

Development of Effective γ -ray and β -ray Detection Methods For Low-Level Radioactive Wastes

Sung Woo Kwak, Yu Sun Yeom*, Ho Kyung Kim, Gyuseong Cho,
Joo Wan Park* Chang Lak Kim*, Myung Jae Song*

Korea Advanced Institute of Science and Technology,

*Korea Hydro and Nuclear Power Co., Ltd. Nuclear Environmental Technology Institute

극저준위 방사성폐기물을 위한 효율적인 γ -선 및 β -선 측정방법 개발

곽성우 · 엄유선* · 김호경 · 조규성 · 박주완* · 김창락* · 송명재*

한국과학기술원, *원자력환경기술원

(2001년 6월 15일 접수, 2001년 9월 3일 채택)

Abstract -The non-combustible RI wastes disposed of in hospital every year emit γ -ray or β -ray but their activities are very low to the extent of background. Development of more simple methods is needed because the conventional detection methods are so ineffective and complex. In this study, to solve this problem, detection method using efficiency curve for γ -ray emitting radioactive wastes measurement is proposed and experimental detection efficiency equation is also determined through HPGe's standard specimen measurement. For β -emitting radioisotopes detection, new measurement method using detection efficiency estimated by Monte Carlo simulation and SBD measurements is also proposed. According to the results of this paper, the unknown activity of low-level radioactive wastes without LSC requiring the preparation of standard sample and measurement for standard source detection efficiency could be determined efficiently and simply about $\pm 17\%$ in errors by using the theoretical detection efficiency and the SBD measurement result.

Key words : β -ray, γ -ray, detection efficiency, HPGe, SBD,

요약 -매년 병원에서 사용 후 폐기되는 비가연성 폐기물은 γ -선과 β -선을 방출하지만 방사능은 주변방사능 수준으로 매우 낮다. 이를 측정하기 위한 기존의 방법은 비효율적이고 복잡하므로, 좀 더 간단한 방법이 필요하다. 본 논문에서는 측정 방사선의 특성상 핵종에 따라 다른 측정방법을 사용하였는데, γ -선 방출 핵종은 표준시료로부터 효율곡선식을 도출하여 미지의 방사능을 측정하였다. β -선 방출 핵종은 Monte Carlo 시뮬레이션을 통해 계측 효율을 예측하고 표면장벽형계측기로 측정하여 미지의 방사능 양을 결정하는 새로운 방법을 제시하였다. 연구결과에 의하면 이론적 계산치와 표면장벽형계측기를 이용하면 전처리를 필요로 하는 액체섬광계측기를 이용하지 않고 또한 계측효율을 결정하기 위한 비경제적인 표준시료 측정시험과정 없이도 저에너지 방사선을 약 17% 오차 범위내에서 결정할 수 있다고 판단된다.

중심어 : 베타-선, 감마-선, 검출 효율, 순수게르마늄검출기, 표면장벽형계측기

서 론

국내 방사성동위원소(Radioactive Isotope-RI) 이용율은 매년 약 20%씩 증가함과 함께 폐기되는 양도 증가하고 있다. 발생되는 RI 폐기물로는

Vial, 시험관, 장갑, 시약병, 비이커, 휴지, 폐액 등이 있으며 주로 병원에서 사용하는 물질이 많은 비율을 차지한다. 이렇게 발생된 폐기물은 한국수력원자력(주) 원자력환경기술원 RI 폐기물 폐기시설에서 보관 및 저장하고 있는데, 대부분이

