

하나로 연구용 원자로의 조사공 NAA #1에서의 시간과 위치에
따른 열 중성자속의 측정

Investigation of Thermal Neutron Flux with Irradiation Time and
Position for NAA #1 Irradiation Hole of HANARO Research
Reactor

김선하, 문종화, 정용삼
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

하나로 연구용 원자로의 중성자방사화분석용 조사공인 NAA #1에서 시간에 따른 열 중성자속의 일일 및 운전주기동안의 변동과 조사용 캡슐내에서의 모니터의 높이별 위치에 따른 차이를 측정하였다. 모니터들은 시간에 따라 정해진 래빗속 위치에서 동일한 조건으로 중성자 조사되었고, 모두 동일한 조건에서 방사능을 측정하였다. 측정결과로부터, 시간에 따른 열 중성자속은 약 4.3 % 상대표준편차를 보였으며 래빗 내부의 위치에 따른 차이는 하단의 측정값을 기준으로 상단의 측정값이 약 3.4 %가 낮은 것으로 나타났다. 또한 위치에 따른 차이는 래빗의 하단으로부터 약 3 ~ 5 cm의 높이에서 조금 증가하였고, 7 cm 이상의 높이에서는 감소하였다.

Abstract

The daily and operation periodic variation of thermal neutron fluxes with time and vertical position of monitors in a rabbit for NAA #1 irradiation hole of HANARO research reactor was measured. Monitors were irradiated at the pre-fixed position in a rabbit and activities were evaluated under the same condition. As a result, thermal neutron flux with time shows 4.3 % of relative standard deviation. Thermal neutron flux on the top of rabbit is 3.4 % lower than that on the bottom of rabbit. In addition, thermal neutron flux at 3 ~ 5 cm higher position from the bottom of rabbit is increased and position over 7 cm is reduced.

1. 서 론

중성자방사화분석법은 중성자와 물질의 핵반응에 의하여 생성된 방사성 핵종으로부터 방출되는 방사선의 방사능을 측정하여 성분원소를 정량하는 방법이다. 측정과정은 시료준비, 중성자조사, 방사선 계측 및 데이터 해석단계를 거치며 각 단계에서 측정불확도 요인을 포함한다. 정량값의 정확도에 영향을 미치는 주요 인자로는 감마선 분광장치의 검출효율값, 조사공의 중성자 분포 및 중성자 속의 변동, 시료의 기하학적인 형태, 핵 데이터 및 각종 간섭 등이 있으며 이들을 적절한 방법으로 보정하거나 불확도 인자로서 포함되어야 한다[1,2]. 특히, 조사공의 중성자 속 변동은 원자로 운전조건에 따라 변할 수 있으며 실험적인 측정만이 가능하다. 현재 하나로 연구용 원자로에서 중성자방사화분석용으로 사용되고 있는 NAA #1 조사공은 원자로의 중심부에서 76.3 cm 떨어진 곳에 위치하고 있으며 매우 높은 카드뮴비($R_{Cd,Au-198} \approx 80$)를 갖고 있으며 열 중성자속과 열외 중성자속의 비율은 1000 이상으로 매우 높은 열 중성자비를 갖는 특성을 나타내고 있어[3] 열 중성자방사화분석에 아주 적합하지만 정확한 중성자속과 변동의 측정은 필수적이다. 한편 시료의 조사를 위해 사용하고 있는 조사용 래빗은 내경 2.4 cm, 높이 7.6 cm인 원통형의 폴리에틸렌 재질로 되어있으며 조사할 시료의 양에 따라 조사캡슐내 시료의 기하학적 배열이 다를 수 있기 때문에 조사위치에 따른 중성자속의 차이도 정량값의 정확도에 영향을 준다. 본 연구는 NAA #1 조사공의 시간에 따른 변동과 위치에 따른 차이를 실험적으로 측정하고자 하였다.

