원 자 력 학 회 지
제 4 권 제 4 호 1972. 12

<기술보고> 이성체쌍의 열중성자포획단면적비 측정

박 혜 일

서울대학교 공과대학 원자력과

김 헌 준 · 이 철

원 자 력 연 구 소

(1972년 10월 2일 접수)

Abstract

Isomeric ratios were measured for the capture of thermal neutron by ^{79}Br, ^{80}Se, ^{103}Rh, ^{115}In and ^{133}Cs as well as those of epi-cadmium neutron by ^{79}Br, ^{80}Se and ^{133}Cs. The measurements were performed by analysing decay curves obtained by γ-ray spectrometry after irradiation. The counting efficiency curve was determined by using the calibrated standard sources with overall uncertainties of about 1%. Isomeric ratios, given in σ high spin/(σ high spin+σ low spin), of ^{80,80m}Br, ^{81,81m}Se, ^{104,104m}Rh, ^{116,116m}In and ^{134,134m}Cs produced by thermal neutron activation were found to be 0.21±0.01, 0.14±0.02, 0.12±0.02, 0.69±0.07 and 0.058±0.004, respectively, Those values of ^{80,80m}Br, ^{81,81m}Se, and ^{134,134m}Cs produced by epi-cadmium neutron were found to be 0.19±0.02, 0.29±0.02 and 0.074±0.011, respectively. The experimental values obtained were compared with the theoretical values deduced from the statistical model. There were the general agreements between the theory and the experiment.

요 약

^{79}Br, ^{80}Se, ^{103}Rh, ^{115}In 및 ^{133}Cs의 열중성자 포획시 형성되는 이성체쌍의 비와 ^{79}Br, ^{80}Se 및 ^{133}Cs의 Epi-Cd 중성자 포획시 형성되는 이성체 쌍의 비를 측정하였다. 동 이성체비는 중성자 조사후 γ-선 분광분석법으로 얻은 붕괴곡선을 분석하여 측정하였다. 계측효율곡선은 전체불확실율이 약 1%인 표준선원을 사용하여 결정하였다. σ high spin/(σ high spin+σ low spin)으로 나타낸 열중성자로 생성된 ^{80,80m}Br, ^{81,81m}Se, ^{104,104m}Rh, ^{116,116m}In 및 ^{134,134m}Cs 쌍들의 이성체비는 각각 0.21±0.01, 0.14±0.02, 0.12±0.02, 0.69±0.07 및 0.058±0.004 이었다. Epi-Cd 중성자에 의해서 생성된 ^{80,80m}Br, ^{81,81m}Se 및 ^{134,134m}Cs쌍의 이성체 비는 각각 0.19±0.02, 0.29±0.02 및 0,74±0.011 이었다. 실험적으로 얻은 본값을 통계적 모델로부터 얻은 이론치와 비교하여 본결과 일반적인 일치를 보였다.

1. 서 언

여러 핵 이성체 쌍이 열중성자 포획에 의해서 형성될 때 이들 반응의 단면적 비가 측정되고 있다. 이들 단면적비의 정량적인 계산법이 Huizenga[1,2]들에 의해서 발전된 뒤 부터 이들 단면적의 비는 특별한 관심을 갖게 되었으며 계산치와 측정치의 상호 비교를 위해서 보다 정확한 실험 데타를 필요하게 되었다. 같은 단면적의

비라도 보고자에 따라 측정 결과는 많이 상이하며 비교적 적은 수의 단면적 비만이 이론치와 비교할 수 있을 만큼 정확할 뿐이므로 실험 결과를 이론치와 적절히 비교키 위하여 더욱 많은 실험데타를 필요로 하고 있는 실정이다. 본 연구는 이들 핵 데타에 기여키 위하여 열중성자에 의한 5개의 핵종에 대한 이성체 쌍의 단면적 비를 각각 측정 하였다. 핵의 Fermi gas model로 계산한 이론치와[3] 실험치를 상호 비교하였다.

2. 실 험

2-1. 표적물질 및 조사전 처리

조사용 표적물질로서는 자연 동위원소 존재비인 고순도 물질을 사용하였으며 표적물의 화학 및 물리적 형태 및 제조 회사명은 표 1에서와 같다.

