

하나로 즉발 감마 중성자 방사화 분석장치의 중성자빔 특성

Neutron Beam Characteristics of the Prompt Gamma Neutron Activation Analysis System at HANARO

변수현, 선광민, 김인중, 최희동
서울대학교
서울특별시 관악구 신림동 산56-1

김명섭, 전병진
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

하나로 즉발 감마 중성자 방사화 분석 장치의 중성자 특성을 측정하였다. 본 장치의 중성자빔은 수평 중성자공으로부터 pyrolytic graphite 결정에 의해 Bragg 각도 45° 로 수직 회절된 다색 열중성자이다. Graphite 결정 두께, 회절 중성자 집속 등을 변화시킴으로써 3 가지 열중성자 인출 조건을 시도하였다. 각각의 인출 조건에 대해 시료 위치에서의 열중성자 분포, 열중성자속 및 Cd-비를 측정하였다. 최종적으로 중성자속은 6.1×10^7 n/cm²s, Cd-비는 364에 도달하였다.

Abstract

Neutron beam characteristics of the Prompt Gamma Neutron Activation Analysis facility at HANARO were measured. The neutron beam of this facility is polychromatic thermal neutrons diffracted vertically by a set of pyrolytic graphite crystals at the Bragg angle of 45° from a horizontal beam line. Three conditions of thermal neutron extraction were applied by varying graphite crystal thickness and focusing geometry of diffracted beam. Thermal neutron profile, thermal neutron flux and Cd-ratio were measured at the sample position for each extraction condition. Thermal neutron flux of 6.1×10^7 n/cm²s and Cd-ratio of 364 are achieved finally.

1. 서 론

즉발 감마 중성자 방사화 분석법(Prompt Gamma Neutron Activation Analysis, PGNA)은 시료를 중성자에 조사시킬 때 중성자 포획 후 10^{-14} 초 영역의 짧은 시간에 방출되는 즉발 감마선을 계측함으로써 시료내 성분 핵종의 함량을 분석하는 방법이다. 한국원자력연구소의 하나로에는

pyrolytic graphite(PG) 결정(crystal)에 의해 회절된 다색 열중성자를 이용한 PGNAA 장치가 ST1 수평 중성자공에 설치되고 있다[1,2].

PGNAA 장치는 Polarized Neutron Spectrometer(PNS) 장치와 중성자빔을 공유하며 ST1공 출구 단면적 $70^w \times 120^h \text{ mm}^2$ 중에서 중심부 $70^w \times 60^h \text{ mm}^2$ 이 PNS 장치에 이용되고 중심부를 제외한 상·하부 각 $70^w \times 30^h \text{ mm}^2$ 영역에 PGNAA용 PG 결정이 장착되어 있다. PG 결정은 Bragg 각도가 45° 로 설정되어 열중성자를 수직으로 90° 회절시킨다. 회절된 열중성자는 collimator를 거쳐 시료에 도달한다. 시료에서 중성자 흡수 후 방출되는 즉발 감마선은 HPGe(Hyper Pure Ge) 검출기에 의해 검출되고 시료를 통과한 중성자는 Stopper에 의해 흡수된다. Collimator와 시료 사이에는 회절빔 셔터가 설치되어 ST1공 셔터가 열린 상태에서 PGNAA 장치의 시료 교체가 가능하다.

PGNAA 장치의 성능은 시료 위치에서의 중성자빔 환경이 고속 중성자 및 감마선이 충분히 제거되었는지 여부와 열 또는 냉 중성자의 중성자속에 의해 결정적으로 좌우된다. 하나로 PGNAA 장치는 다색 회절 열중성자를 인출함으로써 고속 중성자 비율이 대폭 감소된 열중성자 환경을 조성하고 있으며, 시료 위치에서 열중성자속을 최대화하기 위해 PG 결정의 모자이크 폭을 최적화하고 회절 중성자 집속 기법을 채택하고 있다[3]. 본 논문에서는 설계시 반영된 이러한 중성자빔 환경을 실제로 확인하기 위해 다양한 열중성자빔 인출 조건별로 시료 위치에서의 회절 중성자 특성을 측정하였다. 열중성자 인출 조건은 PG 두께, 회절 중성자 집속 등 2 가지 변수를 조합한 3 가지 조건을 채택하였으며 각 인출 조건별로 시료 위치에서의 중성자 분포, 열중성자속 및 Cd-비를 측정하였다.

