Journal of Radiation Industry 10(4) : 167~171(2016)

에너지스펙트럼 분석을 통한 폴리스타이렌 기반 플라스틱 섬광체의 파장쉬프터 비율 최적화

김예원[1] · 문명국[2] · 김명수[1] · 유현준[1] · 이대희[1] · 조규성[1,*]

[1]한국과학기술원 원자력 및 양자 공학과, [2]한국원자력연구원 중성자 계측부

Optimization of the Wavelength Shifter Ratio in a Polystyrene Based Plastic Scintillator through Energy Spectrum Analysis

Yewon Kim[1], Myungkook Moon[2], Myung Soo Kim[1], Hyunjun Yoo[1], Daehee Lee[1] and Gyuseong Cho[1,*]

[1]*Department of Nuclear & Quantum Engineering, KAIST, Daejeon 34141, Republic of Korea*
[2]*Neutron Instrumentation Division, Korea Atomic Energy Research Institute, 111, Daedeok-daero 989beon-gil, Yuseong-gu, Daejeon 34057, Republic of Korea*

Abstract - The scintillation efficiency of the polystyrene based plastic scintillator depends on the ratio of the wavelength shifters, organic fluors (PPO and POPOP). Thus, 24 samples of the plastic scintillator were fabricated in order to find out the optimum ratio of the wavelength shifters in the plastic scintillator. The fabricated plastic scintillators were trimmed through a cutting and polishing process. They were used in gamma energy spectrum measurement with the ^{137}Cs emitting mono-energy photon with 662 keV for the comparison of the scintillation efficiency. As a result, it was found out that the scintillator sample with 1.00 g of PPO (2,5-Diphenyloxazole) and 0.50 g of POPOP (1,4-Bis(5-phnyl-2oxidazolyl)benzene) dissolved in 100 g of styrene solution has the optimum ratio in terms of the light yield of the polystyrene based plastic scintillator.

Key words : Plastic scintillator, Polystyrene, Energy spectrum, Wavelength shifter

서 론

플라스틱 섬광체와 일반적으로 많이 사용되는 CsI(Tl)와 같은 무기섬광체는 매우 다른 발광 특성을 갖고 있다. 탄소와 수소와 같이 상대적으로 낮은 원자번호를 가진 원소로 이루어진 플라스틱 섬광체의 저지능(Stopping power)과 발광효율(Light yield)은 무기섬광체에 비해 작다(Kim *et al*. 2015). 하지만 플라스틱 섬광체는 다양한 모양으로 제작될 수 있을 뿐만 아니라 제작과정이 간단하기 때문에 유기섬광체의 한가지로 용이하게 사용될 수 있다(Knoll 2010). 또한 플라스틱 섬광체의 재료는 가격면에서도 무기섬광체에 비해 상당히 저렴하고 원하는 부피의 사이즈로 제작이 용이하기 때문에 무기섬광체에 비해 작은 발광효율을 가짐에도 불구하고 방사선포털모니터와 같은 대면적 방사선 모니터링 장치의 섬광체로 널리 사용되고 있으며, 빠른 감쇠시간(Decay time)과 조직 등가 물질(Tissue equivalent material)이라는 장점도 가지고 있어 방사선선량측정에도 사용되고 있다(Kim *et al*. 2015; Kim *et al*. 2016).

하전 입자가 폴리스타이렌 기반의 플라스틱 섬광체에 입사하게 되면 쿨롱상호작용에 의해 입자의 일부에너지가 전달된다. 전달된 에너지는 폴리스타이렌 분자가 들뜨게 되고

* Corresponding author: Gyuseong Cho, Tel. +82-42-350-3861, Fax. +82-42-350-5861, E-mail. gscho@kaist.ac.kr

Table 1. PPO and POPOP ratio regarding to the 100 g of styrene solution for plastic scintillator fabrication

