

조사재시험시설에서의 감마선 검출효율 측정

Measurement of Gamma-ray Detection Efficiency in Irradiated Materials Examination Facility

홍권표, 백승제, 주용선, 민덕기, 박현수

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

조사재시험시설의 감마스캐닝 장치에 대한 감마선 검출효율을 측정하였다. Cs-Co 표준선원과, 방사능은 모르나 ^{134}Cs 피이크와 ^{154}Eu 피이크가 뚜렷한 PWR 사용후핵연료 봉을 이용하여 500 keV에서 1,600 keV 영역에 대한 검출효율을 측정하였다. 조사재시험시설 감마스캐닝 장비의 특징은 선원과 검출기의 거리가 약 1.6m 이고 이 사이에 3mm 슬릿형 시준기와 감마선 감쇠용 납차폐체(30 mm)가 있으며 고순도 Ge 검출기를 사용한다. 주로 조사된 핵연료를 시험 대상으로 하는 이 감마스캐닝 장비의 측정된 검출효율은 1 MeV 감마선의 경우 $1.89 \times 10^{-6} \%$ 였으며 이로부터 미지 시료의 방사능까지 측정할 수 있었다. 이 측정결과는 향후의 핵연료 감마스캐닝에 직접 적용되어 감마선 방출핵종의 절대분포를 얻는데 활용될 것으로 기대된다.

Abstract

The detection efficiency of gamma scanning system in Irradiated materials Examination Facility has been measured. Gamma-ray sources used in this experiment are a Cs-Co standard sources and a PWR spent fuel rod in which ^{134}Cs and ^{154}Eu peaks are clearly identified in the energy region of 500 to 1,600 keV. The distance between source and detector is about 1.6 m. A slit type collimator with 3 mm-width window and 30 mm-thick lead block are installed between source and detector. The detector is a HPGe detector. This equipment is mainly used in gamma scanning of irradiated nuclear fuel. The measured detection efficiency seems to be $1.89 \times 10^{-6} \%$ for 1 MeV gamma-ray. With these results the activities of unknown sources could be measured. This results are expected to be used in the measurement of the absolute distribution of gamma emitting nuclides in nuclear fuel.

1. 서 론

조사된 핵연료를 대상으로 하여 감마선을 측정할 때 높은 방사능으로 인하여 보통 검출기 불감 시간이 높게 된다. 이것은 측정 불확도를 높이는 요인이 되므로 검출기 내로 입사하는 감마선의 세기를 줄이기 위해 추가 차폐를 하던가 작은 입체각의 시준기(collimator)를 사용하기도 한다. 이렇게 되면 검출효율(감마선 방출량에 대한 측정량의 비)도 낮아지게 될 뿐 아니라, 에너지의 함수로서의 검출효율을 알아내기가 쉽지 않다. 검출 시스템의 복잡한 기하학적 배치로 인하여 계산방법으로는 알기 어려우며 표준 감마선원을 이용한 비교측정 방법으로 검출효율을 알아내야 하는데 고방사능이면서 다양한 에너지의 감마선을 내는 표준선원을 구하기 어렵기 때문이다.

핵연료의 연소도를 알아내기 위한 목적의 경우 등 감마선 방출핵종의 상대적 분포만 측정하는 경우에는 상대검출효율을 이용함으로써 가능하다. 즉, 하나의 핵종으로부터 얻어지는 여러개의 피이크를 보면 이들은 서로 에너지와 감마선 방출률(매 붕괴당 특정 감마선 방출확률) 만이 다르기 때문에 측정한 피이크 면적들로부터 검출효율의 에너지 의존성을 알 수 있으며 이러한 검출효율의 에너지 의존성(상대검출효율)으로부터 관심 핵종 양의 비(혹은 방사능의 비)를 알아낼 수 있다.¹⁾ 그러나 이러한 경우에도 상대적 비를 측정함으로써 인하여 생기는 측정불확도의 증가는 피할 수 없다.