^{103}Rh, ^{115}In은 단면적이 크고 반감기가 아주 짧기 때문에 보통 화학 칭평을 사용하여 무게를 달아 중성자 조사를 바로 할 경우 방사능이 너무 세어 측정 곤란한 경우가 있으므로 이들 금속을 화학 칭평으로 칭량하여 녹인 다음 희석하여 그중 일부를 취하여 중성자 조사를 하여야 한다. ^{103}Rh 금속은 녹이기 힘드는 백금족이기 때문에 녹여서 희석시키는 대신 혼적량의 금속을 조사용 폴리에칠렌 시료통에 취하여 조사용 시료로 하였다.

In 10 mg 정도를 칭량하여 질산에 녹인 다음 희석하여 그중 1 ml (10 μg의 In 금속)을 피펫으로 뽑아서 약 1.5 ml 용적의 폴리 에칠렌 시료통에 담아 불꽃으로 봉하여 중성자 조사용 시료로 하였다. Se, NH_4Br 및 $CsNO_3$는 10 mg의 시료를 정확히 조사용 시료통에 칭량하여 바로 중성자 조사용 시료로 하였다.

2-2. 시료의 중성자 조사

원자로의 중성자 조사는 TRIGA MARK Ⅱ의 기송관 장치를 사용하여 조사 하였으며 원자로 로심에 까지 조사용 rabbit가 운반되는데 소요되는 시간이 약 5초 된다. 두께가 0.5 mm인 Cd 박으로 싼금과 싸지않은 금을 상기 조사위치에서 중성자 조사를 하여 Cd비를 측정하여 본 결과 1.98±0.02 이었으며 이것은 열중성자속에 대한 공명중성자 속의비 즉 $\phi r/\phi th$이 0.066±0.001에 해당된다. 이곳에서의 열중성자 속은 (3.1±0.2)×10^{12} *neutrons/cm²-sec* 이었다.

^{103}Rh 및 ^{115}In은 반감기가 아주 짧은 이성체를 형성하기 때문에 조사 시간의 정확성을 기하고저 상기 기송관 에서만 1분간 조사하였다. 이들 핵종의 열중성자 단면적이 크기 때문에 공명중성자의 영향이 비교적 적을 것으로 생각되어 본 조사 위치에서의 측정 결과를 열중성자만의 결과로 간주하였으며 Epi-cadmium neutrons 에서의 이성체 비는 고려치 않았다. ^{79}Br, ^{80}Se, ^{133}Cs의 이성체 형성 단면적의 비는 상기 조사 위치에서 Cd 박을 입힌것과 입히지 않은것의 두 조건에서 5~10분간의 범위에서 정확한 시간동안 각각 조사하였으며 조사시 중성자 선속을 알고자 할때는 monitor로서 금을 함께 조사하였다.

기송관에서는 공명중성자의 영향이 금의 Cd 비로 알수 있는 바와같이 조사 시료에 따라 상당히 크기 때문에 순수한 열중성자에 의한 이성체 쌍의 형성 단면적 비를 측정하기 위하여 TRIGA MARK Ⅱ의 Beam port를 사용하여 시료를 조사하였다. 이곳에서는 신속한 시료의 운반장치가 없으므로 조사시간의 불정확성이 큰 오차를 유발할 수 있는 단 반감기의 ^{103}Rh, ^{115}In을 제외한 ^{79}Br, ^{80}Se, ^{133}Cs의 100 mg의 시료를 각각 30분간씩 조사하였다. 연구 대상의 핵반응, 이성체 반감기, 측정한 방사선, 방사선의 강도(%) 및 검출기를 표 2에 나타내었다.

2-3. 방사능 계측

모든 측정에 있어서 조사후 아무런 화학적 분리를 수행함이 없이 각 이성체 쌍의 방사능을 동일한 시료에서 직접 계측하였다. 각 이성체에 있어서 준안전상태가 대부분 기저상태로 붕괴하는 경우에는 이들 이성체는 모자 관계를 나타내며 딸 이성체의 성장 및 붕괴에 관한 식은

$$Ag=\frac{\lambda g}{\lambda g-\lambda m}A\overset{\circ}{m}(e^{-\lambda m t}-e^{-\lambda g t})+Ag^{\circ}e^{-\lambda g t} \qquad (1)$$

로 주어지며 여기서 g와 m는 기저 및 준안전상태를 각각 나타낸다. t는 냉각 시간을 나타내며 A 및 A°는 각각 시간이 t 및 o 일때의 방사능을 나타낸다. 그리고 λ는 붕괴 상수이다.

