

A Study on the Measurement of the Relative Nuclear Reaction Cross-Section of the $^{nat}\text{W}(p, xn)^{176}\text{Re}$ Reaction using 100 MeV Proton

Samyol Lee*

Department of Radiological Science, Dongseo University
Center for Radiological Environment & Health Science, Dongseo University

Received: April 07, 2021. Revised: April 28, 2021. Accepted: April 30, 2021.

ABSTRACT

This study derives the relative cross-section for the $^{nat}\text{W}(p, xn)^{176}\text{Re}$ nuclear reaction by measuring the gamma rays generated from the nuclear reaction with natural tungsten using a 100 MeV linear accelerator of the Korea Multi-purpose Accelerator Complex in the Korea Atomic Energy Research Institute. In general, research on isotopes with a short half-life always shows a tendency that the intensity of radioactivity decreases rapidly within a short period of time, making it very difficult to measure itself. In particular, ^{176}Re is one of the relatively short radionuclides with a half-life of 5.3 minutes. In this study, 109.08 keV gamma rays generated from the ^{176}Re isotope having such a short half-life were measured using a high-purity Ge detector (HPGe detector). The obtained relative measurements were the results in the 8 to 14 MeV proton energy domain published by Richard G. in 1967, and the TENDL-2019 value, which was the result of A. J. Koning in 2019, which evaluated the nuclear reaction cross-section by calculation based on this comparative analysis was performed. The results of this study are expected to be usefully applied to the design of nuclear fusion reactor which is known as future energy sources, elements ratio for the nuclear synthesis of astrophysics.

Keywords: Re-176, Natural Tungsten, Nuclear Reaction, High Purity Ge detector, Gamma ray Spectrum, Proton Beam, KAERI

I. INTRODUCTION

우리나라의 원자력연구원(Korea Atomic Energy Research Institute, KAERI) 내에 있는 양성자과학연구단(Korea Multi-purpose Accelerator Complex, KOMAC)은 국내 유일의 고에너지 양성자 가속기를 보유하고 있다. 이를 이용한 다양한 연구가 진행되고 있으며 특히 핵물리, 우주항공, 신소재개발, 에너지 관련연구, 생명공학, 치료방사선 등 다양한 연구들이 이루어지고 있다^[1]. 특히 이들 연구들 중에서 핵반응에 대한 연구는 과거에 원자폭탄 및 원자력발전을 위하여 집중적으로 이루어졌으나 현재는 활발하게 진행되지는 않고 있다. 그러나 최근 우주물리학에 대한 데이터 수요가 꾸준히 있으며 이에 대한 결과를 매우 필요로 하고 있다. 특히 우주에는

고에너지 양성자가 다량 존재하기 때문에 인공위성 및 다양한 인공 구조물의 양성자에 의한 손상이 문제가 되고 있다. 특히 반도체에 대한 양성자조사는 반도체 성능을 저하시키거나 기능에 대한 오작동을 발생시키는 원인이 되기도 한다^[2]. 또한 항성속에서의 원소합성 과정에 있어서 빠른 양성자반응 과정(Rapid Proton Capture Process, Rp-process)에 의한 원소합성의 비율을 결정하는데 있어서 고에너지 양성자에 의한 단면적이 매우 중요한 인자 중의 하나이며 항성의 물질 구성비율을 결정하는 매우 중요한 데이터 중의 하나이다^[3,4]. 이와 같이 양성자 핵반응 데이터 생산의 필요성은 매우 높아지고 있다. 그러나 국내외적으로 100 MeV의 에너지 영역에서 양성자 핵반응 데이터는 거의 찾아보기 힘들 정도로 부족한 것이 현실이다. 따라서 정밀도가 높

