

Development of the ZnS(Ag)/BC-408 phoswich detector for monitoring radioactive contamination inside pipes

Gye Hong Kim · Chan Hee Park · Chong Hun Jung ·
Kune Woo Lee · Bum Kyoung Seo
Korea Atomic Energy Research Institute

배관 내부 방사능 오염도 측정용 ZnS(Ag)/BC-408 phoswich 검출기 개발

김계홍 · 박찬희 · 정종현 · 이근우 · 서범경
한국원자력연구소

(2006년 7월 30일 접수, 2006년 8월 30일 채택)

Abstract - A small radiation detection system is necessary for the direct characterization of alpha/beta-ray contamination inside pipes generated during the decommission of a nuclear facility. In this work, the new type phoswich detector consisting of the ZnS(Ag) and plastic scintillator for α/β simultaneous counting was designed as part of a development of a equipment capable of monitoring radiological contamination inside pipes. The optimum counting conditions in dimensions of scintillator and a detection system were experimentally confirmed and a performance of alpha/beta-ray discrimination was evaluated. As a result, optimum conditions of a detector suitable for monitoring radiological contamination inside pipes and a feasibility of application to pipe-inside were confirmed.

Key words : contamination level inside pipe, phoswich detector, alpha/beta-ray discrimination, scintillator

요약 - 원자력 시설의 해체 시 발생되는 다양한 종류의 폐기물 중에서 배관 내부의 알파/베타선 오염 특성을 직접 평가하기 위해서는 소형의 방사선 검출 시스템이 요구된다. 본 연구에서는 배관 내부의 방사능 오염도를 직접 측정할 수 있는 장비 개발의 일환으로서 기존의 phoswich 검출기와 그 형태가 다른 ZnS(Ag)/플라스틱섬광체 조합의 알파/베타선 동시측정용 phoswich 검출기를 고안하였으며 섬광체 크기 및 검출 시스템의 최적 요건을 실험적으로 확인하고 알파/베타선 신호 분리도를 평가하였다. 그 결과 배관 내부의 오염도 측정에 적합한 phoswich 검출기의 최적 요건 및 배관 내부의 적용 가능성을 확인하였다.

중심어 : 배관 내부 오염도, phoswich 검출기, 알파/베타선 신호 분리, 섬광체

서 론

원자력연구시설의 해체(연구로 1,2호기 및 우라늄 변환시설)와 더불어 다양한 종류의 폐기물을 들이 발생하고 있으며, 이와 관련하여 폐기물의 처분 및 재활용을 위해서는 정확한 방사선학적인 오염 특성이 평가되어야 한다. 이러한 해체 폐기물들의 오염도를 평가하기 위하여 다양한 측정 기술을 개발하여 실증하고 있다[1,2]. 표 1에

ANL CP-5 연구로에 적용한 배관내부 방사능 측정 시스템인 Pipe exploerTM 과 Pipe Crawler[®]의 특성을 나타냈다. 그러나 이러한 기술들은 원자력 시설의 다양한 구조와 특성으로 인하여 공통적으로 활용되기에에는 많은 어려운 측면이 있다. 이러한 제약성으로 인하여 각국에서는 각자 고유의 원자력 시설에 맞는 장비를 개발하고 있으며 원격조작 및 경제성 향상 등을 목표로 작업자의 안전성 확보 및 작업 시간 단축을 위하여 측정 장

Table 1. Comparison of features of monitoring systems for counting radioactive contamination inside pipes.

Monitoring System	Pipe Explorer™	Pipe Crawler®	Monitoring system developed in this study
Detector	ZnS(Ag) for alpha particles / plastic scintillator for beta particles	Geiger Müller counter	ZnS(Ag) for alpha particles / plastic scintillator for beta particles
Radiation	alpha- and beta-ray	gamma- and beta-ray	alpha- and beta-ray
Counting method	Individually measuring alpha- and beta-ray	Measuring total gamma-beta ray	Simultaneously measuring alpha- and beta-ray
Pipe diameter	2 to 40 inch	2 to 18 inch	2 inch

비의 자동화 및 원격장치 개발에 그 초점을 맞추고 있다.