2. 실 험

2.1 모니터의 준비

열 중성자속의 변동을 측정하기 위해 R/X사의 Au-Al 선(Au 0.112 %, 직경 0.508 mm)을 모니터로 사용하였다. 중성자 조사를 위하여 우선 Au-Al선들을 약 1cm 길이로 절단하고 직경 3 mm 정도의 원형으로 만든 후에 교정을 필한 Mettler사의 Toledo 저울(하한측정값 : 1 μ g)을 사용하여 무게를 측정하여 기록하였다. 측정된 모니터들의 무게범위는 대부분 7 ~ 9 mg 으로서 적당한 생성방사능을 고려한 것이며 무게측정시의 오차는 0.2 % 이내 이었다. 각각의 무게측정이 끝난 모니터들은 시간에 따른 변동과 위치에 따른 차이를 측정하기 위하여 조사용 래빗 내부의 최하단의 중앙과 최상단의 중앙에 테이프로 고정시켰다. 또한 캡슐내 높이위치에 따른 차이를 세밀히 측정해 보기 위하여 약 1 cm 간격의 높이로 8개의 모니터를 한 래빗안에 준비하였으며 래빗의 하부로부터 일련번호를 부여하였다.

2.2 중성자 조사

준비된 모니터들은 열출력 24 MW로 운전중(운전주기 8월 9일부터 8월 23일 까지)인 하나로 연구용 원자로의 NAA #1 조사공에 각각 10분씩 중성자 조사하였다. 래빗의 이송은 질소가스를 이용한 공압이송장치를 사용하였다. 래빗의 입, 인출시의 시간변동은 1초 이내로서 10분의 조사시간에 대한 오차는 0.2 % 이내가 된다. 일일변동과 래빗 상하에

서의 차이를 측정하기 위해 2002년 8월 21일에 오전 9시부터 6시까지 적당한 시간간격을 두고 14개의 래빗을 조사하였다. 또한 운전주기 동안의 변동을 알아보기 위해 2002년 8월 9일에서 8월 23일까지 36개의 래빗을 조사하였다. 래빗내 높이위치별 차이를 측정하기 위해 5개의 래빗을 2002년 8월 21일에 10분간 조사하였다.

2.3 방사능 측정 및 계산

방사화 된 Au-Al 모니터들의 방사능 계측을 위해 고순도 게르마늄 검출기와 다 채널 파고분석장치(EG & G ORTEC, GEM 20180)를 사용하였고, Au-198의 411 keV 감마선을 측정하였다. 모든 모니터들은 검출기 상단으로부터 7 cm 떨어진 동일한 위치에서 자동시료교환장치를 사용하여 2000초 동안 측정하였다. Au-198의 411 keV 감마선의 계측 오차는 0.2 % 이하로 나타났으며, 검출효율은 Isotope Products Lab.사의 표준선원을 사용하여 결정하였다. 측정된 방사능으로부터 열 중성자속은 아래의 수식을 사용하여 계산하였으며 높은 카드뮴비를 고려하여 열외 중성자반응에 대한 기여는 절대값 측정이 아니므로 무시하였다.

$$\Phi_{th} = (W/AM) N_A f \sigma_0 \nu SDC$$

Φ_{th} : Thermal Neutron Flux, $n/cm^2 \cdot sec$

A : 방사능(Bq)

ν : Au-198 핵종의 감마선 방출비, 95.51 %(0.9551)

W : Au 모니터의 무게, gram

M : Au의 원자량, 197.0 gram/mole

N_A : 아보가드로 수, 6.023×10^{23} 개/mole

f : Au-197의 동위원소 존재비, 100 %(1.0)

σ_0 : (n, ν) cross-section (cm^2) at 2200 m/sec, 98.8 barn

λ : decay constant ($\ln 2/T_{1/2}$), $T_{1/2} = 2.7$ 일

S : 포화계수, $(1 - e^{-\lambda t_{irra}})$, t_{irra} : 조사시간

D : 냉각시간 보정계수, $e^{-\lambda t_d}$, t_d : 냉각시간

C : 계측시간 보정계수

3. 결과 및 고찰

3.1 시간에 따른 열 중성자속의 변동

14개의 래빗을 2002년 8월 21일에 중성자 조사하여 열 중성자의 일일변동을 측정한 결과를 Table 1에 나타내었다. 래빗의 하단에서 측정된 열 중성자속의 평균과 표준편차는 $3.05 \pm 0.07 \times 10^{13} n/cm^2 \cdot sec$ 로 2.2 %의 상대표준편차를 나타냈으며 래빗의 최상단에서는 $2.95 \pm 0.04 \times 10^{13} n/cm^2 \cdot sec$ 로 1.4 %의 상대표준편차를 나타냈다. 래빗 하단의

