

고방사능 선원의 감마선 검출을 위한 방사선 측정장치의 절대검출효율

Absolute Detection Efficiency of Radiation Detecting System for Gamma-ray from Sources with High Activity

이홍기, 홍권표, 백승제, 정양홍, 주용선

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요약

본 실험에서는 방사능을 알고있는 표준 선원과 방사능을 모르는 PWR 사용 후 핵연료방사선원에서 방출되는 감마선에 대한 한국원자력연구소(KAERI) 조사재시험시설(IMEF)에 설치한 γ -스캐닝 장치의 검출효율을 측정하였다.

실험에서 10.4 GBq의 ^{137}Cs 선원과 25.9 GBq의 ^{60}Co 선원을 표준선원과 고리원자력발전소의 PWR 1호기에서 사용한 핵연료에서 방출되는 감마선의 검출효율을 구하였다.

^{137}Cs 선원의 661.62 keV 피크와 ^{60}Co 선원의 1173.23, 1332.51 keV 피크의 검출효율과 사용후 핵연료로부터 얻은 γ -스펙트럼 중에서 500 keV에서 1,600 keV의 영역에 있는 ^{134}Cs 과 ^{154}Eu 의 14개 피크의 측정값을 분석에 사용하였다. 그 결과 γ -스캐닝 장치의 검출효율을 에너지의 2차 함수로 나타내는 검출효율 방정식을 구하였다.

이 방정식은 에너지가 1 MeV인 감마선에 대하여 C3-시준기로 측정할 때 IMEF의 감마스캐닝 장치의 검출효율이 $2.82217 \times 10^{-6} \%$ 이고, C2-시준기로 측정할 때 검출효율은 $6.2760 \times 10^{-7} \%$ 이라는 것을 나타낸다.

Abstract

In this experiment, we measured the detection efficiency of gamma-scanning system of Irradiated Materials Examination Facility(IMEF) in Korea Atomic Energy Research Institute(KAERI) for the spent PWR fuel and activity known sources with high activity.

We measured the absolute detection efficiency of gamma scanning system of IMEF to the ^{137}Cs -source with 10.4 GBq and ^{60}Co source with 25.9 GBq High-activity sources as standard sources, and a fuel burned in the KORI-1 reactor of the Kori Nuclear power plant.

In analyzing, we used three peaks those were the 661.64 keV peak form ^{137}Cs 1173.23 and 1332.51 keV ^{60}Co sources, and 14 peaks of ^{134}Cs and ^{154}Eu on the spent fuel gamma spectrum which are in the energy range from 500 to 1,600 keV. We find second order equations for detection efficiency by using our experimental results.

The equation show that the detection efficiency of gamma scanning system for 1 MeV gamma-ray is $2.82217 \times 10^{-6} \%$ for the C3 collimator system and $6.2760 \times 10^{-7} \%$ for C2 collimator system.

1. 서론

방사선원의 관리나 방사선의 이용분야에서 방사능 검출장치는 필수적인 것이다. 방사선 검출장치나 시설을 설치하고 그 장비를 위해서는 장치를 교정하고 효율을 구하는 작업이 선행되어야 정확한 측정을 할 수 있다.

한국원자력 연구소에는 사용 후 핵연료나 원자로 내의 방사선 조사재료 등의 고방사능 물질에 관한 연구를 위하여 γ -스캐닝 장치를 갖춘 조사재시험설이 있다. 이 실험실에서는 HPGe 검출기로 고방사능 물질에서 방출되는 방사선을 검출할 수 있다. 방사선 검출기의 검출효율은 절대검출효율(absolute detection efficiency), 고유검출효율(intrinsic detection efficiency) 그리고 상대검출효율(relative detection efficiency) 등으로 나타낸다.

본 실험에서는 방출되는 방사선을 검출함으로써 조사재시험시설의 검출장치에 대한 검출효율을 측정하고자 한다.