반감기가 짧은 베타방출 핵종으로 오랜동안 저장되어 방사능준위가 거의 주변방사능 수준으로 낮다. 낮은 위해도에도 불구하고 이들 비가연성 폐기물은 일반 방사성 폐기물과 동일시 취급되기 때문에 보관 및 시설의 유지보수에 비경제적이므로 법적으로 규제된 처분 제한치 미만의 방사능은 자체처분할 필요가 있다. 그러나 자체처분에 앞서 극저준위 방사능 측정 방법에 대한 신뢰성이 입증되어야 한다. 베타 방출 핵종의 경우는 일반적으로 액체섬광계수기(Liquid Scintillation Counter)를 이용하여 전베타에 대한 비방사능을 측정하는 방법이 사용되나 유리분말 시료로부터 방사성 물질 시료를 회수하는 과정에서 동일한 회수율을 유지하기가 어렵고, 회수절차의 복잡성에 비해 측정할 시료량이 많아 작업 시간과 비용에 있어서 비효율적이다. 기존의 문제점을 해결하기 위해 본 논문에서는 한국수력원자력(주) 원자력환경기술원의 극저준위 방사능 측정 시스템을 이용하여 감마선 방출 핵종에 대해서는 에너지에 따른 검출 효율 곡선을 이용한 방법과 순수 베타선 방출 핵종에 대해서는 Monte Carlo 시뮬레이션과 표면장벽형계측기(Surface Barrier Detector)를 이용한 극저준위 방사성물질의 효율적인 새로운 측정 방법을 제시한다.

극저준위 방사능 측정 시스템

극저준위 방사능 측정은 계측기에 계수되는 계수가 적으므로 지각에 존재하는 방사성 물질, 우주선, 공기에 존재하는 라돈가스, 차폐체 자체에 포함된 방사성 물질로부터 기인한 주변방사능의 영향을 제거해야 한다[1]. 이러한 주변방사능의 영향을 최소화하기 위해 그림1과 같은 한국수력원자력(주) 원자력환경기술원의 극저준위 방사능 측정시스템을 사용하였다. 원자력환경기술원의 극저준위 측정시스템은 측정하고자하는 시편의 밑면은 HPGe 검출기가 설치되어 있고 윗면은 표면장벽형계측기가 설치되어 있어 감마선과 베타선을 동시에 측정할 수 있도록 되어 있다.

지표면에 존재하거나 우주선으로부터 나온 방사선을 효과적으로 차폐하기 위해 일반납과 차폐벽 내부에 오랜 지질학적 안정기를 거친 고순도의 납을 함께 사용하였다. 본 연구에서 사용한 극저준위 시스템의 바깥쪽 10cm는 일반납으로 안쪽 5cm는 오랜된 납으로 둘러싸여있다. 오래 묵은 납일지라도 약간의 방사선을 방출되므로 여기서 나온 방사선과 또한 하전입자와 납과의 반

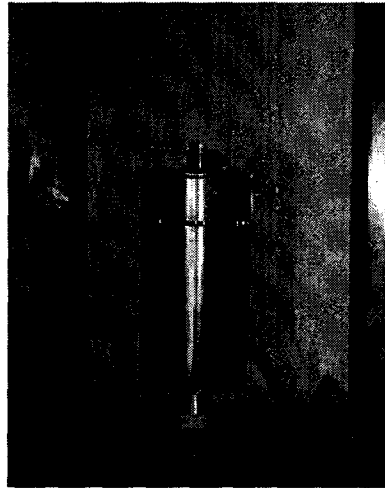


Fig.1. Measurement system of low-levelradioactivity

응으로 생성된 제동복사선에 의한 영향을 최소화하기 위해 납 차폐체 안쪽에는 극저방사능 구리를 사용하여 차폐시켰다. 공기중에 존재하는 라돈 가스는 질소 가스를 이용하여 원천적으로 측정시스템 내부를 가능한한 진공에 가깝게 유지하고, 또한 주기적으로 측정시스템 내부에 붙은 라돈 딸핵종을 제거해서 라돈이 계측기에 미치는 영향을 최소화시켰다. 지상에 도달한 뮤온은 중성자를 발생시키고 이 중성자는 2-3차 반응으로 계측기내에서 다시 하전입자를 생성하여 측정시스템의 백그라운드를 증가시키는데 이 중성자를 차폐시키기 위해 수소가 함유된 밀도 $0.95\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 인 고밀도 폴리에틸렌이 사용되었다. 그리고 중성자 흡수재는 중성자 흡수능력이 뛰어난 보론을 사용하였다. 보론은 보통 B_4C 형태의 분말을 사용하는데 본 방사능측정시스템에서는 자연상태의 보론을 용제인 불포화 폴리에스터 ($-\text{[OCH}_2\text{CH}_2\text{OCOCH}_2\text{COO]}_n-$)와 섞어서 중성자 흡수재를 제작하여 사용하였다[2].