열 중성자속이 래빗 상단보다 높게 측정되었으며 평균 3.4 %가 높은 것으로 측정되었다. 일일측정에서 열 중성자속의 최소값과 최대값은 래빗 하단에서는 $2.98 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 과 $3.22 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 였으며 래빗 상단에서는 $2.85 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 과 $3.01 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 로 측정되었다. 즉 이들의 최대 변동폭은 최대값에 대하여 하단에서는 7.4 %, 상단에서는 5.3% 의 편차를 보였다. 또한 운전주기 동안의 변동을 알아보기 위해 2002년 8월 9일에서 8월 23일까지 36개의 래빗을 조사한 결과를 Fig. 1에 나타내었다. 래빗의 바닥에서 측정된 열 중성자속은 $2.97 \pm 0.14 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 로 4.5 %의 상대 표준편차를 나타냈으며 래빗의 마개에서는 $2.87 \pm 0.11 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 로 4.0 %의 상대 표준편차를 나타내 일일 변동보다 크게 나타났다. 래빗 바닥에서의 열중성자속이 평균 3.4 %가 높은 것으로 측정되어 일일변동의 실험과 동일한 결과를 보였다. 주기측정에서 열 중성자속의 최소값과 최대값은 래빗 하단에서는 $2.71 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 과 $3.24 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 였으며 래빗 상단에서는 $2.59 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 과 $3.02 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 로서 최대 변동폭은 최대값에 대하여 하단에서는 16.4 %, 상단에서는 14.2 % 이며 상단과 하단을 구분하지 않는다면 20.1 %의 큰 편차를 보였다.

3.2 위치에 따른 열 중성자속의 차이

래빗내 높이위치에 따른 열 중성자속의 분포를 측정하기 위해 5개의 래빗에 대한 결과를 Table 2에 나타내었다. 8개 위치에서의 열 중성자속의 분포는 래빗의 상부에서 낮게 측정되었으며 평균값에 대하여 0.96 ~ 2.94 %의 상대 표준편차를 보였다. 또한 최대값과 최소값의 차이는 최대값에 대하여 2.7 ~ 8.0 % 범위의 편차를 나타냈다. Fig. 2에는 높이에 따라 측정된 평균 열 중성자속의 차이를 나타내었다. Fig. 2로 부터 래빗 바닥으로부터 3 ~ 5 cm 의 높이에서 열 중성자속이 다른 위치보다 조금 높고 래빗 상부가 가장 낮은 것을 알 수 있으며 열 중성자속의 변동값은 래빗 하부로 갈수록 높아지는 경향을 보였다.

4. 결 론

중성자방사화분석용 조사공인 NAA #1에서 시간에 따른 열 중성자속의 변동과 조사용 래빗내에서의 높이별 위치에 따른 차이를 실험적으로 측정하였다. 시간에 따른 열 중성자속은 운전주기동안의 변동값이 일일 변동값보다 크게 측정되었으며 위치에 따라서는 래빗의 바닥으로부터 약 3 ~ 5 cm의 높이에서 조금 높게, 상부에서는 낮게 측정되었다. 이상의 결과들은 실제시료의 분석시에 불확도 인자로 수용하거나 실험적인 보정이 요구된다. 또한 주기적인 재 측정에 의하여 지속적인 편측이 필요하다.