핵연료의 연소도를 측정하거나 감마선 방출 핵종의 상대적 분포만 측정하는 경우에는 상대검출효율을 이용할 수 있다. 곧, 동일 핵종에서 얻은 여러 개의 피크의 면적으로부터 얻을 수 있는 상대검출효율을 알 수 있다. 각 피크는 서로 서로 에너지와 감마선 방출률만 다르기 때문에 측정한 피크 면적(Net Area)으로부터 상대검출효율을 알 수 있다. 이 상대검출효율로부터 관심 핵종의 존재비를 알아낼 수 있다. 그러나 이러한 경우에도 상대적 비를 측정함으로 발생하는 측정불확정도의 증가는 피할 수 없다.

본 실험에서는 PWR 사용 후 핵연료에서 방출되는 감마선을 감마스캐닝 장치로 측정하여 실험장치의 절대검출효율을 구함으로써 미지 시료의 방사능을 측정하는데 활용할 수 있도록 하고자 한다.

조사재시험시설의 감마스캐닝 장치는 선원과 HPGe 검출기 사이의 거리는 약 1.64 m이고, 이 사이에 $2 \times 40 \text{ mm}^2$, $3 \times 40 \text{ mm}^2$ 슬릿 시준기와 50 mm 의 감마선 감쇠용 납벽돌로 이루어져 있다.

$11.03 \pm 1.10 \text{ GBq}$ 의 ^{137}Cs 선원, $37.0 \pm 3.7 \text{ GBq}$ 의 ^{60}Co 선원, PWR 사용후 핵연료의 시편을 선원으로 택하였다. 이 시편은 중성자검출장치 개발을 위해 만든 것으로 고리원자력 발전소의 원자로에서 사용 후 1989년 1월에 인출하여 약 12년 동안 냉각시킨 것이다. 이것을 원자력연구소에 이송하여 조사후 시험시설(PIEF)에 입고시킨 이 시료는 J14E11인 사용후 PWR 핵연료봉을 사용하여 만들었다. 이 연료의 평균 연소도는 약 40 GWD/MTU이며, 핵연료봉의 연료부위 전체를 10 cm간격으로 잘라서 만든 36개의 절편을 빈 CANDU형 연료봉 튜브에 넣어 밀봉하였고 각각의 시편에 대해 고유번호를 부여하였다. 각각을 구별하기 위하여 연료봉 하단의 것부터 시료에 A1~A9, B1~B9, C1~C9, D1~D9로 번호를 붙였다. 본 실험 B1시편으로 실시하였다.

2. 이론

2.1 절대검출효율

$$\epsilon(E) = \frac{S}{AI_\gamma T_R} = \frac{S}{AI_\gamma T_R}$$

여기에서 S 는 검출된 방사선의 양(cps)이고 A 는 선원의 방사능(dps), 그리고 I_γ 는 매 봉과 당 방사선의 방출률(%), T_R 는 연료봉 안에서 생성된 감마선 중 선원물질과 피복을 투과하여 선원 표면 밖으로 나오는 비율 곧 투과율(Transmission Ratio)을 나타낸다.

γ -스캐닝 실험장치로 방사선량(S)을 측정하고 선원의 방사능과 감마선의 방출률 연료봉과 피복부분 물질에서의 투과율을 알면 식으로부터 감마선 측정장치의 효율을 구할 수 있다.

표지 방사능이 알려져 있는 표준 감마선원의 경우는 인증된 표지 값이 표면 방사능을 나타내므로 T_R 은 1이 된다. 그러나 핵연료의 경우는 연료 봉 밖으로 방출되는 감마선의 양이 핵연료 부분의 물질과 피복의 물질에 영향을 받고 에너지에도 영향을 받는다. 뿐만 아니라 핵연료봉 내에

있는 분열 생성물의 절대방사능을 알아야한다. 그러므로 핵분열 생성물에서 방출되는 감마선의 실험장치의 효율을 측정하기 위해서는 핵연료 봉 내의 감마선원의 양을 정하는 방법과 방사선의 투과율을 알아야 한다.

