

고순도게르마늄(HPGe) 검출기를 이용한 방사성폐기물 드럼의 핵종농도 평가

박경록, 강덕원
한국전력공사 전력연구원
대전광역시 유성구 문지동 103-16

요 약

원자력발전소에서 발생하는 방사성폐기물들은 폐기물형태 및 방사능 농도가 다양하며 영구처분장으로 이송전까지는 발전소내의 임시 저장고에 안전하게 보관,관리하고 있다. 생성된 폐기물드럼내에는 감마방출핵종을 비롯하여 알파 및 베타방출 핵종들이 균질 또는 비균질하게 존재하고 있으며 방사능의 세기나 폐기물의 특성에 따라 안정화시키거나 압축처리하여 드럼에 담겨져 있기 때문에 일반적인 파괴분석에 의한 화학분석법으로는 작업자의 피폭, 시료의 대표성 선정 및 장시간의 화학처리 시간소요 등으로 핵종분석이 곤란하다. 따라서 본 논문은 일반적으로 감마핵종분석시 흔히 사용하고 있는 고순도게르마늄(HPGe) 검출기를 이용하여 드럼의 감마핵종농도를 분석하는 방법과 장치의 개발에 대해 언급하였으며 알파나 베타핵종과 같이 직접 분석이 곤란한 핵종들은 각 폐기물드럼내에 존재하는 Co-60이나 Cs-137과의 상관관계를 미리 예측한 척도인자(scaling factor)를 이용하여 간접적으로 구하는 방법을 사용하고 있으나 본 논문에서는 드럼으로부터 감마핵종만을 분석하는 방법에 대해서만 언급하였다. 또한 핵종분석시스템의 최적 운전조건을 도출하기 위해 드럼회전테이블의 속도결정 및 모의드럼을 이용한 방사능측정 등을 통해 핵종농도 분석시의 오차를 30% 이내로 유지할 수 있었다.

1. 서 론

원자력관련시설에서 발생된 중,저준위 방사성폐기물을 영구처분장으로 운송/처분하고자 할 때 국내의 방사성폐기물 인도규정(과기처 고시 제91-10호)에서 방사성폐기물내의 주요 핵종별 방사능 농도와 총방사능량등 드럼의 이력사항을 정확히 측정하여 처분장으로 인도시 그 기록을 함께 인도토록 요구하고 있다. 그러나 현재 국내의 원자력발전소에는 이들 폐기물드럼들의 핵종농도를 평가할 수 있는 기술이 확립되어 있지않아 드럼의 핵종농도를 평가할 수 있는 장치 및 기술개발이 요구되어졌다. 일반적으로 원자력발전소를 비롯한 원자력 관련시설에서 발생하는 폐기물은 균질폐기물과 비균질폐기물로 대별되는데 균질폐기물은 농축폐액, 폐수지 등을 시멘트, 아스팔트 및 파

라편 등의 고화매질로 드럼내에서 균일하게 혼합한 후 고형화시킨 폐기물을 말하며, 비균질폐기물은 방호복, 비닐시트류 및 제염지 등을 압축처리한 폐기물들을 말한다. 드럼내에는 폐기물의 형태에 따라 방사능이 다양하게 분포되어 있으며 이러한 드럼들의 측정오차를 줄이기 위한 방법으로 드럼을 분할하여 측정하는 segmented gamma scanning 방법이 주로 활용되고 있다. 이 측정방법은 드럼을 상하 측방향으로 드럼을 일정하게 분할하여, 드럼을 회전시키면서 측정하는 방법이다. 즉, 드럼회전측 방향에 대하여 측정오차를 줄이기 위해 상하 회전 측방향으로 일정한 높이로 드럼을 균등하게 분할하여 각각의 segment에 대해 감마핵종농도를 측정하여 합산하는 방법이다. 이때 분할폭은 드럼의 높이, 계측기와 드럼간의 거리 및 콜리메이터의 내경 등을 고려하여 결정된다.