본 논문에서는 방사능을 알고 있는 표준선원과 방사능은 모르나 뚜렷하고 다양한 피이크를 나타내는 오래 냉각된 사용후핵연료를 이용하여 측정 시스템의 절대검출효율을 구하는 방법 및 측정결과를 소개하고자 한다. 조사재시험시설의 감마스캐닝 장치를 이용하여 검출효율을 측정하였는데 표준 감마선원으로는 $^{137}\text{Cs}(11.1 \pm 1.1 \text{ GBq})$ 과 $^{60}\text{Co}(37 \pm 3.7 \text{ GBq})$ 이었고, 사용후핵연료는 고리 1호기 사용후 핵연료로서 1989년 1월에 노심에서 인출되어 12년 냉각시킨 것이었다.

2. 본 문

실험장치의 특성

조사재시험시설 내의 감마선 검출장치는 조사된 핵연료 등 고준위 방사성시료에 대해 감마선을 검출할 수 있도록 되어 있다. 그림 1 과 같은 배치를 갖고 있는데, 방사성 시료(보통의 경우 조사된 핵연료)는 핫셀 내의 비과괴시험 벤치에 장착되며 원격 구동장치에 의하여 길이방향 이동 및 회전이동이 가능하다.²⁾ 시험할 수 있는 시료는 봉 형태의 것이어야 하며 그 길이는 최대 1 m, 최소 5 cm 크기를 가져야 한다. 핵연료 등 시료에서 나오는 감마선은 벽에 매설된 시준기를 통하여 약 1.6 m 떨어져 있는 핫셀 밖의 검출기에 도달하는데 1.2 m의 벽을 관통하는 시준기(collimator)는 길이 40 mm, 폭 3 mm의 슬릿 형태의 창을 가지며 검출각은 약 0.0002 steradian 이다.

한편 검출기는 HPGe 검출기(검출기 상대효율 15 %, 에너지분해능 1.4 keV at 1.17 MeV)이며 검출기 불감시간을 줄이기 위하여 검출기 바로 앞에 30 mm 두께의 납 블록으로 차폐를 하였다. 이 납차폐는 검출효율에 영향을 주어 후술하는 바와 같이 독특한 형태의 효율곡선을 얻게 된다.

감마선이 검출되면 프리앰프를 지나 분석기 유닛에 도달하며 앰프, 아날로그-디지털 변환기(A/D converter) 및 저장 메모리(buffer)에 기록된다. 저장된 감마선 스펙트럼은 분석 프로그램(Maestro II)으로 처리되며 이 결과 피이크 데이터를 얻게 된다.

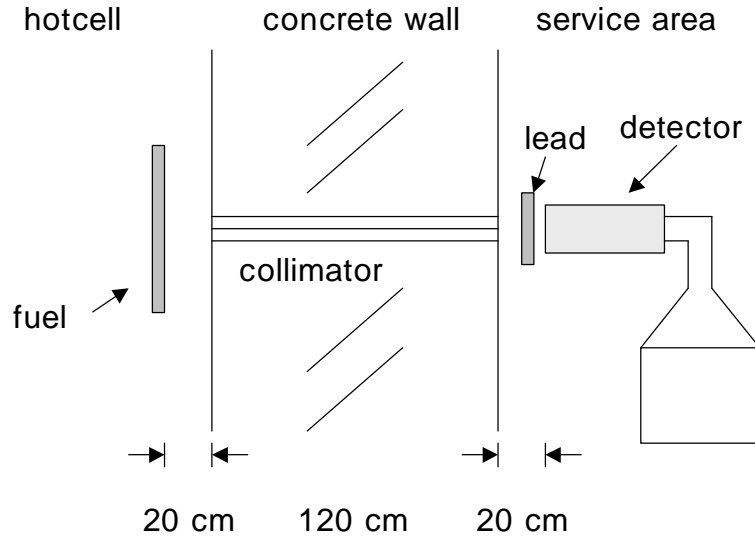


그림 1. 조사재시험시설의 감마스캐닝 장치.