2.2 사용후 핵연료 봉에서의 감마선 투과율

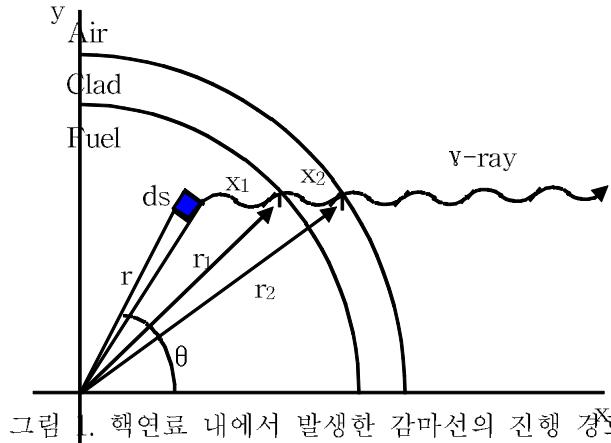


그림 1. 핵연료 내에서 발생한 감마선의 진행 경로.

$$dI = dI_0 \exp(-\mu_1 x_1 - \mu_2 x_2)$$

$$T_R = \frac{I}{I_0} = \frac{\int dI_0 \exp(-\mu_1 x_1 - \mu_2 x_2)}{\int dI_0}$$

$$x_1 = \sqrt{r_1^2 - r^2 \sin^2 \theta} - r \cos \theta \equiv \eta_1 - r \cos \theta$$

$$x_2 = \sqrt{r_2^2 - r^2 \sin^2 \theta} - \sqrt{r_1^2 - r^2 \sin^2 \theta} \equiv \eta_2 - \eta_1$$

$$T_R = \frac{\sigma \int r dr d\theta \exp(-\mu_1(\eta_1 - r \cos \theta) - \mu_2(\eta_2 - \eta_1))}{\sigma \int_{r, \theta} r dr d\theta}$$

$$= \frac{\int r dr d\theta \exp(-\mu_1(\eta_1 - r \cos \theta) - \mu_2(\eta_2 - \eta_1))}{\int_{r, \theta} r dr d\theta}$$

2.3 투과율을 정하기 위한 전산시늉

보통 핵연료봉 내의 물질은 U-화합물이고 주로 U에 의하여 방사선이 감소하며 핵연료 피복 관에서는 지르코늄 합금(Zy-4)에 의하여 감마선이 감쇄한다. 이 경우 감마선의 투과율을 구하기 위해서는 식(10)에 U의 감쇠계수 μ_1 과 피복 관의 지르코늄 합금(Zy-4)의 감쇠계수 μ_2 의 값을 대입하고 연료 봉 단면의 반지름 부분과 각도부분의 미분을 증분으로 택하여 곧, $dr \rightarrow \Delta r$, $d\theta \rightarrow \Delta\theta$ 으로 택하여 전산시늉을 하여 구할 수 있다.

$$T_R = \frac{1}{\pi r_1^2} \sum_{r, \theta} r \Delta r \Delta\theta \exp[-\mu_1(\eta_1 - r \cos \theta) - \mu_2(\eta_2 - \eta_1)]$$

투과율을 계산하는 프로그램을 사용하여 PWR에서 사용한 핵연료 봉에 대한 투과율을 계산하기 위하여 U의 감쇠계수 μ_1 과 피복 관의 지르코늄 합금(Zy-4)의 감쇠계수 μ_2 는 John R. Lamarsh 의 결과로 택하고, 연료 봉 단면의 반지름(4.28 mm) 부분과 각도(2π)부분을 각각 100, 500, 1000, 2000, 3000 등분하고 에너지 값이 400, 500, 600, 800, 1000, 1500, 2000 keV일 때의 감마선 투과율을 구하였다.

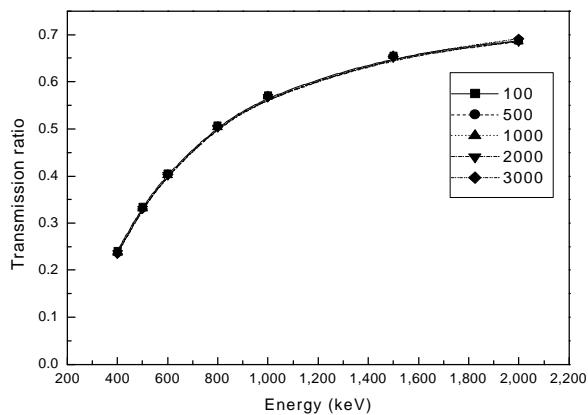


그림 2. 핵연료 봉의 반지름과 둘레 각의 분할을
다르게 하였을 때 에너지별 감마선 투과율.