방사선관리구역 안의 물품을 규제해제하기 위해서는 대상 물품들이 오염되어 있지 않다는 것을 증명하여야 한다. 그러나 일반적으로 배관과 같은 측정 대상은 내부가 오염되어 있기 때문에 측정 시 많은 문제점을 가지고 있다. 기존의 측정법은 크게 직접법과 간접법으로 나눌 수 있는데, 서베이미터(survey meter)와 같은 장비를 이용하여 표면오염을 직접 측정하는 직접법의 경우는 장비를 배관 내부로 넣어서 직접 측정할 수가 없으므로 외부에서 내부의 오염도를 측정하여야 한다. 그러나 알파와 베타선과 같은 경우에는 배관 자체에 의한 흡수에 의하여 외부에서 오염도를 측정할 수가 없다. 또한, 스매어 매질을 이용하여 시료를 채취하여 오염도를 측정하는 간접법의 경우도 배관 내부의 시료를 채취하기 위하여 배관을 절단하고 시료채취를 하여야 하는 등 많은 문제점을 가지고 있다.

본 연구에서는 배관 내부의 방사성 오염도를 직접 측정할 수 있는 phoswich 검출기를 개발하였다. 대부분의 기존 phoswich 검출기는 각각의 섬광체가 직접 접촉해 있는 샌드위치 형태지만 당해연구에서는 배관 내부 표면에서 방출되는 비정이 짧은 하전입자 방사선의 검출 효율을 향상시키기 위하여 각각의 섬광체가 분리된 ZnS(Ag)/플라스틱섬광체 조합의 알파/베타선 동시측정용 검출기를 고안하였으며 검출기 크기 및 신호 측정 시스템의 최적 요건을 실험적으로 확인하고 과형분별(PSD: pulse shape discrimination) 성능을 평가하였다.

재료와 방법

1. 최적 계수 조건 결정

방사선 검출 장치는 사용자에 의해 조정이 가능한 구성 성분이 있는데 광전자증배관(PMT: photomultiplier tube)에 인가되는 고전압과 전자 잡음을 제거하기 위한 LLD(low level discriminator)가 여기에 해당된다. 고전압과 LLD의 최적화는 최적의 계수 조건에 도달하기 위한 요건이 되는데 공급전압 그리고 LLD는 그 변화에 대한 감도의 변화가 최소가 되는 플래토우(plateau)라 불리는 구역에서 선택되어야 한다. 운영 전압은 플래토우 길이의 1/3(또는 1/4) 또는 플래토우의 전압의 하위 끝에서 75~100 V 높은 것 중에서 작은 값에서 선택되어야 하며 플래토우 영역의 기울기는 100 V 당 5~10%가 넘지 않아야 한다[3, 4, 5]. 그리고 PMT의 수명은 낮은 전압에서 보다 길기 때문에 너무 높은 전압에서 사용하지 않는 것이 바람직하다. 측정에 사용된 PMT는 HAMAMATSU 사의 Head-on type인 R1924A 모델을 이용하였으며 cathode와 anode 사이의 최고 인가 전압은 2000 V이다. PMT의 특성 커브는 ZnS(Ag) 섬광검출기로 ^{241}Am 알파 선원을 측정하고 전압을 0 V에서 1000 V까지 50 V 단계로 측정하여 결정하였다.

2. Phoswich 검출기 구성

일반적인 Phoswich 검출기는 하나의 광전자증배관에 2개 이상의 다른 섬광체가 부착된 검출 시스템 형태다. 섬광체 각각은 하나의 특정 형태의 방사선(즉, 알파, 베타, 감마 그리고/또는 중성자)에만 반응하도록 설정된다. 당해연구에서는 배

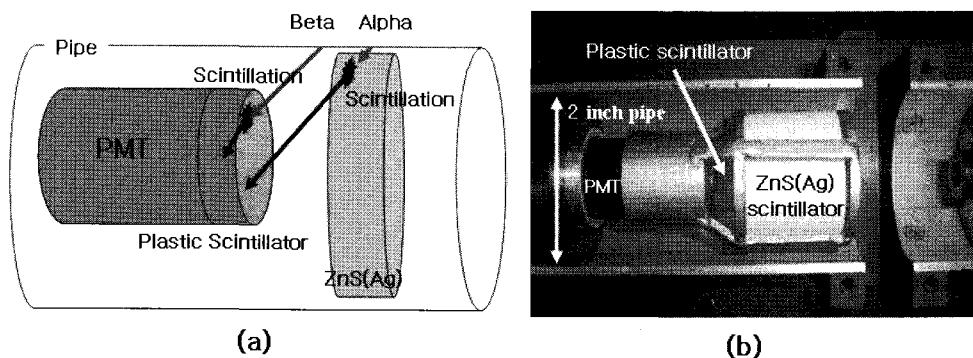


Fig. 1. Conceptual design of a phoswich detector (a) and a photograph of a detector manufactured (b) for simultaneous alpha/beta particles counting inside pipes.

