

사용후핵연료 연소도 측정을 위한 감마선 검출기의 분광특성 연구

박혜민^{1,*}, 김태영¹, 송양수¹, 이운장¹, 함철민²

¹(주)오리온이엔씨, ²기초과학연구원

Spectroscopic Properties of Gamma-ray Detector to Measure the Burnup of Spent Nuclear Fuel

Hey Min Park^{1,*}, Tae Young Kim¹, Yang Soo Song¹, Un Jang Lee¹ and Cheol Min Ham²

¹ORION ENC, 37, 22 Gil Seongsui-ro, Seongdong-Gu, Seoul, Republic of Korea

²Institute for Basic Science, 1, Gukjegwahak-ro, Yuseong-gu, Daejeon, Republic of Korea

Abstract Burnup of spent nuclear fuel should be determined accurately for the safety storage of spent nuclear fuel. In this study, a gamma detection system was developed as a part of basic research to measure the burnup of spent nuclear fuel, and its performance was evaluated using a calibration source. The prototype of the gamma detection system was based on a semiconductor sensor using a CZT (Cadmium Zinc Telluride). For quantitative evaluation, tests were conducted using ¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs and ²⁵²Cf calibration source. In the performance evaluation, its field applicability was verified by assessing the energy resolution, the detection linearity and the shielding attenuation according to the nuclide.

Key words: Spent Fuel, Burnup, CZT, Gamma, Neutron

1. 서론

2017년 고리 1호기 원전이 영구 정지되며, 2030년까지 설계수명이 만료되는 원전이 11기에 이른다. 이에 따라 사용후핵연료의 저장량이 증가하며, 원전의 계속운전 시 이르면 2030년부터 한빛원전을 시작으로 현재 습식 저장조에 보관 중인 사용후핵연료가 포화상태에 이를 것으로 예상되어진다[1].

사용후핵연료의 저장량이 증가함에 따라 사용후핵연료의 안전한 관리 및 저장을 위한 방사능 측정 및 평가 기술이 중요하다. 특히 사용후핵연료의 핵임계 안전성을 평가하기 위해 핵연료 연소도에 대한 분석이 필요하다[2].

사용후핵연료 집합체에는 원자로 내부에서 핵분열에 의해 다양한 핵종들이 생성되며, 이러한 핵종 중 감마선

을 발생하는 대표적인 핵종으로는 ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ⁹⁵Zr, ¹⁵⁴Eu, ¹⁴⁴Pr 등이 있다.

사용후핵연료의 연소도를 분석하는 방법으로는 대표 핵종인 ¹³⁷Cs에서 발생하는 662 keV 감마선의 발생량을 구하는 방식과 ¹³⁴Cs에서 발생하는 605 keV 감마선과 ¹³⁷Cs에서 발생하는 662 keV 감마선을 측정하여 두 감마선의 발생비를 구하는 방식이 있다. ¹³⁴Cs에서 발생하는 감마선 발생률은 핵연료에 입사하는 중성자 선속의 제공에 비례하고, ¹³⁷Cs는 사용후핵연료 내부의 핵분열에 의하여 발생하므로 ¹³⁷Cs에서 발생하는 감마선의 발생률은 핵연료에 입사한 중성자 총량에 비례한다[3].

따라서 ¹³⁴Cs과 ¹³⁷Cs의 감마선 에너지 분광분석을 통해, 사용후핵연료에 입사한 총 중성자 양을 도출할 수 있고, 이를 통하여 사용후핵연료의 연소도를 분석할 수 있다.

<http://www.ksri.kr/>

Copyright © 2023 by
Korean Society of Radiation Industry

*Corresponding author. Hey Min Park

Tel. +82-2-3414-2038 Fax. +82-2-3414-2031 E-mail. hmpark@orionenc.com

Received 17 February 2023 Revised 14 March 2023 Accepted 22 March 2023

이에 본 연구에서는 사용후핵연료 연소도 측정을 위해 상온반도체 검출기인 CZT (Cadmium Zinc Telluride) 센서를 이용해 감마선 측정 시스템을 제작하고, 연소도 분석의 대표 핵종인 ^{134}Cs , ^{137}Cs 과 비교핵종 ^{252}Cf 측정을 통해 그 성능을 평가하였다.