Sample	1-1	1-2	1-3	2-1	2-2	2-3	3-1	3-2	3-3	4-1	4-2	4-3
SM	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
PPO	0.10	0.10	0.10	0.20	0.20	0.20	0.50	0.50	0.50	1.00	1.00	1.00
POPOP	0.01	0.05	0.10	0.01	0.05	0.10	0.01	0.05	0.10	0.01	0.05	0.10
Sample	5-1	5-2	5-3	6-1	6-2	6-3	7-1	7-2	7-3	8-1	8-2	8-3
SM	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
PPO	1.00	2.00	5.00	1.00	2.00	5.00	1.00	2.00	5.00	1.00	2.00	5.00
POPOP	0.10	0.10	0.10	0.20	0.20	0.20	0.50	0.50	0.50	1.00	1.00	1.00

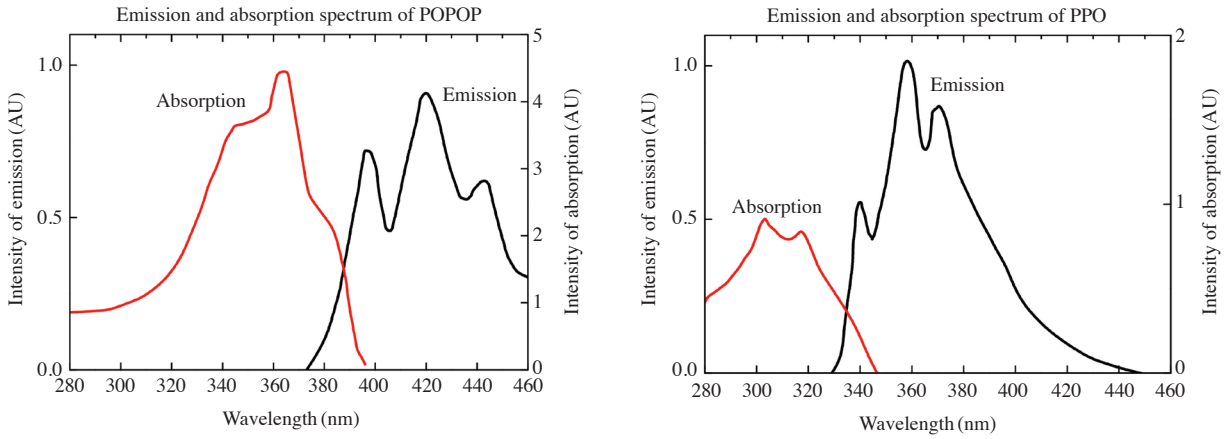

Fig. 1. The absorption wavelength (red) and emission wavelength (black) of PPO and POPOP. The regions of the two wavelengths overlap in part and the photons absorbed by the wavelength shifter emit at relatively long wavelengths with low energies due to the Stoke's shift (Lakowicz *et al*. 2008).

다시 바닥상태로 돌아오면서 이에 상응하는 에너지의 광자를 방출하게 된다(박 등 2004). 이때 광자의 파장은 약 300 nm 정도의 자외선이며 대부분의 방출된 자외선은 폴리스타이렌에 의해 재흡수 된다. 하지만 이때 파장을 변경해줄 수 있는 파장쉬프터를 폴리스타이렌 내부에 균일하게 첨가하면 폴리스타이렌에서 방출된 자외선이 파장쉬프터에서 흡수하고 스토크 쉬프트(Stoke's shift)에 의해 상대적으로 긴 파장으로 전환된다. 결과적으로 하전 입자가 플라스틱에 입사하게 되면 플라스틱 섬광체에서는 가시광선 영역의 빛을 방출하게 된다. 이때 사용되는 파장쉬프터는 PPO와 POPOP가 사용되는데 이 물질들은 자외선영역의 빛을 흡수하고 약 455 nm의 파란색 파장을 방출한다.