* Corresponding Author: Samyol Lee

E-mail: samuel@gdsu.dongseo.ac.kr

Tel: +82-51-320-2728

은 고에너지 양성자 핵반응과 관련된 데이터의 질적 및 양적인 요구가 고조되고 있는 것이 현실이다. 이에 본 연구팀에서는 고에너지 양성자를 이용한 핵반응에 대한 연구를 지속적으로 수행하고 있다^[5,6]. 최대 에너지 100-MeV 에너지를 가지는 양성자빔이 물질 속에 들어가면 핵반응을 통해 다양한 종류의 핵반응이 발생하고 이에 해당하는 다양한 종류의 방사성동위원소가 생성된다. 이번 연구는 고에너지 양성자빔을 이용한 $^{nat}W(p, nx)^{176}Re$ 양성자 핵반응으로 생성되는 ^{176}Re 방사성핵종에 대한 상대핵반응단면적을 측정하였다. ^{176}Re 는 원자번호(Z)가 75번으로 매우 짧은 반감기를 가지고 있는 핵종 중의 하나이다.

$^{nat}W(p, nx)^{176}Re$ 양성자핵반응으로 생성되는 ^{176}Re 방사성동위원소의 반감기는 G. Audi와 P. F. A. Goudsmit에 의해 보고된 현재 5.3-5.7 분으로 알려져 있다^[7,8]. 이 반감기는 다른 방사성동위원소에 비하여 매우 짧은 편으로 기술적으로 충분한 통계를 가지는 결과를 얻기에는 반감기가 너무 짧은 문제점을 가지고 있다. 따라서 최근까지 이 핵반응에 대한 연구결과는 1967년에 Richard G.에 의해 발표된 8-14 MeV 양성자에너지 영역에서의 결과만이 유일하게 존재하는 상태이다^[9]. 이 측정 결과를 기반으로 계산에 의한 핵반응단면적에 대한 평가가 2019년 A. J. Koning에 의해서 이루어 졌으며 그 결과를 TENDL-2019가 발표하였다^[10]. 현재까지 발표된 실험 및 계산결과들은 100 MeV 근방 영역에서는 아직 발표된 측정결과들이 없으며 본 연구의 결과들이 유일한 결과라고 할 수 있다.

본 연구에서는 KOMAC의 고에너지 양성자 선형 가속기에서 발생된 100 MeV 에너지 양성자를 이용하여 $^{nat}W(p, nx)^{176}Re$ 반응으로부터 발생하는 지발 감마선을 고효율의 고순도 게르마늄(HPGe)검출기를 이용하여 측정해 발생하는 감마선의 강도를 측정함으로써 상대핵반응단면적을 시도하였다.

II. MATERIAL AND METHODS

1. 고에너지 양성자 빔

국내에 유일하게 설치 운영되고 있는 양성자가

속기는 한국원자력연구원 소속의 양성자과학연구단에 설치되어있는 100 MeV 선형 양성자가속장치이다. 본 연구에서는 이 장치를 이용하여 최대 96 MeV의 에너지가 시료에 들어갈 수 있도록 조건을 맞추어 측정을 시도하였다. 사용된 가속기의 양성자빔의 가속 조건을 Table 1에 나타내었다. 고에너지 양성자와 천연 텅스텐 시료의 핵반응을 일으키기 위해 TR 103 빔조사실을 이용하였다. 본 실험은 짧은 반감기를 가지는 핵종의 감마선을 측정해야 하는 실험이므로 되도록 빔조사 후 조사실에서 빠른 시간에 검출기로 측정이 가능하도록 양성자빔 조사양을 조절하였다. 양성자빔의 평균 전류는 0.1 mA의 조건을 유지하였다. 양성자빔의 단면적은 최대 직경이 300 mm으로 양성자 빔이 시료에 충분히 균일한 방사화가 일어나도록 하였다. 가속기에서 발생된 고에너지 양성자 빔은 1 Hz의 주기로 반복적으로 시료에 조사되어 총 양성자의 조사량이 $2.8 \times 10^{11} \text{ #/cm}^2$ 되도록 결정하였다. 양성자빔의 조사량은 시료가 조사된 후 발생하는 지발 감마선의 방사능이 검출기의 검출효율에 크게 영향이 미치지 않도록 고려하여 결정하였다. 자세한 실험방법에 대해서는 이전에 발표한 논문에 상세히 기술되어있다^[6].

