

사용후핵연료 연소도 측정을 위한 이온 챔버 제작

박세환, 엄성호, 신희성, 임혜인, 하장호, 김한수
한국원자력연구원

2010년 1월 27일 접수 / 2010년 3월 4일 1차수정 / 2010년 3월 12일 채택

사용후핵연료의 저장 및 이송시 핵임계 안전성 확보를 위하여 연소도를 정확히 결정할 필요가 있다. 특히, 정확한 연소도 결정을 위해서 핵연료 축방향 연소도 분포를 정확하게 측정할 필요가 있다. 본 연구에서는 사용후핵연료 제어봉 안내관에 삽입하여 축방향 감마선 선량 분포를 측정하기 위하여 이온 챔버를 개발하였다. 이온 챔버는 유도부, 가스 주입부, 센서부 세 부분으로 구성되었다. 센서부 전극은 cathode와 anode 두 전극만을 가지도록 설계되었으며, 제어봉 안내관에 원활한 삽입을 위하여 guard 전극은 사용하지 않았다. 이온 챔버 내부에 불활성 기체를 충전하고 누설 전류와 포화곡선을 측정하였다. 한국원자력 연구원의 저준위 조사 시설을 이용하여 선량 변화에 따른 이온 챔버 전류 변화를 측정하여 5% 이내의 선형성을 확보하였다. 제작된 이온 챔버는 추가적인 성능 평가를 통하여 한국원자력연구원내 조사후 시험시설에 있는 사용후핵연료 집합체의 연소도분포 측정에 적용될 예정이다.

중심어: 이온챔버, 사용후핵연료, 연소도, 누설전류, 포화곡선

1. 서론

이온챔버는 방사선량을 측정할 수 있는 대표적 가스형 방사선 검출기 중 하나이다. 이온챔버는 방사선 각각의 에너지를 구분하여 측정하지 못하며, 자체 신호 증폭이 없기 때문에 출력 신호가 작아서 노이즈를 최소화하여야 하는 단점이 있다. 그러나, 구조가 간단하고 고방사선 환경하에서 장기간 안정적으로 동작할 수 있다는 장점이 있기 때문에 원자로 안전 감시나 핵연료 측정 등과 같은 장기간 안정적 검출기 동작을 원하거나 고선량 하에서 방사선량을 정확하게 측정할 필요가 있을 경우 널리 쓰이고 있다[1].

핵연료는 현재 원자로에서 연소 후 원자로 주변의 저장시설에서 관리되고 있다. 사용후핵연료의 저장량이 증가함에 따라 사용후핵연료의 저장 및 이송시 방사선 안전 관리를 위한 선량 측정 및 평가 기술의 중요성이 더욱 커지고 있다. 특히 사용후핵연료의 저장 및 이송시 핵임계 안전성 고려를 위하여 핵연료의 연소도에 대한 고려를 필요로 한다[2,3]. 사용후핵연료는 연소시 축방향에 따라 연소도 분포가 변화한다고 알려져 있으며, 이러한 연소도 분포를 결정하기 위하여 집합체 축방향으로 방사선 분포를 정확하게 측정할 필요가 있다[3].

