

2004 춘계 학술발표회 논문집
한국원자력학회

감마선 분광 분석법을 이용한 하나로 1차 냉각수내의 방사성 핵종 정량 분석

Quantitative Analysis of Radionuclide in Primary Coolant of HANARO Using Gamma-ray Spectroscopy

김명섭 · 이병철 · 황승렬 · 전병진

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

김희곤 · 김영주

데콘엔지니어링

경기도 수원시 팔달구 원천동 29-9

요 약

감마선 분광 분석법을 이용하여 하나로 1차 냉각수 내의 방사성 핵종의 종류와 농도를 분석하였다. 부피 표준 선원과 적절한 fitting 함수를 이용하여 HPGe 계측기의 에너지별 전에너지 피크 효율 검정을 수행하였다. 1차 냉각수는 하나로 1차 정화 계통에서 채취하였으며, 채취 후 측정까지 걸린 시간은 8분이었다. 감마선 스펙트럼을 이용하여 확인된 방사성 핵종 가운데 Na-24, Mg-27, Al-28 등의 농도가 다른 핵종의 농도보다 크게 나타났으며, 농도는 $2\sim 6\times 10^{-2}$ $\mu\text{Ci/cc}$ 이다. 이들은 주로 구조재나 핵연료 피복재로 사용된 알루미늄의 방사화로부터 생성된다. 핵분열 생성물로는 I-134, Xe-138 등의 농도가 크게 나타났다. 이들 냉각수 속의 핵분열 생성물은 핵연료의 표면에 오염된 우라늄으로부터 발생된다. 측정된 핵분열 생성물의 농도는 계산 결과보다는 크게 작았다.

Abstract

By using the gamma-ray spectroscopy, the species and concentrations of the

radionuclide in the primary coolant of HANARO are analysed, The full-energy peak efficiency calibration as function of the photon energy for a HPGe detector is performed using the volume standard source and proper fitting function. The coolant is picked at the primary coolant purification system, and it takes 8 minutes to start the gamma-ray spectrum measurement from coolant picking. The concentrations of Na-24, Mg-27 and Al-28 are higher than those of other nuclide confirmed in the coolant using gamma-ray spectrum, and they are $2\sim 6 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/cc}$. Their origins are radiative reaction of aluminium used as the structure materials and cladding of nuclear fuel. The concentrations of I-134 and Xe-138 are relatively higher than those of other fission fragments. The source of the fission fragments in the coolant is the surface contamination of the nuclear fuel by uranium. The measured concentrations of the fission fragments are much smaller than the calculated values.

1. 서 론

하나로(HANARO)와 같은 연구용 원자로의 1차 냉각수내에 포함되어 있는 방사성 핵종의 발생 원인은 아래와 같이 분류할 수 있다. 이 가운데 처음 세 가지는 정상적인 상태에서 발생하는 것이고, 나머지 네 가지는 비정상 상태이다[1].

- 1) 냉각수 그 자체와 냉각수에 용해된 물질의 방사화
- 2) 노심 구조재에서 방사화된 물질의 냉각수로의 용해
- 3) 핵연료 표면에 오염된 우라늄의 핵분열
- 4) 동위원소 생산 등을 위해 조사중인 시료의 누설
- 5) 핵연료 손상
- 6) 방사성 시료 취급 중 누설로 인한 오염
- 7) 냉각수 수질 저하로 인한 불순물의 방사화와 구조물 부식 촉진으로 인한 용해량 증가

이렇게 생성된 방사성 핵종의 준위는 하나로와 같은 개방 수조형(open pool type) 연구용 원자로의 수조 상부 방사선 준위에 큰 영향을 미친다. 이에 따라 하나로에서는 이온 교환 수지를 이용하여 냉각수내의 불순물과 방사성 핵종 등을 제거하고 있다. 이러한 방사선 준위 저감을 위해서는 실제 1차 냉각수 내에 포함되어 있는 방사성 핵종의 종류와 농도를 정확하게 확인하는 것이 매우 중요하다. 방사성 핵종의 확인과 정량 분석을 위해서는 HPGe 계측기를 이용한 감마선 분광 분석법(gamma-ray spectroscopy)이 가장 적합하며, 부피 선원에 대한 효율 검정이 선행

되어야 한다. 본 논문에서는 이러한 감마선 분광법을 이용하여 하나로 1차 냉각수 내의 방사성 핵종의 종류와 농도를 측정하였고, 각 핵종의 생성 원인을 확인하였다. 또한 원자로 정상 상태에서 우라늄의 핵연료 표면 오염에 의해 발생하는 핵분열 생성물의 경우, 계산 결과와의 비교를 통해 농도 준위를 확인하였다.

