

# A Study on Neutron Resonance Energy of $^{180}\text{Ta}$ below 1eV Energy

Samyol Lee

Department of Radiological Science, Dongseo University, Jurae-dong, Sasang-gu, Busan, Korea

## 1 eV 이하 에너지 영역에서의 $^{180}\text{Ta}$ 동위원소의 중성자공명에 대한 연구

이삼열

동서대학교 방사선학과

### Abstract

In this study, the neutron capture cross section of  $^{180}\text{Ta}$  (natural existence ratio: 0.012 %) obtain by measuring has been compared with the evaluated data for the capture data. In generally, the neutron capture resonance is defined as Breit-Wigner formula. The formula consists of the resonance parameters such as neutron width, total width and neutron width. However in the case of  $^{180}\text{Ta}$ , these are very poor experimental neutron capture cross section data and resonance information in below 10 eV. Therefore, in the study, we analyzed the neutron resonance of  $^{180}\text{Ta}$  with the measuring the prompt gamma-ray from the sample. And the resonance was compared with the evaluated data by Mughabghab, ENDF/B-VII, JEFF-3.1 and TENDL 2012. Neutron sources from photonuclear reaction with 46-MeV electron linear accelerator at Research Reactor Institute, Kyoto University used for cross section measurement of  $^{180}\text{Ta}(n,\gamma)^{181}\text{Ta}$  reaction. BGO( $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ ) scintillation detectors used for measurement of the prompt gamma ray from the  $^{180}\text{Ta}(n,\gamma)^{181}\text{Ta}$  reaction. The BGO spectrometer was composed geometrically as total energy absorption detector.

Keyword :  $^{180}\text{Ta}$ , Neutron Capture, Low Energy Resonance, Electron Linear Accelerator

### 요약

본 연구는 자연 속에 미량(존재비: 0.012 %)으로 존재하는  $^{180}\text{Ta}$ 의 중성자포획 공명에 대하여 포획단면적의 계산치와 측정치를 비교하여 분석하였다. 일반적으로 중성자 공명은 Breit-Wigner식으로 정의되며, 식에는 공명에너지를 중심으로 공명의 폭을 결정하는 다양한 인자들로 구성되어 있다. 그러나  $^{180}\text{Ta}$ 의 경우 중성자포획단면적과 공명에 대한 정보가 잘 알려져 있지 않고 실험적으로도 측정되어진 예가 현재까지는 없는 것이 현실이다. 따라서 본 실험에서는 천연 Ta속에 포함되어진  $^{180}\text{Ta}$ 에 의한 중성자 포획에 의해 발생하는 감마선을 관측하여  $^{180}\text{Ta}$ 의 공명을 분석하고 Mughabghab에 의해서 계산되어진 공명인자를 사용하여 1 eV이하의 에너지에 대한 중성자포획단면적을 계산하고 비교분석하였다. 측정을 위해서 교토대학원자로 실험소의 46-MeV 전자선형가속기를 이용하여 중성자 TOF 방법으로, 에너지 영역 0.003 eV에서 10 eV에 걸쳐 측정하였다. 측정을 위해서는 12개의  $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (BGO)섬광체로 구성된 전에너지 흡수검출장치로  $^{180}\text{Ta}(n,\gamma)^{181}\text{Ta}$  반응으로부터 나오는 즉발감마선을 측정하였다.

중심단어:  $^{180}\text{Ta}$ , 중성자포획, 저에너지 공명, 전자선형가속기

## I. INTRODUCTION

중성자 포획에 대한 핵반응 자료는 과거 원자폭탄의 개발을 위해 선진국을 중심으로 진행이 되어 왔다. 그러나 원자로의 발전과 함께 핵반응에 대한 다양한 자료들을 Brookhaven 회의를 통해서 서로 공유하게 되었고, 현재에는 NNDC(National Nuclear Data Center) 통하여 그 결과들을 공개하고 있는 상황이다<sup>[1]</sup>. 그러나 지금까지의 핵자료들의 대부분은 원자로개발에 필요한 핵종과 특정 연구를 위한 결과들을 중심으로 핵자료들이 정리 및 개발되어 왔다. 따라서 원자로 설계와 핵무기 개발과 관련성이 적은 핵종들에 대한 정보들은 그 결과들이 미흡한 것이 현실이다. 특히 최근에는 노령화된 원자로의 폐기가 문제로 대두되고 있는 실정이며, 폐로(廢爐)시 발생할 수 있는 노심들의 저장 및 처리 문제와 원자로의 장기간 사용에 따라 생성된 다양한 핵분열 물질들의 핵종 분리문제 등이 해결해야 될 과제가 되고 있다. 이에 따라서 다양한 핵종들에 대한 중성자포획 데이터의 필요성이 대두되고 있는 상황이다. 특히 장수명 핵분열 물질들은 처리가 곤란하여 세계적으로 단수명 핵종으로 변경하는 기술을 개발 중에 있으며 이것을 위한 핵데이터 개발도 필요한 상황에 있다<sup>[2]</sup>. 뿐만 아니라, 중성자포획 후 만들어지는 에너지 여기상태의 핵준위에 대한 정보도 물질의 핵구조 연구와 차폐설계 등에 중요하다<sup>[3]</sup>.