검출효율

선원에서 나오는 감마선의 일부 만을 측정하는 경우에 측정시스템의 검출효율은 다음과 같이 정의된다.

$$\epsilon(E) = \frac{\text{측정된 감마선의 양}}{\text{방출된 감마선의 양}} = \frac{S}{AI_\gamma} \quad (1)$$

여기서 S 는 검출된 감마선의 양(매초당 피크 면적)이고 A 는 방사능, I_γ 는 매 붕괴당 감마선 방출률(gamma intensity)이다. 즉, 이 검출효율에는 검출거리 및 시준기 등 기하학적 배치와 검출기 자체의 검출효율을 모두 포함하고 있다.

핵연료와 같이 부피가 있고 밀도가 큰 경우 자체흡수효과로 인하여, 생성된 감마선의 양과 연료 붕을 투과해 표면으로 방출되는 감마선의 양과는 차이가 있다. 검출효율을 연료 외부로 방출되는 감마선의 양에 대한 측정된 감마선 양의 비로 정의하면 (1)식은 다시

$$\epsilon(E) = \frac{\text{측정된 감마선의 양}}{\text{선원표면으로 방출된 감마선의 양}} = \frac{S}{AI_\gamma T_r} \quad (2)$$

가 되며, 여기서 T_r 은 생성된 감마선이 선원물질 자체를 투과하여 선원 표면까지 나오는 비율(투과율, transmission ratio)이다. 표준 감마선원의 경우는 인증된 지표값이 표면 방사능이므로 T_r 은 1 이다. 따라서 (2)식에서 바로 해당 에너지에 대한 검출효율을 얻을 수 있다.

표준 선원 감마선 측정

측정에 사용한 선원은 ^{60}Co 과 ^{137}Cs 로서 이들의 감마선 에너지와 방사능은 표 1과 같다. 측정 한 스펙트럼으로부터 (2)식을 적용하여 662 keV 와 1173 keV 및 1332 keV에서의 검출효율을 구 하였는데 그 결과도 표 1에 실었다. 측정시에는 선원의 크기가 시준기 폭인 3 mm 보다 크므로 1 mm 씩 이동하면서 전체에 대해 측정(3번씩 중복 측정)하였다.

표 1. 표준선원으로부터 구한 검출효율

	¹³⁷ Cs (662 keV)	⁶⁰ Co (1,173 keV)	⁶⁰ Co (1,332 keV)
피이크 에너지 ^o	661.657 ±0.003 keV	1173.237 ±0.004 keV	1332.501 ±0.005 keV
반감기	30.07±0.03 년	5.2714 ±0.0005 년	←
방사능(Bq) (인증서 기준일)	11.03±1.10 GBq (16 Nov. 1999)	37.0±3.7 GBq (3 Nov. 1999)	←
방사능(Bq) (감마선 측정일)	1.060E+10 ±1.060E+09 (20 Feb. 2001)	2.8388E+10 ±2.8388E+09 (20 Feb. 2001)	←
감마선 방출률(%) ^o	85.1±0.2	99.9736±0.0007	99.9856±0.0004
감마선 방출세기 (표면 Intensity)	9.0174E+09 ±9.0199E+08	2.8380E+10 ±2.8380E+09	2.8384E+10 ±2.8384E+09
측정된 피이크 면적(초당)	28.026±0.032	733.17±0.20	888.13±0.19
검출효율	1.7251E-09 ±3.0084E-10	1.5660E-08 ±1.7509E-09	1.1744E-08 ±1.1802E-09

사용후 핵연료 감마선 측정

사용후 핵연료봉에 대해서는 한 위치에서 감마선을 측정하였다. 측정시간은 10,000초 이었고 이 스펙트럼을 그림 2 에 실었다. 조사재시험시설에서 보유하고 있는 오래 냉각된 사용후핵연료(고리 1호기 핵연료, 1989년 1월 노심인출, 냉각기간 12년)를 사용하였다. 오래 냉각된 사용후핵연료에서는 장반감기의 핵종들이 뚜렷하게 관측되므로 본 실험에 적당하다. ¹³⁴Cs와 ¹⁵⁴Eu 핵종을 측정하였는데 모두 9개(¹³⁴Cs 피이크 4개, ¹⁵⁴Eu 피이크 5개)의 피이크를 측정하였으며 이 결과를 표 2 에 실었다.