이와 같은 분석 결과는 냉각수 방사선 준위 저감을 위한 방법론을 개발하는 경우 뿐 아니라 시료에서의 방사성 물질 누출이나 핵연료 손상 등의 비정상 상태 조기 파악, 사고 해석시 선원항(source term) 등에 유용하게 사용될 것으로 생각된다.

2. 실험

원자로 1차 냉각수를 $t=t_r$ 에 채취하여 $t=t_r+t_{m1}$ 에 감마선 측정을 시작한 후, $t=t_r+t_{m2}$ 에 측정을 종료하였다면 $t=t_r$ 시점에서의 방사능 A_r 은

$$A_r = \frac{1}{p\varepsilon(1-a)} \frac{\lambda G}{(e^{-\lambda t_{m1}} - e^{-\lambda t_{m2}})} \quad (1)$$

가 된다. 여기서,

G : 스펙트럼상의 피크 면적,

p : 각 감마선에 대한 붕괴당 방출 확률(emission probability),

λ : 붕괴 상수(decay constant),

ε : 계측기 전에너지 피크 절대 효율(absolute efficiency),

a : $\frac{T-L}{T}$ (T: true time , L: live time)

을 각각 나타낸다.

본 연구에 사용된 감마선 계측기는 상대 효율이 15 %인 closed-ended coaxial HPGe 계측기이며, Ge 단결정의 직경은 55.0 mm, 길이는 37.2 mm이다. 감마선 계측 계통은 그림 1과 같으며, 선원과 검출기 사이의 거리는 50 mm이다. 원자로가 24 MW로 정상 운전하고 있는 동안 냉각수를 채취한 후, 감마선 계측 계통으로 30 분간(live time) 측정하여 얻은 감마선 스펙트럼은 그림 2와 같다. 냉각수는 우회 배관의 1차 정화 계통 입구 전단에서 채취하였다.

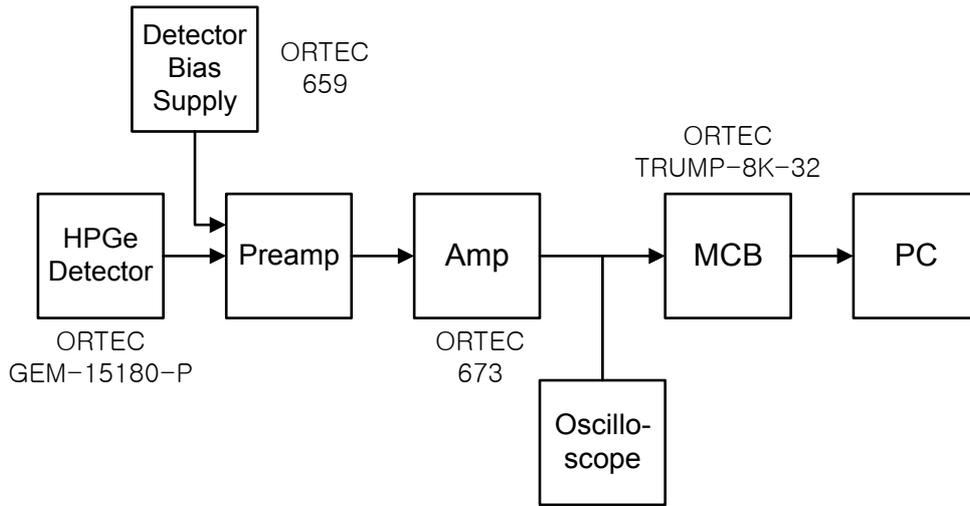


그림 1. 수조 냉각수 감마선 계측 계통.