2. 재료 및 방법

2.1. 감마선 측정 시스템 설계 및 구성

2.1.1. 감마선 측정 검출부 설계

사용후핵연료 집합체 외부로 발생하는 다양한 핵종과 고준위 감마선 환경하에 감마선 에너지의 측정 및 분석을 위하여 에너지 분해능이 높은 반도체 타입 CZT (Cadmium Zinc Telluride) 센서를 감마선 측정 시스템의 검출부로 구성하였다. 감마선 측정 시스템은 CZT 센서, 신호처리모듈로 구성된다[4].

CZT 센서는 Quasi-hemispherical 타입의 CZT 500S (Ritec SIA)를 사용하였으며, 검출 영역은 $5 \times 5 \times 5 \text{ mm}^3$ 이며, 구동전압은 $\leq 1500 \text{ V}$ 이다.

Fig. 1은 감마선 측정용 CZT 센서와 구조도이다.

2.1.2. 신호처리부 설계

신호처리부는 전치증폭기 (Preamplifier, Ritec SIA), 성형 증폭기 (Amplifier, Ortec), 다중채널분석기 (Multi-channel analyser, Amptek), 고전압 공급기 (High voltage power, Ortec), NIM Rack (Caen)으로 구성된다.

CZT 센서에서 발생된 전하신호는 전치증폭기를 통해 전압신호로 변환되며, 20m 케이블을 거쳐 성형증폭기를 통해 가우시안 형태로 변환 후 다중채널 분석기를 통해

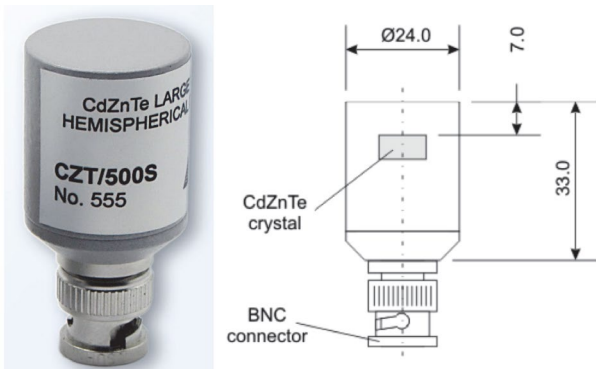


Fig. 1. CZT 500S sensor.

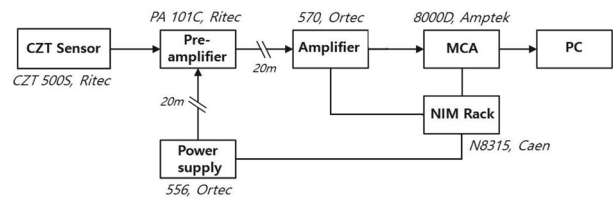


Fig. 2. Schematic diagram of system for gamma ray measurement.



Fig. 3. CZT sensor and ^{137}Cs calibration source.

디지털 신호로 변환된다[5].

Fig. 2는 설계된 감마선 측정 시스템의 개요도이다.

3. 감마선 측정 시스템 성능 평가

3.1. 감마선 에너지 분해능 평가

감마선 측정 시스템의 에너지 분해능 평가를 위해, 사용후핵연료 집합체에서 가장 많이 발생할 것으로 예상되며, 사용후핵연료 연소도 분석의 주요 핵종인 ^{137}Cs (662 keV)과 ^{134}Cs (569, 605, 796 keV)를 교정선원 (85 μCi , Eckert & Ziegler)으로 사용하여 에너지 스펙트럼을 측정 및 평가하였다(Fig. 3).

Figs. 4, 5는 ^{137}Cs 과 ^{134}Cs 각 교정선원에 대하여 100초간 측정된 에너지 스펙트럼을 보여준다.

