material in the gas volume and the electron avalanche is formed near the anode wires due to the electric field between two nodes.

여기서 E_{Li}, E_α 그리고 E_γ는 각각 Li, 알파, 감마선의 에너지를 나타낸다. 중성자와 ¹⁰B의 핵반응을 통해 발생하는 ⁷Li는 94%가 여기상태(excited state)가 되고 6%가 기저상태(ground state)로 남게 된다. 여기서 Q 값은 2.792 MeV와 2.310 MeV이다. 발생하는 ⁷Li와 알파입자는 다른 매질을 이온화시키고 이 과정에서 발생하는 하전입자 혹은 광자를 측정하여 중성자를 측정하게 된다. 기체충진형 비례계수기에서의 ¹⁰B 기반 검출기의 원리는 Fig. 1에서 나타내고 있는 것과 같이 발생하는 ⁷Li와 알파 입자가 비례계수기 내부의 기체를 이온화시키고 이로 인해 발생하는 전자는 비례계수기내에 인가되어 있는 전기장을 통해 양극선으로 이동하게 되며 양극선 부근에서 발생하는 전자사태(electron avalanche)로 인해 전자증폭이 발생되고 발생된 전자들을 이용하여 중성자 신호를 측정하는 것이다.

2.2 전도성 ¹⁰B 박막

본 연구에서 개발한 중성자 검출기용 전도성 ¹⁰B (이하 붕소) 박막은 리튬이차전지 극판제작기술을 이용한 기술로 얇은 금속판 위에 붕소와 탄소 나노입자 복합체를 코팅한 전도성 박막이다. 제작된 전도성 붕소박막의 내부는 비전도성 붕소박막에 전도성을 부여하기 위한 전도성 탄소 나노입자와 중성자와 반응하여 알파입자를 생성하기 위한 붕소 그리고 각 입자들간의 결합을 위한 바인딩 물질들로 이루어져 있다(Fig. 2). 그리고 혼합된 물질은 얇은 알루미늄 지지기판에 코팅되어 있다. 전도성 붕소박막을 제작하는데 있어서 중요한 변수는 제작된 박막의 전도도, 혼합된 물질의 분산, 그리고 혼합된 물질들의 접착력 등이 있다. 이러한 변수는 제작된 박막의 신

Table 1. Characteristics according to the component ratio of materials.

| Binder | B:CB:Binder Ratio | Conductivity | Dispersion | Adhesion | Flexibility |
|--------|-------------------|--------------|------------|-----------|-------------|
| PVDF | 0.92:0.3:0.5 | Excellent | Excellent | Excellent | Excellent |
| PVDF | 0.95:0.3:0.2 | Good | Excellent | Good | Excellent |
| PVP | 0.92:0.3:0.5 | Excellent | Good | Poor | Good |
| PVP | 0.95:0.3:0.2 | Good | Good | Poor | Good |
| SBR | 0.92:0.3:0.5 | Excellent | Poor | Good | Good |
| SBR | 0.95:0.3:0.2 | Good | Poor | Poor | Good |
| PAA | 0.92:0.3:0.5 | Excellent | Good | Poor | Good |
| PAA | 0.95:0.3:0.2 | Good | Good | Poor | Good |

B: ¹⁰B
CB: Carbon Black

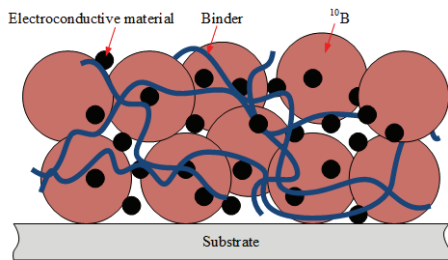


Fig. 2. Schematic view of a conductive ¹⁰B thin film; the binder fix ¹⁰B cores on a substrate with 50~60 μm thickness and some electro-conductive material is added to make the film a good conductor.

호수집효율과 표면 위치에 따른 박막 두께의 균일성 그리고 곡면형 검출기등과 같은 중성자 검출기에 적용가능하기 위한 박막의 유연성 등을 보장할 수 있는 척도이다. 본 연구에서는 붕소를 대략 5 μm 이하의 크기로 잘게 분쇄한 후 이를 이용하여 중성자 검출용 박막을 생성시키는 연구를 수행하였다.