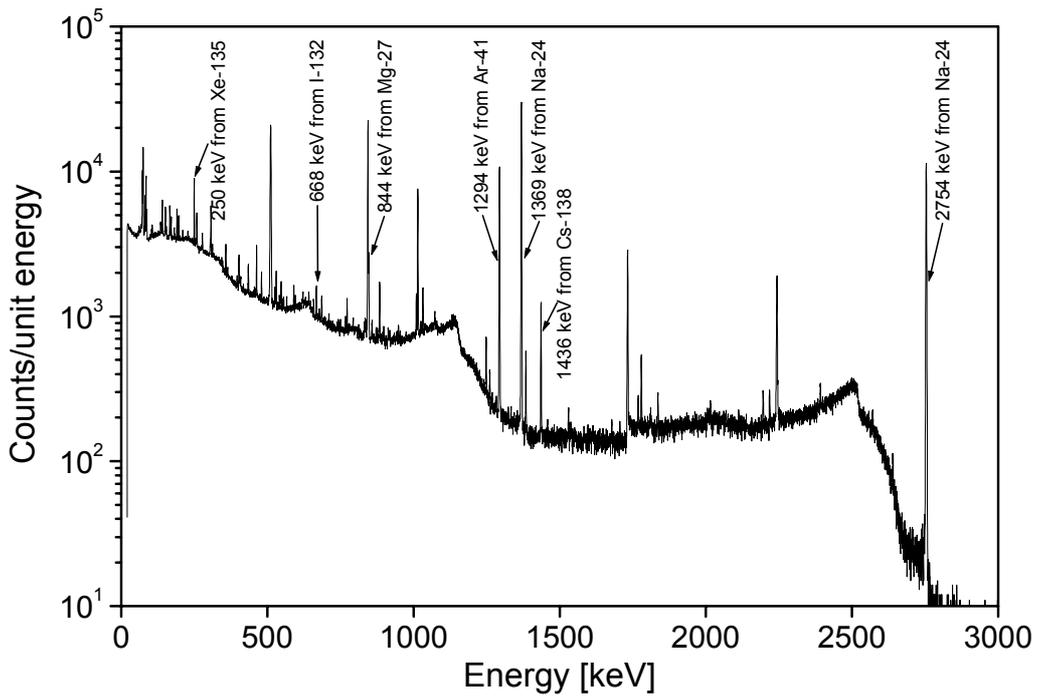


그림 2. HPGe 계측기를 이용하여 측정된 냉각수 감마선 스펙트럼.

스펙트럼에서 면적이 작게 나타난 피크들을 분별하고, 반감기에 따른 피크 면적의 변화를 이용하여 각 핵종을 보다 정확하게 확인하기 위하여 2시간 및 17시간 동

안의 측정도 수행하였다. 냉각수는 100 cc 용량의 부피 표준 선원과 동일한 형상과 재질을 가지고 있는 용기에 표준 선원과 마찬가지로 부피가 100 cc가 되도록 채취하였다.

냉각수를 채취한 후 감마선 측정이 시작될 때까지의 시간은 8분이며, 따라서 수조 냉각수 방사선의 대부분을 차지하는 N-16 감마선(반감기 7.1초)은 대부분 붕괴하였으리라 생각된다. 이를 확인하기 위해서 계측 계통의 증폭기 증폭율을 최소로 하여 냉각수를 측정해 본 결과 N-16 감마선의 영향은 나타나지 않았다.

전에너지 피크의 면적을 결정하는 방법은 여러 가지가 있으며, 여기서는 피크의 중심으로부터 양쪽으로 3×FWHM 채널만큼 이동한 후 그 채널을 중심으로 5개 채널의 평균값을 구하여 그 평균값을 해당 채널에서의 background로 보고 직선으로 background를 제거하는 방법을 사용하였다[2].

전에너지 피크 절대 효율은 부피가 100 cc이고, 여러 동위원소가 섞여있는 검정된 표준 선원을 이용하여 측정하였으며, 사용된 선원의 제원은 표 1과 같다.

효율 측정은 검출기 표면으로부터 선원까지의 거리를 50 mm로 하여 수행하였으며, MCB의 불감 시간은 2 %이내로 유지하였다[3,4]. 감마선 에너지에 따라 측정된 전흡수 피크 절대 효율은 그림 3에 나타나 있다. 그림에서 실선은 측정치를 fitting 한 결과이다.

표 1. 효율 측정에 사용된 표준 선원의 제원.