감마선 에너지 스펙트럼 측정을 통해 사용후핵연료 연소도 분석의 주요 핵종인 ^{137}Cs (662 keV)과 ^{134}Cs (569, 605, 796 keV)의 감마선 피크를 명확히 확인할 수 있었으며, 에너지 스펙트럼 측정 결과 감마선 검출기 성능 평가의 주요 성능지표인 ^{137}Cs 의 에너지 분해능은 2.03%로 평가되었다[5].

$$\text{Energy resolution} = \frac{\Delta E}{E} \times 100(\%)$$

E = Full-energy peak (662 keV)

Table 1. Nuclide Characteristics of ²⁴⁴Cm and ²⁵²Cf

Property	²⁴⁴ Cm	²⁵² Cf
Half-life (y)	18.11	2.645
Average energy (MeV)	2.06	2.13
Specific activity (Ci g ⁻¹)	80.90	536.6
Spontaneous fission yield per decay	1.347E-06	0.0392 ± 0.008
Neutrons per spontaneous fission	2.71 ± 0.01	3.7655 ± 0.010
Emission rate (n s ⁻¹) per µg	11.3	2.34E06

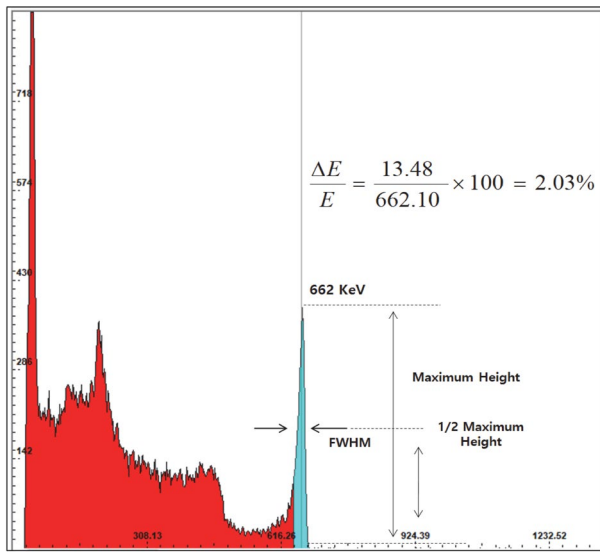


Fig. 4. Energy spectrum of ¹³⁷Cs measured with CZT detector.

ΔE : FWHM

$\Delta E = 13.48 \text{ keV}$

$$\frac{13.48 \text{ keV}}{662.10 \text{ keV}} \times 100 = 2.03\%$$

3.2. 중성자 간섭반응 평가

감마선 측정 시스템의 중성자 검출반응 평가를 위해, 사용후핵연료에서 연소도 분석의 주요 지표 핵종인 중성자 핵종 ²⁴⁴Cm과 유사한 중성자 교정선원 ²⁵²Cf (90 µCi, Eckert & Ziegler)을 사용하여, 감마선 측정 시스템의 중성자 반응도를 평가하였다. ²⁴⁴Cm와 ²⁵²Cf는 자발 핵분열을 통해 중성자와 감마선을 방출한다.

Table 1은 ²⁴⁴Cm와 ²⁵²Cf의 핵종 특성을 보여준다.

Fig. 6은 ²⁵²Cf와 ¹³⁷Cs 각 교정선원에 대하여 100초간 측정된 에너지 스펙트럼을 보여준다.

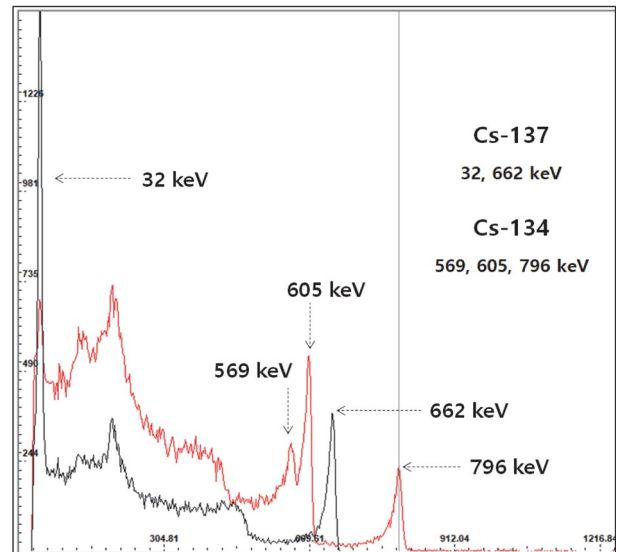


Fig. 5. Energy spectra of ¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs measured with CZT detector.