3. 실험

3.1 감마스캐닝 장치의 장비연결

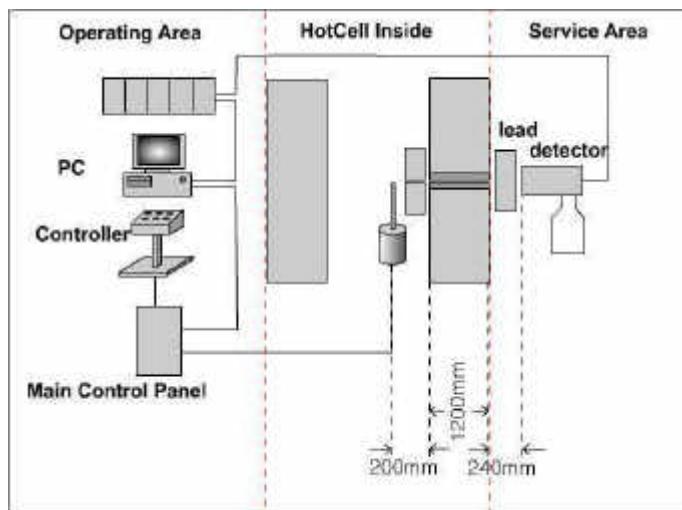


그림 3. 조사재시험시설의 감마스캐닝장치 계통도.

3.2 ^{137}Cs 과 ^{60}Co 선원의 검출효율

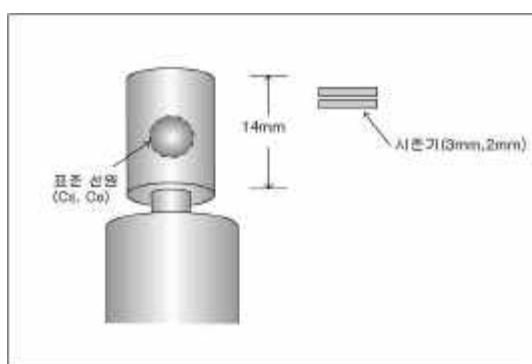


그림 4. 고방사능 ^{137}Cs , ^{60}Co 선원의
감마선 측정.

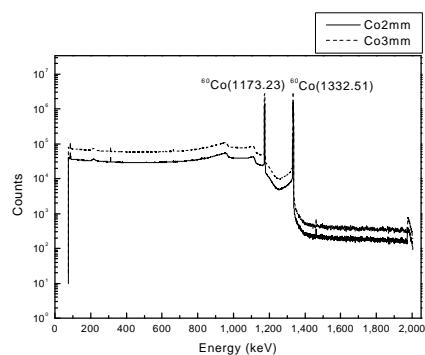


그림 5. ^{60}Co 선원의 감마선 스펙트럼.

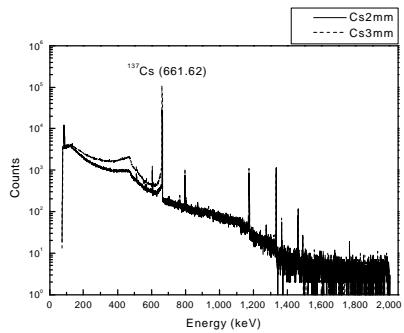


그림 6. ^{137}Cs 선원의 감마선 스펙트럼.

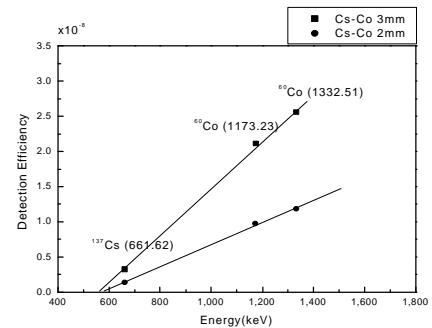


그림 7. 고방사능 ^{137}Cs 선원과 ^{60}Co 선원으로 얻은 검출효율.

3.3 PWR 사용후 핵연료 선원의 검출효율

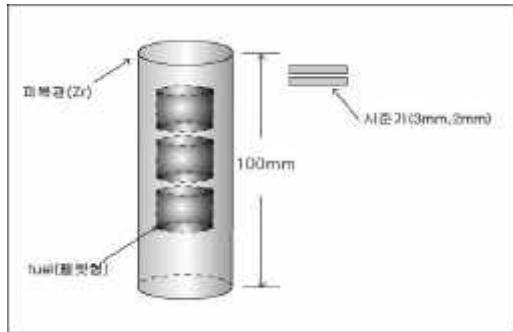


그림 8. PWR 사용후 핵연료(Spent Fuel)의 감마선 측정.