^{103}Rh의 측정을 위해서는 그림 1의 붕괴 스킴을 검토

표 1. 표 적 의 기 술

표 적	$^{79}_{35}$Br	$^{80}_{34}$Se	$^{103}_{45}$Rh	$^{115}_{49}$In	$^{113}_{35}$Cs
존 재 비(%)	50.537	49.82	100	95.72	100
화학 및 물리적 형태	NH_4Br 결정	금속가루	금속가루	금속가루	$CsNO_3$ 결정
제 조 회 사	*Fisher Scientific*	*Coleman & Belll*	*Johnson Matthey*	*Johnson Matthey*	*Fisher Scientific*

표 2. 핵반응 및 검출된 방사선

핵 반 응	생성된이성체	반 감 기	계 측 된 방 사 선	방사선강도(%)	검 출 기
$^{79}_{35}Br(n,\gamma)$	$^{80}_{35}Br$	17.6 m	0.662+0.618 MeV	8	3″×3″ NaI(Tl)
	$^{80m}_{35}Br$	4.38 hr	γ of ^{80}Br		
$^{80}_{34}Se(n,\gamma)$	$^{81}_{34}Se$	18.6 m	0.27+0.29 MeV	3.1	〃
	$^{81m}_{34}Se$	57 m	γ of ^{81}Se		
$^{103}_{45}Rh(n,\gamma)$	$^{104}_{45}Rh$	43 S	① 0.56γ of ^{104}Rh	2.0	2″×2″ Anthracene
	$^{104m}_{45}Rh$	4.41 m	② 2.5 MeV β of ^{104}Rh	98.5	
$^{115}_{49}In(n,\gamma)$	$^{116}_{49}In$	14 S	1.27 MeV γ of ^{116}In	1.2	3″×3″ NaI (Tl)
	$^{116m}_{49}In$	54.0 m	1.29 MeV γ of ^{116m}In	80	
$^{133}_{55}Cs$	$^{134}_{55}Cs$	2.05 y	0.796+0.801 MeV γ of ^{134}Cs	(88+9)	〃
	$^{134m}_{55}Cs$	2.90 hr	0.127 MeV γ of ^{134m}Cs	14	