관 내부의 알파 및 베타선을 측정하기 위하여 그림 1과 같이 플라스틱섬광체와 ZnS(Ag) 섬광체를 하나의 광전자증배관에 적용하여 PSD 방법으로 알파와 베타를 분별하는 검출 시스템을 구성하였다. 플라스틱섬광체와 ZnS(Ag) 무기섬광체는 섬광 봉괴상수가 서로 많이 다르기 때문에 PSD 기술을 적용가능하게 한다.

플라스틱 섬광체(plastic scintillator)는 크기와 모양을 자유로이 만들 수 있고 가격이 저렴한 장점 때문에 여러 원자력 및 방사선 관련 분야에 활용되고 있다[6, 7, 8]. 검출기 제작에 사용된 베타선 검출용 플라스틱 섬광체는 Bicron 사의 BC-408로 하전입자 검출에 아주 유용한 섬광체이다. 섬광체의 주성분은 polyvinyltoluene으로 밀도는 1.302 g cm^{-3} 이고 굴절률(refractive index)은 1.58이며 최대 발광 파장은 425 nm이다. 플라스틱 섬광체는 PMT와 같은 직경 26 mm로 두께 1.25, 3.11, 4.17, 10.18 mm로 가공/연마하였으며 플라스틱섬광체와 PMT 윈도우 사이의 공기층을 제거하여 광전송 손실을 줄이기 위하여 광 그리스(optical grease)를 이용하여 PMT와 연결하였다. 플라스틱 섬광체는 발생된 섬광의 누설을 최소화하기 위하여 테프론 테이프를 이용해 옆면을 감쌌다. ZnS(Ag) 무기섬광체는 알파선에 대한 검출 효율이 매우 높기 때문에 알파선 측정용 섬광체로 주로 이용된다. 알파선 검출용 ZnS(Ag) 무기섬광체는 ELJEN Technology의 EJ-440을 사용하였다.

3. 과형판별법

알파선과 베타선이 공존하는 혼합방사선장에서 알파선과 베타선을 분리하여 측정하여야 한다. 알파선과 베타선의 분리는 각각의 섬광체내에서

만들어지는 섬광 오름 시간이 다르기 때문에 일어나는 효과를 이용한다. 알파선과 베타선이 공존하는 혼합방사선장에서 알파선과 베타선을 판별하기 위하여 폴스파형분석법을 이용하였다.

과형판별의 정도를 나타내는 방법에는 여러 가지가 있으나, 본 연구에서는 가장 일반적으로 사용되는 M(figure of merit) 값을 사용하여 과형판별정도를 평가하였다[9]. 이 때의 M 값의 정의식은 다음과 같다.

$$M = \frac{T}{t_a + t_b}$$

위 식에서 T는 오름 시간 분포에서 입자 a와 b의 피크 사이의 간격을 나타내고 t_a 와 t_b 는 각각 입자 a와 b에 대한 오름 시간 분포의 반치폭을 나타낸다. 현실적으로 PSD 시스템에서 각기 다른 방사선 형태의 완전분리가 불가능하지만 M 값이 1.5 이상이 되면 과형의 분리가 완전히 된 것으로 간주한다[10].