2. 장치 구성 및 실험

PGNAA 장치의 시료 위치에서 회절 중성자 분포를 측정하기 위한 장치 구성은 그림 1과 같다. 장치는 BF_3 pin-hole 검출기 및 계측계통과 좌표 설정용 정밀 stage로 구성된다. BF_3 검출기는 직경이 1"로서 두께가 0.5 mm인 Cd판으로 사방이 둘러싸인 상태이며 회절빔 입사 방향에 설치된 Cd판에 직경 2 mm의 pin-hole이 뚫려 있다. 따라서 X-Y stage에 의해 pin-hole 좌표를 변화시키면서 계수율을 측정함으로써 2차원 회절 중성자 분포를 얻게 된다. 그림에서 linear guide는 검출기 지지대를 stage에서 분리하지 않은 상태에서 collimator를 회절빔 인출구로부터 PNS 상판 밖으로 꺼낼 수 있도록 설치하였다. BF_3 검출기 주변의 빈 공간은 납벽돌로 에워싼 후 납벽돌 내벽에 두께가 2 mm인 borated plastic을, 외벽에 두께가 100 mm인 폴리에틸렌을 각각 설치하여 회절 빔라인의 중성자 및 감마선을 차폐하였다.

BF_3 검출기의 상세 사양은 표 1과 같다. 계측계통은 그림 2와 같이 전치 증폭기, 증폭기, ADC, Timer & Counter, PC 등으로 구성되며, 스펙트럼 측정과 계수율 측정을 병행하였다. 분광용 증폭기는 gain 및 shaping time을 각각 100×0.75 , $0.25 \mu\text{sec}$ 로 설정하였고, ADC는 gain을 16k로 설정하였다. ST1공 rotary shutter의 open 조건은 BF_3 검출기 계수율을 줄이기 위해 20'을 선택하였다.

PG 결정의 각도는 수동형 2축 goniometer에 의해 정밀하게 설정된다. 2축 goniometer는 그림

1과 같이 45° 경사진 빔면 위에 고정되며 ±20° 범위에서 0.1°의 정밀도로 각도를 설정할 수 있다. 회절 중성자 분포 측정 결과로부터 구한 회절 중성자의 중심 좌표가 회절빔 인출구 중심에서 벗어난 경우에는 collimator를 인출하여 goniometer 눈금을 변경해야 한다. 눈금 변경은 회절 중성자의 중심 좌표가 회절빔 인출구 중심에 일치할 때까지 계속된다.

회절 중성자 인출 각도 조정 및 중성자 분포 측정을 완료한 후 회절 중성자속과 Cd-비를 측정하였다. 회절 중성자속은 직경 0.1 mm인 gold wire를 Cd판에 부착한 상태로 방사화시켜 측정하였고, Cd-비는 wire 주변을 두께 0.5 mm인 Cd판으로 둘러싼 상태로 방사화시켜 측정하였다. 조사시 원자로 출력은 24 MW를 유지하였다. Wire mount는 BF₃ mount 지지대에 설치할 수 있다. ST1공 rotary shutter는 full open으로 설정하였고, bare wire의 조사 시간을 3 시간, Cd-covered wire의 조사 시간을 7 시간 이상으로 유지하였다. 방사화된 wire의 감마선 스펙트럼은 HPGe 검출기로 측정하였으며, wire-검출기간 거리는 중성자속 측정시 25 cm, Cd-비 측정시 3 cm로 각각 설정하였다.

3. 측정 결과

하나로 PGNAА 장치의 시료 위치에서 BF₃ pin-hole 검출기의 Y 좌표를 Y = 0에 고정시킨 상태에서 X 좌표를 -30 ~ +30 mm 영역에서 10 mm 간격으로 변화시키면서 측정한 스펙트럼은 그림 3과 같다. 그림으로부터 X 좌표별로 회절 중성자속이 변하는 경향을 확인할 수 있으며 회절 중성자의 X 중심 좌표가 +10 mm 부근임을 알 수 있다. 스펙트럼에서 저 에너지 영역에 나타난 피크는 감마선 흡수 피크로서 계수율이 최대인 위치가 -10, -20이며 중성자속이 최대인 +10과 일치하지 않고 있다. BF₃ 검출기의 감마선 민감 영역은 tube내 connector 부근이며, pin-hole X 좌표가 -10, -20인 경우는 감마선 민감 영역이 회절빔의 중심에 위치하기 때문에 그림과 같은 경향이 나타난다. 중성자 계수율은 스펙트럼에서 감마선 피크를 제외한 영역을 적분하여 구하거나 SCA의 lower level을 감마선 피크를 벗어난 영역에 설정하여 Counter & Timer로 직접 확인할 수 있다. Goniometer 각도 조정이 완료된 상태에서 측정한 회절 중성자의 2차원 분포는 그림 4와 같다. 그림으로부터 직경 20 mm 범위내에서 중성자속이 일정하게 유지되고 있음을 알 수 있다.