붕소박막의 제작은 총 5단계를 거쳐 제작되었다. 첫번째 과정은 마이크로 크기의 붕소입자 제작단계이다. 붕소입자의 크기와 균일성은 박막의 두께, 혼합된 물질의 분산 그리고 중성자 반응효율 등에 영향을 미칠 수 있다. 본 연구에서는 입자크기가 수 백 μm 이상인 붕소를 수 마이크로 크기의 균일한 붕소입자로 분쇄하기 위하여 시료분쇄기(Pulverisette 6 Planetary Mono Mill, FRITSCH, Germany)를 이용하였다. 직경 10 mm의 지르코니아(zirconia) 분쇄용 볼들을 포함하는 80 mL 용량의 지르코니아 용기에 20 g의 붕소를 넣은 후 10분 동안 500 rpms으로 분쇄한 후, 5 μm 구멍 크기의 정밀 표준체를 이용하여 균일한 붕소 미세입자를 획득하였다. 두번째 과정은 분쇄된 붕소입자와 전도성 물질인 탄소 나노입자(카본블랙)를 혼합하기 위해 필요한 바인딩 물질을 선정하는 과정이다. 바인딩을 위해 사용 가능한 물질로는 PVDF (Polyvinylidene Fluoride), PVP (Polyvinylpyrrolidone), SBR (Styrene-Butadiene Rubber), PAA (Polyacrylamide) 등이 있다. 최적의 바인딩 물질을 선정하기 위하여 붕소(92%), 카본블랙(3%), 바인더(5%)의 첫

번째 실험군과 붕소(95%), 카본블랙(3%), 바인더(2%)의 두 번째 실험군으로 그룹을 나누어 성능평가를 수행하였다. 정량적인 평가를 위해 전도성(conductivity), 분산(dispersion), 결합력(adhesion) 그리고 유연성(flexibility)의 네 가지 항목으로 평가를 수행하였으며 평가는 각각의 박막샘플을 제작한 후 수행하였다. 전기전도성 평가는 면저항측정기(4 point probe method)를 이용하여 측정하였다. 그리고 결합력은 접착용 테이프를 극판에 붙였다 떼어냄으로써 떨어져 나오는 입자의 상대적인 양을 이용하여 평가하였다. 마지막으로 유연성평가는 120° 굽혔다가 폼을 때 회복되는 정도를 관찰하여 평가하였다. 결과적으로 표 1에서 나타난 것과 같이 가장 이상적인 바인딩 물질은 PVDF로 모든 항목에서 상당히 좋은 결과를 나타냄을 알 수 있었다. 또한 실험군 2에 비해 실험군 1의 전도율이 높게 나타남을 알 수 있었다. 최적 조성의 박막에서의 전기전도도는 $2 \times 10^{-2} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$ 로 나타났다. 세 번째 과정은 혼합과정으로 50 mL 폴리프로필렌 용기에 혼합할 물질과 20 mL의 NMP (N-Methylpyrrolidone) 혼합용 용매를 섞은 후 직경 10 mm의 지르코니아 볼을 사용하여 혼합하였다. 혼합과정을 거친 전도성 보론 혼합물은 네번째 단계인 코팅과정을 거치게 된다. 코팅과정에서 지지기판 위에 보론혼합물을 정밀 코팅하기 위해 1~500 μm 두께로 코팅이 가능한 닥터 블레이드(Model MCT-02A, 한성시스템)를 사용하여 코팅작

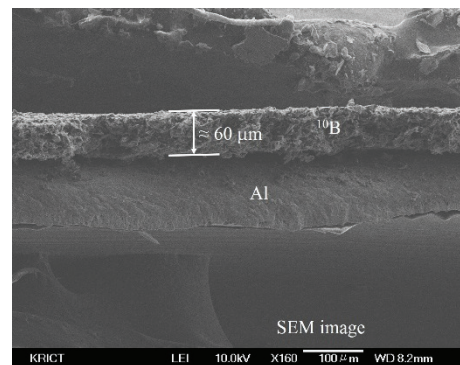


Fig. 3. SEM images of the conductive ¹⁰B thin film; the thickness of ¹⁰B thin film is about 60 μm with good uniformity.