폴리스타이렌 기반의 플라스틱 섬광체에 첨가되는 파장쉬프터, PPO와 POPOP는 흡수 파장과 발광 파장이 Fig. 1과 같이 서로 다른 파장에 위치하고 있지만 일부 영역이 겹쳐져 있고 흡수량과 발광량이 서로 다르다. 따라서 파장쉬프터를 포함하는 플라스틱 섬광체의 발광량은 섬광체에 첨가되는 파장쉬프터의 양에 의해 조절된다. 하지만 첨가 물질의 양이 과다하게 되면 자체적인 광자의 흡수에 의해 발광량이 감소하는 결과를 낳을 수 있으며, 상대적으로 너무 적은 양의 첨가 물질이 포함될 경우 폴리스타이렌으로부터 발생된 자외선이 파장쉬프터에 흡수될 확률이 적어지고 폴리스타이렌 자체에 흡수될 확률이 높아지므로 섬광체의 발광량이 감소한다(박 등 2004). 따라서 최적의 발광량을 찾기 위해서는 첨가되는 파장쉬프터 양의 최적화가 필요하다. 고에너지 측정 물리학 실험을 위해 국내외 논문에서 파장 쉬프터의 비율에 의한 파장과 발광량의 변화를 측정하는 연구가 진행되었다(박 등 2004). 하지만 플라스틱 섬광제의 중합과정에서 생겨난 열에 의한 스타이렌 솔루션의 증발로 스타이렌 솔루션이 상대적으로 감소하게 되지만 이를 고려하지 않은 연구들이 진행되었다.

이 논문에서는 24가지의 서로 다른 파장쉬프터 첨가 비율에 따른 폴리스타이렌 기반의 플라스틱 섬광체를 제작하였으며 중합 과정에서 열에 의한 스타이렌의 증발을 차단하여 일정한 비율이 유지되도록 하였으며 제작된 섬광체의 성분비에 따른 에너지스펙트럼을 측정하여 최적 비율을 찾고자 했다.

재료 및 방법

1. 플라스틱 섬광체 제작

본 논문에서 제작된 폴리스타이렌 기반의 플라스틱 섬광

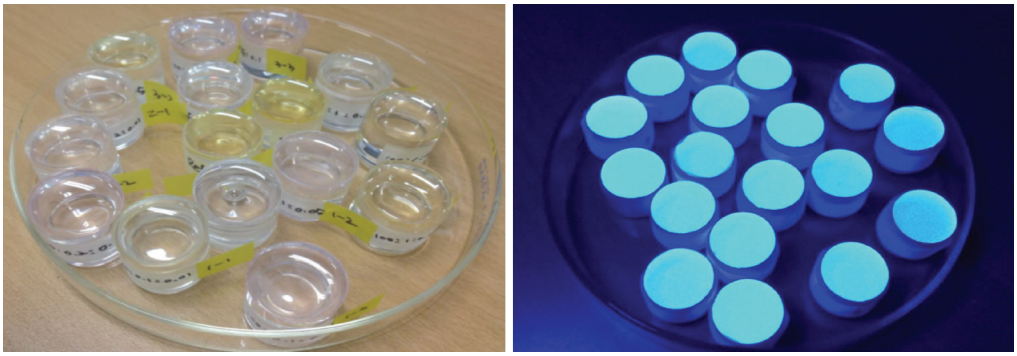

Fig. 2. Fabricated plastic scintillator (right) and visible light emission of 455 nm wavelength by ultraviolet irradiation of fabricated polystyrene-based plastic scintillator (left).

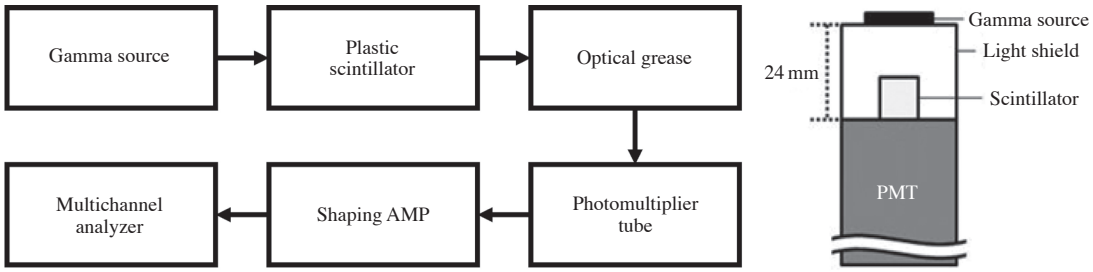

Fig. 3. Signal flow chart for energy spectrum measurement of plastic scintillator (left) and the experimental configuration diagram (right).

