

하나로에서의 즉발 감마 중성자 방사화
분석 장치 설계 및 중성자빔 특성

Design of a Prompt Gamma Neutron Activation Analysis System
and Neutron Beam Characteristics at HANARO

변수현, 최희동

서울대학교
서울특별시 관악구 신림동 산56-1

김명섭, 전병진

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 턱진동 150

요약

한국원자력연구소의 하나로에 설치중인 즉발 감마 중성자 방사화 분석(Prompt Gamma Neutron Activation Analysis, PGNAA) 장치에 대한 설계 개념과 중성자빔 특성을 제시하였다. 순수한 열 중성자를 얻는 방법으로서 pyrolytic graphite(PG) 결정을 이용한 Bragg 회절 방법이 적용되었다. Bragg 각도는 45° 로 설정되었으며, 회절빔은 Bragg 조건을 만족하는 모든 회절차수($1 \leq n \leq 6$)의 중성자로 구성된 다색빔이다. 회절빔과 tapered collimator를 사용함으로써 속중성자 및 감마선 background 준위는 충분히 낮을 것이다. 시료 위치에서의 중성자속은 PG의 적분반사율로부터 1.0×10^8 n/cm²sec로 계산되었다. 감마선 계측계통은 상대효율이 30%인 n-형 HPGe 검출기, 신호 처리 회로 및 고속 ADC 등으로 구성된다. 빔라인 건설 및 계측계통 설치가 현재 진행중이다.

Abstract

The design features and neutron beam characteristics are described for a prompt gamma neutron activation analysis(PGNAA) system at HANARO in Korea Atomic Energy Research Institute(KAERI). As a method to obtain clean beam of thermal neutrons, Bragg diffraction technique of using PG crystal is applied. The Bragg angle is set at 45° and the diffracted beam is a polychromatic one composed of neutrons from all diffraction orders $n(1 \leq n \leq 6)$. The fast neutron and gamma backgrounds will be low enough due to the use of diffracted beam and a tapered collimator. A neutron flux of 1.0×10^8 n/cm²sec is calculated at sample position by considering the reflectivity of PG crystal. The γ -ray detection system is comprised of a 30% n-type HPGe detector, signal electronics and a fast ADC. Construction of the beam line and setting up of the detection system is proceeding.

1. 서 론

PGNAA는 시료를 중성자에 조사시킬 때 즉시 방출되는 감마선을 계측함으로써 시료내 성분 원소의 함량을 분석하는 방법으로서, 중성자 흡수후 10^{-14} sec[1] 이내의 짧은 시간에 방출되는 즉발 감마선을 조사가 이루어지는 동안에 측정한다는 측면에서 통상적인 방사화 분석법(Instrumental Neutron Activation Analysis, INAA)과 구별된다. PGNAA에 의해 분석 가능한 원소는 중성자 포획단면적이 큰 B, Cd, Sm, Gd 등의 원소와 중성자 흡수후 방사성 동위원소가 생성되지 않는 H, C, N, S 등이며[2], INAA와 비교할 때 상호 보완 관계에 있으므로 두 방법에 의해 40 ~ 50 여종의 원소를 분석할 수 있다[3]. PGNAA는 지질학, 생물학, 식품학 등의 분야에서 활용되고 있다 [4,5].

PGNAA 장치 성능은 속중성자 및 감마선 background 준위가 충분히 낮으면서 열중성자속이 높은 빔라인 구성에 좌우된다. 최근에는 Ni mirror, Super mirror 등 중성자 거울관을 이용한 냉중성자 또는 열중성자 빔라인 건설이 보편화되면서 이를 이용한 장치가 주류를 이루고 있다[6,7]. 이러한 빔라인 건설 방법은 중성자 거울관을 수십 미터 연결하기 때문에 막대한 예산이 소요된다. 따라서 하나로 장치는 건설 비용이 저렴하면서 PGNAA에 적합한 열중성자를 인출하기 위해 PG에 의한 회절 방식을 선택하였다. 이 방식은 MIT 장치에 최초로 사용되었다[8]. 그러나 MIT 장치와 비교할 때 하나로 장치는 Bragg 각도를 크게 설정하고 여과기를 사용하지 않음으로써 Bragg 조건을 만족하는 모든 회절차수로 구성된 다색빔을 사용하는 특징을 지닌다. 따라서 시료 위치에서의 열중성자속을 향상시킬 수 있다.

장치 완성후 사용될 첫번째 용도는 BNCT(Boron Neutron Capture Therapy)를 수행하는데 요구되는 종양세포내의 ^{10}B 농도 측정이며, 이를 통하여 환자 치료를 위한 중성자 조사선량을 사전에 결정할 수 있게 된다. 본 논문에서는 하나로 PGNAA 장치의 설계 개념 및 회절 중성자빔 특성을 소개하였다.