회절빔을 집속하지 않은 조건으로 두께 2 mm인 PG 결정을 상·하부 각 영역에 1 층씩 장착하여 회절 중성자 인출 각도 조정을 완료한 후 시료 위치에서 Cd-비를 측정한 결과는 그림 5와 같다. Bare wire 스펙트럼과 Cd-covered wire의 스펙트럼을 각각 HPGe 검출기 표면으로부터 3 cm 위치에서 측정하였으며 live time 1000 초를 기준으로 피크 영역을 비교하였다. Cd-비는 bare wire와 Cd-covered wire의 단위 질량당 중성자 포획율의 비로 정의되며

$$R_{Cd} = \frac{A_{\infty}^{bare}/W_{bare}}{A_{\infty}^{Cd}/W_{Cd}} = \frac{\frac{A_0^{bare}}{W_{bare}(1-e^{-\lambda t_r^{bare}})}}{A_0^{Cd}}}{\frac{A_0^{Cd}}{W_{Cd}(1-e^{-\lambda t_r^{Cd}})}}} \quad (1)$$

와 같이 포화 비방사능(specific activity)의 비로 구할 수 있다. 여기서 A_∞는 포화 방사능, W는

wire 질량, A_0 는 조사 종료 시점에서의 방사능, t_r 은 조사 시간을 각각 나타낸다. 중성자 조사 종료 시점으로부터 (t_1, t_2) 시간 동안 감마선을 측정하였을 때 ^{198}Au 붕괴로 방출되는 412 keV 감마선 피크 면적 A_r 은 방사능 A_0 와

$$A_r = \varepsilon \int_{t_1}^{t_2} \Gamma A_0 e^{-\lambda t} dt = \varepsilon \Gamma \frac{A_0}{\lambda} (e^{-\lambda t_1} - e^{-\lambda t_2}) \quad (2)$$

의 관계에 있다. 여기서 ε 은 412 keV 감마선에 대한 HPGe 검출기의 절대 효율, Γ 는 ^{198}Au 붕괴당 412 keV 감마선 방출율을 나타낸다. Bare wire와 Cd-covered wire의 질량은 각각 19.2 ± 0.1 mg, 16.7 ± 0.1 mg이며, 피크 분석 결과로부터 Cd-비 292 ± 6.3 을 얻었다.

Bare wire의 포화 방사능은 회절 열중성자속, ^{197}Au 의 중성자 흡수단면적에 의해

$$A_\infty = \sum_n \phi_D(n) \sigma_a(n) NV = \phi_D \sigma_{th}^D NV \quad (3)$$

로 나타낼 수 있다. 여기서 $\phi_D(n)$ 과 $\sigma_a(n)$ 은 각각 회절차수 n 에서의 회절 중성자속 및 ^{197}Au 흡수단면적이고, ϕ_D 와 σ_{th}^D 는 전체 회절 중성자속 및 회절 중성자 스펙트럼에 평균화된 중성자 흡수단면적이며, N 은 ^{197}Au 수밀도 ($5.9 \times 10^{22} / \text{cm}^3$), V 는 wire 체적이다. 회절 차수별 중성자 흡수단면적과 각각의 PG 결정에 대한 회절 중성자 스펙트럼 측정 결과로부터 σ_{th}^D 는 104.7 barn이 된다. 그림 6은 wire-검출기간 거리가 25 cm일 때 측정한 감마선 스펙트럼이다. 그림에서 ^{198}Au 붕괴로 방출되는 412 keV 감마선 피크 면적을 분석하여 (3) 식에 의해 회절 중성자속을 구한 결과 $(2.21 \pm 0.03) \times 10^7$ n/cm²s을 얻었다. 동일한 인출 조건에서의 회절 중성자속 이론값은 3.3×10^7 n/cm²s이며, 측정치와 33% 차이가 존재한다. 이와 같은 차이는 이론값을 계산할 때 사용된 ST1공 출구 단면적 전체에서 중성자속이 일정하다는 가정에 의해 발생할 가능성이 높으므로 ST1공 출구의 중성자속 분포를 측정하였다.