사용후핵연료에는 원자로 내부에서 핵분열에 의하여

다양한 핵종이 만들어진다. 이러한 핵종 중 감마선을 발생하는 대표적인 핵종으로는 ^{134}Cs , ^{137}Cs , $^{95\text{Zr}}$, ^{154}Eu , ^{144}Pr 등을 들 수 있다. 이러한 핵종에서 발생하는 감마선을 측정하여 핵연료의 연소도를 측정하는 대표적인 방법으로는 ^{134}Cs 에서 발생하는 604.7 keV 감마선과 ^{137}Cs 에서 발생하는 662 keV 감마선을 측정하여 두 감마선의 발생비를 구하는 방식이다. 즉, ^{134}Cs 는 일반적으로 $^{133}\text{Cs}(n, \gamma)^{134}\text{Cs}$ 반응에 의하여 만들어지며, ^{133}Cs 는 핵연료 내의 핵분열에 의하여 만들어지므로 ^{134}Cs 에서 발생하는 감마선 발생률은 핵연료에 입사하는 중성자 선속의 제공에 비례하고, ^{137}Cs 는 사용후핵연료 내부의 핵분열에 의하여 발생하므로 ^{137}Cs 에서 발생하는 감마선의 발생률은 핵연료에 입사한 중성자 총량에 비례한다. 따라서 감마선 에너지 측정을 통하여 사용후핵연료에서 발생하는 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 동위원소비를 구하면, 사용후핵연료에 입사한 총 중성자 양을 구할 수 있고, 이를 통하여 사용후핵연료 연소도를 결정할 수 있다. 사용후핵연료 외부에서 감마선을 측정할 경우 적합한 차폐체를 이용하여 감마선 검출기에 입사하는 감마선의 수를 제한함으로써 감마선 에너지를 구분할 수 있다[4]. 그러나, 사용후핵연료의 내부에서 연소도를 결정하기 위하여 감마선을 측정할 경우 감마선 선속이 높기 때문에 감마선의 에너지를 구분하는 것은 불가능하며, 오직 총 감마선 선량만을 측정할 수 있다. 이 경우 가장 적합한 감마선 검출기는 이온 챔버를 들 수 있다.

사용후핵연료의 연소도를 비파괴적 방식으로 결정하기 위하여 사용후핵연료에서 발생하는 감마선이나 중성자

책임저자: 박세환, ex-spark@kaeri.re.kr, 한국원자력연구원
대전시 유성구 대덕대로 1045

측정이 이용된다. 중성자 측정에는 주로 Fission chamber 가 쓰이고, 총감마선 측정에는 이온 챔버가 쓰이며, 감마선 에너지 스펙트럼 측정을 위하여 게르마늄 검출기나 CZT (Cadmium Zinc Telluride) 검출기가 쓰인다[5,6]. 사용후핵연료의 측정된 연소도는 2% 내외의 오차가 보고되고 있다[5].

본 연구에서는 사용후핵연료 집합체의 제어봉 가이드 튜브에 삽입되어 사용후핵연료에서 발생하는 축방향 감마선 분포를 측정할 수 있는 이온 챔버를 설계·제작하고 그 성능을 평가하였다.

2. 이온 챔버 제작

이온 챔버의 전극은 일반적으로 고전압을 인가할 수 있는 고전압 전극, 이온 챔버에서 발생하는 신호를 수집할 수 있는 신호 수집 전극, 그리고 신호 수집 전극의 노이즈를 최소화 할 수 있는 가드 전극으로 구성된다. 가드 전극은 신호 수집 전극과 동일한 전위를 유지하며, 고전압 전극과 신호 수집 전극 사이에 위치한다. 또한 가드 전극으로는 이온 챔버 내에서 발생하는 신호를 얻을 수 없도록 구성된다. 따라서 고전압 전극과 신호 수집 전극 사이에 전압이 인가된 경우 두 전극 사이의 유한한 저항에 의하여 발생하는 전류는 신호수집 전극으로 흐르지 않고, 가드 전극으로 흐른다. 이 경우 가드 전극은 이온 챔버 내에서 방사선에 의하지 않고 만들어지는 전류를 신호 수집 전극으로 흐르지 않게 할 수 있는 장점을 지닌다[7]. 그러나, 가드 전극을 구성할 경우 이온 챔버의 지름이 커지는 단점이 있어서 소형 이온 챔버가 필요한 경우 전극 구조를 단순화할 필요가 있다.