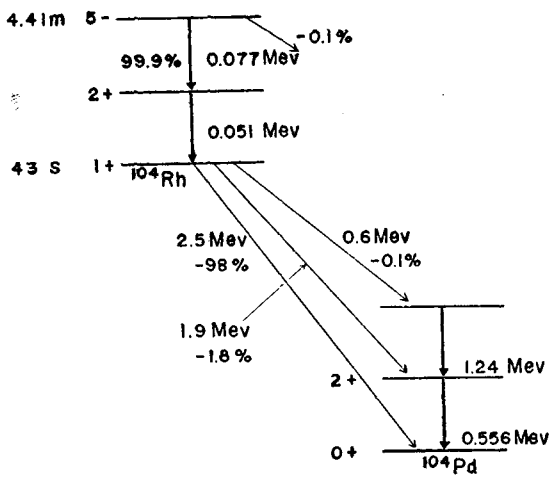

Fig. 1. Decay scheme of ^{104m} ^{104}Rh

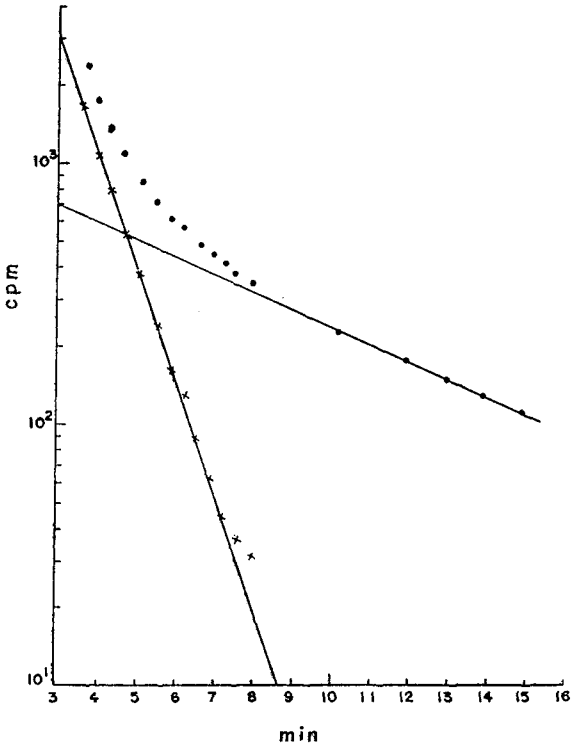

Fig. 2. Decay curve of ^{104m} ^{104}Rh

하여 보면 명확한 바와 같이 조사된 단일 시료에서 나오는 기저상태의 이성체로 부터 붕괴하는 큰 에너지의 2.5 MeV β선을 계측하든지 0.56MeV의 γ-선을 계속 계측 함으로서 검출기의 기하학적배치 및 효율에 무관하고 조사용 중성자 속 및 표적의 무게에 무관하게 단면적의 비를 측정할수 있다. 그림 2는 β선 계측으로 얻은 붕괴곡선이며 곡선의 두 부분을 외삽하여 일시평형 조건을 이용하든지 동 붕괴곡선과식 (1)을 분석하든지 하여 냉각시간이 o 일때의 두 이성체 ^{104}Rh, ^{104m}Rh의 방사능비, $Ag^{\circ}/A\mathring{m}$를 산출하였다. ^{79}Br, ^{80}Se로 부터 형성된 이성체의 방사능의 비 $Ag^{\circ}/A\mathring{m}$도 ^{104}Rh에서와 같은 조작으로 이성체의 방사능 비를 측정하였다.

^{116}In의 이성체 쌍의 방사능비는 ^{116m}In의 반감기가 너무나 짧고 γ선 강도의 붕괴스킴의 데타를 사용하여 절대측정을 하였으므로 오차가생길 수 있다. 그러나 현재는 비교적으로 필요한 핵 데타가 잘 알려져 있고 표 2에서 보는 바와같이 ^{116m}In의두 이성체의 계측된 γ선의 에너지가 거의 같으므로 계측 효율에 관계없이 방사능을 계측할 수 있다. 유발할 수 있는 오차는 계측 시간과 계측 통계에 의한 것이 될것이다. In시료통을 1분간 조사 시킨다음 30초 냉각시키고 10초씩 반복 계측하였다.

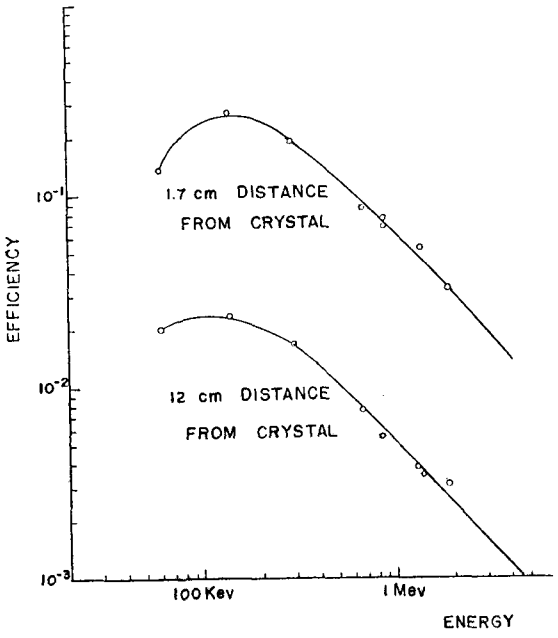

Fig. 3. Efficiency curve in 3″×3″ NaI (Tl) crystal

계측에서 얻은 곡선에서 54.0 m의 반감기를 갖는 ^{116}In의 연장직선을 빼줌으로서 14 S의 ^{116}In의 방사능 계측수를 산출하였다.