본 연구에서 다루고 있는 Ta( $Z:73$ )는 이러한 기술 개발에 필요한 물질들 중의 하나이다. Ta는 자연계에 2가지의 동위원소의 형태로 존재를 하고 있다.  $^{181}\text{Ta}$ 의 경우는 99.988% 존재하며,  $^{180}\text{Ta}$ 의 경우 0.012% 존재하고 있다.  $^{181}\text{Ta}$ 의 경우 안정한 동위원소이며,  $^{180}\text{Ta}$ 의 경우는 양성자 과잉 핵종으로 전자포획(EC)의 확률이 86%를 가지는 방사성동위원소의 형태를 가지게 된다. 그리고 반감기는  $1.2 \times 10^{15}$ 년으로 장수명(long life time) 동위원소 중하나이다<sup>[4]</sup>. 본 연구에서 다루고 있는  $^{180}\text{Ta}$ 의 중성자포획 단면적에 대한 연구의 필요성은 자연계에 존재하고 있는 양이 앞에서 언급한 것과 같이 존재비율이 적을 뿐 아니라, 상업적 필요성 또한 적었던 것이 현실이다. 그러나 최근에는 고효율의 원

자로 개발 및 원자핵반응 연구에서 미량의 물질에 대한 효과에 주목하고 있는 실정이다<sup>[3]</sup>. 뿐만 아니라  $^{180}\text{Ta}$ 의 중성자포획 단면적은 Fig. 1에서 보는 것과 같이 현재 보고된 측정 결과가 없으며, 본 연구에서 얻어진 결과는 핵의 모델 연구 및 실험원자로 연구에도 중요한 정보를 제공할 것으로 보여 진다. 아래 Fig. 1에서는 현재까지 발표되어진  $^{180}\text{Ta}$ 의 중성자포획 단면적의 이론적 계산 결과를 보여주어 있다. 현재까지는 측정되어진 단면적이 존재하지 않고, 계산에 의해서 추정되어지는 단면적만 존재하고 있다. 계산되어진 단면적은 ENDF/B-VII<sup>[5]</sup>, JEFF-3.1<sup>[6]</sup>, TENDL 2012<sup>[7]</sup>로 이들 계산결과들은  $1/\nu$ 의 단면적을 가지는 저에너지 열중성자 영역(0.0253 eV)의 에너지에서도 차이를 보이고 있음을 알 수 있다. 뿐만 아니라, 계산에 의한 공명 영역의 결과도 다양하다. 따라서 본 연구의 결과는 정확한 공명의 위치를 결정하는데 매우 중요하다고 할 수 있다.

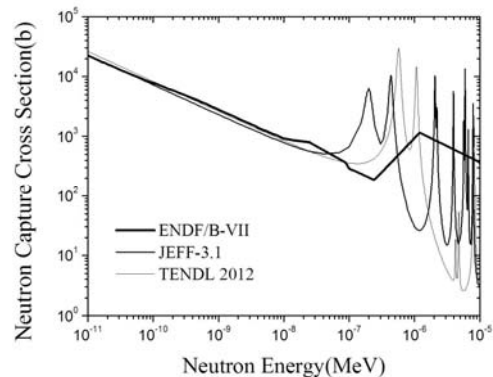


Fig. 1. Neutron Capture Cross Section data of  $^{180}\text{Ta}$ .