사용후핵연료 집합체에는 16~20 개에 이르는 제어봉이 있으며, 이 제어봉에 감마선 검출기를 삽입하여 축방향 감마선 선량 분포를 측정할 수 있다. 이 때 일반적으로 사용후핵연료는 수중에 보관되고 있기 때문에 제어봉에 삽입하여 감마선을 측정하기 위해서는 감마선 검출기는 방수처리가 되어야 한다. 검출기 제작시 방수처리 등을 고려하지 않기 위해서 택할 수 있는 방법은 한쪽이 밀봉된 파이프 (검출봉)를 사용후핵연료 집합체 제어봉에 삽입하고 검출봉 내에 감마선 검출기를 삽입하는 것이다. 이 경우 감마선 검출기의 사용후핵연료 내 위치는 검출봉을 이동시킴으로써 제어할 수 있다. 한국원자력연구원 조사후시험시설에는 발전소에서 연소 후 이송된 사용후 핵연료 집합체가 있다. 이 집합체 내부의 축방향 중성자 분포를 측정하기 위한 검출봉 및 그 이송장치가 설치되어 있다[8]. 본 연구에서는 사용후핵연료 측정 장치에 설치할 수 있는 이온 챔버를 제작하였다. 그림 1은 원자력 연구원에 설치된 사용후핵연료 측정을 위한 실험 장치이다. 이 장치에서 검출봉은 내부 반경 8 mm이며, 길이는 ~ 10 m 이다.

검출봉 내 삽입을 용이하게 하기 위하여 이온챔버의 외부 지름은 6.6 mm로 설계하였다. 설계된 이온 챔버의 길이는 18 mm, 내부 측정부 면적은 0.4 cm², 내부 가스



Fig. 1. Gamma-ray and neutron measurement system for spent fuel assembly at Korea Atomic Energy Research Institute.

압력은 1 기압, 외부 전극 두께는 0.5 mm이다. 외부 지름을 작게 유지하기 위하여 이온 챔버에, 가드 전극을 설계할 경우 지름이 전체 지름이 커지는 단점이 있기 때문에 가드 전극은 고려하지 않았다. 또한 기체 충진을 위한 기체 주입부를 두었으며, 이온 챔버 제작 후 검출봉 내 삽입시 받을 수 있는 충격을 줄이기 위하여 이온 챔버의 끝 부분에 보호캡을 두었다. 이온 챔버 전극의 재질은 스테인레스 강(Stainless Steel)을 이용하여 제작하였으며, 전극 사이의 절연체는 세라믹으로 구성되었다. 이온 챔버 내부 제작시 전극 표면은 거칠기를 작게 가공하였으며, 전극의 이온 챔버 각 부품은 제작 후 계면활성제를 이용하여 제작시 발생하는 불순물을 일차적으로 제거하였으며, 알코올로 세척 후 초음파 세척기로 이차 불순물을 제거하였다. 이후 오븐에 두어서 이온 챔버 부품에 남아있는 수분 성분을 최대한 제거되도록 하였다. 이후 각 부



Fig. 2. Ionization chamber to measure the gamma-ray profile of spent fuel.

품을 조립하였다. 제작된 이온 챔버는 그림 2에 나타내었다.

이온 챔버의 내부에는 가스를 충전하여 가스의 종류에 따른 이온 챔버의 반응을 평가할 수 있도록 하였다. 일반적으로 이온 챔버에 충전되는 대표적인 가스로는 공기, 불활성 기체 (Ar, Xe), 또는 N₂ 등을 들 수 있다. 본 연구에서는 불활성 기체인 Ar과 Xe을 이온 챔버 내에 충전하고 이온 챔버의 방사선 반응을 관측하였다. 이온 챔버내 가스 충진을 위하여 한국원자력연구원 내에 설치된 가스형 방사선 검출기 기체충진 시스템을 이용하였다. 가스충진 시스템은 가스 액화 장치 및 산소 포획장치(oxy-trap), 수분 포획장치(moisture trap), 고온 게터 (high temperature getter) 등을 두어서 가스형 검출기에 충전하고 하는 기체의 순도를 높일 수 있도록 구성되었다. 이온 챔버를 기체 충전 시스템에 연결하고 Rotary 진공 펌프를 이용하여 이온 챔버 내의 공기를 뽑아 낸 후 1 기압으로 Ar과 Xe을 이온 챔버 내에 충전하였다.