ST1공 출구 중성자속 측정 위치는 상·하부에 장착된 PG의 Z 방향 중심 및 양 끝에 해당되는 $Z = \pm 32$ mm, ± 45 mm, ± 58 mm를 선정하였으며, 각 Z 좌표에 대해 $-30 \text{ mm} \leq Y \leq 30 \text{ mm}$ 영역에 gold wire를 배치하였다. 여기서 좌표계의 원점은 ST1공 중심축과 회절빔 인출구 중심축의 교점이다. 방사화된 wire를 γ -scanning하여 출구 중성자속 상대 분포를 구한 결과는 그림 7, 8과 같다. 그림으로부터 상·하부 각 영역의 $-15 \text{ mm} \leq Y \leq +15 \text{ mm}$ 범위에서 중성자속이 일정하게 유지되고 이 영역을 벗어나면 중성자속이 감소함을 확인할 수 있다. 따라서 회절 중성자속 계산시 사용된 ST1공 출구 중성자속 분포가 실제와 차이가 있으며 이로 인해 측정치가 계산치에 비해 다소 낮게 됨을 알 수 있다. 한편 ST1공 출구 중성자속의 Z 방향 분포는 중심($Z = 0$)에 가까울수록 중성자속이 증가하는 경향을 보이고 있다. Y 방향으로 중성자속이 일정하게 나타난 영역을 절단하여 열중성자속 절대값을 측정한 결과 $Z = +32$ mm에서 $(6.8 \pm 0.2) \times 10^9$ n/cm²s, $Z = -45$ mm에서 $(7.4 \pm 0.2) \times 10^9$ n/cm²s을 각각 얻었다.

PG 결정의 배치 조건을 변화시키면서 회절 중성자 특성을 측정한 결과는 표 2와 같다. PG를 2 층으로 장착하고 회절빔을 집속하지 않은 경우의 회절 중성자속 및 Cd-비는 각각 $(3.54 \pm 0.06) \times 10^7$ n/cm²s, 315.1 ± 6.9 를 얻었다. 이 때 회절 중성자 스펙트럼에 평균화된 단면적은 PG를 2 층

으로 장착한 경우의 회절 중성자 스펙트럼 측정 결과로부터 얻은 99.4 barn을 사용하였다. PG 두께가 2 배 증가함으로써 회절 중성자속과 Cd-비는 각각 1.7, 1.2 배 증가하였다. 만약 시료 위치에 도달된 열외 중성자가 주로 PG에서 산란되었다면 Cd-비가 감소해야 할 것이므로 측정 결과로부터 열외 중성자는 대부분 goniometer, mount 등 구조물에서 산란되거나 누설되어 시료까지 도달했음을 유추할 수 있다. 두께 증가에 의한 중성자속 이득은 중성자 반사율을 이용한 이론적인 계산 결과와 일치한다.

PG가 2 층인 상태에서 회절 중성자를 집속한 경우의 회절 중성자속 및 Cd-비는 각각 $(6.14 \pm 0.10) \times 10^7$ n/cm²s, 364 \pm 9에 도달하였다. 집속 전후의 중성자속을 비교하면 중성자속 이득이 1.7 배로서 Monte Carlo 계산 결과와 일치한다.

하나로 PGNAА 장치의 최종 중성자빔 특성을 기존의 대표적인 열중성자를 이용한 장치와 비교하면 표 3과 같다. 최종 중성자속 6.1×10^7 n/cm²s과 Cd-비 364는 기존 장치에서 사용된 바 없는 독특한 열중성자 환경임을 확인할 수 있으며 BNCT에서 요구되는 열중성자속 1.0×10^7 n/cm²s, Cd-비 100을 충분히 능가하고 있다.