Parameters	Figures
Energy range	60~1836 keV
Radionuclide	Am-241, Cd-109, Co-57, Ce-139, Hg-203, Sn-113, Sr-95, Cs-137, Co-60, Y-88
Nominal total activity	40 kBq
Density	0.97 g/cm ³
Volume	100 ml
Relative uncertainty of activity	3.0 %(level of confidence of 95 %)
Construction	Homogeneous radionuclide mixture in matrix - cylindrical bottle of outer diameter of 48 mm

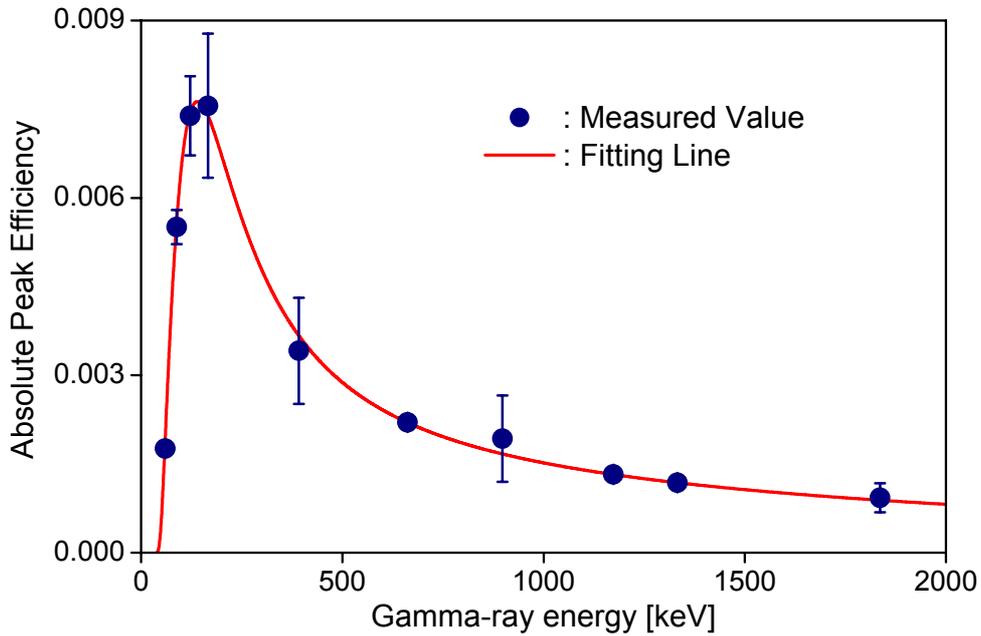


그림 3. 감마선 에너지에 따른 절대 효율 검정 곡선.

효율 측정에서 무작위 중첩 효과와 동시 중첩 효과는 무시하였다. 효율 검정 곡선을 구할 때에는 p-형 검출기에 대해 최적화된 아래와 같은 fitting식을 사용하였으며[2], fitting 곡선과 측정치는 잘 일치하였다. Fitting에서의 가중치는 오차의 역수로 하였다.

$$\epsilon = \exp \left(\sum_{i=1}^6 c_i E^{2-i} \right) \quad (2)$$

여기서 ϵ 는 MeV로 표시된 광자 에너지 E 에서의 효율을 나타낸다. 효율 측정 오차에 큰 영향을 주는 것은 표준 선원의 초기 방사능 오차와 피크 면적 결정의 오차이다.

3. 분석 및 결과

하나로 1차 냉각수에서 방출되는 감마선을 측정하여 확인된 방사성 핵종 및 핵종의 농도는 표 2와 같다. 표 2에서 여러 에너지의 감마선을 방출하는 핵종은 갈래비가 10 % 이상인 감마선 에너지만 나타냈다. 각 감마선 피크와 핵종의 대응은 핵종

의 붕괴 구조, 갈래비, 30분, 2시간 및 17시간 동안 측정된 스펙트럼에서 각 피크의 면적과 핵종의 붕괴 반감기 등을 고려하여 결정하였다[5,6].