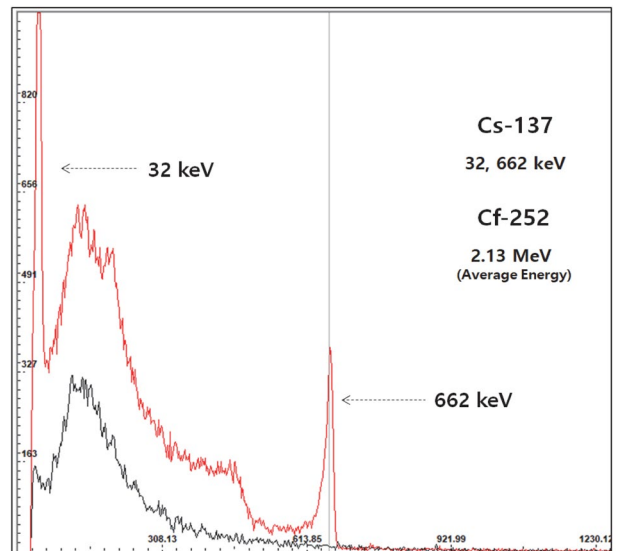


Fig. 6. Energy spectra of ²⁵²Cf ¹³⁷Cs measured with CZT detector.



Fig. 7. CZT sensor, Lead Shield and ¹³⁷Cs calibration source.

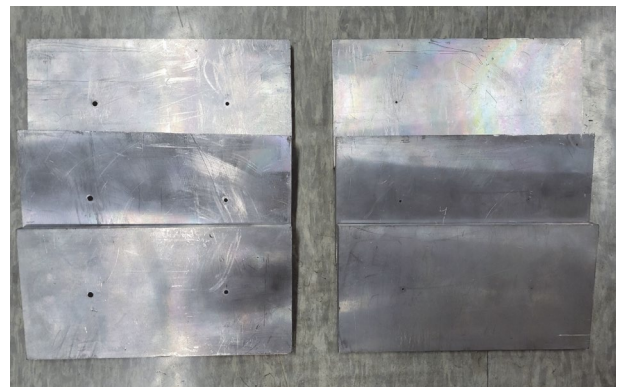


Fig. 9. Lead collimators (Inner diameter 4, 3, 1 mm).

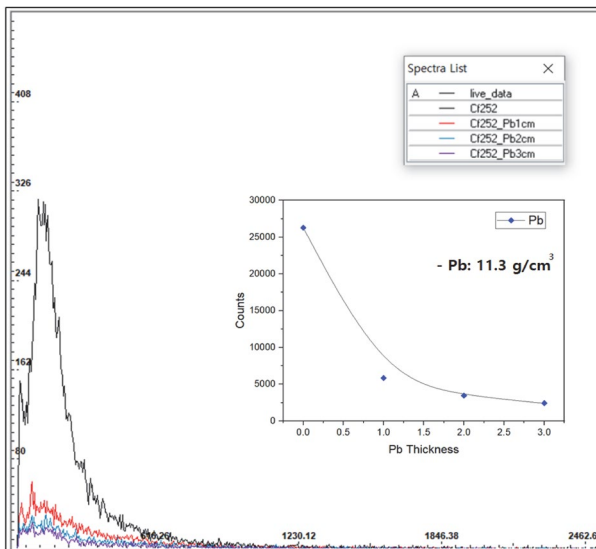


Fig. 8. Energy spectra of ²⁵²Cf measured with CZT detector according to thickness of lead shield.

중성자 에너지 스펙트럼 측정을 통해 ²⁵²Cf와 ¹³⁷Cs의 동시 측정 시, 사용후핵연료 연소도 분석의 주요 감마 핵종인 ¹³⁷Cs의 감마선 피크(662 keV)를 명확히 확인할 수 있었으며, ²⁵²Cf의 자발 핵분열을 통해 방출하는 중성자는 측정되지 않았고, 저에너지 영역의 감마선이 측정되었다.