2. 측정의 기하학적 형태

일반적으로 폐기물드럼내 방사성핵종의 방사능을 측정하기 위해서는 드럼에 채워진 폐기물이 균질하게 분포되어 있으며, 폐기물의 각 매질에 의한 자기흡수가 없다는 가정하에 측정이 이루어지나 실제로는 폐기물드럼의 측정 및 평가시 이러한 가정에 의해 많은 오차가 발생하게 되므로 어떻게 하면 이러한 오차를 최소화시킬 수 있는가 하는 것이 정확한 측정 및 평가의 관건이라 할 수 있겠다. 최근에 알려진 측정기술 중 감마선 분할측정(segmented gamma scanning, SGS)법이

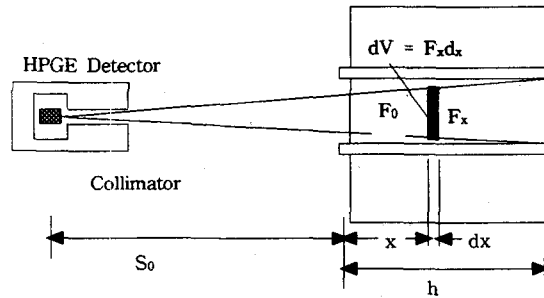


그림 2-1. 폐기물드럼을 고순도 Ge검출기로 측정시 측정방법의 기하학적 형태

있는데, 이 측정법은 균질/비균질 폐기물과 저밀도/고밀도 폐기물의 분석에 적합하게 개발되었다. 폐기물드럼내의 방사능을 구하기 위해서는 다음과 같은 기본적인 원리에 의해 검출기의 측정값으로부터 방사능을 계산할 수가 있다. 고순도 게르마늄검출기를 이용한 폐기물드럼 측정의 기본적인 형태는 그림(2-1)과 같은 기하학적 형태로 구성되어 있다. 그림(2-1)에서 보는 바와 같이 고순도 Ge검출기에 백그라운드의 영향을 차단하기 위해 콜리메이터로 차폐했기 때문에 드럼에서 방출되는 감마선은 cone 형태로 검출기에 입사되며 검출기에서의 드럼내 방사성물질에 의한 계수율은 다음과 같다.

$$Z = \frac{Z_0 F_0 C_A K_1}{A_0 \mu} \quad (2-1)$$

여기서, $K_1 = 1 - \exp(-\mu h)$ 이고, Z_0 는 표준감마선원에 의한 검출기의 순계수율로 다음과 같다.

$$Z_0 = \frac{k}{4\pi S_0^2} A_0 \quad (2-2)$$

A_0 는 표준감마선원의 방사능, k 는 교정상수, S_0 는 검출기와 드럼사이의 거리, C_A 값은 방사능농도로 전 체적에 대해 일정한 분포를 갖고 있는 것으로 가정하며 F_0 는 검출기에 입사하는 드럼내 시료의 단면적이다. 식 2-1에서 K_1 값은 용기가 작은 경우에는 1이 아니지만, 고화처리된 폐기물드럼과 같이 200리터의 용량을 갖는 부피가 큰 선원으로 가정할 경우 그 값은 거의 1이 된다. 그러므로 식(2-1)로부터 감마선 측정시스템으로 측정된 감마선에 대한 계수율과 드럼내 시료의 방사능에 대한 관계를 구할 수 있다. 즉 드럼내 방사성물질의 선형감쇠계수, μ 값을 알 수 있다면 다음과 같은 식에 의해 검출기에 의한 측정값으로부터 드럼내 방사성물질의 농도를 바로 계산해 낼 수 있게 된다.

$$C_A = \frac{Z A_0 \mu}{Z_0 F_0} \quad (2-3)$$

식 2-3에서 A_0 , Z_0 , 및 F_0 는 감마선 측정시스템을 표준감마선원으로 교정하여 얻을 수 있는 값이고, 선형감쇠계수는 폐기물드럼내 매질에 대한 감쇠를 보정하는 방법 중 투과선원을 이용하거나 드럼의 평균무게로 드럼의 밀도를 구해 평균밀도로 드럼내 매질의 감쇠계수를 구하는 방법 및 피크차에 의한 흡수법을 이용해 구할 수 있다.

3. 매질의 감쇠보정

매질의 감쇠보정 방법으로는 평균밀도 보정법, 에너지 피크차에 의한 보정법 및 투과선원 보정법등을 이용하거나 병용해 사용하고 있다. 이 방법들은 다음의 식에서 보정인자, CF_i 를 구하기 위한 방법들이다.

$$\epsilon_c = CF_i \epsilon_i \quad (3-1)$$

여기서, CF_i 는 감마선에너지 E_i 에서의 보정인자

ϵ_i 는 감마선에너지 E_i 에 대한 보정되지 않은 측정효율

ϵ_c 는 감마선에너지 E_i 에서의 보정된 측정효율

그리고, 각 감마선에너지 피크에서의 보정인자인 CF_i 는 다음과 같은 식이 된다.

$$CF_i = e^{-\mu_i(\rho \cdot t)/\rho} \quad (3-2)$$

여기서, μ_i/ρ 는 감마선에너지 E_i 에서의 질량감쇠계수(mass attenuation coefficient [cm²/gm]), (ρt) 는 단위면적당 시료의 질량 [gm/cm²]이다.