이온 챔버 내 가스는 감마선이 입사하게 되면 감마선과 반응하여 전류를 만들게 된다. 이 때 감마선의 가스 내 반응은 광전 효과, 콤프톤 산란, 쌍생성 등이 일어난다. 일반적으로 특정 감마선 에너지에 대하여 광전 효과가 일어날 반응률은 Zⁿ에 비례한다 (Z : 반응 물질의 원자 번호). 여기에서 n은 일반적으로 감마선 에너지에 따라 변하는데 4 ~ 5 정도인 것으로 알려져 있다[1]. 또한 콤프톤 산란 반응률은 Z에 비례한다. Ar의 원자 번호가 18이고 Xe의 원자 번호가 54임을 감안하면, Xe을 충전한 경우 이온챔버에서 발생하는 신호가 Ar을 충전한 경우에 비하여 신호가 증가할 것이 예상된다.

3. 이온 챔버 성능 평가

이온 챔버 제작 후 이온 챔버에 고전압 인가 및 이온 챔버로부터 신호수집을 위하여 신호선을 연결하였다. 이온 챔버를 사용후 핵연료 저장조에 넣어서 신호를 얻기 위하여 이온 챔버에서 신호선까지 길이는 15 m가 되도록 하였으며, 신호선에 의한 노이즈를 최소화하기 위하여 삼상 케이블을 이용하였다. 삼상 케이블의 가운데 선은 신호 수집을 위하여 쓰이며, 최외각 케이블은 고전압 인가, 가운데 케이블은 이온 챔버의 가드 전극과 연결할 수 있으나, 제작된 이온 챔버는 가드 전극을 설계하지 않았으므로 이온 챔버 전극과 연결하지 않았다.

이온 챔버의 방사선 반응을 측정하기 위하여 방사선원이 없을 경우 인가 전압에 따른 이온 챔버의 누설 전류와 방사선원에 의한 이온 챔버의 반응을 측정하였다. 이온 챔버에 고전압 인가와 전류 측정을 위하여 전위계 (Keithley 6517B)가 이용되었다.

자연 선량하에서 이온 챔버의 I-V 곡선을 측정하였다. 이온 챔버의 자연 선량하에서 반응은 거의 무시할 수 있으며 이 때 측정되는 전류는 주로 이온 챔버의 자체 저항에 의한 영향이라고 할 수 있다. 그림 3은 Ar과 Xe를 충전한 경우 이온 챔버의 누설 전류이다. 전류를 인가함에

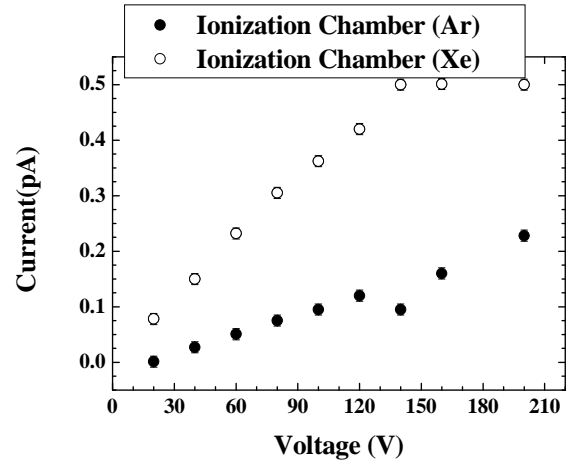


Fig. 3. The leakage curve of the ionization chambers. The leakage current was increased as the bias voltage on the ionization chamber was increased.