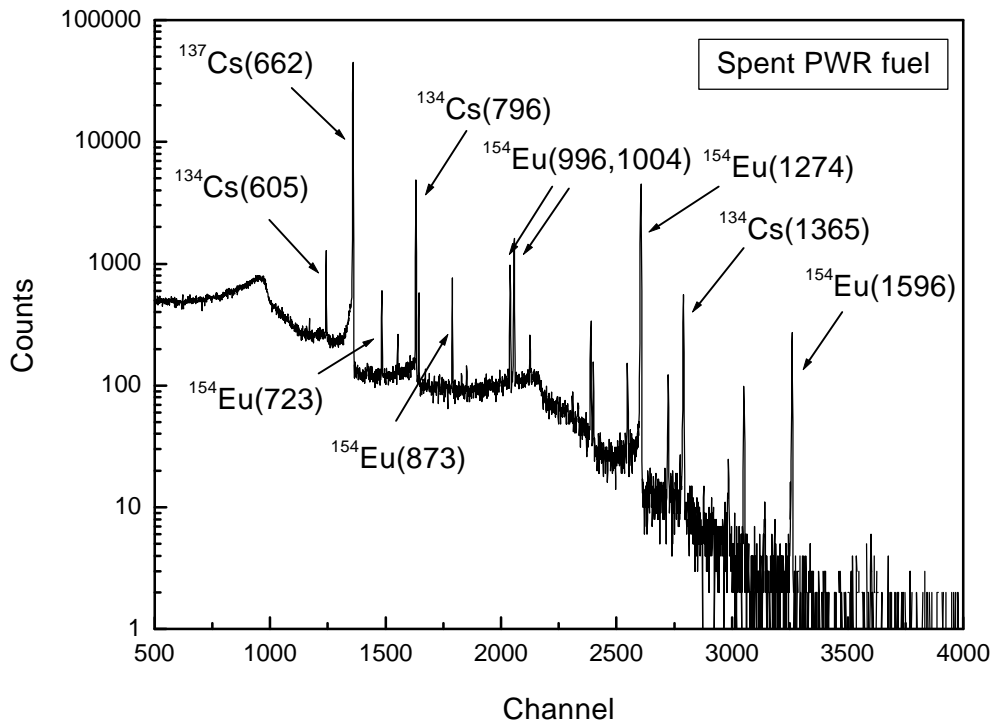


그림 2. 사용후 핵연료 감마선 스펙트럼.

표 2. 사용후 핵연료 선원(PWR rod)으로부터 찾은 피이크들

	CENTROID (keV)	GROSS	NET	+/-	FWHM (keV)	Nuclide (keV)	I_{γ} (%)
^{137}Cs	661.70	130697	124123	377	1.29	Cs-137 (661.62)	85.1
^{134}Cs	569.49	4054	221	77	0.84	Cs-134 (569.33)	15.38
	604.77	8101	2847	126	1.14	Cs-134 (604.72)	97.62
	795.82	16166	13850	135	1.38	Cs-134 (795.86)	85.53
	801.90	3122	1463	65	1.30	Cs-134 (801.95)	8.69
	1038.44	2307	434	62	1.38	Cs-134 (1038.61)	0.988
	1167.70	2389	1309	76	1.45	Cs-134 (1167.97)	1.789
	1364.82	2523	2189	58	1.81	Cs-134 (1365.19)	3.014
^{154}Eu	723.27	3826	1565	80	1.42	Eu-154 (723.30)	20.22
	756.71	2279	321	57	0.76	Eu-154 (756.76)	4.57
	873.12	4238	2183	89	1.42	Eu-154 (873.19)	12.27
	996.10	4477	2911	70	1.49	Eu-154 (996.26)	10.6
	1004.55	11929	7705	169	1.48	Eu-154 (1004.73)	18.01
	1274.13	17277	16569	137	1.69	Eu-154 (1274.44)	35.19
	1595.95	1114	1016	35	1.86	Eu-154 (1596.50)	1.798