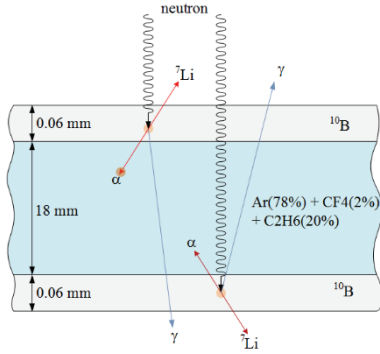


Fig. 4. Monte Carlo modeling of the proportional counter with a ^{10}B thin film; the model for the efficiency measuring of the fabricated ^{10}B thin film consists of ^{10}B thin film of 60 μm thickness and conversion gas (Ar: 8%, CF_4 : 2%, C_2H_6 : 20%). This model can describe the detector performance and its efficiencies.

업을 수행하였다. 그리고 마지막으로 코팅이 완료된 박판은 130°C에서 건조시킨 후 박판 두께의 균일성을 더하기 위해 냉간 압연방식으로 박판을 압연하였다.

이상과 같이 제작된 보론 박막은 Fig. 3의 SEM (Scanning Electron Microscope) 이미지에서 나타난 것과 같이 박막의 두께가 대략 60 μm 으로 전체적 거의 균일하게 제작되었음을 알 수 있었다.

2.3 ^{10}B 검출기 전산모사

보론박막을 이용한 기체충진형 중성자 검출기의 중성자 측정 방법은 다음과 같다. 중성자와 보론박막과의 반응을 통해 발생하는 입자들이 반응기체를 이온화시켜 전자를 발생시키게 되고 발생한 전자는 내부에 인가되어 있는 전기장에 의해 양극선으로 이동하게 된다. 그리고 이동된 전자는 양극 근처에서 전자사태(electron avalanche)를 발생시키게 되며 이로 인해 증폭된 전류를 측정하면 된다. 그러므로 중성자 검출기의 효율은 붕소박막과 중성자의 반응효율과 발생한 알파입자와 기체의 반응 확률에 의해 결정되게 된다. 본 논문에서는 몬테칼로 전산모사를 통해 제작된 박막의 중성자 검출효율과 박막에 수에 따른 효율변화를 살펴보았다. 이를 위하여 몬테칼로 기법을 이용한 방사선 거동 전산모사 소프트웨어인

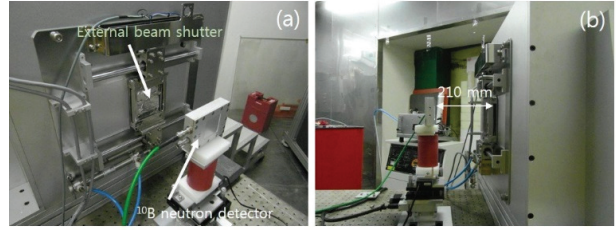


Fig. 5. ^{10}B -based proportional counter installed at the thermal neutron beam line of the ENF (Ex-core Neutron Irradiation Facility) at HANARO.

MCNP6 (Version 1.0, RSICC, Oak Ridge, TN, USA)를 사용하였다. Fig. 4는 전산모사를 통해 수행한 여러 모델 중 검출기 내에 붕소박막이 두 층으로 구성된 모델로서 본 과제에서는 구성된 몬테칼로 전산모사 모델을 이용하여 입사된 중성자와 전도성 붕소박막이 반응하여 발생하는 알파 입자가 검출기 내부 기체와 반응하는 효율을 몬테칼로 전산모사 기법을 통해 나타내었다. 전산모사에서 사용한 중성자선원은 ENF (Ex-core Neutron Irradiation Facility, HANARO, KAERI)에서 발생하는 중성자 빔과 유사하게 나타내기 위해서 2.5 Å 파장의 에너지로 설정하였다. 또한 면적을 가지지 않는 포인트형태로 중성자선원을 모사하였다. 전산모사에서의 기하학적 모델은 제작된 중성자 검출기와 유사하게 모사하였다. 붕소박막의 두께는 실제 제작된 붕소박막의 두께와 동일한 60 μm 두께로 구성하였고 모델의 외벽은 5 mm의 알루미늄으로 설정하였다. 중성자검출기 내부공간은 18 mm의 공간으로 알파입자와 반응하기 위한 Ar(78%)+ CF_4 (2%)+ C_2H_6 (20%)의 혼합기체로 설정하였다. 모델은 1, 2, 4, 8, 10, 12, 14, 16, 18, 20 층까지의 붕소박막을 가지는 총 열한가지로 모델로 구성하였다. 그리고 전산모사 수행 시 충분하지 못한 반복횟수로 인하여 발생될 수 있는 확률적인 오차를 최소화하기 위해서 전산모사의 초기입자수를 10^8 으로 설정하여 수행하였다. 전산모사 결과는 MCNP6의 pulse height tally (F8)을 이용하여 획득하였다. 본 논문에서는 전극사이의 전위차에 의해 발생하는 전기장에 의한 영향에 대한 모사는 수행하지 않았다.