따라 누설 전류가 서서히 증가함을 알 수 있다. 동일한 120 V 인가시 Ar을 충전한 이온 챔버의 누설 전류는 120 fA, Xe을 충전한 이온 챔버의 누설 전류는 420 fA로 측정되었다. 이러한 누설 전류 차이는 충전 가스에 의한 영향이라기보다는 이온 챔버 제작 공정시 발생하는 세척, 부품 처리 과정에서 발생하는 공정상의 차이에 기인한다고 예상된다.

방사선 반응을 평가하기 위하여 20 mCi의 ²⁴¹Am 방사선원을 이용하였다. ²⁴¹Am에서는 59.5 keV 감마선이 발생하며, 이 감마선을 이용하여 이온 챔버의 반응을 평가할 수 있다. Ar과 Xe으로 충전된 이온 챔버에 방사선을 위치하고 이온 챔버에 인가 전압을 증가하면서 전류 변화를 측정하였다. 그림 4는 ²⁴¹Am 방사선원에 대한 이온 챔버 전류 변화를 측정한 데이터이다. Ar을 충전한 이온 챔버의 경우 방사선원에 의한 측정 전류의 크기가 Xe를 충전한 이온 챔버로 측정한 경우와 비교하여 신호가 작아서 측정 전류의 요동이 심한 것으로 사료된다. 포화 전류의 크기는 Ar을 충전한 이온 챔버의 경우 0.1 pA 범위이며, Xe를 충전한 이온 챔버의 경우 1.2 pA로 측정되었다. 이온 챔버는 사용후핵연료의 높은 선량 (~10 kRh⁻¹) 하에서 동작하기 때문에 내부 측정 면적을 최소화하여 제작하였다. 따라서 평가가 이루어진 선원에 의하여 전류가 낮게 측정되었다. 누설 전류를 뺀 경우 60 V 이상에서 전압이 증가함에 대하여 측정 전류가 안정됨을 알 수 있다. 이러한 포화 곡선 측정 데이터로부터 제작된 이온 챔버 동작 전압을 80 V로 정하였다.

Ar을 충전한 이온 챔버와 Xe를 충전한 이온 챔버에서 측정된 신호를 비교했을 때 동일한 측정조건하에서 Xe을 충전한 이온 챔버의 전류가 12배 이상 큰 신호를 발생하였다. 이는 Xe을 충전한 경우 원자 번호가 높아서 반응물이 커짐에 기인한다고 예상된다. 그러나, 단순히 광전 효과만을 고려하여 신호 차이를 예상한 경우보다는 신호 차이가 작음을 알 수 있다.

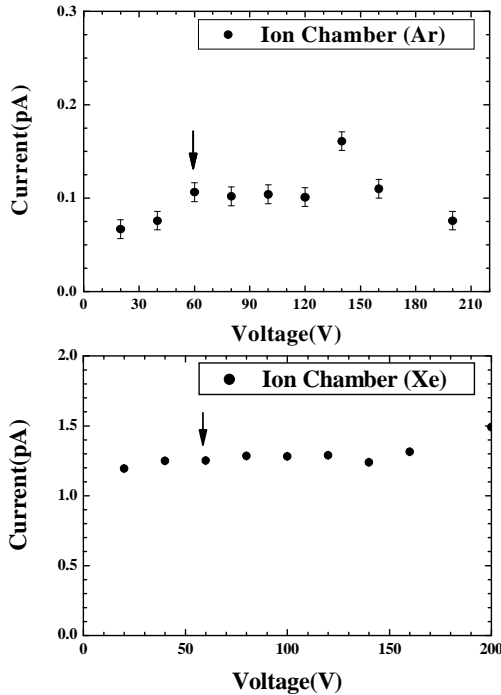


Fig. 4. The saturation curve of the ionization chambers.