냉각수 자체의 방사화로 생성된 N-16은 1차 냉각수 감마선의 대부분을 차지하지만 반감기가 약 7초로서 짧기 때문에 냉각수를 채취하여 측정할 때까지 대부분 붕괴하여 측정되지 않는다. Ar-41은 물 속에 녹아있는 Ar-40의 방사화로 생긴다. 감마선 스펙트럼을 이용하여 확인된 냉각수 중의 여러 방사성 핵종 가운데 농도가 크게 나타난 핵종은 Na-24, Mg-27, Al-28 등이며, 농도는 $2\sim 6\times 10^{-2}$ $\mu\text{Ci/cc}$ 이다. 이들은 주로 구조재나 핵연료 피복재로 사용된 알루미늄의 방사화로부터 생성된다. Na-24는 $\text{Al}^{27}(\text{n},\alpha)\text{Na}^{24}$ 반응, Mg-27은 $\text{Al}^{27}(\text{n},\text{p})\text{Mg}^{27}$ 반응, 그리고 Al-28은 $\text{Al}^{27}(\text{n},\gamma)\text{Al}^{28}$ 반응으로부터 발생된다. 이들 알루미늄 방사화 핵종들은 수조 냉각수 방사선 준위에서 큰 비중을 차지하므로 수조 방사선 저하를 위해서는 이들의 제거가 중요하다. Mn-56은 Fe의 $\text{Fe}^{56}(\text{n},\text{p})\text{Mn}^{56}$ 반응에 의해 생성되는 것으로 판단된다. 철은 유동관 입구 부위 구조물의 구성 성분이다. W-187은 용접시 전극으로 사용된 텅스텐의 방사화로 생기며, Cr-51은 스테인레스 스틸에 함유되어 있는 크롬의 방사화로 생긴다. Zr 관련 핵종은 핵분열 생성물이기도 하며, 유동관과 핵연료 다발 중심봉의 재질인 지르코늄의 방사화로 생성될 가능성도 있다.

나머지 검출 핵종들은 대부분 핵분열 생성물인데 원자료가 정상적으로 운전하고 있었음에도 핵분열 생성물이 검출되는 것은 핵연료의 표면에 오염된 우라늄의 핵분열 때문이라고 생각된다[8,9]. 핵분열 생성물로는 I-134, Xe-138 등의 농도가 크게 나타났다.

핵분열 생성물 농도 계산값은 핵연료의 표면 오염량이 허용 기준치인 $3.25 \mu\text{gU}^{235}/\text{ft}^2$ 일 때, 30 MW로 장시간 운전한 경우를 24 MW로 환산한 값이며, 계산시 우회 배관과 chimney top 아래의 수조수를 제외한 1차 냉각수에 핵분열 생성물들이 골고루 분포된다고 가정하였다. 이 경우 냉각수의 총 부피는 $1.45\times 10^7 \text{ cm}^3$ 이다.

측정된 핵분열 생성물의 농도는 대부분 계산 결과보다는 크게 작았다. 상대적으로 측정치가 계산값보다 크게 나타난 Xe-135는 Xe-135m의 붕괴에 의한 기여량 때문에 크게 나타난 것이라 생각된다.

표 2. 하나로 1차 냉각수 중의 방사성 핵종.

원자번호	핵 종	반감기	감마선 에너지 (keV)	갈래비 (%)	농도 측정값 [$\mu\text{Ci/cc}$]	농도 계산값 [$\mu\text{Ci/cc}$]		
11	Na-24	14.959h	1369	100	$2.16 \times 10^{-2} \pm 3.30 \times 10^{-4}$			
			2754	99.944				
12	Mg-27	9.458m	843.76	71.8	$5.83 \times 10^{-2} \pm 8.95 \times 10^{-4}$			
			1014.44	28				
13	Al-28	2.2414m	1778.85	100	$4.52 \times 10^{-2} \pm 2.05 \times 10^{-3}$			
18	Ar-41	109.34m	1294	99.1	$8.26 \times 10^{-3} \pm 1.30 \times 10^{-4}$			
19	K-40	1.277e9y	1461	10.67				
24	Cr-51	27.702d	4.95	13.1				
			320.08	10.08				
25	Mn-56	2.578h	846.75	98.9				
			1810.72	27.2				
			2113.05	14.3				
36	Kr-85m	4.48h	304.87	14	$5.89 \times 10^{-4} \pm 1.49 \times 10^{-5}$		1.10×10^{-3}	
	Kr-87	76.3m	402.59	50				$3.22 \times 10^{-4} \pm 1.89 \times 10^{-5}$
	Kr-88	2.84h	2392.11	34.6		$4.12 \times 10^{-4} \pm 2.12 \times 10^{-5}$		3.14×10^{-3}
37	Rb-88	17.78m	196.3	26	$1.64 \times 10^{-3} \pm 1.90 \times 10^{-4}$			
			2195.84	13.2				
			834.83	13				
			1529.77	10.9				
			1836	21.4				
37	Rb-89	15.15m	898.03	14	$2.21 \times 10^{-3} \pm 1.16 \times 10^{-4}$			
			1031.92	58				
			1248.14	43				
			2195.92	13.3				
38	Sr-91	9.63h	657.77	10	$2.67 \times 10^{-4} \pm 9.97 \times 10^{-6}$			
			1024.3	33.4				
			749.8	23.6				
			1383.93	90				
			590.24	67				
38	Sr-92	2.71h	875.73	24.1	$3.60 \times 10^{-4} \pm 9.38 \times 10^{-6}$			
			888.13	21.8				
			710.31	21.8				
			168.5	18.2				
			555.57	94.9				
39	Y-91m	49.71m	934.47	13.9	$8.16 \times 10^{-5} \pm 2.94 \times 10^{-6}$			
			934.47	13.9				
40	Zr-95	64.02d	756.73	54.46				
			724.2	44.17				
41	Zr-97	16.9h	743.36	93.06				
			Nb-95	34.975d		765.81	99.81	$9.67 \times 10^{-5} \pm 3.11 \times 10^{-6}$
						Nb-97	72.1m	