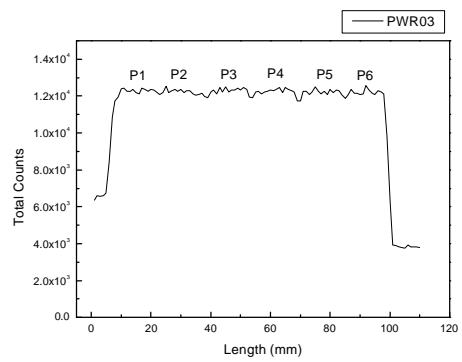


그림 9. PWR 사용후 핵연료에 대한 Position별 Total Counts (C3).

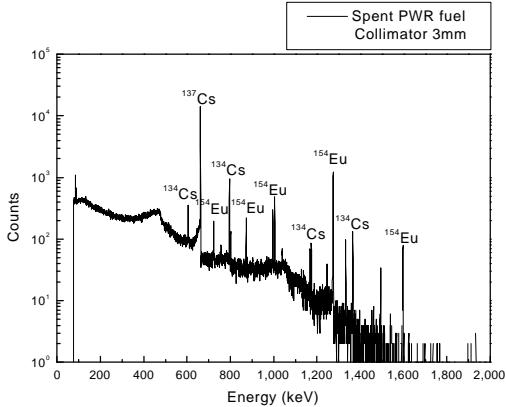


그림 10. 사용후 핵연료 감마선 스펙트럼 (C3).

표 1. PWR 핵연료의 에너지에 따른 Transmission Ratio

	C3		C2	
	에너지(keV)	투과율 T_R	에너지(keV)	투과율 T_R
Cs-134	569.22	0.36902		
	604.69	0.39944	604.70	0.39944
	795.88	0.49495	795.81	0.49492
	801.91	0.49746	801.91	0.49746
	1038.72	0.56837		
	1167.94	0.59400	1167.89	0.59399
	1365.29	0.62587	1365.32	0.62587
Eu-154	723.32	0.46237	723.27	0.46235
	756.70	0.47789	756.78	0.47793
	873.23	0.51635	873.23	0.51635
	996.37	0.54956	996.27	0.54956
	1004.74	0.56089	1004.78	0.56090
	1274.52	0.61217	1274.50	0.61216
	1596.69	0.65416	1596.59	0.65415

표 2. PWR 사용후 핵연료의 에너지에 따른 Peak Area의 평균값

	C3			C2		
	Energy (keV)	Peak Area (3600 sec)	I_γ (%)	Energy (keV)	Peak Area (3600 sec)	I_γ (%)
Cs-134	569.22	52±81	15.38			15.38
	604.69	729±146	97.62	604.70	312±94	97.62
	795.88	2787±160	85.53	795.81	887±96	85.53
	801.91	284±85	8.69	801.91	90±57	8.69
	1038.72	82±68	0.988			0.988
	1167.94	153±52	1.789	1167.89	34±30	1.789
	1365.29	433±60	3.014	1365.32	1333±34	3.014
Eu-154	723.32	389±108	20.22	723.27	114±72	20.22
	756.70	184±93	4.57	756.78	44±24	4.57
	873.23	632±103	12.27	873.23	204±71	12.27
	996.37	910±115	10.60	996.27	256±63	10.60
	1004.74	1195±116	18.01	1004.78	411±75	18.01
	1274.52	4658±179	35.19	1274.50	1432±98	35.19
	1596.69	270±57	1.798	1596.59	94±26	1.798