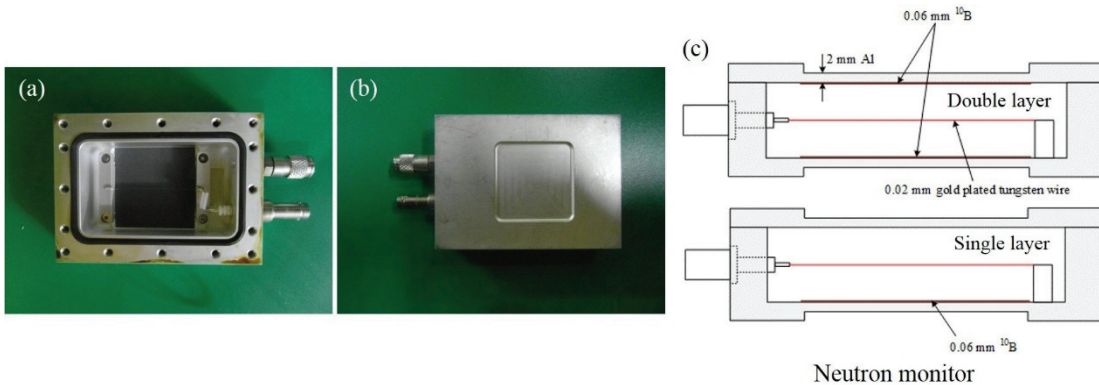


Fig. 6. Test configurations for the proportional counter for neutron detector; (a) internal part, (b) front view, (c) cross-section view.

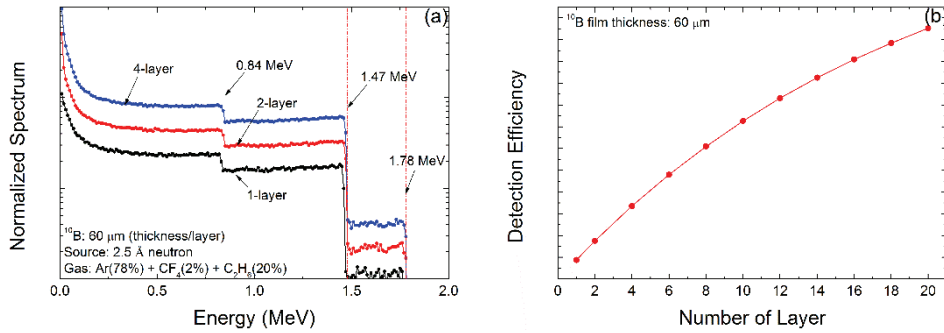


Fig. 7. Detector responses in the Monte Carlo simulations; (a) energy spectra according to number of ¹⁰B thin film, (b) changing curve according to the number of ¹⁰B thin film.