표 2. 하나로 1차 냉각수 중의 방사성 핵종(계속).

원자번호	핵 종	반감기	감마선 에너지 (keV)	갈래비 (%)	농도 측정값 [$\mu\text{Ci/cc}$]	농도 계산값 [$\mu\text{Ci/cc}$]
42	Mo-99	65.94h	739.5	12.13		
43	Tc-99m	6.01h	140.51	89.06	$1.62 \times 10^{-4} \pm 8.60 \times 10^{-6}$	
	Tc-101	14.22m	306.83	88	$1.22 \times 10^{-3} \pm 2.19 \times 10^{-5}$	
44	Ru-103	39.26d	497.08	91		
47	Ag-110m	249.79d	657.76	94		
			884.68	72.2		
			937.49	34.13		
			1384.3	24.12		
			763.9	22.14		
			706.68	16.33		
			1505.04	12.95		
			677.62	10.28		
52	Te-133	12.5m	312.07	62.4	$5.52 \times 10^{-4} \pm 3.97 \times 10^{-5}$	
			407.63	27.1		
			1333.21	10.7		
	Te-133m	55.4m	912.67	55	$2.20 \times 10^{-4} \pm 7.84 \times 10^{-6}$	
			647.51	19.4		
			863.96	15.6		
			914.77	10.9		
53	I-131	8.021d	364.49	81.7	$5.10 \times 10^{-5} \pm 1.72 \times 10^{-6}$	2.26×10^{-3}
	I-132	137.7m	667.72	98.7	$2.41 \times 10^{-4} \pm 1.81 \times 10^{-5}$	3.94×10^{-3}
			772.6	75.6		
			954.55	17.6		
			522.65	16		
			630.19	13.3		
	I-133	20.8h	529.87	87	$2.01 \times 10^{-4} \pm 1.07 \times 10^{-5}$	6.02×10^{-3}
	I-134	52.5m	847.03	95.4	$1.22 \times 10^{-3} \pm 3.93 \times 10^{-5}$	6.78×10^{-3}
			884.09	64.9		
			1072.55	14.9		
			595.36	11.1		
			621.79	10.6		
	I-135	6.57h	1260.41	28.9	$4.22 \times 10^{-4} \pm 5.86 \times 10^{-5}$	5.61×10^{-3}
			1131.51	22.74		
54	Xe-133m	52.56h	29.78	29.8		1.78×10^{-4}
			29.46	16.1		
			33.6	10.6		
			233.2	10		
	Xe-135	9.14h	249.79	90.1	$6.23 \times 10^{-4} \pm 1.31 \times 10^{-5}$	5.86×10^{-4}
	Xe-135m	15.29m	526.56	80.5	$2.90 \times 10^{-4} \pm 8.82 \times 10^{-6}$	1.03×10^{-3}
	Xe-137	3.818m	455.49	31.2	$4.14 \times 10^{-3} \pm 1.49 \times 10^{-4}$	

표 2. 하나로 1차 냉각수 중의 방사성 핵종(계속).