식(3-2)에서 (ρt) 값은 위 세가지 보정방법으로 구할 수 있고, μ_i/ρ 는 드럼내 매질의 질량감쇠계수로써 이것은 미리 질량감쇠계수값을 파일로 만들어 놓고, 각 매질에 따라 적절한 파일을 불러내 이 값을 이용하는 것이다.

가. 평균밀도 보정방법

이 방법은 드럼내 매질의 분포가 비교적 균질할 경우 단지 드럼의 무게를 측정한 값을 전체 드럼의 부피로 나누어 드럼내 매질의 평균밀도를 구하는 방법으로 이 방법은 드럼내 매질의 분포가

균질할 경우에 비교적 간단히 감쇠보정인자를 구하는 방법이다. 앞의 식(3-2)의 (ρt) 를 구하기 위해서 다음과 같은 식으로 나타내면 간단하게 계산할 수 있다.

$$(\rho t)_{AD} = (M_{net}/V)t \quad (3-3)$$

여기서, AD는 평균밀도(average density)의 약자이고

M_{net} 는 시료의 무게

V는 시료의 부피

t는 시료의 평균두께를 나타낸다.

나. 투과선원 보정방법

이 방법은 전송선원의 특정 감마선 에너지에서 측정된 계수값을 이용해 드럼내 시료의 감쇠를 계산하여 이로부터 드럼내 시료의 밀도를 계산하는 방법이다. 감마선에너지 E_i 의 전송, T_i 는 감쇠인자(attenuation factor)로서 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$T_i = \exp(-\mu x/\rho) \quad (3-4)$$

여기서, x는 감쇠물질에 대한 단위면적당 질량을 나타낸다.

만약 감마선에너지 E_T 를 갖고 있는 전송선원을 사용한다면 감마선에너지 E_i 의 전송은 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

$$T_i = T_T^\alpha \quad (3-5)$$

여기서, α 는 μ_i/μ_T 로써 두 감마선에너지에서의 감쇠계수비를 나타낸다.

전송선원에 대한 감마선에너지 전송은 빈 드럼에 대한 전송선원의 측정값과 드럼내 매질이 채워져 있을 때의 전송선원의 측정값의 비율로써 구할 수 있다. 즉 감마선에너지 E_T 에서의 전송은 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

$$T_T = I_T(x)/I_T(0) \quad (3-6)$$

여기서, $I_T(x)$ 는 감쇠물질이 있을때의 피크의 계수값이고, $I_T(0)$ 는 감쇠물질이 없는 빈드럼에서의 피크의 계수값이다. 한편, 감쇠보정인자CF(T_i)는 전송 T_i 를 이용해 다음과 같은 근사식에 의해 계산할 수 있다.

$$CF(T_i) = \frac{-k \ln(T_i^k)}{1 - T_i^k} \quad (3-7)$$

여기서, T_i 는 감마선에너지 E_i 에서의 전송을 나타내고 k는 시료의 기하학적 형태에 관계되는 보정상수이다. 윗 식으로부터 CF값을 구하면 드럼내 매질의 (ρt) 를 구할 수 있다. 식(3-2)로부터 (ρt) 는 다음과 같다.

$$(\rho t) = -\frac{1}{\mu/\rho} \ln(CF_i) \quad (3-8)$$

다. 에너지피크차에 의한 감쇠보정방법

이 방법은 드럼내에 한 핵종이 두 개 이상의 감마선에너지를 갖고 있어야만 이용가능한 보정방법으로써 시료의 밀도를 구하기 위해 두 감마선에너지 피크에 대한 상대적인 매질에서의 감마선

에너지의 감쇄비를 이용하여 이 비율값으로부터 시료의 밀도를 계산하는 방법이다.

$$(\rho t) = \frac{1}{\Delta\mu} \left\{ \ln \frac{I_1(0)}{I_2(0)} - \ln \frac{I_1(\rho t)}{I_2(\rho t)} \right\} \quad (3-9)$$