Table 1. Specifications of the Irradiation Proton Beam Parameters in the Present Measurement

Proton beam energy	94 MeV
Average current	0.1 mA
Repetition rate	1 Hz
Beam size	300 mm dia

2. ^{nat}W 시료와 ^{nat}Al 시료

^{nat}W 시료의 물리적인 크기는 $10.0 \times 10.0 \text{ mm}^2$ 이고 두께는 0.1 mm의 금속편 시료를 사용하였다. 고순도 Ge검출기를 통한 지발 감마선의 측정 시 시료의 크기에 의한 기하학적 검출효율의 오차, 감마선의 감쇄 및 양성자 빔의 감쇄 등을 고려하여 시료를 제작하였다. 양성자 빔의 에너지 감소를 위하여 ^{nat}W 시료 사이에 2 mm 두께의 ^{nat}Al 시료를 삽입하였다. 시료에 대한 상세한 내용은 Table 2에 나타

내었다.

Table 2. Specifications of the Sample for Natural Tungsten and Natural Aluminum

Sample	^{nat} W	^{nat} Al
Chemical form	Metal Plate	Metal Plate
Chemical purity (%)	¹⁸⁰ W (0.13)	²³ Al (100.0)
	¹⁸² W (26.3)	
	¹⁸³ W (14.3)	
	¹⁸⁴ W (30.6)	
	¹⁸⁶ W (28.6)	
Size (mm ²)	10.0 × 10.0	10.0 × 10.0
Thickness (mm)	0.1	2

3. 시료제작

본 연구에 사용되어진 양성자방사화 방법은 시료를 적층으로 쌓아서 양성자를 조사하는 Stacked Activation Method를 사용하였다^[11]. 이 방법은 다양한 에너지에 대한 핵반응을 동일한 종류의 시료에 조사할 때 유용하게 사용되어 질수 있는 방법 중의 하나이다. ^{nat}W시료사이에 비교적 두꺼운 ^{nat}Al시료를 삽입함으로써 ^{nat}W시료에 입사되는 양성자의 에너지를 줄일 수 있게 된다. 본 실험에서 사용되어진 시료를 Fig. 1에 나타내었다.

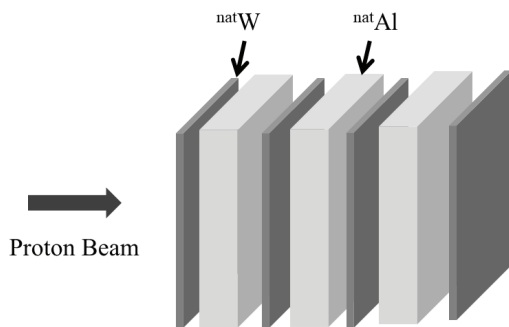


Fig. 1. In order to utilize the Stacked Activation Method, the composition method of the sample and the direction of the high-energy proton beam are indicated.

4. HPGe검출기를 이용한 감마선 측정

본 연구에서는 ^{nat}W(p,nx)¹⁷⁶Re에서 발생하는 지발 감마선을 HPGe검출기를 통하여 측정하였고 Fig. 2에 나타내었다. HPGe검출기는 Canberra사에서 개발된 것으로서 원통형(직경: 47.5 mm dia, 길이: 46 mm)의 모양을 가진다. 이 검출기는 낮은 에너지의 감마선에 대한 측정 효율이 상대적으로 높게 설계되어져 있는 GMX 형식으로 낮은 에너지의 감마선 검출에 매우 용이한 특징을 가지고 있다^[12]. 검출기는 자연방사선에 의한 영향을 최대한 줄이기 위하여 두께 5 cm 납으로 차폐하였다. HPGe 검출기는 반도체 특유의 낮은 잡음을 제거하기 위하여 전치 증폭기를 사용하였고 출력신호를 Fast spectroscopy Amplifier에 입력함으로써 선형증폭 하였고 이 신호는 Multi-Channel Analyser를 통하여 감마선 에너지 분석을 하였다. 자세한 검출기의 특성과 측정회로에 대해서는 이전 논문에서 상세히 설명하였다^[13].