4. 결 론

하나로 PGNAА 장치의 중성자빔 특성을 측정하였다. 시료 위치에서의 최종 열중성자속과 Cd-비는 원자로 출력이 24 MW일 때 각각 6.1×10^7 n/cm²s, 364로 나타났다. 본 결과는 장치 설계 단계에서 이론적으로 예측한 값과 거의 일치하고 있으며, 이로부터 PG 결정에 의해 90° 회절된 중성자빔 환경이 PGNAА에 적합한 열중성자 인출법임을 알 수 있으며, 하나로 PGNAА 장치의 성능이 우수할 것으로 예상된다.

참고문헌

1. S.H. Byun and H.D. Choi, J. Radioanal. Nucl. Chem., 244 (2000) 413.
2. 변수현, 선광민, 김인중, 최희동, 김명섭, 전병진, “하나로 즉발 감마 중성자 방사화 분석 장치 개발 현황”, 2000 추계학술발표회 논문집, 한국원자력학회.
3. H.D. Choi, S.H. Byun, B.J. Jun and M.S. Kim, Proceedings of 10th International Symposium on Capture Gamma-Ray Spectroscopy and Related Topics, USA (2000) 731.
4. T. Kobayashi and K. Kanda, Nucl. Instr. and Meth. 204 (1983) 525.
5. C. Yonezawa, A.K.H. Wood, M. Hoshi, Y. Ito and E. Tachikawa, Nucl. Instr. and Meth. A329 (1993) 207.
6. K.J. Riley and O.K. Harling, Nucl. Instr. and Meth. B143 (1998) 414.
7. A.G. Hanna, R.M. Brugger and M.D. Glascock, Nucl. Instr. and Meth. 188 (1981) 619.
8. S.A. Kerr, R.A. Oliver, P. Vittoz, G. Vivier, F. Hoyler, T.D. Macmahon and N.I. Ward, J. Radioanal. Nucl. Chem. 113 (1987) 249.
9. M.P. Failey, D.L. Anderson, W.H. Zoller, G.E. Gordon and R.M. Lindstrom, Anal. Chem. 51

(1979) 2209.

표 1. BF₃ 계측기 특성.

. Model : 20254 (LND)	. Operating voltage range :
. Serial number : 900209	1150 ~ 1400 V
. Gas pressure : 600 Torr	. Operating voltage : 1300 V
. Connector type : MHV	

표 2. 열중성자 인출 조건에 따른 회절 중성자 특성 변화.

Crystal shape	Number of crystal layer	Diffracted flux [n/cm ² s]	Flux gain	Cd-ratio
Flat	1	2.2×10^7	·	292
	2	3.5×10^7	1.6	315
Tilted	2	6.1×10^7	1.7	364

표 3. 열중성자를 이용한 PGNAA 장치 중성자 특성 비교.

	Reactor power	Thermal neutron extraction	Neutron flux [n/cm ² s]	Cd-ratio
Kyoto[4]	5 MW	Guide tube	2.0×10^6	·
JAERI[5]	20 MW	Guide tube	2.4×10^7	·
MIT[6]	5 MW	Filter & Diffraction	1.7×10^7	≥30,000
Missouri[7]	10 MW	Filter	5.0×10^8	42
ILL[8]	57 MW	Guide tube	1.3×10^8	·
NBS[9]	10 MW	Direct beam	2.0×10^8	55
HANARO	24 MW	Diffraction	6.1×10^7	364

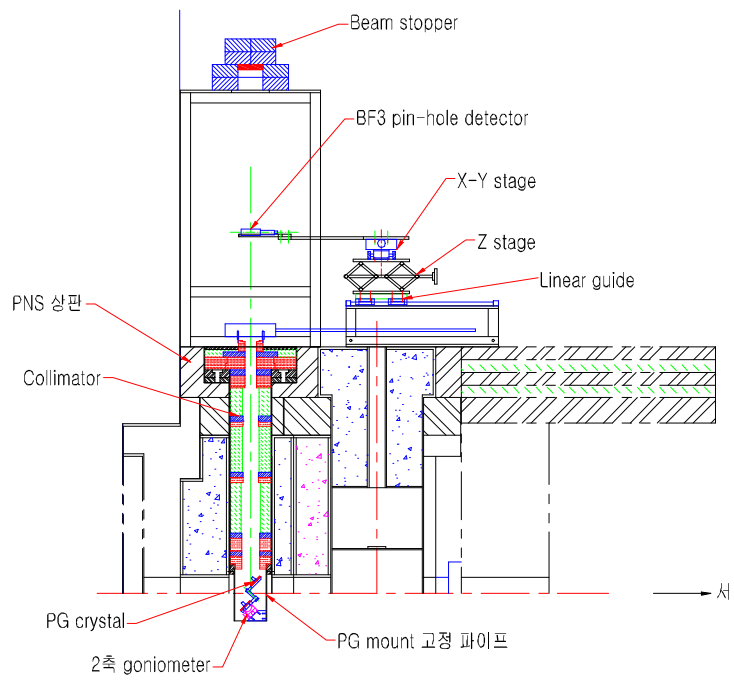


그림 1. BF₃ pin-hole 검출기를 이용한 회절 중성자 분포 측정 장치 구성.