(측정일 03-3-2001, Live Time = 10000.0 s)

사용후 핵연료 감마선 투과율

찾아낸 피이크 데이터를 (2)식에 적용하기 위해서는 우선 핵연료 봉의 감마선 투과율을 알아내야 한다. 사용후핵연료의 단면에 대해 측정방향으로의 투과율을 알기 위해 그림 3과 같이 설정하고 각 미소부분이 투과되는 비율을 계산한 다음 이를 전 핵연료 부분에 대해 적분하여 투과율을 계산하였다.

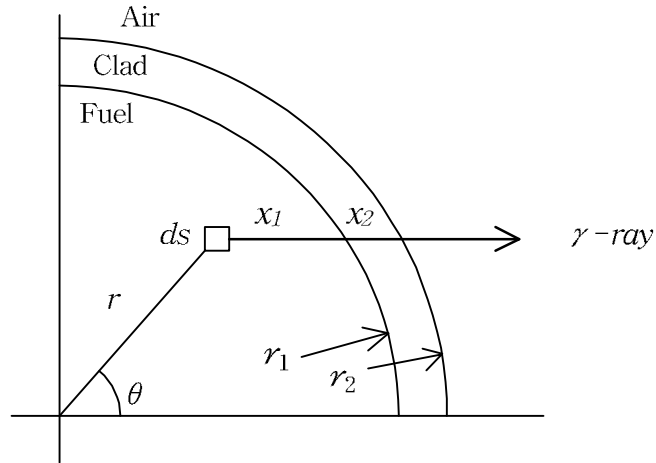


그림 3. 핵연료 내에서 발생한 감마선의 진행 경로.

그림 3 에서 내부 원(r_1)이 핵연료 영역이고 피복관의 두께는 $r_2 - r_1$ 이다. 미소영역 ds 에서 발생한 감마선은 핵연료물질과 피복관을 각각 x_1 및 x_2 만큼 통과한다. 미소면적 ds 에서 발생한 감마선의 세기를 dI_0 라 하면 우측으로 투과되는 세기는 $dI = dI_0 \exp(-\mu_1 x_1 - \mu_2 x_2)$ 이므로 투과율 T_r 은

$$T_r = \frac{I}{I_0} = \frac{\int dI_0 \exp(-\mu_1 x_1 - \mu_2 x_2)}{\int dI_0} \quad (3)$$

이 된다. 극좌표로 나타내면,

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

$$x_2 = \sqrt{r_2^2 - r^2 \sin^2 \theta} - \sqrt{r_1^2 - r^2 \sin^2 \theta} \text{ 이다.}$$

또 $dI_0 = \sigma(r, \theta) r dr d\theta$ 로 쓸 수 있는데, $\sigma(r, \theta)$ 는 감마선 방출밀도(단위 면적당 감마선의 방출세기)이다. 감마선 방출밀도가 연료내에서 균질하다고 가정하면 (3)식에서 투과세기 I 는

$$I = \sigma \int_{r, \theta} r \exp(-\mu_1 x_1 - \mu_2 x_2) dr d\theta \quad (4)$$

이 된다. 여기서 감쇠계수(attenuation coefficient)는 핵연료에 대해서는 우라늄을 적용하였고, 피복관의 경우에는 지르칼로이(Zircaloy-4)를 적용하였는데 이 값들은 표 3 과 같다.

표 3. 핵연료 및 피복관의 감마선 감쇠계수

에너지 (keV)	U 감쇠계수 ⁴⁾ , μ_1 (1/mm)	Zy-4 감쇠계수, μ_2 (1/mm)	
400	0.49469	0.0663	
500	0.33616	0.0567	
600	0.25976	0.0506	
800	0.18183	0.0429	
1000	0.14459	0.0380	
1500	0.10467	0.0309	
2000	0.09244	0.0271	

위의 계산에서 핵연료 부분의 감마선 방출밀도를 일정한 것으로 보았는데 이는 사실과는 다르다. 일반적으로 동경방향으로 연소 차이가 있으므로 다른 분포를 가지며 또한 중성자 집중 조사방향에 따라 다른 분포를 갖는다. 또 핵분열 가스인 경우는 이동(migration) 영향도 있다. 그러나 분포를 알 수 없어 여기서는 균일(homogeneous)하다고 간주하였다.