3.4 검출효율 곡선

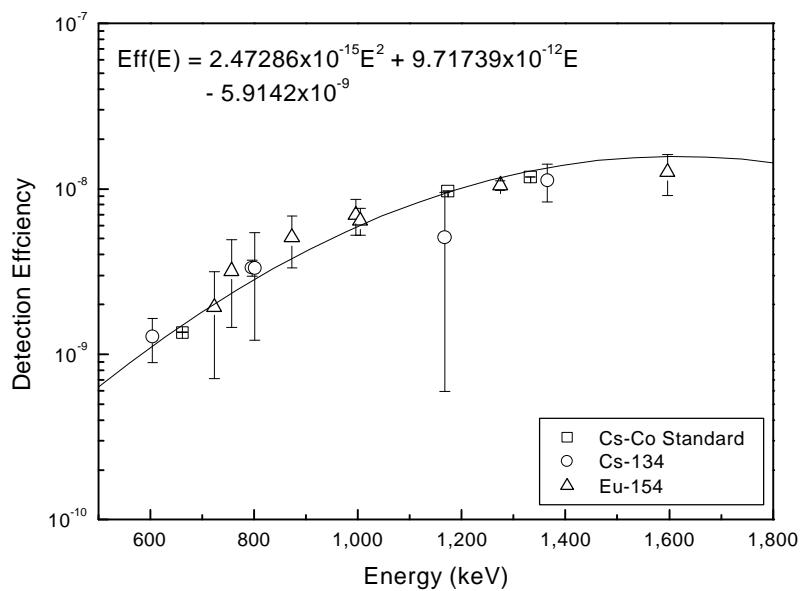
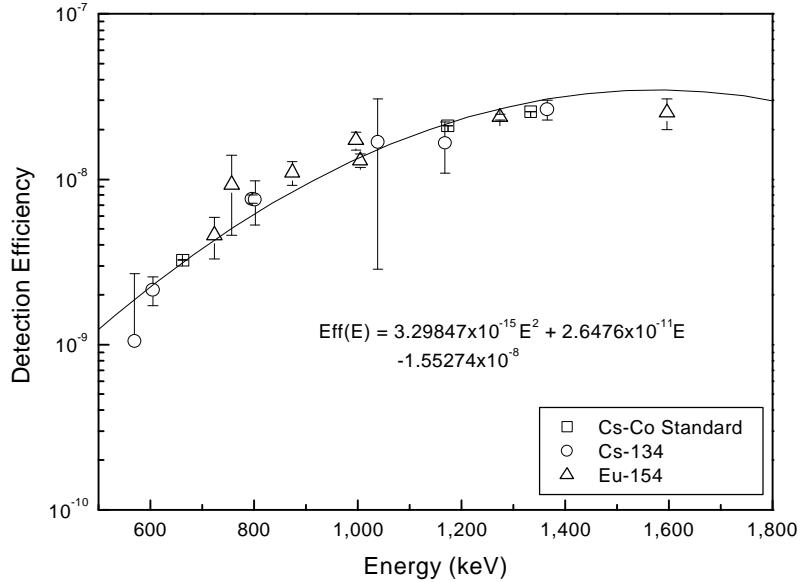
사용후 PWR 핵연료 선원의 감마선 스펙트럼 측정으로 얻은 결과와 표1의 투과율을 검출효율식에 대입하여 2차 방정식의 표현으로 검출효율 곡선을 구할 수 있다.

$$\varepsilon(E) = aE^2 + bE + c = \frac{y}{A}$$

표준선원에서 3개의 (E_i, y_i) 를 대입한 3개의 방정식, 사용 후 PWR 핵연료의 ^{134}Cs 에서 방출된 감마선의 측정 결과에서 7개 (E_j, y_j) 를 대입한 방정식이, 그리고 사용 후 PWR 핵연료의 ^{154}Eu 에서 방출된 감마선의 측정 결과 7개 (E_k, y_k) 를 대입한 방정식이 얻어진다.

최소제곱법을 이용하면 방정식의 계수를 정할 수 있다.

$$\begin{aligned}\chi^2 &= \sum_i [aE_i^2 + bE_i + c - \frac{y_i}{A_1}]^2 \\ &\quad + \sum_j [aE_j^2 + bE_j + c - \alpha y_j]^2 \\ &\quad + \sum_k [aE_k^2 + bE_k + c - \beta y_k]^2 = 0\end{aligned}$$



4. 결론

한국원자력연구소 조사재시험시설의 감마스캐닝 장치는 10.4 GBq의 ^{137}Cs 선원의 검출효율 (661.62 keV)은 C3의 경우 $3.25754 \times 10^{-7} \%$, C2의 경우 $1.35717 \times 10^{-7} \%$ 이었다. 25.9 GBq의 ^{60}Co 선원의 검출효율은 C3의 경우 $2.11583 \times 10^{-6} \%$ (1173.23 keV), $9.71442 \times 10^{-6} \%$ (1332.51 keV) 이었다. 그리고 C2의 경우 $9.71442 \times 10^{-7} \%$ (1173.23 keV), $1.1802 \times 10^{-6} \%$ (1332.51 keV) 이다.