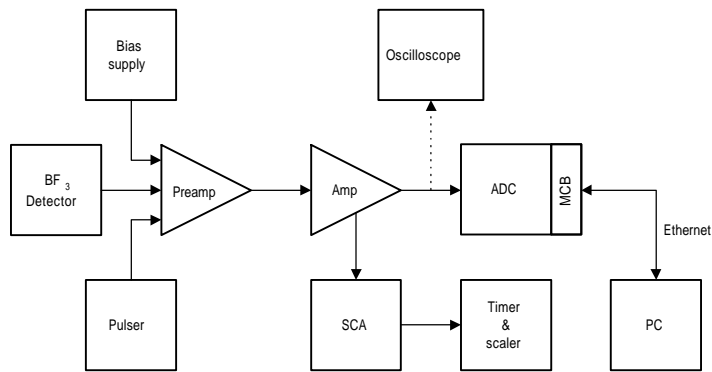


그림 2. BF₃ 측정계통.

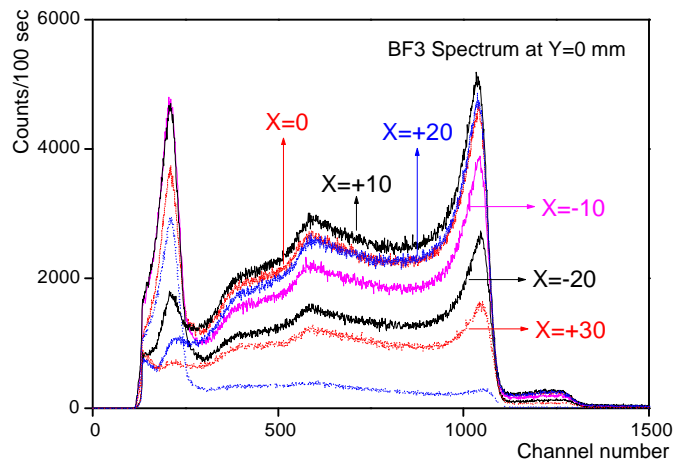


그림 3. BF₃ 스펙트럼 예.

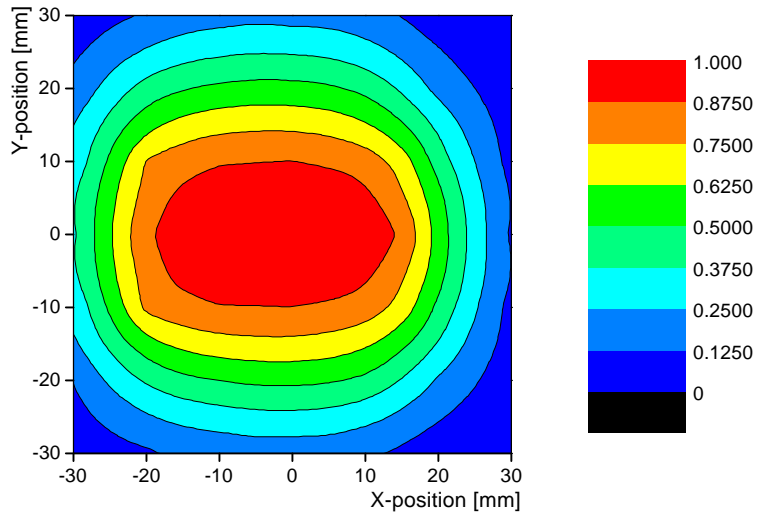


그림 4. 시료 위치에서의 2차원 중성자 분포.