γ -선 방출 핵종을 위한 검출효율 결정

γ -선 표준시료 제작

γ -선 측정시 측정시스템의 계측 효율을 알면 측정하고자 하는 방사성 물질의 방사능을 알 수 있다. 일반적으로 계측 효율은 선원과 검출기 사이의 기학적 배치에 따라 존재하는 기학적 효율, 시료 두께에 의해 발생하는 시료 효율, 그리고 검출기 자체 특성상 존재하는 검출기 효율로

구분할 수 있고 그중 검출기 효율은 검출기가 자체의 특성에 따른 함수이므로 계측기가 결정되면 함께 결정되는 변수이다. β -선과는 달리 γ -선은 투과력이 세기 때문에 표준시료 두께에 의한 영향 보다는 기하학적 영향이 크게 우세하다. 따라서 본 연구에서는 실제 측정하고자 하는 샘플 시료의 기하학적 효율과 시료 효율을 결정하기 위해 실제 샘플 시료와 같은 치수를 가진 표준시료반이를 제작하였다. γ -선의 전체 검출 효율은 에너지에 따른 함수이기도 하므로 표1에 나와 있듯이 최저 88keV에서 부터 1,836keV까지 9종류의 방사성 핵종이 함께 혼합된 혼합 표준 방사성 표준시료를 시료반이에 담아서 HPGe 검출기로 측정하였다.

Table 1. Standard source for determination of γ -ray detection efficiency

*:한국표준과학연구소에서 제작

핵종	감마선에너지 (keV)	방사능 농도 (Bq/g \pm %)	반감기 (day)
^{109}Cd	88.03	6545.0 \pm 3.2	462.6
^{57}Co	122.06 136.47	438.9 \pm 2.4	271.79
^{139}Ce	165.85	481.2 \pm 2.8	137.64
^{51}Cr	320.08	6813 \pm 3.4	27.70
^{113}Sn	391.69	882.0 \pm 2.8	115.09
^{85}Sr	514.01	826.1 \pm 2.8	64.849
^{137}Cs	661.66	736.2 \pm 2.7	1.10 $\times 10^4$
^{60}Co	1173.24 1332.50	662.4 \pm 2.3	1925.5
^{88}Y	898.04 1836.06	635.1 \pm 2.2	106.63

γ -선 검출 효율 결정

이미 알고 있는 표준선원의 방사능을 주변방사능이 제거된 원자력환경기술원 극저준위 측정시스템에서 측정하여 그림2와 같은 시료용기와 HPGe 검출기 기하학적 구조, 그리고 에너지에 따른 계측 효율을 얻었다. 그림2에서 알 수 있듯이 환경기술원 계측 시스템의 효율은 약 200keV에서 최대치를 가지며 에너지 증가에 따라 지수적으로 감소한다. 그리고 식(1)은 이 결과로부터 도출한 에너지에 따른 경험적 효율곡선식이다.

$$\ln(\eta) = -124.68 + 92.41 \ln(E) - 27.43[\ln(E)]^2 + 4.08[\ln(E)]^3 - 0.31[\ln(E)]^4 + 0.01[\ln(E)]^5 \quad (1)$$

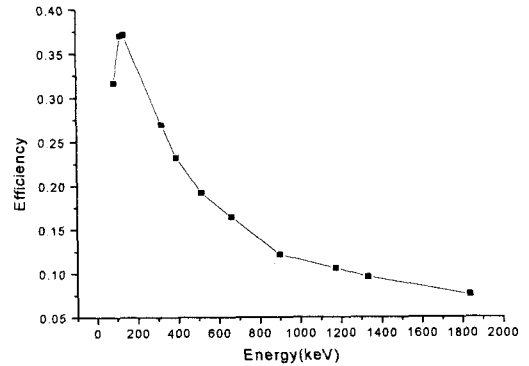


Fig. 2. Detection efficiency versus γ -ray source energy

여기서 η 는 계측 효율이고, E는 γ -선 에너지 (keV) 이다. 그림2의 결과(측정치)와 식(1)(피팅 방정식)은 $\pm 5\%$ 오차가 존재하는 것으로 나타났다. 따라서 방사능에 대한 에너지 정보만 있으면 식(1)을 이용하여 계측 효율을 계산하고 HPGe 측정치를 활용하여 측정 효율 값을 위한 표준시료 측정실험을 실시하지 않고도 미지의 γ -선 방출 핵종에 대한 방사능을 예측할 수 있다.