사사 : 본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

- [1] D. De Soete, R. Gijbels, J. Hoste, "Neutron Activation Analysis", 447-498, Wiley-Interscience.
- [2] J. Kucera, P. Bode, V. Stepanek, "The 1993 ISO Guide to the expression of uncertainty in measurement applied to NAA", *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 245, No. 1, 115-122, (2000)
- [3] 문중화, 정용삼, 김선하, "The Review of Instrumental Neutron Activation Analysis by k0-standardization method", *Analytical Science and Technology*, Vol. 14, No. 4, 75A-81A, (2001)

Table 1. Theraml neutron flux variation of NAA #1 irradiation hole for a day.

Run No.	Start time of Irradiation (2002-08-21)	Top of rabbit ($\times 10^{13}$ n/cm ² · sec)	Bottom of rabbit ($\times 10^{13}$ n/cm ² · sec)	Difference between top and bottom ($\times 10^{11}$ n/cm ² · sec)
1	09 : 02 AM	2.94	3.00	5.93
2	09 : 13 AM	2.94	3.00	5.40
3	10 : 10 AM	2.95	3.02	6.60
4	11 : 10 AM	2.85	2.98	12.6
5	11 : 44 AM	2.92	3.03	10.7
6	12 : 57 PM	2.92	3.03	11.1
7	01 : 10 PM	2.94	3.22	28.2
8	02 : 10 PM	3.01	3.09	8.32
9	03 : 10 PM	2.97	2.99	2.60
10	04 : 10 PM	2.91	3.04	12.6
11	04 : 50 PM	2.94	3.11	17.3
12	05 : 10 PM	2.99	3.11	11.8
13	05 : 36 PM	2.99	3.02	3.10
14	05 : 51 PM	3.00	3.11	11.8
Mean		2.95	3.05	10.6
Standard deviation		0.04	0.07	6.55
RSD*(%)		1.4	2.2	61.8
Minimum		2.85	2.98	2.60
Maximum		3.01	3.22	28.2

* stands for relative standard deviation

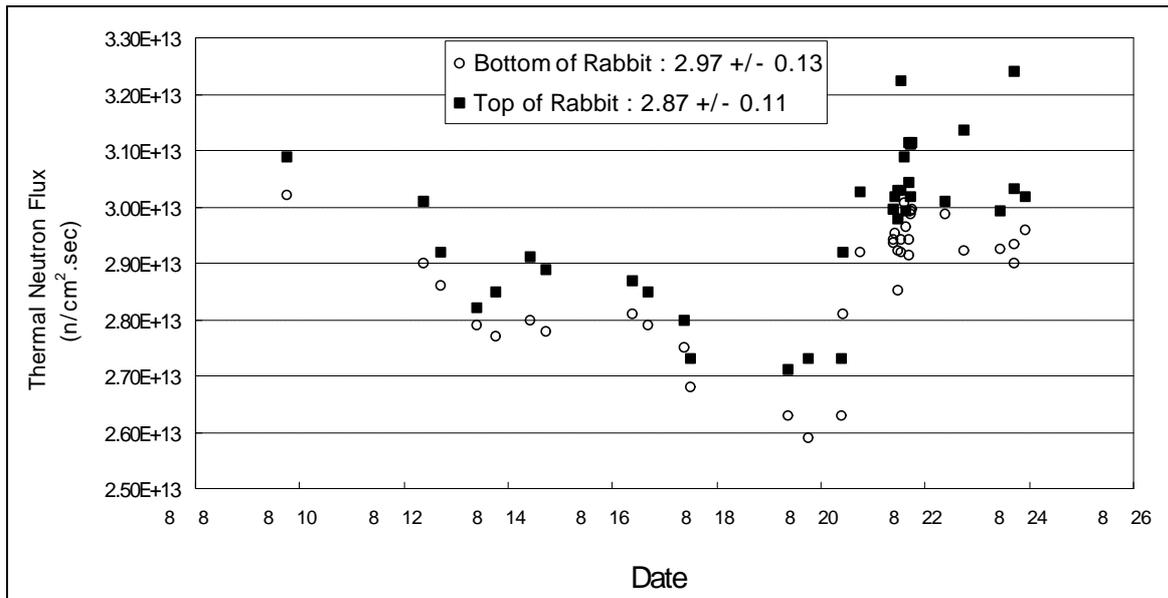


Fig. 1. Thermal neutron flux variation of NAA #1 irradiation hole during a operation period of HANARO research reactor.