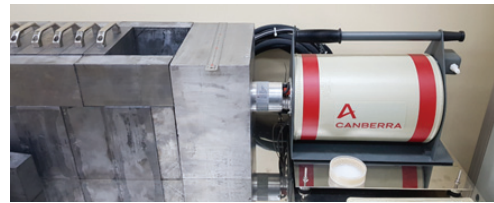


Fig. 2. HPGe Detector for Measurement of delayed Gamma-ray from the Irradiated ¹⁷⁶Re Sample.

III. DATA ANALYSIS

1. 감마선 스펙트럼

^{nat}W(p,nx)¹⁷⁶Re 핵반응에 의해 ¹⁷⁶Re 방사선동위원소가 생성되게 된다. ¹⁷⁶Re는 5.3 분의 반감기를 가지는 양성자과잉핵종으로 전자포획을 통하여 ¹⁷⁶W로 붕괴하게 된다. 이때 ¹⁷⁶W 동위원소는 여기상태가 되고 스핀 0⁺상태로 전이되면서 감마선을 발생하게 된다. 이 때 다양한 여기상태가 존재하게 되는데 약 67%정도가 제 1여기상태와 제 2여기상태로 전이하게 되며 이 때 109.08 및 240.17 keV 감마선을 방출하게 된다. ¹⁷⁶Re의 에너지 붕괴도를 Fig. 3에 나타내었다^[14].

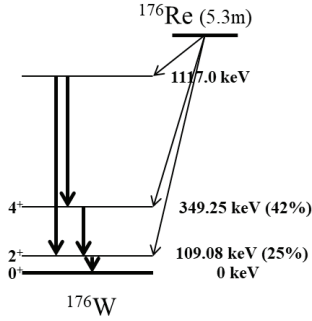


Fig. 3. The degree of decay of the radioactive isotope of ^{176}Re is shown.

본 연구에서 상대핵반응단면적을 도출하기 위하여 사용한 감마선은 ^{176}W 의 제1여기상태에서 기저상태로 천이(25% 비율)하는 109.08 keV 감마선을 사용하였다. 240.17 keV 감마선의 경우 다른 감마선의 영향을 받아 정확한 감마선강도를 얻기가 힘들었다. $^{nat}W(p,nx)^{176}Re$ 에서 발생하는 지발 감마선을 HPGe검출기를 통하여 측정하였고 그 결과를 Fig. 4에 나타내었다.

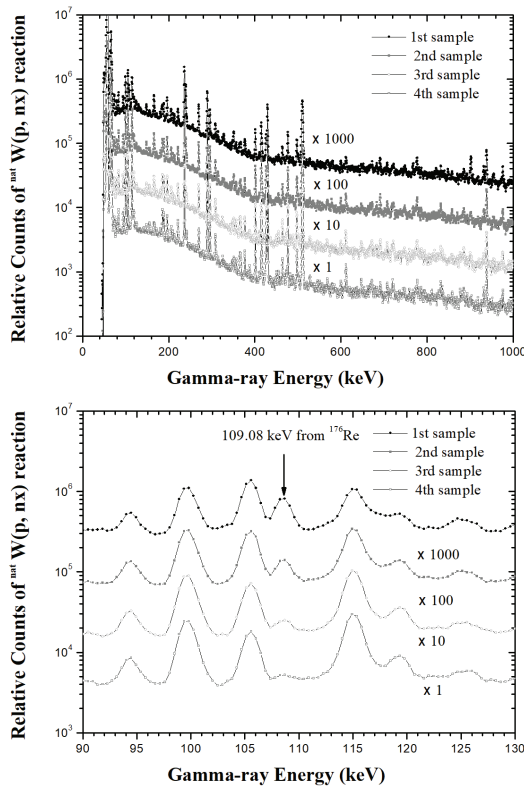


Fig. 4. Gamma-ray energy spectrum from the proton induced ^{176}Re isotope by using 100 MeV proton beam.