(4)식에 표 3의 감쇠계수를 적용하고 수치해석적인 방법으로 계산하였는데, 반경과 각을 각각 1000등분하여

$$dr \rightarrow \Delta r = 9.48/2000 \text{ (mm)}$$

$d\theta \rightarrow \Delta\theta = 2\pi/1000$ (rad) 으로 근사 계산하였다. 이 결과는 그림 4와 같다. 7개의 에너지 값에 대한 투과율 계산결과로부터 이들을 잘 연결해주는 4차 다항식을 찾아내었고 이 4차 다항식을 이용하여 (2)식의 검출효율 계산에 적용하였다.

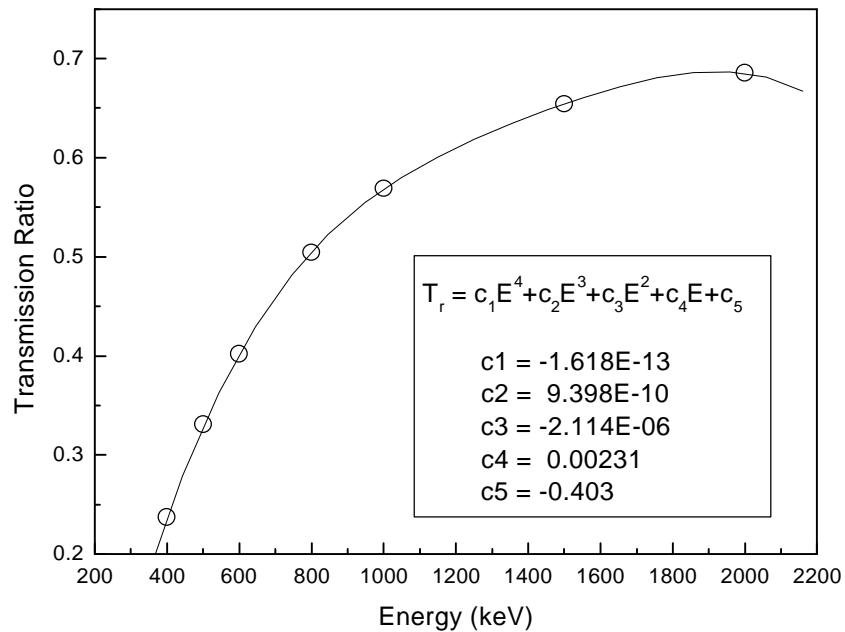


그림 4. PWR 핵연료 봉의 감마선 투과율.

검출효율의 계산

몇 개의 핵종에 대한 표 2의 데이터와 그림 4의 투과율 곡선을 적용하여 (2)식의 검출효율을 구할 수 있다. 에너지에 의존하는 검출효율 곡선을 구하기 위해서는 띄엄띄엄한 측정데이터를 최소자승피팅하여 구하는데 이번의 경우에는 2차 다항식으로 피팅하였다. 즉,

$$\epsilon(E) = aE^2 + bE + c \tag{5}$$

의 형태로 구하는데 표준선원 데이터를 i, 부표준선원의 ^{134}Cs 데이터를 j, 부표준선원의 ^{154}Eu 데이터를 k라 표시하면,

$$\begin{aligned} \epsilon(E) &= \frac{S_i}{A_1 I_\gamma} = aE_i^2 + bE_i + c \\ \epsilon(E) &= \frac{S_j}{A_2 I_\gamma T_r} = aE_j^2 + bE_j + c \\ \epsilon(E) &= \frac{S_k}{A_3 I_\gamma T_r} = aE_k^2 + bE_k + c \end{aligned} \tag{6}$$

가 된다. 여기서 A_1, A_2 및 A_3 는 각각 표준선원, ^{134}Cs 및 ^{137}Cs 의 방사능이다. 표준선원의 경우에는 인증서에 표기된 방사능이 표면 방사능(apparent activity)이므로 T_r 을 1로 하였는데, 표준선원과 핵연료의 크기 및 기하구조의 차이에 의한 보정은 하지 않았다.