체 제작에는 파장쉬프터의 용매이자 섬광체의 기반이 되는 스타이렌 용매 (Styrene solution)와 2종의 파장쉬프터 (PPO, POPOP)가 사용되었다. 섬광 효율이 최대가 될 수 있는 최적의 비율을 찾기 위해 Table 1과 같이 24종의 서로 다른 파장쉬프터의 비율을 갖는 플라스틱 섬광체를 제작하였다. POPOP는 PPO와는 달리 스타이렌 용매에서 잘 용해되지 않으므로 혼합물이 증발하지 않도록 외부 공기와 차단한 채 전자식 교반기 (Electric stirrer)를 이용하여 약 60°C에서 2시간 가량 충분히 교반하였다. 교반을 마친 혼합물은 120°C로 가열된 오븐에서 36시간 동안 충분한 열 중합을 마친 후, 급속한 열 수축을 방지하기 위해 36시간 동안 천천히 냉각시켰다. 제작된 원통형 섬광체는 서로 같은 사이즈를 갖도록 커팅머신 (Cutting machine)을 이용하여 절단하였으며, 표면의 굴곡에 의해 섬광체 내부에서 방출된 광자가 산란되는 것을 방지하기 위해 겉면은 모두 폴리싱머신 (Polishing machine)과 2 μm의 평균 입자 크기를 갖는 다이아몬드 연마재를 사용하여 폴리싱하였다. 폴리싱을 마친 섬광체는 내부에서 발생한 빛이 한 면으로만 빛이 방출 될 수 있도록 반사체로 사용되는 PTFE테이프를 이용하여 한 면을 제외하고 모두 둘러 쌌다.

2. 플라스틱 섬광체의 감마 에너지 스펙트럼 측정

제작된 플라스틱 섬광체의 에너지 스펙트럼 측정을 위해 Fig. 3과 같이 실험장비를 구성했다. 플라스틱 섬광체를 광전자증배관 (Photo-multiplier tube, PMT (H6410, Hamamatsu))의 윈도우글래스 (Window glass)에 위치하도록 하고 섬광체와 윈도우글래스 사이의 굴절률 차이에 의한 반사를 줄이기 위해 광학그리스 (Optical grease)를 이용하여 섬광체를 광전자증배관의 윈도우글래스에 부착하였다. 실험 중 광전자증배관으로 유입되는 빛을 차단하기 위해 플라스틱으로 제작한 차광체 (Light shield)를 이용하여 차단하였으며, 45 uCi방사능을 가진 교정용 감마선원 (^{137}Cs)을 차광체 위에 위치하도록 하고 선원에서 방출된 방사선을 7200초 동안 측정하였다. PMT에서 발생한 신호는 정형증폭기 (Shaping amplifier (673, Spectroscopy amplifier and gated integrator, ORTEC))에서 증폭과 신호의 정형을 거쳐 다채널파고분석기 (Multi-channel analyzer, MCA (MCA8000D, Amptek))를 이용하여 전달된 신호를 에너지별로 분석하였다.

결 과

Figs. 4, 5에서 나타낸 바와 같이 제작된 플라스틱 섬광체를 이용하여 ^{137}Cs 선원에서 방출하는 662 keV의 단일 에너지 감마선의 에너지 스펙트럼을 측정했을 때, 가장 많은 빛을 방출하는 섬광체는 100 g의 스타이렌 용매 기준, PPO가