Fig. 4의 위쪽 스펙트럼에는 0-1,000 keV까지의 감마선에 대하여 4개의 시료에 대하여 전체적으로 나타내었다. 각 시료로부터 다양한 감마선들이 방출되며 각각의 감마선들은 다양한 방사성동위원소에서 발생된다. 4개의 시료에서 발생하는 감마선 스펙트럼은 서로 겹쳐지는 관계로 시료1에서 4까지 각각 1000, 100, 10배의 곱으로 표현하였다. 아래쪽 스펙트럼에서는 본 연구에서 관심을 가지고 있는 ^{176}Re 에서 발생하는 109.08 keV의 감마선을 확대하여 표시하였다. 이 감마선은 왼쪽에 있는 ^{178}Re 에서 발생하는 105.9 keV 감마선과 독립적으로 분리되어 있어 정확한 결과를 얻는데 적합한 감마선임을 알 수 있다.

2. 상대핵반응단면적의 계산

$^{nat}W(p,nx)^{176}Re$ 핵반응에 의해 생성된 ^{176}Re 방사성동위원소로부터 발생하는 109.08 keV의 감마선에 대한 강도를 HPGe 검출기를 통하여 측정하였다. 얻어진 강도를 이용하여 아래의 식을 통하여 $^{nat}W(p,nx)^{176}Re$ 핵반응에 대한 상대핵반응단면적을 얻을 수 있다.

$$\sigma(E) = \frac{\lambda_p C(E) e^{\lambda_p t_w}}{N_t \phi(E) (1 - e^{-\lambda_p t_{irr}}) (1 - e^{-\lambda_p t_c}) \epsilon_\gamma I_\gamma(E)} \quad (1)$$

여기에서 $\phi(E)$ 는 양성자빔의 선속, $C(E)$ 는 단위시간당 측정되는 감마선의 강도, λ_p 는 ^{176}Re 방사성동위원소의 붕괴상수, N_t 는 표적물질의 핵자수, $\sigma(E)$ 는 핵반응단면적, $I_\gamma(E)$ 는 감마선붕괴 비율, $\epsilon_\lambda(E)$ 는 특정 감마선 에너지에 대한 검출기의 검출효율, t_{irr} 는 양성자조사시간, t_w 와 t_c 들은 각각 냉각시간과 감마선검출시간이다. 상대핵반응단면적은 식(1)에서 양성자빔의 선속을 일정하다고 가정하면 얻을 수 있다.

IV. RESULT

^{176}Re 방사성동위원소로부터 발생하는 109.08 keV 감마선의 측정을 통하여 얻어진 상대핵반응단면적을 Table 3과 Fig. 5에 나타내었다. 얻어진 상대핵반응단면적은 93.2 MeV 에너지를 TENDL-2019의 값에 규

격화시킴으로써 비교분석하였다. Richard G에 의해서 발표된 값들은 본 실험에서 얻어진 결과와는 매우 낮은 에너지에서 측정된 값들이나 TENDL-2019의 결과가 Richard G의 결과를 바탕으로 평가된 만큼 TENDL-2019의 값에 영향을 미쳤다고 볼 수 있다.

Table 3. Relative nuclear reaction cross section of $^{nat}W(p,nx)^{176}Re$

Energy(MeV)	Cross Section(b)
77.9	0.0198 ± 0.0043
83.2	0.0139 ± 0.0024
88.3	0.0143 ± 0.0015
93.2	0.0119 ± 0.0009

따라서 본 연구 결과의 77.9, 83.2, 88.3, 93.2 MeV의 각각의 에너지에 대해서도 TENDL-2019의 평가값과 매우 유사한 경향을 보임을 알 수 있었다. 각각의 단면적에 대한 오차는 양성자의 에너지가 낮을수록 커지는 것을 알 수 있다. 이것은 짧은 반감기로 인하여 늦게 측정된 시료일수록 방사능이 급격하게 감소하게 되어 통계적인 오차가 증가함을 알 수 있다. 최종 결과를 TENDL-2019와 Richard G의 결과와 비교분석하였으며 그 에너지에 대한 단면적의 변화에 대한 경향은 오차 범위 내에서 매우 일치한다는 것을 알 수 있었다.