여기서 $I_1(0)$: 빈드럼에서 낮은 감마선에너지에 대해 측정된 계수율

$I_2(0)$: 빈드럼에서 높은 감마선에너지에 대해 측정된 계수율

$I_1(\sigma t)$: 시료가 있는 드럼에서 낮은 감마선에너지에 대해 측정된 계수율

$I_2(\sigma t)$: 시료가 있는 드럼에서 높은 감마선에너지에 대해 측정된 계수율

$$\Delta\mu = \mu_1 - \mu_2$$

4. 비균질 매질의 감쇠보정 방법

비균질매질에 대한 감쇠보정 방법은 폐기물 드럼내에 비균질하게 분포되어 있는 방사능의 측정 시의 오차를 감소시키기 위해 개발된 기술로써 이 감쇠보정 방법은 매질내의 흡수와 관련한 오차의 영향을 감소시킬수 있다. 수평면의 분할측정도는 다음과 같다.

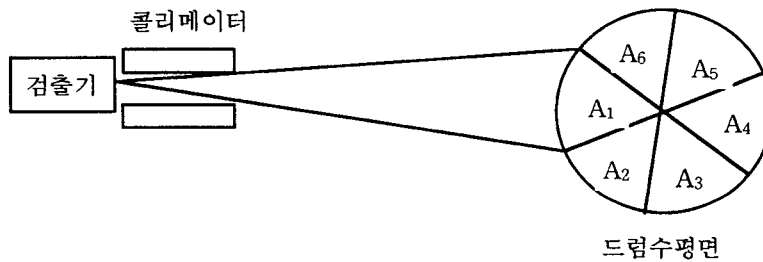


그림2. 수평면 비균질 보정을 위한 드럼분할 형태

위 그림과 같이 반경방향으로 드럼을 등분하여 회전시키면서 계측을 실시하며, 분할면에 대한 계산 알고리즘은 기하평균과 유사하며 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

$$(G)_{avg} = 2 \times \{ \sqrt{(A_1 \times A_4)} + \sqrt{(A_2 \times A_5)} + \sqrt{(A_3 \times A_6)} \} \quad (4-1)$$

여기서, A_n 은 드럼이 회전하는 동안 분할등분된 한개의 섹터에서 측정된 감마선 스펙트럼상의 피크면적이다

5. 핵종분석장치의 특성평가 실험

분석시스템의 특성평가 실험은 모의 모델드럼을 제작하고, 모델드럼내에 표준감마선원을 삽입하고 입력변수들을 변화시켜가면서 핵종분석장치로 측정을 실시한 후 그 분석결과를 표준감마선원의 방사능과 비교해 핵종분석장치에 대한 측정특성들을 평가하였다. 실험에 사용된 준비물은 200 L 빈드럼 1개, 임의의 매질로 채워진 모의드럼과 표준감마선원인 Co-60, Cs-137등이다. 검출기는 Canberra사에서 제작된 고순도게르마늄 검출기로 효율이 50%인 것을 사용했다.

가. 드럼의 회전수 변화

드럼의 회전수가 측정에 미치는 영향을 파악해 핵종분석장치의 최적 회전속도를 구하기 위한 실험을 수행하였다. 실험방법은 원자력발전소에서 발생하는 실제 방사성폐기물드럼의 매질과 유사한 모델드럼을 만든다음, 드럼내 임의의 위치에 표준감마선원을 놓고 드럼 회전테이블의 속도를 변화시켜가면서 각 회전속도에서의 측정값을 분석하여 표준감마선원의 세기와 비교해 실제값과 가장 근사한 결과를 나타내는 드럼회전테이블의 최적 회전속도를 결정하였으며 분석결과 10 rpm 일때가 표준감마선원 값과 가장 근사한 값을 나타내었다.

표 1. 드럼의 회전속도 변화에 따른 분석결과

회전속도(rpm) \ 핵종	^{60}Co ($\mu\text{Ci/drum}$)	^{137}Cs ($\mu\text{Ci/drum}$)	비고
8	81±21	88±36	<ul style="list-style-type: none"> ○ 사용재질:목재 ○ 매질밀도:0.68g/ml ○ 선원:Co-60/Cs-137 (93/86 μCi)
9	99±22	94±30	
10	86±21	85±13	
11	111±24	121±39	
12	96±20	96±32	

나. 드럼형태별 방사능 측정

밀도가 각기 다른 3가지드럼 (목재,폐수지 및 파라핀 고화드럼)에 대해 드럼의 임의의 위치에 표준선원을 삽입하여 시간을 변화하면서 측정을 실시하였다. 측정결과 드럼내 선원의 위치 및 배열에 따라 그 오차정도가 약간은 차이가 있으나 대체적으로 30% 이내로 측정이되고 있어 양호한 결과를 나타내고 있다. 그러나 선원의 비균질 형태를 더욱 크게하여 실험할 경우 지금보다 더 큰 오차를 나타낼것으로 판단되므로 반복실험을 통해 비균질에 대한 오차를 줄일수 있는 노력이 필요할 것으로 여겨진다.