2. 장치 구성

PGNAA 장치의 개략도는 Fig. 1과 같다. PGNAA 장치가 설치될 빔라인은 ST1 수평 중성자공이며, 전체 단면적 $70^{\text{w}} \times 120^{\text{h}}$ mm² 중에서 중심부 $70^{\text{w}} \times 60^{\text{h}}$ mm² 영역이 PNS(Polarized Neutron Spectrometer) 장치에, 나머지 상·하 영역이 PGNAA 장치에 이용된다. 상·하 각 영역에 설치될 PG의 두께는 $75^{\text{w}} \times 50^{\text{h}} \times 2^{\text{t}}$ mm³ 크기의 판을 2장 겹쳐 4 mm이며, 회절후 빔확산을 줄이고 시료 위치에서의 중성자속을 증가시키기 위해 수평 방향으로 휘어진 상태이다.

Collimator는 Li₂CO₃, 폴리에틸렌 및 납 중이 반복해서 쌓인 구조이고 시료 위치에서의 빔 크기를 직경 2 cm로 유지하기 위해 tapered geometry를 이룬다. 시료 지지대는 재질이 Teflon이며, 시료에서의 중성자 산란 효과를 최소화하기 위해 반구형이다.

감마선 계측 계통은 HPGe 검출기만을 이용하는 single mode 방식이다. HPGe 검출기는 상대효율이 30%이며, Fig. 1과 같은 side-looking 형태이다. 전자증폭기는 전하민감형으로서 energy rate의 상한계를 확장시키기 위해 feedback 저항값을 통상 사용하는 2 GΩ에서 1 GΩ으로 변경하였

다. 또한 높은 계수율에 적합하도록 gated integrator 기능이 수반된 분광용 증폭기와 변환 시간이 1.5 μ sec인 고속 ADC를 사용한다. 검출기 전면과 측면은 각각 ^{6}Li 가 95 atom-% 농축된 10 mm 두께의 $^{6}\text{Li}_2\text{CO}_3$ 와 100 mm 두께의 납으로 차폐된다. 실제 측정시에는 검출기 입구에 다양한 형태의 납 collimator를 설치한 경우를 실험적으로 비교하여 최적 collimator 형태를 결정할 예정이다.

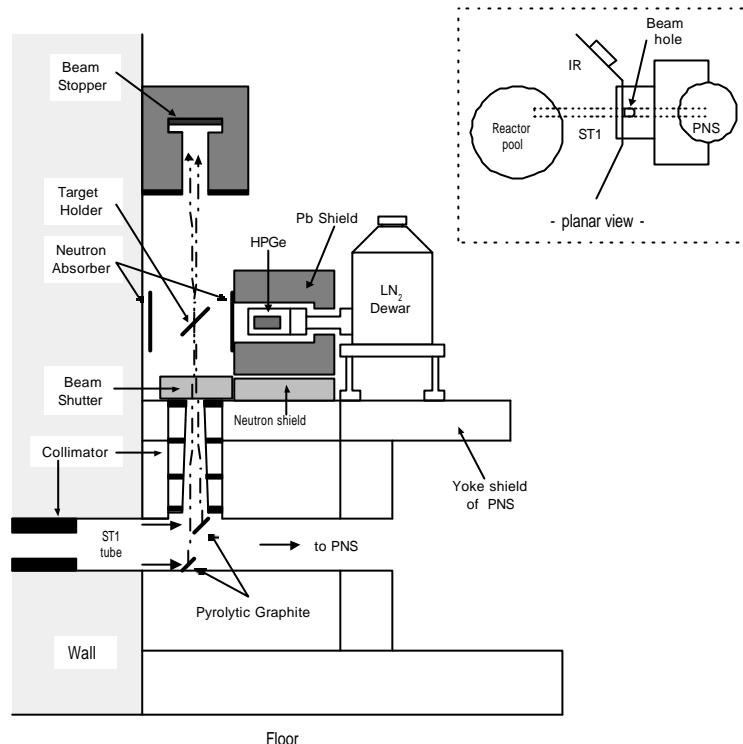


Fig. 1. A schematic layout of the PGNAA system at the ST1 beam port of HANARO. Additional shields around the target and the beam path are not shown in the figure.

3. 회절 중성자빔 특성

PGNAA 장치의 성능은 시료 위치에서의 중성자속에 결정적으로 좌우된다. 즉, 속중성자 및 감마선 background 준위가 충분히 낮은 상태에서 중성자속을 얼마나 높일 수 있는지 여부가 장치 성능을 결정한다. 따라서 회절 중성자속이 PGNAA에 적합한 수준에 도달 가능한지를 이론 및 실험적 방법으로 평가하였다.