이에 따라 감마선 측정 시스템과 중성자 선원 ²⁵²Cf로부터 발생하는 저에너지 영역 감마선 간섭반응을 최소화하기 위해, 납 차폐체 두께에 따른 중성자 선원의 저에너지 영역 감마선량 변화를 측정하였다(Fig. 7).

Fig. 8은 납 차폐체 두께에 따른 중성자 선원 ²⁵²Cf의 저에너지 영역 감마선에 대하여 100초간 측정된 에너지 스펙트럼을 보여준다.

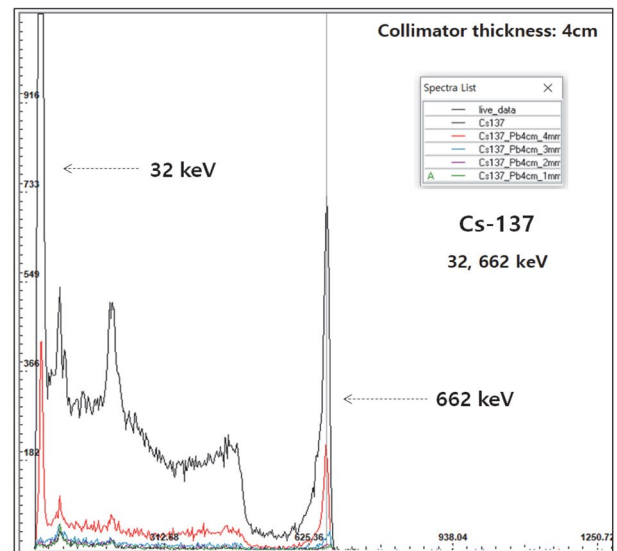
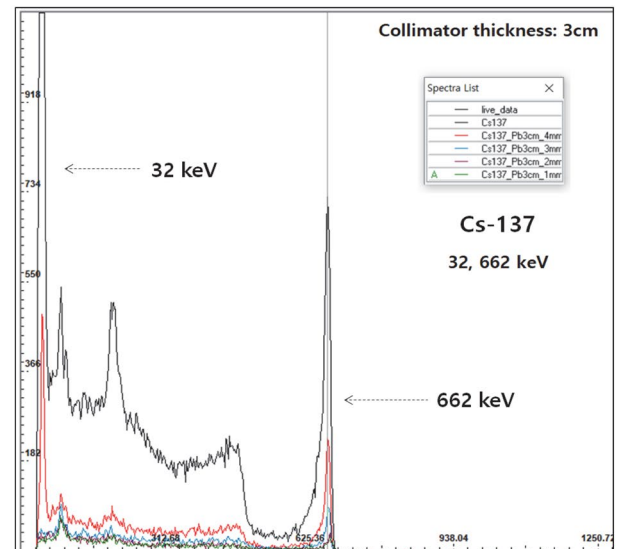


Fig. 10. Energy spectra of ¹³⁷Cs measured with CZT detector according to thickness and inner diameter of lead collimators.

펙트럼을 보여준다.

납 차폐체 두께에 따른 중성자 선원 ^{252}Cf 로부터 발생하는 저에너지 영역 감마선 측정 시, 납 1 cm 두께에서 약 78%의 선량 감쇄율을 보였으며, 납 3 cm 두께에서는 최대 약 90%의 선량 감쇄율을 보였다.

이에 따라 사용후핵연료 연소도 분석을 위한 감마 핵종 측정 시, 납 차폐체를 이용하여 중성자 핵종에 의한 저에너지 영역 감마선의 간섭반응을 최소화할 수 있다.