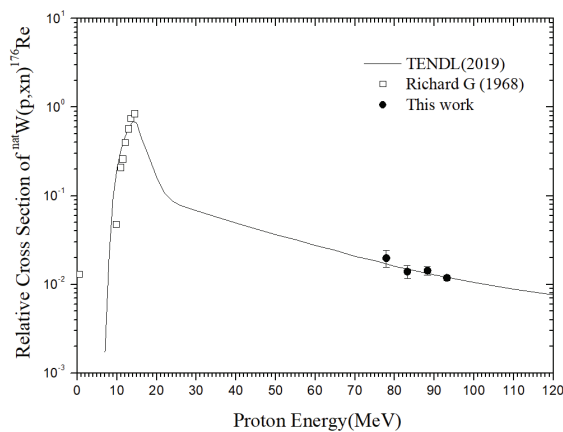


Fig. 5. The relative cross-section obtained in this study was compared with the TENDL-2019 and cross-section published by Richard G.

V. CONCLUSION

본 연구는 양성자 선형가속기에서 발생한 100 MeV 양성자를 천연 텅스텐 핵에 입사시켜 $^{nat}W(p,nx)^{176}Re$ 반응으로부터 감마선을 발생시켰다. 발생한 감마선을 HPGe검출기를 통하여 에너지 스펙트럼을 측정해 상대핵반응 단면적을 도출하였으며 이 결과는 처음으로 얻었다는데 매우 큰 의의가 있다. 이 결과는 향후 우주물리분야에서 양성자와의 핵반응에 대한 기초데이터로서 유용하게 사용되어질 것으로 기대된다.

Acknowledgement

This work was supported by the National Research Foundation of Korea(NRF) grant funded by the Korea government(MSIT) (No. 2020R1F1A1076149).

Reference

- [1] H. J. Kwon, "Design Study on the Beam Line for Radioisotope Production at KOMAC", Journal of the Korean Physical Society, Vol. 67, No. 8, pp. 1387-1392, 2015. <http://dx.doi.org/10.3938/jkps.67.1387>
- [2] E. Yaccuzzi, S. Khachadorian, S. Suárez, M. Reinoso, A. R. Goñi, A. Strittmatter, A. Hoffmann, P. Giudici, "Investigation of proton damage in III-V semiconductors by optical spectroscopy", Journal of Applied Physics, Vol. 119, No 23, 235702, 2016. <https://doi.org/10.1063/1.4953585>
- [3] P. V. Guillaumon, I. D. Goldman, "The importance of charged particle reactions in the r-process on supernova and neutron stars", arXiv:2009.01814[nucl-th], 2020.
- [4] J. Jos'e, C. Iliadis, "Nuclear astrophysics: the unfinished quest for the origin of the elements", arXiv:1107.2234v1[astro-ph.SR], 2011.
- [5] Y. H. Jung, Y. S. Choi, K. S. Chung, "Development of a Beam Current and Position Measurement System for the Korea Multipurpose Accelerator (KOMAC)", Journal of the Korean Physical Society, Vol. 44, No. 5, pp. 1067-1070, 2004.
- [6] S. Y. Lee, "A Study on the Measurement of Half-life for the ^{179}Re Isotope Produced by a 100