표준감마선원과 PWR 사용후 핵연료에서 나오는 ^{134}Cs 선원과 ^{154}Eu 선원을 이용하여 구한 검출효율은 1 MeV 감마선의 경우 C3을 사용했을 때는 $2.82217 \times 10^{-6} \%$ 이고, C2를 사용했을 때는 $6.27605 \times 10^{-7} \%$ 이다.

본 실험은 500 keV에서 1,600 keV의 영역에서 ν -스캐닝 장치의 검출효율을 측정하였다. 그러나 저에너지와 고에너지에서 방출하는 핵종에 대해서는 감마스캐닝의 측정 한계상 데이터로 쓰지 않았다. 이것은 감마 스펙트럼을 분석하는 과정에서 오차로 남을 수 있지만, 상대적으로 이 영역에서 많이 관측되는 ^{134}Cs 선원과 ^{154}Eu 선원을 이용하여 절대검출효율을 측정하였다.

현재 조사재시험시설의 감마스캐닝장치는 핵연료의 연소분포를 측정하는데 상대검출효율로서 감마선 방출핵종의 상대분포만 측정하고 있다. 그러나 본 논문에서는 절대검출효율을 구함으로써 핵연료내의 핵종의 연소분포를 절대검출효율로 측정함으로써 미지 시료의 방사능을 구할 수 있을 것이라 기대된다.

또한 지금은 검출 시스템은 벤치구동장치가 상하 회전이 가능하여 사용 후 핵연료의 스펙트럼 분석과 제원 측정에 많은 실험을 하고 있지만, 좌우로의 이동이 가능하다면 Tomography(단층촬영)의 실험이 가능하다고 본다. 상하로 이동하면서 측정된 데이터와 좌우로 이동하면서 측정한 데이터를 이용하여 핵연료봉의 3차원적인 입체 모습과 회전을 함으로써 밀도분포를 알 수 있을 것이라 기대된다.

절대검출효율을 측정하는데는 보다 정밀하고 정확한 측정 데이터를 요구하기 때문에 핵연료에 쓰이는 재료의 감쇠계수 데이터와 핵연료 내의 연소차이 및 핵분열 가스의 이동 등으로 인하여 방출밀도가 균일하지 않는 것에 대한 정밀한 분석 및 계산이 향후 개선해야 할 과제로 생각된다.

참고문헌

- [1] 이영길, “감마선 미세빔을 사용한 HPGe 검출기의 고유검출효율에 관한 연구(Study on the Intrinsic Detection Efficiencies of HPGe Detectors by Using Needle of Gamma-ray)”, 충남대학교대학원 물리학과 물리학전공 박사학위논문, (2. 1994)
- [2] 홍권표, 박대규, 주용선, 외 3 “감마스캐닝에 의한 사용 후 PWR 핵연료의 핵종비 측정”, 한국원자력학회 추계학술발표회 논문집 II. p.251 (Oct. 1997)
- [3] John R. Lamarsh, “Introduction to Nuclear Engineering (2nd Edition)”, p.648 (1983)
- [4] “조사재시험시설 운영보고서”, KAERI/MR-353/2000, (2001)
- [5] 노성기, “측정 불확도 평가방법(Estimation Method of Measurement Uncertainty)”, EMU-001/991216, (12. 1999)
- [6] 이기순, 홍권표, 외 5 “하나로 핵연료의 감마스캐닝”, KAERI/TR-816/97, (2. 1997)
- [7] 홍권표, 주용선, 외 6 “98년도 후반기 IMEF 핫셀시험 세미나”, IMEF/1998/007, (12. 1998)
- [8] Data received from Korea Atomic Energy Research Institute Web-site