입사 중성자중에서 Bragg 회절되는 비율을 나타내는 적분반사율은 ideally imperfect crystal에 대한 이론으로부터

$$R^\theta = 0.61(\beta Q t_0 / \sin \theta)^{1/2} \quad (1)$$

과 같다[9]. 여기서 β 는 PG crystal의 mosaic spread, Q 는 crystallographic quantity, t_0 는 두께, θ 는 Bragg 각도를 나타낸다. R^θ 는 Bragg 법칙에 의해

$$R^\lambda = R^\theta \left(\frac{2d}{n} \right) \cos \theta \quad (2)$$

와 같이 파장 단위로 나타낼 수 있다. 여기서 d 와 n 은 각각 PG의 (002) 평면간 거리, 회절차수를 나타낸다. 입사빔 각도 분포와 PG의 mosaic spread로 인해 회절빔은 PG로부터 멀어질수록 단면 적이 증가한다. 이러한 빔 확산 효과에 의한 중성자속 감소율은 Monte Carlo 모사에 의해 계산하였다[10]. Mosaic spread의 최적치는 시료 위치(PG로부터 1.5 m)에서의 중성자속이 최대가 되는 조건으로부터 0.8° 로 결정되었다. 이 규격(0.8° , 4 mm)의 PG에 대해 Bragg 각도가 45° 일 때 회절 차수별 중성자속을 비교한 결과는 Fig. 2와 같다. 회절차수 $n=3$ 인 경우의 중성자속이 최대이며, $n=4$, $n=2$ 인 경우 순이다. 또한 $n=3$, 4 인 경우가 전체 회절 중성자속의 54%를 차지한다. ST1 중성자공 상·하층에서 회절된 빔의 시료 위치에서의 전체 중성자속은 $1.0 \times 10^8 \text{ n/cm}^2\text{sec}$ 로 예상된다. Au에 대한 회절빔 Cd-ratio는 graphite와 Al의 미분 산란단면적으로부터 1,600으로 계산되었다. 따라서 여과기를 설치하지 않더라도 열외중성자 비율은 충분히 낮을 것이다.

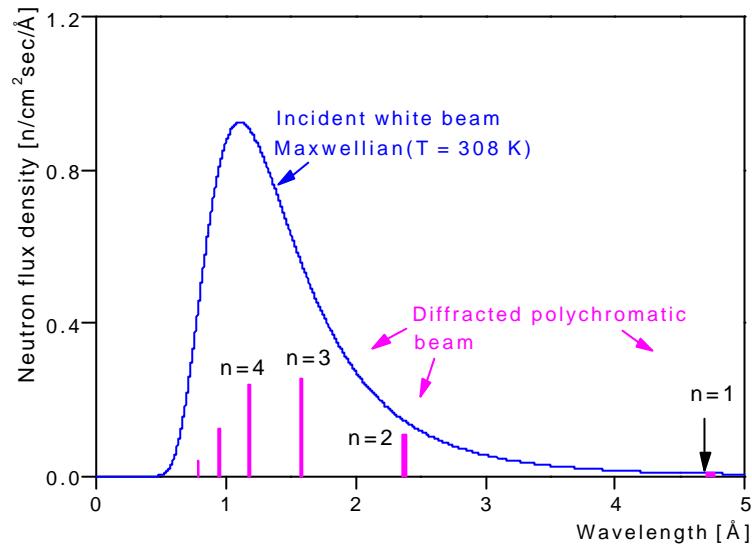


Fig. 2. Diffracted neutron flux from each diffraction order with setting the Bragg angle at 45° for a PG crystal(4 mm thick, $\beta=0.8^\circ$).

PG 격분 반사율을 측정한 문헌은 모두 $n=1$ 또는 $n=2$ 인 경우에 국한되어 있다[11,12]. 또한 회절차수가 $n \geq 3$ 인 경우 PG 구조인자(structure factor)의 문헌별 차이가 크기 때문에 격분 반사율의 정확한 계산이 제한된다. 따라서 회절빔 스펙트럼과 중성자속을 각각 time-of-flight(TOF) 분광계와 Au-wire 방사화에 의해 측정하였다. $\beta=0.4^\circ$ 인 PG를 Bragg 각도 45° 로 설정하여 CN 수평 중성자공에서 측정한 회절빔 스펙트럼은 Fig. 3과 같다. 중성자 비행거리는 3 m이며, chopper 회전속도를 3,000 rpm으로 설정한 상태에서 중성자 출발 및 도착 시점을 각각 광트랜지스터와 3.2 mm 두께의 $^{6}\text{Li-glass}$ 섬광검출기에 의해 결정하였다. 각 Bragg 퍼크의 면적은 직선 형태의 background를 제거하여 얻었으며, chopper 투과율, 검출효율 등을 보정하여 회절차수별 중성자속 상대비를 결정하였다. 이와 함께 Au-wire 방사화 측정 결과로부터 결정된 회절 중성자속 측정치는 계산치와 15% 이내로 일치하였다.