β -선 방출 핵종을 위한 검출효율 결정

β -선 표준시료 제작

β -선 표준 시료는 다른 핵종에 비해 반감기가 길고 에너지도 비교적 큰 ^{90}Sr - ^{90}Y 로 제작하였다. β -선은 전하를 띠고 있기 때문에 γ -선 방출 핵종과는 달리 시료의 자체흡수영향을 무시할 수 없다[3].

시료의 어느 깊이 이상에 존재하는 β -선은 모두 감쇄되 버리므로 계측 효율 증가에 전혀 기여를 못하므로 필요 이상으로 시료를 두껍게 하는 것은 무의미하다. 따라서 최적 조건의 표준 시료 두께를 결정하기 위해 동일 크기의 시료 반이에 시료 양(유리 분말과 β -선 방출 핵종 ^{90}Sr - ^{90}Y 의 혼합물)을 달리해 가면서 표면장벽형 계측기로 ^{90}Sr - ^{90}Y 를 측정된 결과와 Electron-Gamma Shower 4(EGS4) Monte Carlo code시뮬레이션 결과를 그림3에 도식하였다. 그림 3에서

알 수 있듯이 시료 두께가 약 2.7mm 이상의 깊이 에 있는 β -선은 시료를 투과하지 못하고 자체 내에서 감쇄되 버린다. 이 결과를 바탕으로 ^{90}Sr - ^{90}Y 표준시료는 약간의 여유를 고려하여 3mm 두께로 제작하였다.

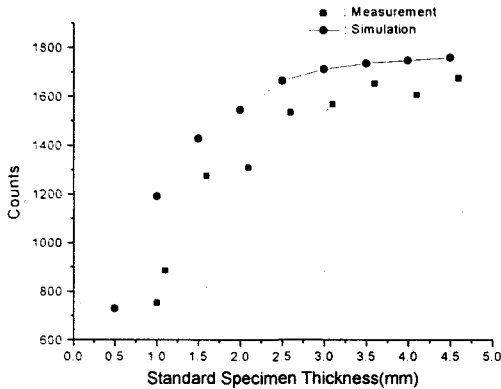


Fig. 3. SBD counts versus powder specimen thickness

점선원 스펙트럼 비교

β -선은 γ -선과는 달리 에너지 스펙트럼에서 최소값과 최대값을 가진 연속스펙트럼이므로 단일 에너지에 따른 계측 효율 곡선을 도출하여 간략화된 계측시스템에 대한 계측 효율을 이용할 수 없고 β -선 방출 핵종 하나하나에 대한 계측

효율을 계산하여야 한다. 본 논문에서는 계측 효율을 예측하기 위해 광자 및 전자 연계 수송 코드로써 널리 인증을 받고 있는 EGS4 (Electron - Gamma Shower 4) Monte Carlo code를 사용하였다[4]. 그림4는 본 연구에서 사용한 계측 시스템으로 분말 방사성 시료의 계측효율을 계산하기 위한 geometry이다. 시료는 유리분말과 방사성 핵종이 균일하게 섞여 있다고 가정한다. 커버는 분말 시료로 인해 표면장벽형계측기가 오염되는 것을 방지하기위해 분말을 싸고 있는 비닐이다. 그리고 표면장벽형계측기는 i-와 n-region으로 나누어 모사했는데 i-region(intrinsic region)은 공핍층(depletion layer)으로 이 영역에서의 계측 효율을 계산한다. n-region은 검출기 제작에 사용된 반도체기판을 나타낸다[5,6]. 점선원 ^{133}Ba 를 시뮬레이션할 때는 그림4에서 시료와 커버 영역이 제거된 기하학적 구조를 사용하였다.