원자번호	핵 종	반감기	감마선 에너지 (keV)	갈래비 (%)	농도 측정값 [$\mu\text{Ci/cc}$]	농도 계산값 [$\mu\text{Ci/cc}$]	
55	Xe-138	14.08m	258.41	31.5	$1.86 \times 10^{-3} \pm 8.89 \times 10^{-5}$		
			434.56	20.3			
			1768.26	16.7			
			2015.82	12.3			
	Cs-138	33.41m	1435.86	76.3			$1.87 \times 10^{-3} \pm 4.87 \times 10^{-5}$
			462.8	30.7			$9.19 \times 10^{-4} \pm 4.53 \times 10^{-5}$
			1009.78	29.8			$5.29 \times 10^{-4} \pm 4.39 \times 10^{-5}$
			2218	15.			
			547	10.76			
56	Ba-139	83.06m	165.86	24			
	Ba-140	12.752d	537.26	24.39			
			4.65	15			
	Ba-141	18.27m	190.33	46	$9.19 \times 10^{-4} \pm 4.53 \times 10^{-5}$		
57	La-140	40.274h	304.19	25.4			
			276.95	23.4			
			343.67	14.4			
			1596.21	95.4			
	La-142	91.1m	487.02	45.5			
			815.77	23.28			
			328.76	20.3			
			641.28	47.4			
			2397.8	13.3			
			2542.7	10			
58	Ce-141	32.501d	145.44	48.2			
	Ce-143	Ce-143	293.27	42.8			
			36.03	32.3			
			35.55	17.7			
74	W-187	W-187	40.7	12.2	$5.29 \times 10^{-4} \pm 4.39 \times 10^{-5}$		
			57.36	11.7			
			685.73	27.3			
			479.55	21.8			
			61.14	12.5			
			72	11.1			
93	Np-239	Np-239	14.3	63			
			106.12	27.2			
			103.76	22.5			
			277.6	14.38			
			99.55	14			
			228.18	10.76			

4. 결 론

감마선 분광 분석법을 이용하여 하나로 1차 냉각수 내의 방사성 핵종의 종류와 농도를 분석하였다. 감마선 스펙트럼을 이용하여 확인된 방사성 핵종 가운데 Na-24, Mg-27, Al-28 등 구조재나 핵연료 피복재로 사용된 알루미늄의 방사화로부터 생성된 핵종의 농도가 상대적으로 크게 나타났다. 핵연료 표면 오염 때문에 발생한 핵분열 생성물 중 I-134, Xe-138 등의 농도가 상대적으로 크게 나타났으나, 표면 오염 기준치를 이용한 계산 결과보다는 크게 작았다.

이와 같은 분석 결과는 냉각수 방사선 준위 저감을 위한 방법론을 개발하는 경우 뿐 아니라 사고 해석 등 다양한 분야에 유용하게 사용될 것으로 생각된다.

참 고 문 헌

1. 김명섭 외, “하나로 1차 냉각수내의 방사성 핵종 분석을 통한 핵연료 손상 감시 가능성 검토”, 2000추계학술발표회논문집, 한국원자력학회, 2000. 10.
2. EG&G ORTEC Software User's Manual, A66-B32.
3. K. Debertin and R. G. Helmer, “Gamma- and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors”, North-Holland, 1988, p.213.
4. I. Bikit and M. Veskovic, “Determination of the Optimal Length of Cylindrical Sources for Specific Gamma Activity Measurements”, Nucl. Instr. and Meth., A243, p.227, 1986.
5. G. F. Knoll, “Radiation Detection and Measurement”, John Wiley & Sons, 1989.
6. 村上悠紀雄, 團野皓文, 小林昌敏 編, “放射線データブック”, 地人書館, 1982.
7. 전병진, “연료봉 표면의 우라늄 오염 측정”, HAN-RO-CR-97-020, 1997. 5.
8. 박상준, “KFC-020 표면 오염 검사 결과”, HAN-RO-CR-97-040, 1997. 9.
9. “Radiation Sources for Radiological Effects on the Environment in KMRR”, Korea Multipurpose Research Reactor Technical Report, KM-031-RT-K009, 1989. 10.