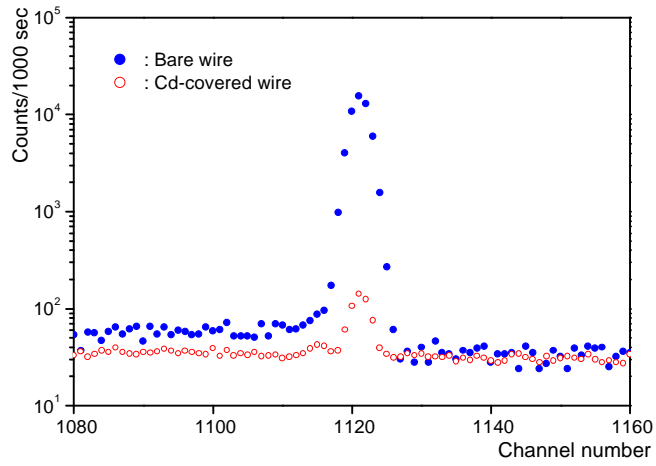


그림 5. Wire-HPGe 거리가 3 cm일 때의 bare 및 Cd-covered wire의 412 keV 부근 감마선 스펙트럼.

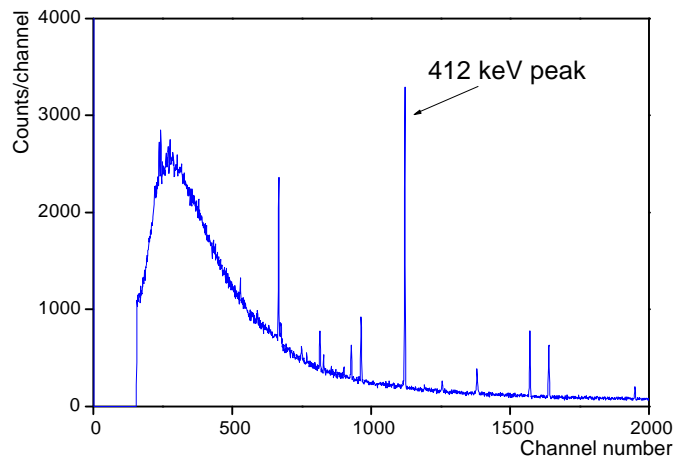


그림 6. Wire-HPGe 거리가 25 cm일 때의 bare wire 감마선 스펙트럼.

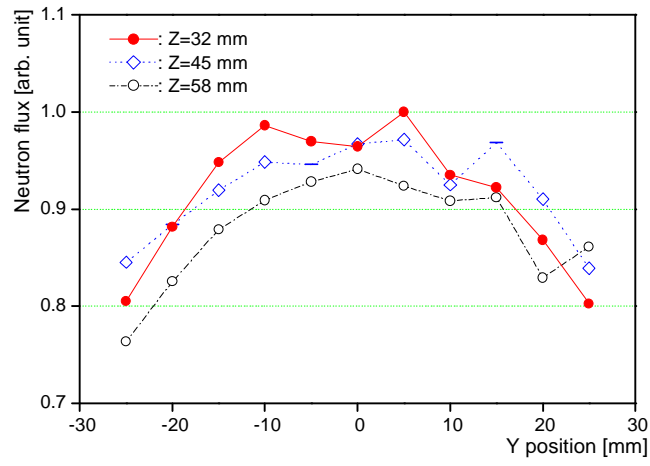


그림 7. 상부 PG의 입사 중성자속 분포.

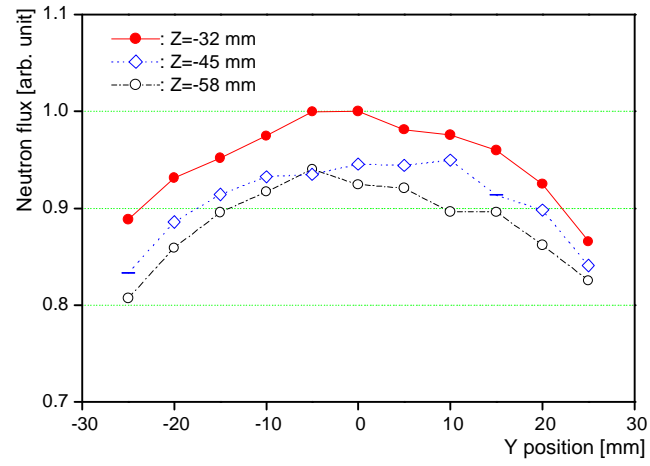


그림 8. 하부 PG의 입사 중성자속 분포.