^{134}Cs의 이성체에 있어서는 준안정이성체가 기저이성체보다 반감기가 짧기 때문에 방사능의절대측정을 하였다. 붕괴 스킴이 정확히 알려져 있지 않으면 오차가 유발할 것이다. 그러나 한개의 시료에서 이성체의 방사능 비를 측정할 수 있기 때문에 중성자속 및 표적원소의 수를 측정함은 불필요하다. 절대측정을 위한 검출기의 계측 효율은 I. A. E. A에서 입수한 ^{241}Am, ^{57}Co, ^{203}Hg, ^{22}Na, ^{137}Cs, ^{54}Mn, ^{60}Co 및 ^{88}Y의 8개 표준 선원을 사용하여 검출거리에 따라 측정 하였더니 그림 3과 같은 효율곡선을 얻었다. 사용한 표준선원의 전체 불확실율은 약 1% 내외였다. 이 계측효율곡선을 위한 ^{60}Co, ^{22}Na의 계측에서는 카스케이드 되는 두 γ-선의 동시 검출효과에서 오는 오차를 Heath[4] 및 Crouthamel[5]씨에 의하여 교정하여 주었다. 이 계측효율곡선과 표 2의 방사선 강도를 사용하여 ^{134m}Cs 및 ^{134}Cs의 절대측정을 하였으며 ^{134m}Cs을 먼저 계측하고 ^{134m}Cs이 완전 붕괴하고 난다음 ^{134}Cs을 계측하였다. ^{134m}Cs의 조사 종료시의 방사능은 단순한 붕괴식 $Am=A\mathring{m}exp(-\lambda mt)$에 의해서 산출하였고 조사 종료시의 기저이성체의 방사능은 준안정이성체가 붕괴하고 난다음 식 (1)에 의해서 결정하였다.

2-4. 이성체 형성단면적비의 결정

준안정이성체가 기저이성체로 100% 붕괴될때 중성자 조사 종료시의 이성체 쌍의 실험적으로 얻은 방사능 비로부터 이성체 형성 단면적 비를 식 (2)에 의해서 결정할 수 있다[6].

$$\frac{\sigma_g}{\sigma_m}=\frac{1}{1-e^{-\lambda gt}}\left\{\frac{Ag^\circ}{A\mathring{m}}(1-e^{-\lambda mt})-\frac{\lambda g}{\lambda m-\lambda g}(e^{-\lambda mt}-e^{-\lambda gt})\right\}-1 \qquad (2)$$

여기서 t는 중성자 조사 시간을 나타내고 있다. 만약 조사시간이 두 이성체중 짧은 수명의 반감기에 비해 짧으면 식 (2)는 다음의 식 (3)으로 된다.

$$\frac{\sigma_g}{\sigma_m}=\frac{Ag^\circ\ t_{\frac{1}{2}}(g)}{Am^\circ\ t_{\frac{1}{2}}(m)} \qquad (3)$$

여기서 $t_{\frac{1}{2}}$은 반감기를 나타낸다.

3. 결 과

식 (2)와 (3)을 사용하여 조사 종료시의 방사능 비, $\frac{Ag^\circ}{Am^\circ}$로 부터 산출한 이성체형성 단면적의 비를 표(3)에 나타내었다. 이 표에서는 열중성자 및 Epi-cadmium 중성자에서 결정된 이성체 형성 단면적의 비와 다른 저

표 3. 열중성자 및 Epi-Cd 중성자에 있어서 이성체의 비*

중성자 포획에 의해서 형성된 핵	σ 높은스핀/(σ 높은스핀+σ 낮은스핀)					
	열 중 성 자			Epi-Cd 중성자		
	본 연 구	다 른 연 구	참고문헌	본 연 구	다 른 연 구	참 고 문 헌
$^{80}_{35}$Br	0.21±0.01	0.25±0.05	8)	0.19±0.02	—	—
$^{81}_{34}$Se	0.14±0.02	0.115±0.012	3)	0.29±0.02	0.161±0.016	3)
$^{104}_{45}$Rh	0.12±0.02	0.071±0.007	3)	—	—	—
$^{116}_{49}$In	0.69±0.07	0.74±0.04	9)	—	—	—
$^{134}_{55}$Cs	0.058±0.004	0.086±0.013	3)	0.074±0.011	0.073±0.011	3)

* 핵 데타는 참고문헌 7)을 사용하였음.