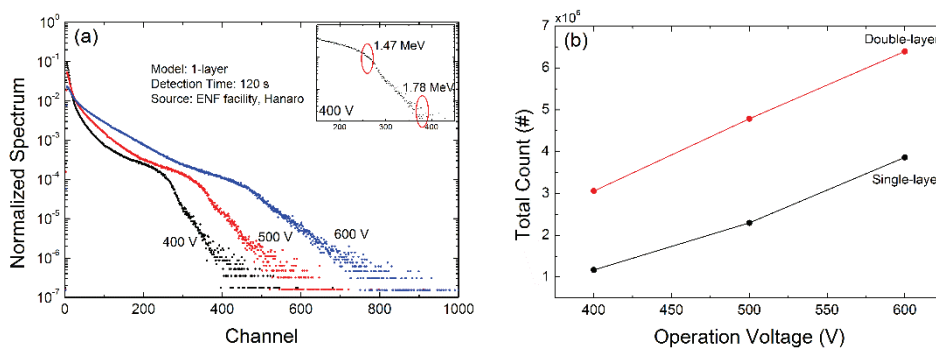


Fig. 8. Detector responses for 120s measurements with single and double layered setup; (a) neutron spectra according to change of anode voltage, (b) changing curve of neutron signal according to number of ¹⁰B thin in the proportional counter.

2.4 ¹⁰B 검출기 제작 및 테스트

앞서 제작된 얇은 붕소박막의 중성자 수집능력을 확인하기 위해 중성자 발생시설인 ENF에서 두 종류의 검출기를 대상으로 테스트를 수행하였다(Fig. 5). 첫 번째 중성자 검출기는 단층의 붕소박막을 검출기의 내벽에 Fig. 6(a), (c)와 같이 부착시킨 형태이고 두 번째는 Fig. 6(a)의 단층 붕소박막을 검출기 내벽뿐만이 아닌 검출기 덮개의 내벽에도 부착시킨 형태이다(Fig. 6(c)). 그러므로 단층 붕소박막을 포함하는 검출기의 중성자 검출 테스트를 통해 제작된 붕소박막이 중성자 검출에 사용하기 적합한지를 판단하였고 두 층의 붕소 박막을 포함하는 검출기에 의한 신호획득 결과를 통해 붕소박막을 다층으로 구성하였을 때 중성자 수집능력이 향상됨을 확인하였다. 검출기 내부는 Fig. 6(c)에서 나타난 것과 같이 기체가 충전 될 공간과 그 사이 중간에 양극으로 사용되는 직경 30 μm 사이즈의 금으로 도금된 텅스텐 와이어가 위치하여 있다. 실험에서 양극선을 통해 검출기 내부의 전기장을 형성시키기 위한 고전압이 인가된다. 검출기에서 출력되는 신호는 전하증폭기(AMP-1CH, Neosis Korea Co., Daejeon, Korea)를 거쳐 MCA (Multi-channel analyzer, MCA 8000A, AmpTek Inc., Bedford, MA, USA)를 통해 측정하였다.

3. 결과

Fig. 7(a)은 몬테칼로 전산모사 수행결과 획득된 에너지 스펙트럼을 나타내고 있다. 결과에 나타난 것과 같이 알파입자와 ⁷Li의 에너지 0.84 MeV, 1.47 MeV, 1.78 MeV가 명확히 나타나며 붕소박막의 수가 증가할수록 각 에너지에서 스펙트럼의 크기는 증가함을 알 수 있다. 전산모사를 통해 가스내에 흡수된 하전입자에 의한 신호수집효율(detection efficiency)을 계산할 수 있다. 신호수집효율은 입사되는 중성자와 붕소박막이 반응하여 생성된 하전입자가 가스내에서 수집될 확률을 나타낸다. Fig. 7(b)는 전산모사를 통해 계산된 1~20 층의 붕소 박막을 포함하는 검출기 모델의 신호수집효율을 나타내고 있다. 그림에서 나타난 것과 같이 박막의 수가 증가함에 따라 신호수집효율은 같이 증가한다. 하지만 박막의 층수가 증가할수록 증가폭은 서서히 감소한다. 이러한 이유는 박막의 수가 증가할수록 중성자의 반응단면적이 증가하여 박막과 반응할 수 있는 중성자의 수가 서서히 감소하기 때문인 것으로 사료된다.

중성자 조사 실험을 통해 획득된 결과는 Fig. 8에서 나타난 것과 같다. Fig. 8 (a)는 단층의 붕소박막으로 이루어진 중성자 검출기의 테스트 결과로 다양한 동작전압에서 120초간의 데이터를 획득한 결과를 나타내고 있다.