4. Phoswich 검출기 성능 평가

배관 내부의 알파/베타 동시측정용 검출기의 최적 조건을 확인하기 위해 다음과 같은 평가를 수행하였다. 플라스틱 섬광체 두께에 따른 베타선 검출 효율을 확인하기 위하여 플라스틱섬광체의 두께를 변화시키면서 알파/베타(감마)선 검출 성능 및 분리도를 평가하였다. 그리고 이 검출시스템의 크기를 결정지을 수 있는 플라스틱섬광체와 ZnS(Ag) 섬광체 사이의 거리 그리고 원통형 ZnS(Ag) 섬광체의 직경에 따른 검출 성능을 평가하였다. ZnS(Ag) 섬광체와 플라스틱섬광체 입사창거리에 따른 알파/베타선 검출 성능 및 분리도를

평가하기 위하여 플라스틱섬광체 두께별로 ZnS(Ag) 섬광체 거리가 0 cm ~ 5 cm까지 1 cm 간격으로 측정하였다. 이때 ZnS(Ag) 섬광체와 플라스틱섬광체 거리의 기준은 플라스틱섬광체 입사창과 높이 4cm인 원통형 ZnS(Ag) 섬광체의 중심을 기준으로 하였다. 일반적으로 5 MeV의 에너지를 가진 알파선의 평균 비정이 공기 중에서 약 3 cm가 되기 때문에 검출기가 오염된 표면에 근접해야만 한다. 그러나 ZnS(Ag) 섬광 검출기가 배관 내부 표면에 밀착할 경우 검출시스템이 배관 내부에서의 이동에 문제점이 발생한다. 그래서 원통형 ZnS(Ag) 섬광체의 직경에 따른 검출 성능을 비교하였다. 원통형 ZnS(Ag) 섬광체 직경에 따른 알파/베타(감마)선 검출 성능 평가를 위하여 ZnS(Ag) 섬광체 직경을 25 mm ~ 50 mm까지 5 mm 간격으로 변화시키면서 측정하였다. 이 phoswich 검출기는 직경 50 mm의 배관의 내부 방사능 표면오염도 측정이 목적이었기 때문에 ZnS(Ag) 섬광체의 직경을 50 mm까지 증가시키면서 계수치를 측정하여 비교하였다. 측정에 이용된 방사선원은 방사능이 각각 207.7 Bq, 110.9 Bq인 ²⁴¹Am, ⁹⁰Sr/⁹⁰Y을 이용하였으며 600 sec 동안 측정하였다.

결과와 논의

최적의 PMT 인가전압 및 LLD를 확인하기 위하여 ZnS(Ag) 섬광검출기와 PMT를 이용하여 공급전압과 계수치의 관계를 나타내는 특성곡선을 얻었다. 최적의 계수 조건에 도달하기 위한 요건을 충족하기 위해서는 공급전압 그리고 LLD가 그 변화에 대한 감도의 변화가 최소가 되는 플래토우(plateau)라 불리는 구역에서 선택되어야 하는데 그림 2는 ZnS(Ag) 섬광 검출기의 다른 LLD에 따른 특성 곡선을 나타낸다. 계수가 시작되는 전위는 개시 전위(starting potential)라 하는데 이 이후 전압이 증가되면 매우 급격한 계수율의 증가가 관찰된다. 이 발단 점 이후 전압이 더 증가하면 계수율에 거의 영향을 미치지 않는 영역이 존재한다. 플래토우 영역을 지나 전압이 증가하면 계수율에서 안정성이 사라지고 계수 대부분이 검출기와 알파입자와의 상호반응에 상응하지 않는다. 그렇기 때문에 계수 효율을 결정하기 위해 이 계수율을 사용할 수 없다. LLD가 1%인 경우 플래토우는 100 V당 6.465 %였다. 이것은 영역 $V_1=700$ V에서 $V_2=1120$ V까지 이루어지므

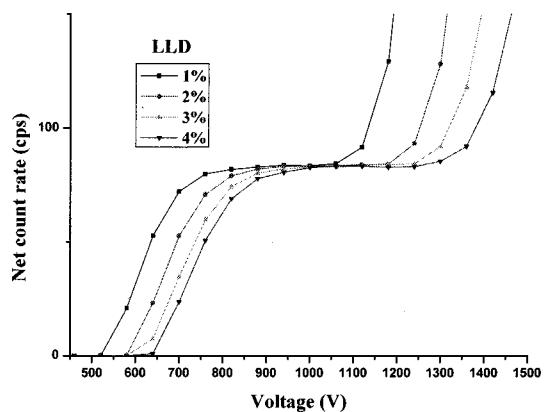


Fig. 2. Characteristic curves in a ZnS(Ag) scintillation detector at different low level discriminator (LLD) settings.