3.3. 감마선 세기 감쇄율 평가

사용후핵연료 집합체에서 발생하는 고준위의 감마선으로부터 감마선 측정 시스템의 피폭손상 방지와 연소도 분

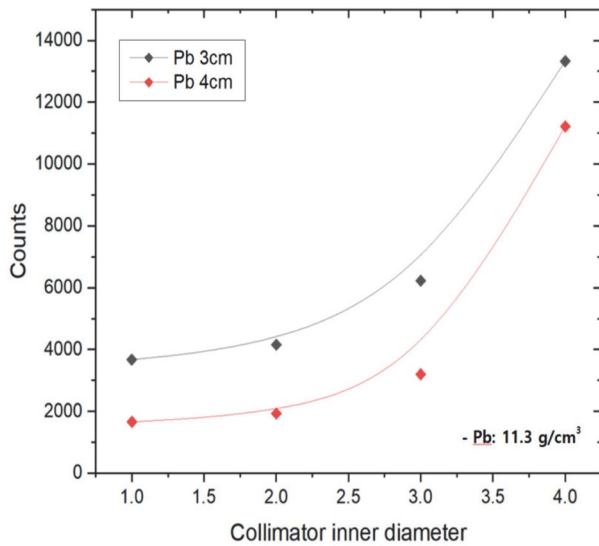


Fig. 11. Gamma counts of ^{137}Cs measured with CZT detector according to thickness and inner diameter of lead collimators.

석의 주요 지표 핵종들의 정확한 측정을 위해, 납 콜리메이터 두께 및 내경에 따른 감마선량 변화를 측정하였다 (Fig. 9).

Fig. 10은 납 콜리메이터 내경 및 두께에 따라 ^{137}Cs 교정 선원에 대하여 100초간 측정된 에너지 스펙트럼을 보여준다.

Fig. 11은 납 콜리메이터 내경 및 두께에 따른 ^{137}Cs 교정 선원의 감마선량 감쇄율을 보여준다.

납 콜리메이터 내경 및 두께에 따른 ^{137}Cs 교정선원의 감마선량 측정 시, 콜리메이터 두께 4 cm, 내경 4 mm에서 콜리메이터 적용 전 대비 약 84%의 감쇄율을 보였으며, 두께 4 cm, 내경 1 mm에서는 최대 약 98%의 감쇄율을 보였고, 납 콜리메이터 적용 후에도 연소도 측정의 주요 핵종인 ^{137}Cs 의 감마선 피크(662 keV)를 확인할 수 있었다.

이에 따라 감마선 측정 시스템 설계 및 제작 시 납 콜리메이터를 이용하여, 감마선 측정 시스템의 피폭손상 방지와 함께 연소도 분석을 위한 주요 지표 핵종들의 정확한 측정이 가능하다.

3.4. 고선량 감마선 측정 평가

사용후핵연료 집합체에서 발생하는 고준위 감마선 환경을 고려하여, 고준위 감마선 조사 환경에서 감마선 측정 시스템의 측정효율을 평가하기 위해 (사)한국방사선진흥협회-방사선기기시험센터의 감마선 조사 시설을 이용하였다. 감마선 조사 장비의 조사선량 범위는 ^{137}Cs (662 keV) 핵종 기준 $100\text{ mSv h}^{-1} \sim 500\text{ mSv h}^{-1}$ 이다 (Fig. 12).

Fig. 13은 조사선량 변화에 따라 ^{137}Cs 에 대하여 100초간 측정된 에너지 스펙트럼을 보여준다.