동작전압이 400 V의 경우 에너지 스펙트럼에서 나타난 것과 같이 알파입자에 의한 에너지 1.47 MeV와 1.78 MeV의 경계가 명확하지는 않지만 구별 가능하게 나타났다. 하지만 동작전압이 높을수록 알파입자의 에너지 영역의 경계가 서서히 불분명해진다. 이렇게 알파입자에 의한 에너지 영역이 불명확하게 나타나는 가장 큰 이유는 검출기 내부 벽면에 알파입자가 충돌하여 생성되는 wall-effect에 의한 원인으로 사료된다. 또한, 동작전압이 높아지면서 이러한 에너지 영역의 경계가 불확실한 현상이 더욱 증가되었다. Fig. 8(b)는 단일층과 두 층을 가진 검출기에 중성자를 조사하여 계측장치에 측정된 신호의 총 개수(total count)를 나타내고 있다. 신호의 총 개수는 측정된 에너지 스펙트럼을 이용하여 획득하였고 측정된 데이터는 감마선에 의한 영향과 계측기의 노이즈 등을 제거하기 위해 threshold 레벨을 30채널로 설정하였다. 데이터는 앞서 획득한 에너지 스펙트럼과 동일하게 400 V, 500 V, 그리고 600 V의 동작전압에서 120초간 측정되었다. 결과에서 나타난 것과 같이 400 V인 경우 1.17×10^6 (단일층), 3.05×10^6 (두층), 500 V인 경우 2.29×10^6 (단일층), 4.78×10^6 (두층), 600 V인 경우 3.86×10^6 (단일층), 6.39×10^6 (두층)으로 나타났다. 층수가 단일층에서 두층으로 증가함에 따라 수집되는 신호의 총 수는 대략 두 배 증가함을 알 수 있다. 하지만 동작전압이 상승함에 따라 수집되는 신호의 차이가 줄어들게 된다. 이러한 이유는 각 동작전압에서 threshold를 동일하게 설정하여 발생한 현상으로 사료된다.

4. 결론 및 향후 과제

본 연구에서는 리튬이차전지 극판 제조기술을 이용하여 대략 60 μm 두께의 전도성 붕소 박막을 제조하였다. 최적의 붕소 박막을 얻기 위해 다양한 조성을 시도하였고, 이를 통해 ³He 대체 중성자 검출용 붕소박막을 제작하기 위한 다양한 제작조건 정보를 확보할 수 있었다. 그리고 제작된 붕소박막을 이용하여 실제 중성자 검출을 위한 비례계수기를 제작하여 중성자 신호획득 실험을 수행하였으며 중성자 검출기로 적용가능성을 확인하였다. 또한, 효율을 높이기 위한 다층기관에 대한 전산모사와 실제실험을 수행하여 다층 붕소박막을 이용한 높은 효율의 검출기를 제작할 수 있음을 확인하였다. 하지만 정확한 검출기의 효율을 측정하기 위해서는 박막의 수를 증가시키는 등의 추가적인 실험이 필요하다. 또한, 중성자와 붕소 박막이 반응하여 생성되는 하전입자의 손실을 최소화 하기 위해서는 박막의 두께가 10 μm 이하로 제작할 필요가 있다. 그러므로 향후 60 μm 두께인 붕소박막의 두께를 더 얇게 제작하는 연구를 수행하여 생성된 하전입자의 손실을 최소화할 수 있는 고효율의 중성자 검출기 개발에 대해 더 많은 연구를 수행할 것이다.

감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 재원으로 한국연구재단의 원자력연구개발사업 (No. 2012M2A2A6004262)과 2014년 해양수산부 재원으로 한국해양과학기술진흥원의 지원을 받아 수행된 연구입니다.