시뮬레이션의 타당성을 검토하기 위해, ^{133}Ba 선원에 대한 시뮬레이션 결과와 실제 제작한 극저준위 방사성 측정 시스템으로 측정된 스펙트럼 모양 그리고 측정 효율을 비교하였다.

그림5은 시뮬레이션과 측정 결과를 비교한 그림인데, 저에너지 영역에서 제외하고 피크위치와 전체적 거동은 잘 일치한다. 저에너지에서 발생한 차이는 측정장비의 전기적 잡음에 의해 발생한 차이라고 생각한다. 이 결과로부터 Monte Carlo 시뮬레이션은 실제 측정 시스템의 측정 효율을 잘 모사하고 있음을 알 수 있었다.

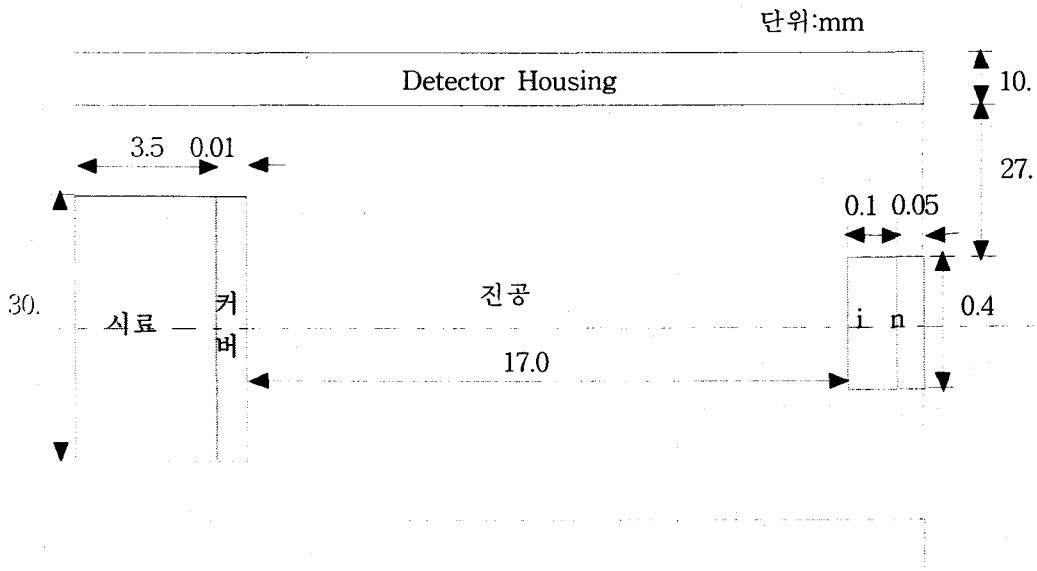


Fig. 4. EGS4 Simulation Geometry

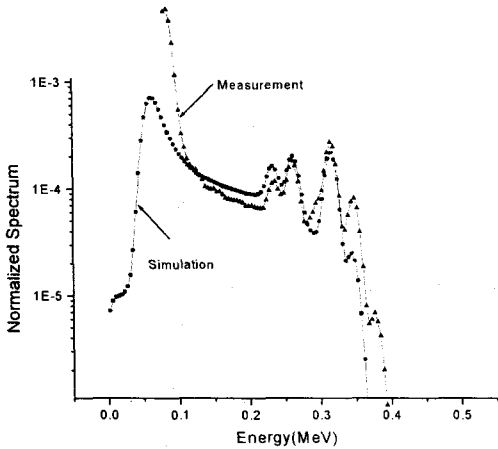


Fig. 5. Spectrum of ^{133}Ba point source

분말 시료 스펙트럼 비교

실제 저장중인 샘플 시료는 압축기로 과쇄되어 분말 형태로 존재하므로 분말시료에 대한 계측 효율을 알아보기 위해 베타 방사선 핵종 ^{90}Sr - ^{90}Y 에 유리병을 잘게 갈아 0.149mm 채로 걸러 미세한 분말을 만든 다음 방사성 핵종과 균일하게 섞어서 반경 30mm, 높이 6.5mm인 실린더형 그릇에 담아서 표준시료를 제작하였다. 점선원에서와 마찬가지로 시뮬레이션 결과와 측정치를 비교하였다. 시뮬레이션을 위해 필요한 입력 스펙트럼은 ICRU 56(International Commission on Radiation Units and Measurements 56)에서 권고한 그림6과 같은 스펙트럼을 사용하였다[7].