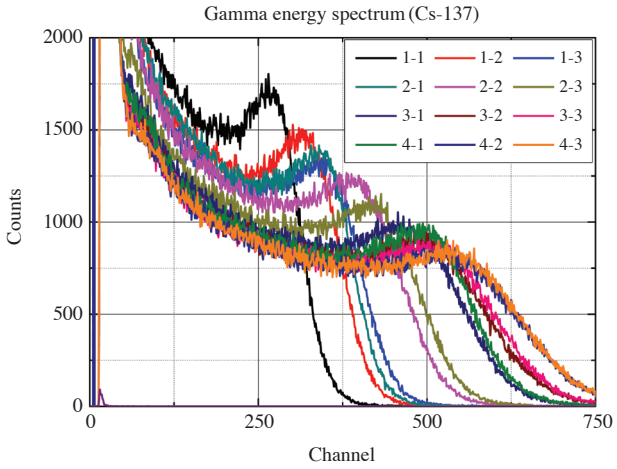

Fig. 4. The gamma energy spectrum of ^{137}Cs measured using the plastic scintillators of Samples 1-1 to 4-3.

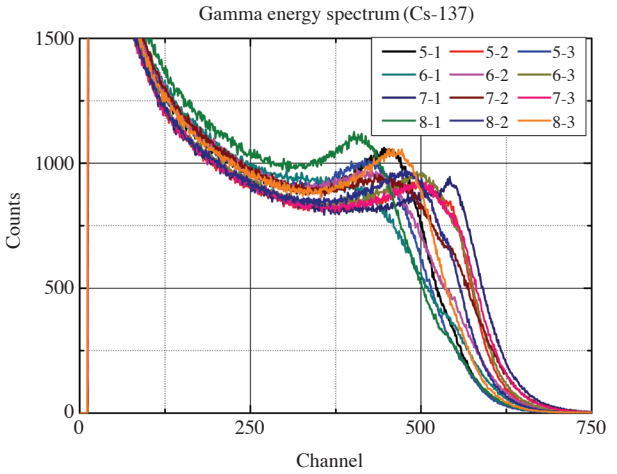

Fig. 5. The gamma energy spectrum of ^{137}Cs measured using the plastic scintillators of Samples 5-1 to 8-3.

1.00 g, POPOP 0.50 g가 포함된 샘플이었다.

고 찰

Fig. 4에서는 Table 1에서 나타낸 샘플 1-1부터 4-3까지 12가지 샘플의 에너지스펙트럼을 나타내었다. 샘플 번호 1-1부터 4-3까지의 경우, PPO, POPOP의 양이 늘어감에 따라 컴프턴 에지(Compton edge)가 그래프 채널의 오른쪽으로 이동하는 것을 확인할 수 있다. 감마선에 의해 폴리스타이렌에서 발생한 300 nm 영역의 자외선이 파장쉬프터에 흡수되어 긴 파장의 가시광선이 방출되는데, 컴프턴 에지가 채널의 오른쪽으로 이동한다는 것은 파장쉬프터에서 발생된 가시광선의 양이 증가하는 것을 의미하므로 파장쉬프터에 흡수되는 자외선의 양이 증가하고 있음을 알 수 있다. 따라서 1-1부터 4-3까지 총 12종의 샘플에서 플라스틱 섬광체 내의 PPO와 POPOP의 비율이 상대적으로 작아서 폴리스타이렌에서 방출되는 자외선을 모두 흡수하기에는 부족하다는 것을 확인할 수 있다.

Fig. 5에서는 Table 1에서 나타낸 샘플 5-1부터 8-3까지 12가지 샘플의 에너지스펙트럼을 나타내었다. Fig. 4와 달리 Fig. 5에 나타낸 그래프는 섬광체 샘플의 스펙트럼에서 컴프턴 에지의 이동 폭이 작고 파장쉬프터 양의 증가함에 따라 스펙트럼이 높은 채널 방향으로 쉬프팅 되는 경향이 없어졌다. 이것은 폴리스타이렌에서 방출된 자외선을 모두 흡수하여 가시광선으로 변환시킬 수 있을 만큼 파장쉬프터의 양이 섬광체에 충분히 포함되어 더 이상 발광량이 증가할 수 없다는 것을 의미한다. Fig. 5의 스펙트럼은 Fig. 4의 스펙트럼보다 변화의 폭이 작기 때문에 파장쉬프터의 양에 따른 스펙트럼의 변화를 확인하기 위해서는 Fig. 4 스펙트럼의 측정시간보다 더 오랜 시간 동안 측정하여 변화를 확인하고자 했다. Fig. 4와 Fig. 5를 서로 비교하기 위해 4-3샘플과 5-1 샘플은 같은 비율로 제작된 같은 섬광체로 측정하였다.