고선량하에서 감마선 선량에 따른 이온 챔버 반응을 평가하기 위하여 한국원자력연구원에서 보유하고 있는 중·저준위 감마선 조사 장치를 이용하였다. 조사장치는 79 Ci의 ^{60}Co 선원으로 선원에서 거리를 달리하여 10 ~ 40 Gy h^{-1} 선량의 감마선 변화에 대한 이온 챔버 전류 변화를 이용하여 측정하였다. 측정시 이온챔버에 100 V 고전압을 인가하였다. 고방사선 하에서 전압을 좀 더 크게 인가한 이유는 방사선량이 높아질수록 이온 챔버 내에서 발생하는 전하가 커지며, 이러한 전하를 모두 수집하기 위해서는 보다 높은 전압을 이온 챔버에 인가해야 하기 때문이다[9].

입사 방사선량 변화에 따라 이온 챔버에 측정되는 전

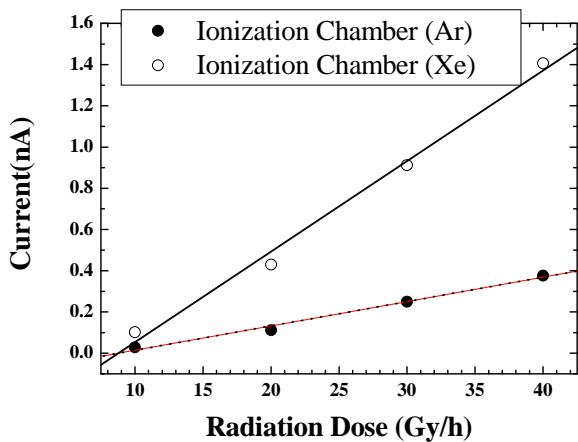


Fig. 5. The measured currents of the ionization chambers as the radiation dose was increased. The data uncertainty is 0.01 pA range.



Fig. 6. Assembled Gamma probe to measure the gamma-ray from spent fuel.

류가 선형적으로 증가함이 관측되었다. 이러한 측정 데이터를 이용하여 이온 챔버에서 측정되는 전류와 방사선량과의 보정 관계식을 얻을 수 있었다.

두 가지 이온 챔버에서 발생하는 전류의 크기를 비교한 결과 ^{241}Am 감마선원을 이용하여 성능을 평가한 경우 측정되는 전류의 크기가 12 배 정도 차이가 남에 반하여 ^{60}Co 감마선원을 이용하여 방사선을 측정할 경우 약 3배 정도 신호 크기의 차이가 발생하였다. ^{241}Am 의 경우 감마선원에서 발생하는 감마선의 에너지가 59.5 keV로 비교적 낮아서 이온 챔버 내의 가스와의 반응시 광전 효과가 주를 이루지만, ^{60}Co 에서 발생하는 감마선의 에너지는 1.2 MeV로써 59.5 keV 감마선과 비교하여 에너지가 높으며, 이온 챔버 내 가스와 반응하여 쌍생성이나 콤프턴 산란이 주를 이룰 것이 예상된다. 각각의 감마선 반응은 원자 번호에 따라 반응률이 달라지며, 이러한 차이가 신호 차이를 발생했을 것으로 예상된다. 이에 대한 보다 추가적인 연구가 필요하다.

이온 챔버의 가스 주입구를 밀봉하고 15 m 길이의 신호선을 연결하여 사용후핵연료 집합체 제어봉에 삽입할 수 있도록 하였다. 그림 6은 제작된 사용후핵연료 감마선용 이온 챔버를 보여주고 있다.