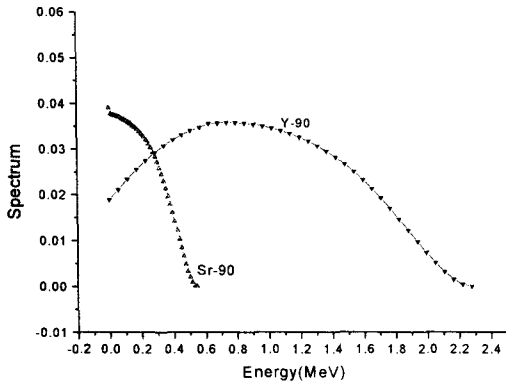


Fig. 6. Spectrum of ^{90}Sr - ^{90}Y

^{90}Sr 은 28.79yr 반감기를 가지고 평균에너지가 0.196MeV, 최대에너지는 0.546MeV인 연속 베타 선을 방출한다. 반면에 ^{90}Y 은 ^{90}Sr 에 비해 짧은 반감기로 최대 2.281MeV인 연속 베타선을 방출한다. ^{90}Sr 과 ^{90}Y 은 큰 상대적 반감기 차이로 인해 약 2주일정도 지나서는 방사평형을 이루게 되어 방사능은 ^{90}Sr 에 의해 결정되고 그 양은 약 2배이다. 그림7은 Monte Carlo 시뮬레이션으로 예측된 스펙트럼과 측정치를 나타내는데 약 0.25MeV 근처에서 2차 피크가 잘 일치함을 보이지만 저에너지 영역에서는 ^{133}Ba 점선원에서와 같이 검출기에 존재하는 전기적 잡음으로 많은 차이가 존재했다.

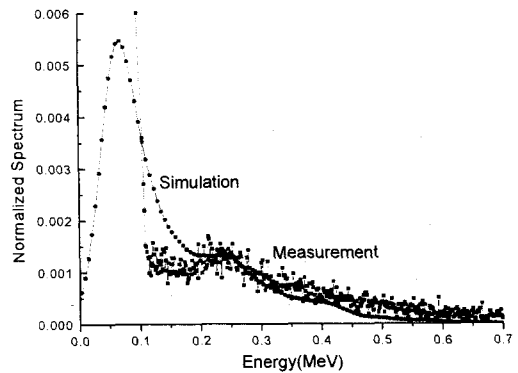


Fig. 7. Comparison of the calculated and measured ^{90}Sr - ^{90}Y spectrum

이 차이는 자연방사능, 시스템 자체의 전기적 잡음, 표면장벽형계측기 공핍층내 생성된 electron /hole pairs 수 등과 같은 여러 요인에 의해 기인하지만 그 중 전기적 잡음이 많은 부분을 차지한다. 그림7에서 Monte Carlo 계산에 의한 ^{90}Sr - ^{90}Y 의 전체 계측 효율은 0.129이다. 그러나 측정치는 저에너지 일수록 잡음에 의한 영향은 많은 반면 에너지 증가에 따라 그 영향은 서서히 감소한다. 특히 0.1MeV이하부터는 잡음의 영향이 급격히 증가한다. 따라서 0.1MeV 이하에 대한 계측 효율은 제외하고 0.1MeV 이상의 에너지에 대해 측정치와 계산치의 계측 효율을 보면 계산치는 0.0642, 측정치는 0.0547로 약 17% 오차가 났다. 만약 정량적 비교가 어려운 저에너지 영역의 영향을 무시한다고 가정하면 이 결과로부터 많은 비용과 시간을 요구하는 액체섬광계수기 대신에 이론적 Monte Carlo 시뮬레이션과 표면장벽형계측기를 이용하면 ^{90}Sr - ^{90}Y 의 방사능은 약 $\pm 17\%$