Fig. 5의 그래프에서는 파장쉬프터 양의 증가에도 컴프턴 에지의 위치가 더 이상 오른쪽으로만 쉬프팅 되지는 않는 것을 확인할 수가 있다. 위에서 언급한 바와 같이 폴리스타이렌에서 발생한 자외선이 파장쉬프터에 최대한 흡수될 수 있는 농도에 도달하여 파장쉬프터의 양이 그 이상으로 증가할 경우 발생된 빛을 스스로 흡수하기 때문에 오히려 컴프턴 에지의 위치가 낮은 채널 방향으로 이동하는 것을 확인할 수가 있다.

이 실험 결과를 통해 폴리스타이렌 기반의 플라스틱 섬광체 제작의 최적 파장쉬프터의 농도를 가진 샘플은 7-1샘플이었으며 이 샘플의 파장쉬프터 농도는 스타이렌 용매 100 g일 때 PPO 1.00 g, POPOP 0.50 g였다.

결 론

파장쉬프터의 양에 따라 플라스틱 섬광체의 섬광 효율이 달라지므로 파장쉬프터의 농도 최적화를 위한 실험을 수행하였다. 이를 위해 24종의 서로 다른 비율을 가진 플라스틱 섬광체를 제작하였으며 제작된 섬광체를 이용하여 ^{137}Cs 선원의 에너지 스펙트럼을 측정, 분석하였다. 섬광체 중합과정에서 생기는 열에 의해 스타이렌 단량체가 증발하지 않도록 밀봉하여 첨가 비율이 일정하도록 유지하였다. 그 결과, PPO, POPOP가 파장쉬프터로 사용되는 폴리스타이렌 기반의 플라스틱 섬광체의 최적 비율은 스타이렌 용매 100 g 기준으로 PPO 1.00 g, POPOP 0.50 g인 것을 확인 하였다. 이번 연구를 통해 폴리스타이렌 기반의 플라스틱 섬광체를 사용하는 방사선 포털 모니터, 플라스틱 섬광형 케이블 분야와

같은 방사선 검출 장치 개발에 도움이 될 것이라고 기대한다. 또한 UV-spectrometer를 이용한 섬광체별 자외선의 흡수율과 가시광선 투과율을 이용하여 scintillation efficiency와 wavelength shifter ratio 간의 상관관계를 분석하고 비율의 최적화를 통해 폴리스타이렌 기반의 플라스틱 섬광체 제작에 관한 연구를 진행하고자 한다.

사 사

본 연구는 미래창조과학부 지원으로 수행되었습니다 (NRF-2015M2A8A4047136).

참 고 문 헌

박진용, 황상훈, 안정근, 2004. 원통형 섬광 플라스틱 검출기 제작 및 특성 연구. 새물리. 48(6): 606-610.

Kim C, Kim C, Yoo H, Kim Y, Moon M, Kim JY, Kang DU, Lee D, Kim M, Cho M and Lee E. 2016. Calculation of Gamma Spectra in a Plastic Scintillator for Energy Calibration and Dose Computation. Radiation protection dosimetry. Oxford. 1-5.

Kim YW, Yoo HJ, Kim CK, Lim KT, Moon MK, Kim JY and Cho GS. 2015. PLASTIC SCINTILLATOR FOR RADIATION DOSIMETRY. Radiation protection dosimetry. Oxford. 1-4.

Knoll G. 2010. Scintillation Detector Principle (Plastic scintillator). In: Knoll G. Radiation detection and measurement. Third ED. John Wiley & Sons. 223-224.

Lakowicz, Joseph R and Barry R. Masters. 2008. Introduction of Fluorescence. pp. 1-21. In: Principles of fluorescence spectroscopy (Lakowicz, Joseph R. and Barry R. Masters). Journal of Biomedical Optics.

Received: 6 September 2016
Revised: 31 October 2016
Revision accepted: 5 November 2016