- MeV Proton Nuclear Reaction", Journal of Korean Society of Radiology, Vol. 14, No. 4, pp. 447-453, 2020. <http://dx.doi.org/10.7742/jksr.2020.14.4.447>
- [7] G. Audi, O. Bersillon, J. Blachot, A. H. Wapstra, "The Nubase evaluation of nuclear and decay properties", Vol. 729, No. 22, 2003. <https://doi.org/10.1016/j.nuclphysa.2003.11.001>
- [8] P. F. A. Goudsmit, J. Konijn, F. W. N. de Boer, "The decay of ^{178}re (13.2 min), $^{177}(14.0\text{ min})$ and ^{176}re (5.7 min)", Nuclear Physics A., Vol. 151, No. 17, pp. 513-531, 1970. [http://dx.doi.org/10.1016/0375-9474\(70\)90394-5](http://dx.doi.org/10.1016/0375-9474(70)90394-5)
- [9] Richard G, Thomas Jr, W. Bartolini, "Excitation functions for (p,n) and (p,2n) interactions in Sc, Cr, Mo, Cd and W between 8 and 14 MeV", Nuclear Physics A., Vol. 106, No. 2, pp. 323-336, 1968. [http://dx.doi.org/10.1016/0375-9474\(67\)90877-9](http://dx.doi.org/10.1016/0375-9474(67)90877-9)
- [10] A. J. Koning, D. Rochman, J. -Ch. Sublet, N. Dzysiuk, M. Fleming, S. van der Marck, "TENDL: Complete nuclear data library for innovative nuclear science and technology", Nuclear Data Sheets, Vol. 155, pp. 1-55, 2019. <http://dx.doi.org/10.1016/j.nds.2019.01.002>
- [11] M. U. Khandaker, M. S. Uddin, K. Kim, M. W. Lee, K. S. Kim, Y. S. Lee, G. N. Kim, Y. S. Cho, Y. O. Lee, "Excitation functions of proton induced nuclear reactions on ^{nat}W up to 40 MeV", Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B 266, pp. 1021-1029, 2008. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2008.02.037>
- [12] Mayeen Uddin Khandaker, "High purity germanium detector in gamma-ray spectrometry", International Journal of Fundamental Physical Sciences, Vol. 1, No. 2, pp. 42-46, 2011. <http://dx.doi.org/10.14331/ijfps.2011.330011>
- [13] J. E. Lee, J. R. Yoon, T. I. Ro, S. Y. Lee, "Measurement of the Relative Cross-section of the $^{208}Pb(p,x)Bi$ Reaction by Using a 100 MeV Proton Beam", New Physics: Sae Mulli, Vol. 65, No. 9, pp. 883-887, 2015. <https://doi.org/10.3938/NPSM.65.883>
- [14] Richard B. Firestone, Virginia S. Shirley, *Table of Isotopes 8E* (John Wiley & Sons, New York), p. 7330, 1996.

100 MeV 양성자를 이용한 $^{nat}\text{W}(p,nx)^{176}\text{Re}$ 핵반응의 상대 핵반응단면적 측정에 대한 연구

이삼열*

동서대학교 방사선학과
동서대학교 방사선보건환경연구센터

요 약

본 연구는 한국원자력연구원에서 보유하고 있는 100 MeV 선형가속기를 사용하여 천연텅스텐과의 핵반응으로 부터 발생시켜 발생하는 감마선을 측정하여 $^{nat}\text{W}(p,nx)^{176}\text{Re}$ 핵반응에 대한 상대핵반응단면적을 도출하였다. 일반적으로 반감기가 짧은 동위원소에 대한 연구는 항상 짧은 시간 내에 방사능의 강도가 급격하게 작아지는 경향을 보이기 때문에 측정자체가 매우 어려운 것이 현실이다. 특히 ^{176}Re 의 경우는 반감기가 5.3 분으로 상대적으로 매우 짧은 방사성핵종 중의 하나이다. 본 연구에서는 이런 짧은 반감기를 가지는 ^{176}Re 동위원소로부터 발생하는 109.08 keV 감마선을 고순도 Ge검출기를 이용하여 측정하였다. 얻어진 상대 측정값들은 1967년에 Richard G.에 의해 발표된 8 ~ 14 MeV 양성자에너지 영역에서의 결과와 이를 기반으로 계산에 의한 핵반응단면적에 대한 평가한 2019년 A. J. Koning의 결과인 TENDL-2019값과 비교분석하였다. 이 연구의 결과는 미래의 에너지원으로 알려져 있는 핵융합로의 설계, 천체 물리학, 핵의학 및 양성자치료 분야에 요긴하게 활용될 것으로 생각된다.

중심단어: Re-176, 천연텅스텐, 핵반응, 고순도 게르마늄 검출기, 감마선스펙트럼, 양성자빔, 양성자가속기연구센터

연구자 정보 이력

	성명	소속	직위
(단독저자)	이삼열	동서대학교 방사선학과	교수