본 연구에서 관심을 가지고 있는  $^{180}\text{Ta}$  표적의 0.2 eV에너지에 대하여, 공명 중성자포획단면적 측정을 위해서 일본 교토대학 원자로실험소 (KURRI: Kyoto University, Research Reactor Institute)가 보유하고 있는 46-MeV 전자선형가속기를 이용하였다. 이 공명의 크기 및 에너지를 존재 확인하기 위하여 이론에 의해서 구해진 공명인자들을 사용하여 중성자포획단면적을 계산하여 그 결과들을 비교하였다.

## II. MEASUREMENT OF CROSS SECTION

본 연구에서 관심을 가지는  $^{180}\text{Ta}$ 의 중성자포획단면적의 측정은 본 연구실에서 천연 Ta의 중성자포획 측정을 통하여 발견된바 있으나 천연 Ta의 이론 계산 결과들은  $^{180}\text{Ta}$ 의 공명들을 재현하지 못했다<sup>[8],[9]</sup>. 따라서  $^{180}\text{Ta}$ 의 공명에 대한 연구는 본 연구가 처음으로 시도된다고 볼 수 있다. 시료에 입사되는 중성자 에너지 측정을 위하여 TOF(Time-of-Flight)법을 이용하였다. 사용되어진 중성자원은 일본 교토대학 원자로연구소(KURRI)의 46-MeV 전자선형가속기로 가속된 고속의 전자선을 이용해 광핵반응  $^0\text{Ta}(\gamma, n)$ 에 의해 발생된 중성자를 이용하였다. 전자선형 가속기의 운전조건은 전자 가속 에너지가 30 MeV이며 펄스폭이 0.1  $\mu\text{sec}$ , 전자선의 반복 발생수가 50 Hz의 전자빔을 이용하였다. 시료는 금속판 형태로서 가로 세로가 각각 1.8 cm  $\times$  1.8 cm이며 두께는 0.1 mm (2.72 g)였다. 시료의 두께는 검출기로 공명의 형태를 찾을 수 있는 두께로 설정하였다. 시료는 중성자원으로 부터 약  $12.7 \pm 0.02$  m 떨어진 곳에 12개 블록으로 구성되어진 전에너지 흡수형 BGO검출기의 중심에 설치하였다. 시료에 의해서 산란되는 중성자를 줄이기 위해서 3 mm 두께의  $^6\text{LiF}$  타일을 사용하여 차폐하였다. BGO검출기에서 만들어진 신호는 FAST Com Tec's MPA/PC에 저장하여 데이터를 분석하였다. 입사되는 중성자의 양을 측정하기 위하여  $^{10}\text{B}$ 시료를 사용하였다.  $^{10}\text{B}(n, \alpha\gamma)$ 반응의 단면적은 3837 b 으로 거의 대부분의 열중성자를 흡수하게 된다. 이때 발생하는 감마선을 측정하여 중성자 선속을 구하는데 사용하였다. 중성자 에너지를 결정하기 위하여 비행시간법 (TOF: Time-of-Flight)을 이용하여 결정하였다. 해당 식을 식(1)에 나타내었다. 여기에서 L은 중성자발생원으로부터 검출기까지의 거리,  $t$ 는 중성자의 비행시간을 의미한다. 시간은 측정 장치의 채널수( $I$ )에 각 채널당 시간( $C$ )을 곱하여 얻어질 수 있다.

$$E(t) = \left( \frac{72.3 \times L}{I \times Ch_c} \right)^2 = \left( \frac{72.3 \times 12.7}{I \times 0.25} \right)^2 (\text{MeV}) \dots\dots (1)$$

본 실험에서는 채널당 시간과 총 채널수는 각각 0.25  $\mu\text{sec}$ 와 8192로 결정하였다. 본 실험에 사용되어진

실험장치의 도면을 Fig. 2에 나타내었다.

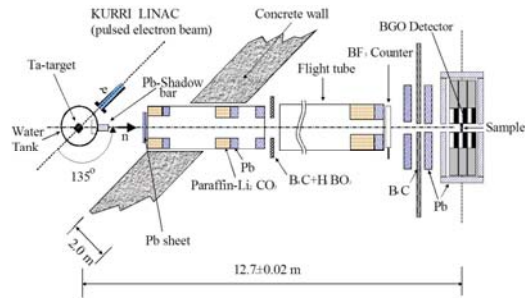


Fig 2. Experimental arrangement.