Table 2. Distribution of thermal neutron flux with monitor positions in a rabbit at NAA #1 irradiation hole for a day.(Unit : $\times 10^{13}$ n/cm² · sec)

Position	Rabbit 1	Rabbit 2	Rabbit 3	Rabbit 4	Rabbit 5
1	3.04	2.89	2.96	2.99	3.04
2	3.05	2.94	2.95	3.01	3.05
3	3.06	2.94	2.95	3.01	3.07
4	3.10	2.98	2.96	2.99	3.02
5	3.06	2.97	2.96	3.05	2.99
6	3.03	3.00	2.93	3.01	2.97
7	2.95	2.96	2.88	2.95	2.95
8	2.85	2.90	2.91	2.94	2.90
Mean	3.02	2.95	2.94	2.99	3.00
SD*	0.08	0.04	0.03	0.04	0.06
RSD**(%)	2.63	1.34	0.96	1.18	1.87
Minimum	2.85	2.89	2.88	2.94	2.90
Maximum	3.10	3.00	2.96	3.05	3.07
Deviation(%)	8.1	3.7	2.7	3.6	5.5

* and ** stand for standard deviation and relative standard deviation, respectively

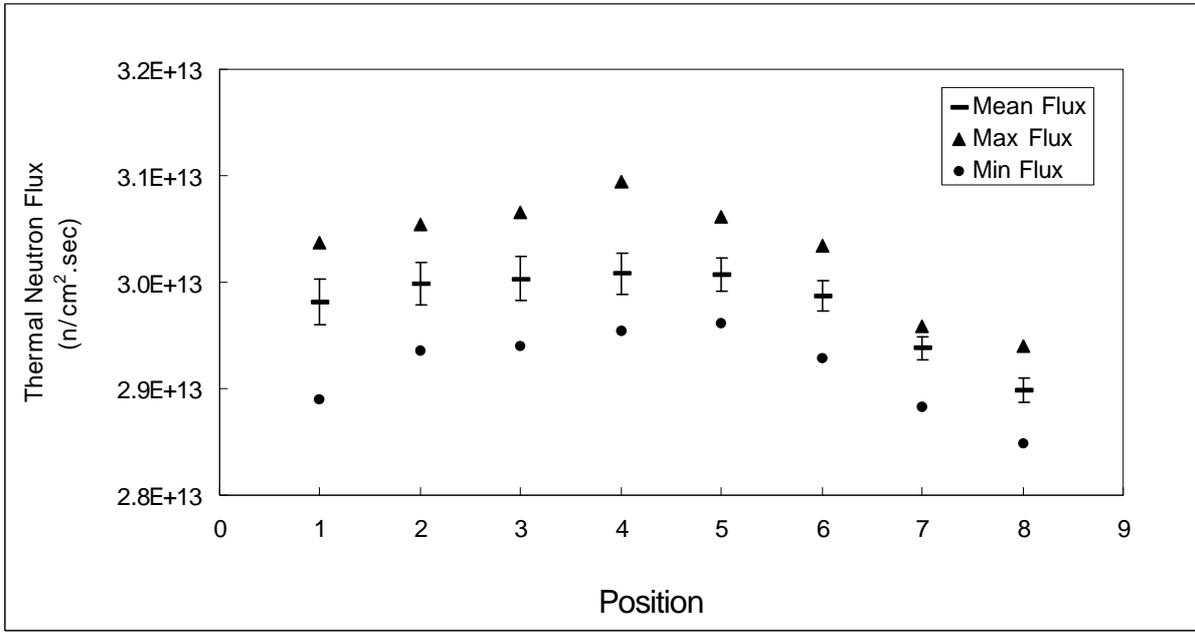


Fig. 2. Variation of thermal neutron flux with monitor positions in rabbits at NAA #1 irradiation hole for a day.