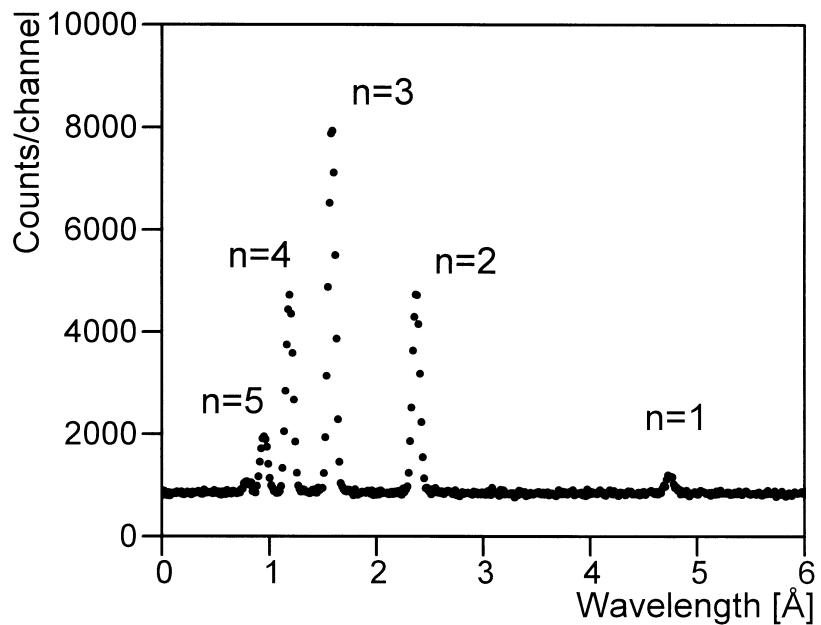


Fig. 3. Diffracted neutron spectrum measured by a time-of-flight spectrometer ($\theta = 45^\circ$, $\beta = 0.4^\circ$).

4. 예상 성능 및 결론

시료-검출기간 거리가 15 cm일 때 $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}^+$ 반응으로부터 방출되는 478 keV 감마선에 대한 HPGe 검출기의 절대효율은 0.25%이다. 앞서 평가한 시료 위치에서의 중성자속과 절대효율로부터 붕소에 대한 검출 민감도는 9,000 cps/mg으로 예상된다. 실제 측정 시에는 불감시간이 10% 이내를 만족하도록 검출기 위치를 조정할 예정이다.

이상의 결과로부터 PG에 의한 90° 회절빔을 이용하여 background 준위가 낮으면서 열중성자속이 PGNAA에 충분한 수준인 빔라인을 구성할 수 있음을 확인하였다.

참고문헌

1. M. Spychala, W. Michaelis and H.U. Fanger, Nucl. Geophys. 1 (1987) 309.
2. R.M. Lindstrom, in Proc. International Workshop on Cold Neutron Utilization(KAERI, Taejon, 1997).
3. K. Sueki, K. Kobayashi, W. Sato, H. Nakahara and T. Tomizawa, Anal. Chem. 68 (1996) 2203.
4. C.W. Tittle and M.D. Glascock, Nucl. Geophys. 2 (1988) 171.
5. D.L. Anderson, W.C. Cunningham and E.A. Mackey, Fresenius J. Anal. Chem. 338 (1990) 554.
6. C. Yonezawa, A.K.H. Wood, M. Hoshi, Y. Ito and E. Tachikawa, Nucl. Instr. and Meth. A329 (1993) 207.
7. R.M. Lindstrom, R. Zeisler, D.H. Vincent, R.R. Greenberg, C.A. Stone, E.A. Mackey, D.L. Anderson and D.D. Clark, J. Radioanal. Nucl. Chem. 167 (1993) 121.
8. O.K. Harling, J.M. Chabeuf, F. Lambert and G. Yasuda, Nucl. Instr. and Meth. B83 (1993) 557.
9. G.E. Bacon and R.D. Lowde, Acta Cryst. 1 (1948) 303.
10. B.J. Jun, B.S. Seong, M.S. Kim, S.H. Byun and H.D. Choi, in Proc. 6th Asian Symp. on Research Reactors (JAERI, Mito, 1999).
11. T. Riste and K. Otnes, Nucl. Instr. and Meth. 75 (1969) 197.
12. T. Riste, Nucl. Instr. and Meth. 86 (1970) 1.
13. R. Chen and P. Trucano, Acta Cryst. A34 (1978) 979.