표 4. 열중성자에서의 이성체 비의 실험 및 이론치의 비교

열중성자 포획에 의해서 형성된 핵종	$\left(\frac{\sigma_h}{\sigma_h+\sigma_l}\right)_{exp.}$	이성체의 스핀*	포획상태의 스핀	$\left(\frac{\sigma_n}{\sigma_h+\sigma_l}\right)_{cal.}$
$^{80}_{35}Br$	0.21±0.01	5, 1 (2)	2 1	0.17 0.06
$^{81}_{34}Se$	0.14±0.02	$\frac{7}{2}$, $\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$	0.19
$^{104}_{45}Rh$	0.12±0.02	5, 1 (2)	1 0	0.073 0
$^{116}_{49}In$	0.69±0.07	5, 1	5 4	0.89 0.73
$^{134}_{55}Cs$	0.058±0.004	8, 4 (5)	4 3	0.032 0

* 경쟁하는 준위의 스핀을 괄호안에 표시하였음.

자의 결과를 함께 나타내었다. 이성체 형성비를 결정하는데 주된 오차는 이성체의 전이와 같은 붕괴 스킴 및 측정된 이성체의 붕괴 상수의 부정확에서 올 것이다. ^{134}Cs의 이성체 형성 단면적 측정시는 서로 다른 에너지에서의 계측 효율을 효율곡선(그림 3)에서 구하여 사용하였으므로 부가된 오차가 있을 것이다. 통계적인 계측 오차를 줄이기 위하여 매 계측수를 10,000 이상으로 하였다. 매 이성체의 형성 단면적비를 3번이상 독립적으로 측정하였으며 그 결과의 표준편차(1σ)를 표 3에 실험오차로 나타내었다.

4. 토론 및 이론치의 비교

1960년 Huizenga와 Vandenbosch는 그때까지 보고된 이성체 단면적 비를 정리하여 이론적으로 계산된 값과 비교 하였다. 그후 새로운 실험결과가 나옴에 따라 Bishop들은 계산과정을 조금 수정한 소위 Shifted Fermi gas model을 바탕으로 하여 이론적으로 산출한 이성체 형성비를 보고하였다. 본 보고서에서는 실험치와 Bishop들의 상기 model로 계산한 이론치와의 비교를 표 4에 나타내었다. 표 3의 Epithermal 포획 이성체 비는 ^{79}Br, ^{133}Cs에 있어서는 열중성자의 그것과 거의 동일하였다. 한편 ^{80}Se에 있어서는 Epithermal에서의 이성체 비가 열중성자에서의 치보다 높았다. 보다 구체적인 이론적 검토는 현재 진행중에 있다.

본 보고는 과학기술처 연구보조에 의한 연구결과의 일부임.

참 고 문 헌

1) J. R. Huizenga and R. Vandenbosch, Phys. Rev. **120**, 1305 (1960)
2) R. Vandenbosch and J. R. Huizenga, *ibid*, 1313 (1960)
3) C. T. Bishop, H. K. Vonach and J. R. Huizenga, Nuclear Physics **60**, 241 (1964)
4) R. L. Heath, "Scintillation Spectrometry", "Gamma-ray Spectrum Catalogue". Phillips Petroleum Co., At. Div., Idaho Falls. (1964)
5) C. E. Crouthamel, "Applied Gamma-ray Spectrometry", C. E, Crouthamel, *ed* Pergamon Press, Oxford, (1960)
6) J. Ahumada and S. J. Nassiff, Radiochimica Acta, Band 13, Heft **3**, 121 (1970)
7) C. M. Lederer, J. M. Hollander and I. Perlman, "Table of Isotopes" *6th ed.*, John Wiley & Sons (1968)
8) A. E. Johnsrud, *et al.*, Phys. Rev. 116, 927 (1959)
9) L. Seren, *et al. ibid* **72**, 888 (1947)