에러 범위 내에서 결정할 수 있음을 알 수 있었다. 본 연구에서는 특별히 한 핵종 ^{90}Sr - ^{90}Y 에 대한 계산 및 실험을 수행하였다. 그러나 논문에서 제시한 것과 같이 동일한 방법으로 계측 효율은 Monte Carlo 시뮬레이션으로 계산하고 표면장벽형계측기를 이용하면 저에너지 β -선 측정을 위해 시간과 경비를 요구하는 비효율적인 액체섬광계수기 측정 실험이나 표준시료 측정실험 없이도 측정하고자 하는 저에너지 β -방출 핵종의 방사능을 결정할 수 있다고 사료된다.

결론

극저준위 시스템은 주변방사능이 제거된 상태에서 극저준위의 γ -선 및 β -선을 동시에 측정할 수 있다. 본 논문에서 γ -선 방출 핵종은 실제 측정할 샘플 시료와 계측기의 기하학적 영향, 시료 형태 그리고 방사성 에너지에 대해 효율적으로 측정할 수 있도록 표준시료 측정 실험을 통하여 경험적 계측 효율 곡선을 도출하였다. 도출된 경험식과 표준시료 실험결과는 $\pm 5\%$ 내에서 일치하였다. 따라서 논문에서 제시한 방법에 따라 실험적으로 유도된 효율곡선 결정식과 HPGe를 이용하면 매년 표준시료 측정 실험을 실시하지 않고도 미지의 γ -선 방출 방사능을 결정할 수 있다고 판단된다. β -선 방출 핵종은 γ -선 방출핵종과는 달리 자체흡수가 매우 중요하므로 먼저 실험과 Monte Carlo 시뮬레이션으로 표준시료의 최적 두께를 결정하였다. 결정된 두께로 표준시료를 제작하고 Monte Carlo 시뮬레이션으로 계측 효율 결정 방법의 타당성을 ^{133}Ba 점선원에 대해 측정치와 시뮬레이션 결과치를 비교하여 검토하였다. 잡음에 의해 저에너지영역에서 차이가 존재하지만 시뮬레이션은 ^{133}Ba 스펙트럼을 대체적으로 잘 모사하고 있는 것으로 나타났다. 실제 측정하고자 하는 샘플과 유사한 분말 시료를 β -선 방출 핵종 ^{90}Sr - ^{90}Y 로 만들어 계측 효율을 비교한 결과, 측정치와 예측치는 $\pm 17\%$ 오차범위내에서 일치하였다. 따라서 본 논문에서 제시한 방법으로 β -선 방출 핵종을 측정하면 전처리 때문에 시간과 경비를 요구하는 액체섬광계수기를 이용하지 않고 또한 측정하고자 하는 모든 핵종에 대한 표준시료 제작없이도 미지의 방사능을 경제적이면서 효율적으로 측정할 수 있다고 사료된다.

참고문헌

1. Ramesh Chaudhry, "Fabrication and Testing Apparatus for LID Si Surface Barrier Detectors," *B.A.R.C* 689(1973).
2. 방사성폐기물 처분관련 핵심기술의 확보·고도화 연구, 한국전력공사 원자력환경기술원(1998).
3. K. Vogal and P. Gesewsky, "A Rapid for Determining Sr-89 and Sr-90 from Nuclear Accident," in: *Liquid Scintillation Spectrometry*, pp435-438, Radiocarbon, Arizona(1992).
4. Walter R. Nelson, Hideo Hirayama and David W.O. Rogers, *EGS4 3 for UNIX*, SLAC NEA Data Bank CCC-0331/07,(1991).
5. Ramesh Chaudhry and Kum. H. V. Hegde, "Silicon(N-Type) Surface Barrier Detectors," *B.A.R.C* 650(1972).
6. Silicon Charged Particle Radiation Detectors Instruction Manual, EG&G Ortec,(1997).
7. Dosimetry of External Beta Rays for Radiation Protection, ICRU Report 56,(1997).