참고문헌

1. Reilly D, Ensslin N, Smith H Jr, et al. Passive non-destructive assay of nuclear materials. U.S. Nuclear Regulatory Commission, NUREG/CR-5550. 1991.
2. Kouzes RT, Ely JR, Lintereur AT, et al. Neutron detector gamma insensitivity criteria. Pacific Northwest National Laboratory PNNL-18903. 2009.
3. Knoll GF. Slow neutron detection methods. In: Radiation detection and measurement. 3th ed. New York; Wiley & Sons. 2000:505-535.
4. Person TM, Aloise G. Neutron detectors- alternatives to using helium-3. GAO-11-753. Report to Congressional Requesters. Washington. 2011.
5. Shea DA, Morgan D. The Helium-3 shortage: supply, demand, and options for congress. CRSR41419. Congressional Research Service. Washington. 2010.
6. D. Kramer. DOE begins rationing helium3. Phys. Today. 2010;63(22):22-25.
7. Milbrath BD, Peurrung AJ, Bliss M, et al. Radiation detector materials: An overview. J. Mater. Res. 2008;23(10):2561-2581.
8. Kouzes RT, Ely JH, Erikson LE, et al. Neutron detection alternatives to ³He for national security applications. Nucl. Instrum. Meth. A. 2010;623: 1035-1045.
9. Brooks FD. A Scintillation counter with neutron and gamma-ray discriminators. Nucl. Instrum. Meth., 1959;4:151-163.
10. Zaitseva N, Rupert BL, PaweLczak I, et al. Plastic scintillators with efficient neutron/ gamma pulse shape discrimination. Nucl. Instrum. Meth. A. 2012;668: 88-93.
11. Knitel MJ, Dorenbos P, Haas JTM de, et al. LiBaF₃, a thermal neutron scintillator with optimal n- γ discrimination. Nucl. Instrum. Meth. A. 1996; 374:197-201.
12. Wang Z, Morris CL. Multi-layer boron thin-film detectors for neutrons. Nucl. Instrum. Meth. A. 2011;642:323-325.
13. Pasquier A Du, Warren PC, Culver D, et al. Plastic PVDF-HFP electrolyte laminates prepared by a phase-inversion process. Solid State Ionics, 2000; 135:249-257.

The development of conductive ^{10}B thin film for neutron monitoring

Chang Hwy Lim*, Jongyul Kim*, Suhyun Lee*, Yongju Jung†, Young-Hyun Choi*, Cheol-Ha Baek‡, and Myung-Kook Moon*

* Korea Atomic Energy Research Institute, † Korea University of Technology and Education, ‡ Dongseo University

Abstract - In the field of neutron detections, ^3He gas, the so-called “the gold standard,” is the most widely used material for neutron detections because of its high efficiency in neutron capturing. However, from variable causes since early 2009, ^3He is being depleted, which has maintained an upward pressure on its cost. For this reason, the demands for ^3He replacements are rising sharply. Research into neutron converting materials, which has not been used well due to a neutron detection efficiency lower than the efficiency of ^3He , although it can be chosen for use in a neutron detector, has been highlighted again. ^{10}B , which is one of the ^3He replacements, such as BF_3 , ^6Li , ^{10}B , $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S}$, is being researched by various detector development groups owing to a number of advantages such as easy gamma-ray discrimination, non-toxicity, low cost, etc. One of the possible techniques for the detection is an indirect neutron detection method measuring secondary radiation generated by interactions between neutrons and ^{10}B . Because of the mean free path of alpha particle from interactions that are very short in a solid material, the thickness of ^{10}B should be thin. Therefore, to increase the neutron detection efficiency, it is important to make a ^{10}B thin film. In this study, we fabricated a ^{10}B thin film that is about 60 um in thickness for neutron detection using well-known technology for the manufacturing of a thin electrode for use in lithium ion batteries. In addition, by performing simple physical tests on the conductivity, dispersion, adhesion, and flexibility, we confirmed that the physical characteristics of the fabricated ^{10}B thin film are good. Using the fabricated ^{10}B thin film, we made a proportional counter for neutron monitoring and measured the neutron pulse height spectrum at a neutron facility at KAERI. Furthermore, we calculated using the Monte Carlo simulation the change of neutron detection efficiency according to the number of thin film layers. In conclusion, we suggest a fabrication method of a ^{10}B thin film using the technology used in making a thin electrode of lithium ion batteries and made the ^{10}B thin film for neutron detection using suggested method.

Keywords : ^{10}B thin film, Neutron, Proportional counter, MCNP6