실험을 통하여 얻어진 천연 Ta의 중성자포획단면적을 Fig. 3에 나타내었다. 본 실험의 실험방법에 대해서는 본 연구실에서 기술한 논문들에 상세히 기술되어 있으므로 본 논문에서 간략하게 소개하기로 한다<sup>[8],[9]</sup>.

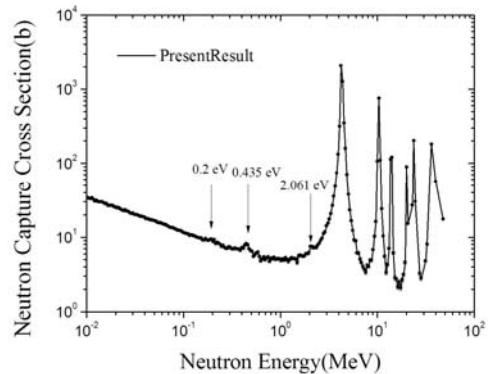


Fig. 3. Three peaks are in the neutron capture cross section of natural Ta in the energy region from 0.1 eV to 5 eV.

## III. CALCULATION OF RESONANCE

일반적으로 중성자포획반응에 있어서 s-wave 공명에 의해서 만들어지는 단면적의 모양은 Breit-Wigner식에 의해서 표현되어질 수 있으며 아래의 식으로 표현할 수 있다.

$$\sigma_{n,\gamma}(E) = \pi \left( \frac{\lambda}{2\pi} \right)^2 \frac{\Gamma_n \Gamma_\gamma}{(E - E_R)^2 + (\Gamma/2)^2} \dots\dots\dots (1)$$

여기에서  $\sigma_{n,\gamma}(E)$ 는 에너지  $E$ 에서의 중성자포획단면적을 나타낸다.  $\lambda$ 는 중성자에너지에 해당하는 de Broglie 파장이며,  $\Gamma_n$ 과  $\Gamma_\gamma$ 는 각각 공명인자이며, 감마선과 중성자에 대한 부분 방사폭을 나타낸다.  $\Gamma$ 는  $\Gamma_n$ 과  $\Gamma_\gamma$ 의 합인 총 방사폭을 의미한다.  $E_R$ 은 공명에너지를 나타낸다. Table 1.은 <sup>180</sup>Ta의 공명인자에 대한 정보를 나타내고 있다.

Table 1. Resonance parameters of <sup>180</sup>Ta for neutron capture cross section<sup>[10]</sup>

	$E_R$ (eV)	$2g\Gamma_n$ (meV)	$\Gamma_\gamma$ (meV)
1	0.2	0.048	51
2	0.435	0.177	51
3	2.061	0.85	51
4	2.203	0.25	55
5	3.952	0.77	44
6	5.663	0.31	42
7	5.934	3.68	52
8	6.647	0.27	41
9	7.856	1.09	49
10	10.96	0.26	38
11	11.92	2.73	58
12	13.98	1.24	32
13	14.3	1.59	67
14	16.94	2.55	42
15	18.19	8.6	51
16	19.09	4.2	55

각각의 공명인자들은 Mughabghab에 의해서 계산되어졌다<sup>[10]</sup>. 식(1)에서 중성자에너지가 공명에너지가 될 때에는 다음과 같이 식(2)로 표현 될 수 있고 이때의 중성자포획 단면적은 최고가 된다. 본 연구에서는 0.2 eV에서 19.09 eV까지의 16개의 공명에 대하여 계산을 하였다. 여기서  $\lambda_R$ 은 공명에너지에서의 중성자 파장을 의미한다.

$$\sigma_{n,\gamma}(E_R) = 4\pi \left( \frac{\lambda_R}{2\pi} \right)^2 \frac{\Gamma_n \Gamma_\gamma}{\Gamma^2} \dots\dots\dots (2)$$

천연Ta 속에 포함되어있는 <sup>180</sup>Ta와 <sup>181</sup>Ta의 공명들이 혼합되어 있으므로 이것을 구분하기 위하여 <sup>181</sup>Ta의

공명인자 4.28 eV 공명에 대하여 table 2에 나타내었다.

Table 2. 4.28 eV resonance parameters of <sup>181</sup>Ta

$E_R$ (eV)	$2g\Gamma_n$ (meV)	$\Gamma_\gamma$ (meV)
4.28	3.6	53

공명인자를 이용하여 계산되어진 <sup>180</sup>Ta의 중성자포획 단면적의 결과를 각각의 공명에너지 별로 Fig. 4에 나타내었고, 얻어진 중성자포획 단면적의 합을 Fig. 5에 나타내었다.