4. 결론

사용후핵연료의 연소도는 핵물질 관리 및 사용후핵연료의 보관 및 이송의 경제성을 높이기 위하여 정확히 결정될 필요가 있다. 본 연구에서는 사용후핵연료의 연소도 측정을 위하여 총 감마선 선량을 사용후핵연료 집합체 제어봉 가이드 튜브에 삽입하여 측정하기 위한 이온 챔버를 설계·제작하였다. 이온 챔버는 제어봉에 삽입할 수 있는 검출봉 내경을 고려하여 설계되었다. 이온 챔버 내에 Ar, Xe 가스를 충전하고 가스 종류에 따른 이온 챔버의 반응을 평가하였다. 낮은 에너지의 감마선원 및 높은 에너지의 감마선 두 종류에 대하여 성능 평가를 실시하여 40Gy h^{-1} 선량에서 방사선량 증가에 따라 선형적으로 반

응함으로 얻었다. 특히, 이온 챔버에 충전된 가스의 종류가 다를 경우 감마선 에너지에 따른 측정 신호의 크기비가 변함을 관측하였으며 그 원인으로 감마선과 가스의 반응에 기인함에 대하여 논하였다. 가스 종류에 따른 고방사선 환경하에서 사용하기 위한 추가적인 동작 특성 평가를 거쳐서 사용후핵연료의 축방향 감마선 측정에 적용할 계획이다.

감사의 글

본 논문은 지식경제부 방사성폐기물관리기술사업 및 교육과학기술부 원자력중장기연구개발사업의 지원으로 이루어졌습니다.

참고문헌

1. Knoll GF. Radiation Detection and Measurement. 2nd ed. New York; John Wiley & Sons, Inc., 1989:131-134.
2. Toubon H, Riffard C, Batifol M, Pelletier S. Burn-up Credit Applications for UO₂ and MOX Fuel Assemblies in AREVA/COGEMA, International Conference on Nuclear Criticality Safety 2003.
3. International Atomic Energy Agency. Implementation of Burnup Credit in Spent Fuel Management Systems. IAEA-TECDOC-1013. 1997.
4. Los Alamos National Laboratory. Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials, LA-UR-90-732. 1991.
5. Lebrun A, Bignan G. Nondestructive assay of nuclear low-enriched uranium spent fuel for burnup credit application. Nuclear Technology 2001;135: 216-229.
6. Oeda K, Naito H, Hirota M, Natsume K, Kumanomido H. Calibration of burnup monitor installed in Rokkasho Reprocessing Plant. Journal of Nuclear Science and Technology 2000;37:543-547.
7. Kim YK. Polarity effect on the thimble type ionization chamber at a low dose rate. Physics in medicine and biology 2005;50:4995-5003.
8. 업성호, 신희성, 안성규, 황용화, 오석진, 김호동, 이정원, 함영수. 사용후핵연료집합체 내부 위치별 감마선 중성자 측정 기술. 한국방사성폐기물학회 가을 학술논문 요약집 2008:346-347.
9. Park SH, Kim HS, Kim YK, Kang SM, KIM JC, Kim JK. Saturation characteristics of the ionization chamber at a low dose rate. Radiation physics and chemistry 2005;73:248-253.

Fabrication of Ionization Chamber to Measure the Burnup of Spent Fuel

Se-Hwan Park, Sung-Ho Eom, Hee-Sung Shin, Hye In Lim, Jang Ho Ha and Han Soo Kim
Korea Atomic Energy Research Institute

Abstract - Burnup of spent fuel should be determined accurately for the safety control of spent fuel. Especially, it is necessary to measure the burnup profile along the nuclear fuel axis. In the present work, an ionization chamber was designed and fabricated to measure the gamma ray profile inside the guide tube of spent fuel. The ionization chamber was composed of three parts; induction part, gas-inlet part, and sensor part. The sensor part had two electrodes; cathode and anode. A guide electrode was considered in the ionization chamber design to make the ionization chamber to be inserted easily into the guide tube. Pure gas (argon and xenon) was inserted into the ionization chamber, and the leakage current and saturation curve were measured to determine the operation characteristics of the ionization chamber. The gamma ray radiation was also measured in relatively high dose environment. The gamma ray profile of the spent fuel will be measured with the ionization chamber.

Keywords : Ionization Chamber, Spent Fuel, Burnup, Leakage Current, Saturation Curve