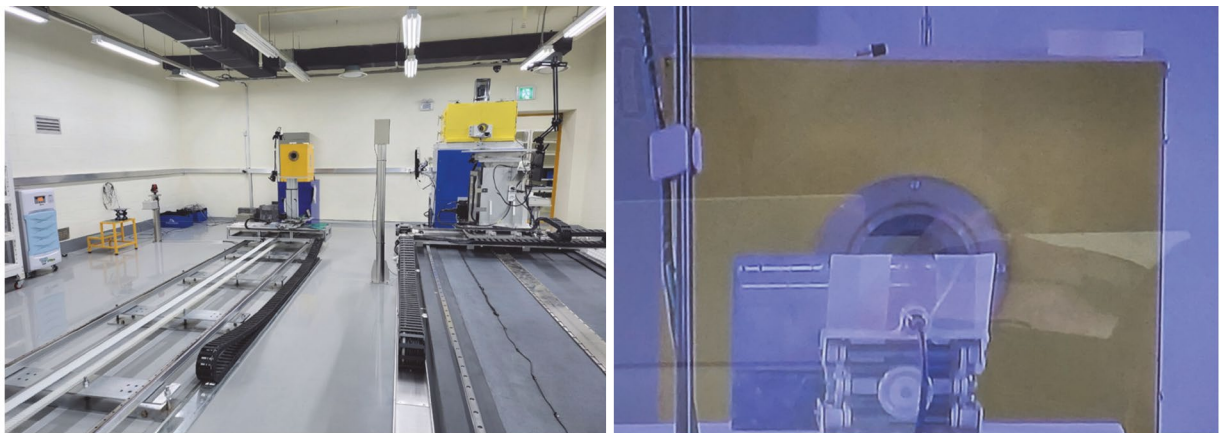


Fig. 12. Gamma-ray irradiation facility.

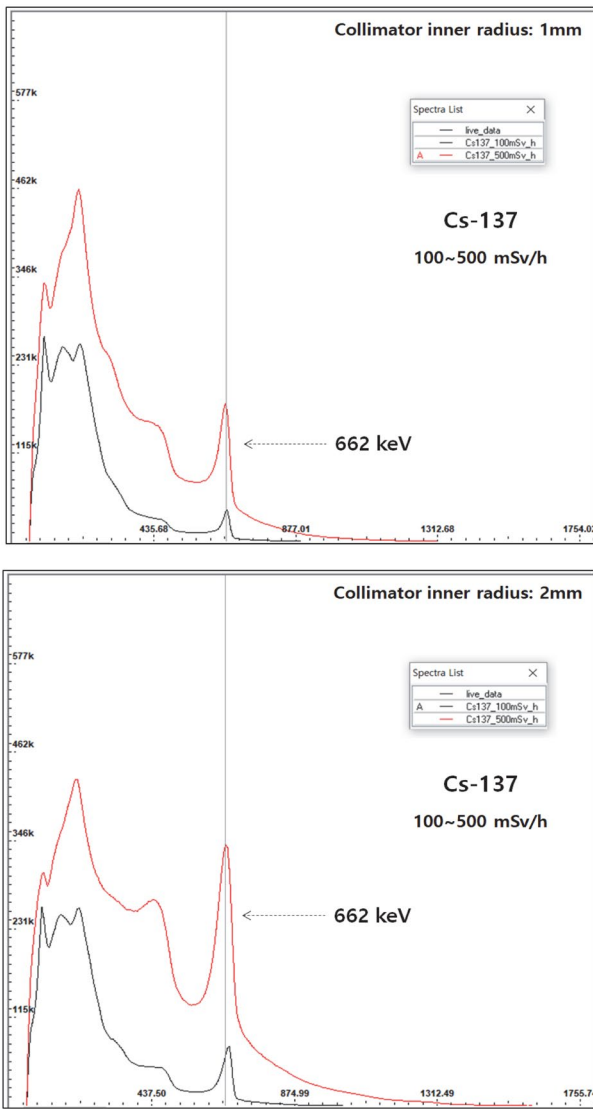


Fig. 13. Energy spectra of ¹³⁷Cs measured with CZT detector according to irradiation dose.

Fig. 14는 조사선량 변화에 따른 ¹³⁷Cs 감마선량 변화율을 보여준다.

감마선 측정 시스템의 고선량 감마선 측정을 위해 납 콜리메이터의 두께 4 cm, 내경 1 mm와 2 mm 조건 기준, 100 mSv h⁻¹~500 mSv h⁻¹ 범위의 감마선 조사 시, 연소도 분석의 주요 핵종인 ¹³⁷Cs의 감마선 피크(662 keV)를 확인할 수 있었으며, 조사선량 및 내경 크기 변화에 따라 측정 감마선량이 선형적으로 변화하는 것을 확인하였다.

이에 따라 고준위 감마선 환경에서도 감마선 측정 시스템의 안정적 운영성과 연소도 분석의 주요 지표 핵종들의 정확한 측정 가능성을 확인하였다.