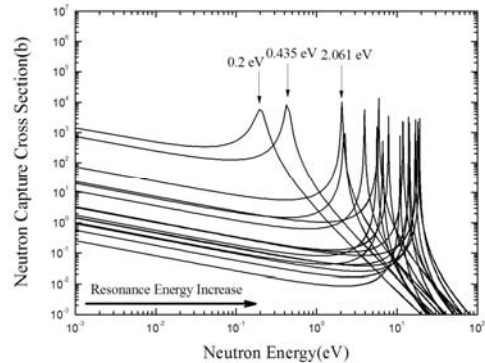


Fig. 4. Calculated neutron capture cross section of <sup>180</sup>Ta for 16 resonances.

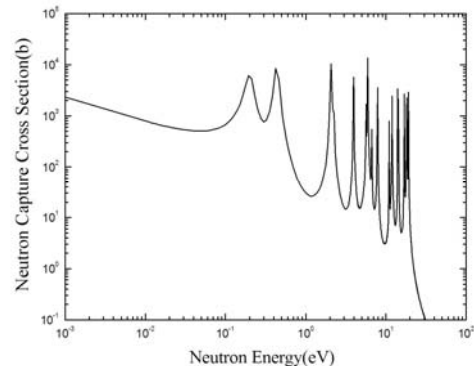


Fig 5. Summed neutron capture cross section of <sup>180</sup>Ta

#### IV. RESULT AND DISCUSSION

본 연구에서 실험으로 얻어진 결과(Fig. 3)와 이론적으로 계산되어진 결과(Fig. 5)를 서로 비교분석하였다.

그리고 현재까지 보고되어진 ENDF/B-VII<sup>[5]</sup>, JEFF-3.1<sup>[6]</sup>, TENDL 2012<sup>[7]</sup> 등과 같은 계산결과들 과도 비교분석하였다. 비교 결과를 Fig. 6에 나타내었다. 본 연구의 계산에서 얻어진 결과는 JEFF-3.1 A의 결과와 매우 일치하는 결과를 얻었다. 그러나 본 연구에서 얻어진 결과와 JEFF의 결과는 공명의 피크부분에서 약간의 차이를 보이고 있고, 1~10 eV 영역에서의 좁은 공명영역에서는 그 현상이 크게 나타났다. ENDF/B-VII와 TENDL 2012의 결과는 공명 에너지 뿐만 아니라, 단면적에서도 매우 상이한 결과를 보여주고 있다. ENDF/B-VII의 경우 공명에 대한 효과보다는 전체적인 단면적의 평균값으로 계산하였기 때문에 공명을 제현하지 못하였고, TENDL 2012의 경우 전체적인 공명에너지의 계산이 본 측정에 의한 연구와 JEFF의 결과와 차이를 보여 평가자체의 오류를 가진다고 보여진다.

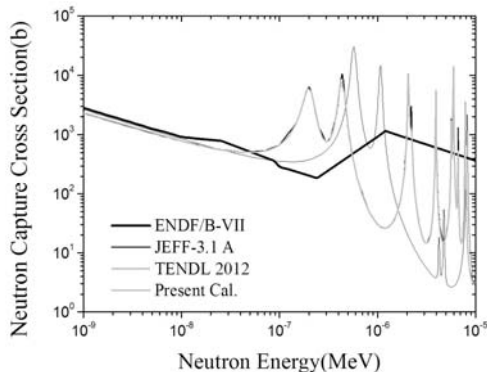


Fig 6. Comparison of the previous evaluated neutron capture cross section with present calculated result.

본 연구실에서 측정되어진 천연 Ta의 중성자포획 단면적에서 측정되어진 3개의 공명들에 대한 정보를 얻기 위하여 <sup>180</sup>Ta의 이론 계산값 그리고 JEFF-3.1 A의 값들을 비교하여 Fig. 7에 나타내었다. (A), (B) 및 (C)는 0.2 eV, 0.435 eV 및 2.06 eV의 공명을 각각 나타낸다. 계산에 의한 공명에너지와 측정에 의한 공명이 매우 일치함을 볼 수 있다. 본 연구에서 2.06 eV이상의 공명에 대해서는 검출장치의 분해능의 한계로 측정되지 못하였다. 그러나 매우 순도가 높은 고농축의 시료와 고에너지 분해능의 중성자에너지 스펙트럼 기술이 도입된다면 어느 정도 해결될 것으로 사료된다.