(6)식에서 A_2 및 A_3 와 2차함수의 계수 a, b, c 등 5개의 미지값을 구하는데, 총 17개의 데이터(표준선원 3개, ^{134}Cs 7개, ^{154}Eu 7개)를 적용한다. 최소자승피팅한 결과는 표 4 및 그림 5와 같다.

표 4. 검출효율 및 방사능 피팅 결과

	피이크 에너지 (keV)	검출효율	방사능 (Bq)	비 고
표준선원	661.62	3.10689E-09	1.06E+10	인증서로부터 구한 값임.
	1173.24	2.58336E-08	2.84E+10	인증서로부터 구한 값임.
	1332.50	3.12899E-08		
^{134}Cs	569.49	8.88730E-10	4.21E+08	
	604.77	1.69929E-09		
	795.82	7.60199E-09		
	801.90	7.86550E-09		
	1038.44	1.79521E-08		
	1167.70	2.85717E-08		
	1364.82	2.69251E-08		
^{154}Eu	723.27	5.60506E-09	2.92E+08	
	756.71	4.92555E-09		
	873.12	1.14205E-08		
	996.10	1.65096E-08		
	1004.55	2.56228E-08		
	1274.13	2.57783E-08		
	1595.95	2.89058E-08		

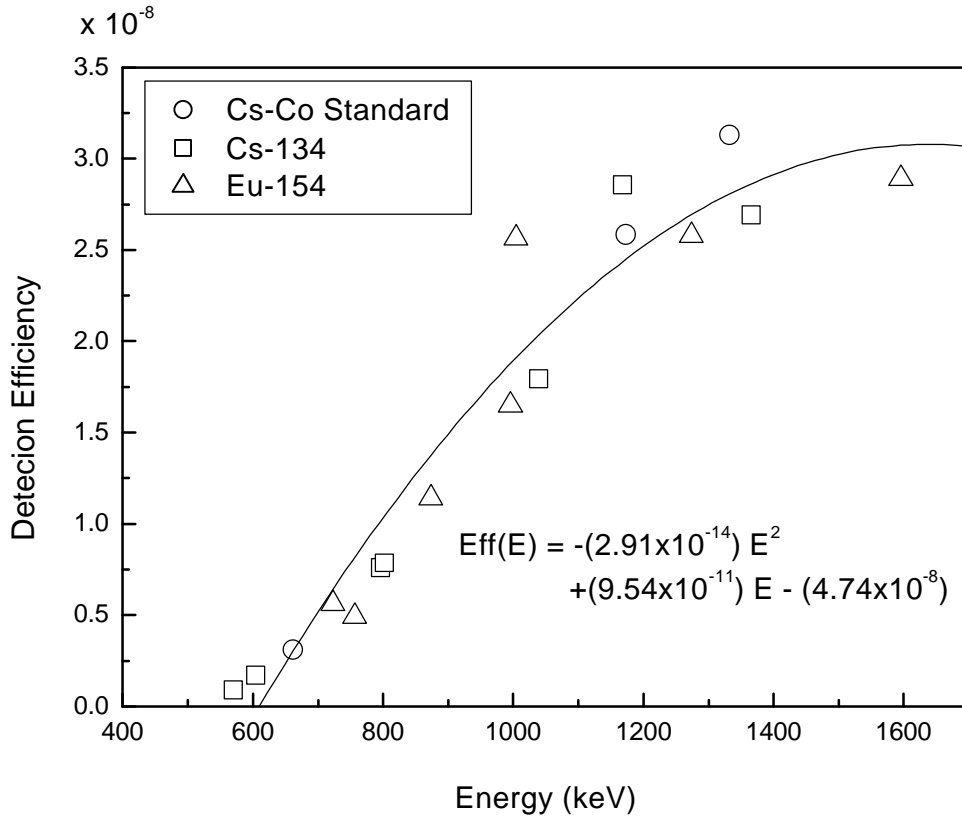


그림 5. 표준선원, ^{134}Cs 및 ^{154}Eu 핵종 피이크로부터 구한 검출효율.