표 2. 각 드럼 종류별 방사능 측정결과

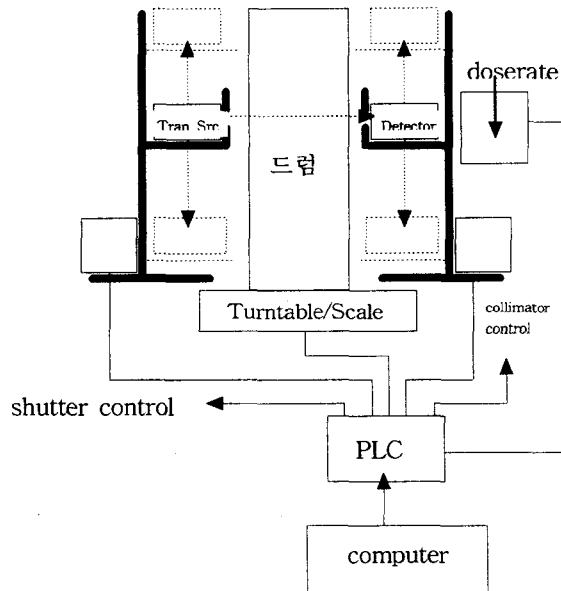
폐기물 형태	측정시간 (초)	측정핵종	표준감마선원 (μCi)	측정값 (μCi)	오차 (%)
목재 드럼 (0.68 g/ml)	100초	Co-60	93	104±21	11.8
		Cs-137	86	110±25	27.9
	100초	Co-60	93	98±10	5.4
		Cs-137	86	102±19	18.6
폐수지 드럼 (1.1 g/ml)	200초	Co-60	93	79±17	15.1
		Cs-137	86	81±31	5.8
	100초	Co-60	8700	7600±3400	12.6
		Cs-137	9300	9000±7100	3.2
파라핀 고화 드럼 (1.13 g/ml)	200초	Co-60	93	83±21	10.8
		Cs-137	86	84±36	2.4
	100초	Co-60	8700	8100±3200	6.7
		Cs-137	9300	10600±7600	14.0

6. 결과 및 토의

방사성폐기물 드럼내에 함유된 핵종별 방사능량을 비파괴적분석법을 이용하여 측정할 수 있는 시스템을 개발하였으며 계측을 위해 입사되는 방사능량을 조절할 수 있는 콜리메이터는 고선량율 (>200 mR/hr)과 저선량율(<200 mR/hr)의 2단계로 나누어 동작되도록 설계하였다. 폐기물드럼내의 밀도보정은 본문에서 언급한 3가지 보정법을 독립 또는 병용하여 사용하였고 드럼의 분할측정을 위해 드럼을 수직으로 8개의 segments로 나누고, 1 segment당 8개의 sector로 나누어 스펙트럼을 얻었다. 분석시스템의 최적운전조건을 도출하기 위해 드럼의 회전속도는 10 rpm으로 결정하였으며 현장의 실 폐기물과 조건이 유사한 형태의 모의 모델드럼을 제작하여 표준감마선을 이용해 분석한 결과 그 오차가 약 30% 이내로 나타났다. 그러나 폐기물드럼의 특성상 드럼내에서의 비균질성이 다양하기 때문에 좀더 신뢰성 있는 분석결과를 위해서는 많은 다양한 실증실험을 통해 비균질의 보정을 위한 노력이 계속되어야 할것으로 판단된다.

참고문헌

- "A High Throughput Segmented Gamma Scanning System for Automatic Waste Assay", CANBERRA INC, U.S.A., 1991.
- "Practicable Assay System for Radionuclide Quantification of Disposal Packages", JGC Corp., Japan, 1989.
- "Measuring Low Fissile Content Concentration in Radioactive Liquid Waste and Solid Waste Packages" SGN, France, 1989



(시스템 전체 구동 흐름도)