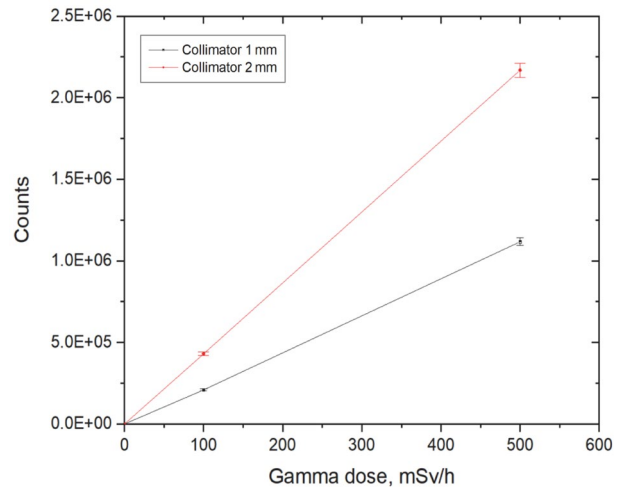


Fig. 14. Gamma counts of ¹³⁷Cs measured with CZT detector according to irradiation dose.

4. 결론

본 연구에서는 사용후핵연료 연소도 측정을 위해 감마선 측정 시스템을 제작하고, 대표 핵종 측정을 통해 그 성능을 평가하였다.

감마선 측정 시스템은 CZT 센서, 신호처리 모듈, 차폐체 모듈로 구성되었으며, 사용후핵연료 연소도 분석의 주요 핵종인 ¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs와 ²⁵²Cf를 측정하였다.

¹³⁷Cs과 ¹³⁴Cs의 에너지 스펙트럼 측정 결과 감마선 측정 시스템의 높은 분해능을 확인하였으며, 다양한 크기의 납 콜리메이터 적용 후에도 연소도 측정의 주요 핵종인 ¹³⁷Cs의 감마선 피크(662 keV)를 확인할 수 있었다.

또한 고방사선 환경에서 감마선 및 중성자 분광특성 분석을 통해, 감마선 측정 시스템의 안정적인 운영성과 측정 성능을 확인할 수 있었다.

본 연구를 기반으로 중성자 측정 시스템도 제작하여, 사용후핵연료 연소도 측정을 위한 복합검출 시스템을 개발하고, 사용후핵연료 연소도 측정 및 결정 연구에 적용할 계획이다.

사 사

본 연구는 한국에너지기술평가원 재원으로, 원전 안전운영을 위한 핵심소재, 부품, 장비 국산화 기술개발사

업 ‘사용후핵연료 연소도 측정 설비 기술개발(과제번호: 20222B10100060)’에 의해 수행되었으며, 그 지원에 감사드립니다.

참고문헌

1. Kim TY, Park HM, Song YS and Lee UJ. 2022. Study on the decontamination of cs-137 and sr-90 contained in the liquid radioactive waste discharged from the spent fuel storage tank using microalgae. *Resources Recycling* **31**(5):20-25. <https://doi.org/10.7844/kirr.2022.31.5.20>
2. Lee SH, Kim SH, Shin CM and Jung HR. 2022. Evaluation of thermal and structural properties of spent nuclear fuel disposal system with different canister materials. *J. Radiat. Ind.* **16**(4):473-483. <https://doi.org/10.23042/radin.2022.16.4.473>
3. Park SH, Eom SH, Shin HS, Lim HI, Ha JH and Kim HS. 2010. Fabrication of ionization chamber to measure the burnup of spent fuel. *J. Radiat. Prot. Res.* **35**(1):21-25. CI:G704-001034.2010.35.1.004
4. Kim HG, Hong YH, Jung YS, Kim, Kim JH and Park SY. 2020. Development of a portable detection system for simultaneous measurements of neutrons and gamma rays. *J. Radiol. Sci. Technol.* **43**(6):481-487. <https://doi.org/10.17946/JRST.2020.43.6.481>
5. Knoll GF. 2000. Radiation detection and measurement. 3th ed. pp. 326-329. John Wiley & Sons, Inc. New York.