연료봉의 휘에 대한 고려

연료봉이 휘어있게 되면 감마선 측정시 선원과 검출기 사이의 거리가 변화하므로 검출에 영향이 있게 된다. 보통 하나로 핵연료 등의 경우 원격으로 다발을 해체할 때 취급의 문제로 인하여 약간씩 휘기도 하고 핫셀 내 벤치에 장착할 때 정렬의 부정확으로 인하여 핵연료와 검출기와의 거리가 최대 2 mm 까지(추정치 임.) 변할 수 있다. 시즌기 내로 입사하는 감마선이 모두 검출기에 도달한다고 보면, 선원과 시즌기와의 거리가 200 mm 이므로 그 차이를 다음과 같이 계산한다.

$$I \propto \frac{I_0}{r^2} \text{ 로 쓸 수 있으므로 두 경우를 각각 } I_1 \propto \frac{I_0}{(200)^2} \text{ 및 } I_2 \propto \frac{I_0}{(202)^2} \text{ 라 하면}$$

$$\frac{I_1}{I_2} \propto \left(\frac{202}{200}\right)^2 = 1.02 \text{ 가 되어 최대 2 \%의 차이를 나타낼 수 있다. 이 논문에서는 이 차이}$$

는 무시하였다.

4. 결론 및 고찰

조사재시험시설 감마스캐닝 장치에 대해 Cs-Co 표준선원과 사용후 PWR 핵연료를 이용하여 감마선 검출효율을 측정하였다. 이들 선원에서 측정된 17개의 피이크를 이용하여 500 keV에서 1,600 keV 에너지 영역에 대해 검출효율을 에너지의 함수로서 구하였다. 1 MeV 감마선의 경우는 검출효율이 $1.89 \times 10^{-6} \%$ 인 것으로 나타났다. 이 감마스캐닝 장치는 현재도 핵연료 연소분포 측정 등 많은 실험을 수행하고 있는데⁵⁾ 지금까지는 상대검출효율을 이용한 감마선 방출핵종의 상대분

포만 측정하고 있다. 본 논문의 결과가 절대분포 측정에 적용될 수 있으리라 본다.

핵연료의 자체흡수에 의한 투과율 계산에서는 감마선 방출핵종의 비균질성에 따른 투과율 차이를 무시하였으나, 보다 정확한 측정을 위해서는 풍부한 감쇠계수 물성데이터가 필요하고 비균질성에 대한 정밀한 분석 및 계산을 통하여 앞으로 개선해야 할 숙제이다.

또한 검출효율을 구하는데 있어 표준선원과 핵연료 선원의 기하구조 차이를 고려치 않고 표면 방사능 값으로만 동등비교하였는데, 이에 대한 논란의 여지가 있으나 이는 다음의 연구과제로 남기고자 한다.

끝으로 본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 지원을 받아 수행된 것임을 밝힌다.

5. 참고문헌

- 1] 홍권표, 박대규, 주용선, 안상복, 김태연, 박형중, 감마스캐닝에 의한 사용후 PWR 핵연료의 핵종비 측정, 한국원자력학회 추계학술발표회 논문집 II. p.251 (Oct. 1997).
- 2] Kwon-Pyo Hong et. al., Development of Non-Destructive Testing Device in IMEF, Proceedings of the 2nd KAERI-JAERI Joint Seminar on PIE Technology, p.137 (Sep. 1995).
- 3] Data retrieved from Lawrence Berkeley National Laboratory Web-site on Feb. 2001.
- 4] John R. Lamarsh, Introduction to Nuclear Engineering (2nd ed.), p.648 (1983).
- 5] 조사재시험시설 운영보고서, KAERI/MR-353/2000, (2001).