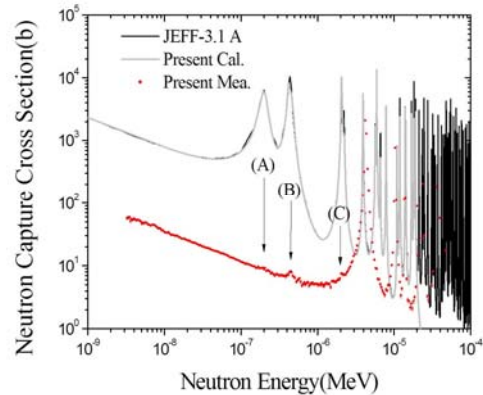


Fig 7. Comparison of the present calculated result and the previous evaluated data with the present measurement data. (A), (B) and (C) are the resonance peaks such as 0.2, 0.435 and 2.06 eV energies.

## V. CONCLUSION

본 연구에서는 천연 Ta에 포함되어 있는 <sup>180</sup>Ta 동위원소에 대한 중성자포획효과에 공명인자 확인을 측정과 계산을 통하여 시도하였다. 측정은 일본 교토대학 원자로연구소 (KURRI)의 46-MeV 전자선형가속기와 BGO검출기를 통하여 시도되었다. 본 연구를 통해서 측정에서 발견된 3개의 피크들은 계산을 통하여 <sup>180</sup>Ta 동위원소에 의한 효과임을 확인하였다. 따라서 본 연구에서 시도한 계산은 현재까지 시도된 ENDF/B-VII와 TENDL 2012와는 큰 차이점을 보였고, JEFF-3.1 A와는 매우 일치함을 보였다. 향후 고순도 <sup>180</sup>Ta 시료와 고에너지 분해능의 TOF시설이 구축된다면 보다 질 좋은 <sup>180</sup>Ta(n,γ) 핵자료가 만들어 질것으로 사료된다.

## Acknowledgement

The author would like to express their thanks to the linac staff of the Research Reactor Institute, Kyoto University(KURRI) for making it possible to operate the accelerator steadily. This study was performed by the Dongseo Frontier Research Project in 2013 year.

## Reference

- [1] National Nuclear Data Center: [www.nndc.bnl.gov](http://www.nndc.bnl.gov)

- [2] Walter E. Nervi and Glenn T. Seaborg, *Phys. Rev.* 97, 1092, 1955.
- [3] Mukaiyama, T. et al.: Conceptual study of actinide burner reactors, Proc. of 1988 Int Reactor Phys. Conf., Jackson Hale, Vol. IV, p.369, 1988.
- [4] Kagamiyama, Higashi-Hiroshima, "Chart of the Nuclides 1996", Takayoshi Horiguchi et al, Department of Physics, Faculty of Science, Hiroshima University, 1-3-1 739, Japan, 1996.
- [5] P. F. ROSE, Ed., "ENDF-201, Summary Documentation", BNL-NCS- 17541, MOD1 New Evaluation (ENDF/B-VI) 4th ed., Brookhaven National Laboratory, 1991.
- [6] A. Santamarina, D. Bernard, Y. Rugama, "The JEFF-3.1.1 Nuclear data Library", JEFF-3.1, 2009.
- [7] A. J. Koning and D. Rochman, "TALYS-based Evaluated Nuclear Data Library", TENDL-2012, 4th Edition, 2011.
- [8] Samyol Lee, "A study on neutron resonance energy of tantalum by 46-MeV electron linac TOF method", J. of the Korea Society of Radiology, Vol. 7, Number 3. 245-249, 2013.
- [9] Samyol Lee, Sangbock Lee, Junhaeng Lee, Jungmin Lee, Jungran Yoon, Younggi Min, Soonchul Jung, Taeik Ro, Guinyun Kim, Jun-ichi Hori, Shuji Yamamoto and Katsuhei Kobayashi, "Measurement of the Neutron Capture Cross Section of Tantalum by Using the Neutron Time-of-Flight Method", Sam-Mulli, Vol 49, Number 3, 241-252, 2004.
- [10] S. F. Mughabghab, M. Divadeenam and N. E. Holden, "Neutron Cross Sections, Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Sections", Vol. 1, part A: Z=1-60(Academic Press, New York, 1981.