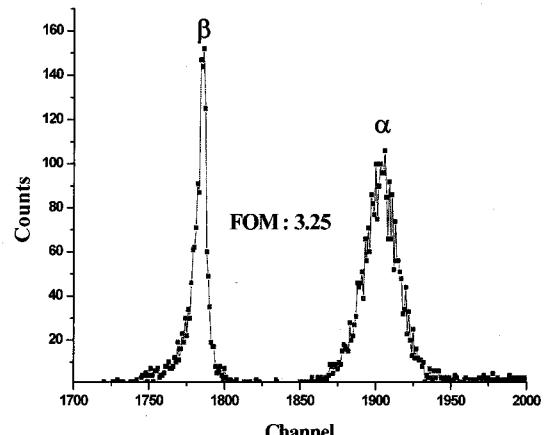


Fig. 3. Separation of alpha and beta particles using PSD methods observed with ZnS(Ag)/plastic phoswich detector. A FOM is $T/(t_\alpha + t_\beta)$, where T is the separation between the time peaks and t_α and t_β are the respective FWHM of the time distributions.

로 플래토우 길이는 420 V이며 운영전압은 840 V이다. LLD가 커질수록 운영전압이 커지기 때문에 PMT의 수명은 줄어들 수 있어서 본 연구에서는 검출 시스템의 운영전압을 840 V로 적용하였다.

검출시스템의 베타(감마)선과 알파선의 PSD 성능 평가를 위해 방사선원 ²⁴¹Am과 ⁹⁰Sr/⁹⁰Y에 대해 그림 3과 같은 파형 스펙트럼을 얻었다. M 값은 약 2.7에서 3.2 사이의 값을 나타냈으며 각각의 경우에 대한 M 값을 표 2에 나타냈다. 모든 경우 M 값이 신호가 완전히 분리되었다고 보는 1.5 이상으로 양호한 알파/베타선 신호 분리도를

Table 2. Figure of merit obtained with ZnS(Ag)/plastic phoswich detector for ^{241}Am and $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$.

Thickness of plastic scintillator	Distance between entrance window and ZnS(Ag) scintillator (cm)							
	0	1	2	3	4	5	6	7
1.25 mm	2.99	3.10	3.05	3.14	3.05	3.00	2.68	2.74
3.11 mm	3.07	2.95	2.93	2.93	2.92	2.82	2.68	2.49
4.17 mm	2.88	3.21	3.31	3.18	3.06	2.99	2.67	3.11
10.08 mm	2.87	2.85	2.87	3.02	2.77	2.84	2.69	2.02

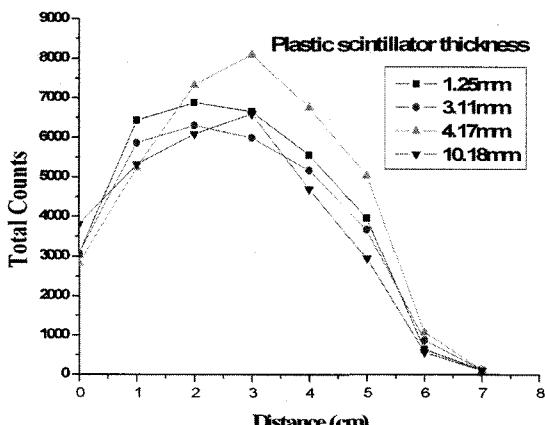


Fig. 4. Total counts in alpha region according to distance from ZnS(Ag) to plastic scintillator.

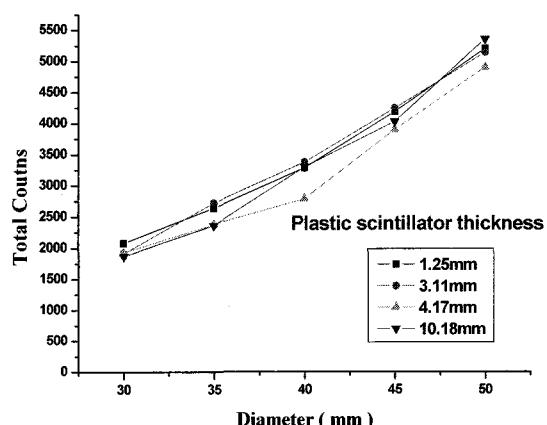


Fig. 5. Total counts in alpha region according to diameter of ZnS(Ag) scintillator.

보여주고 있다.

그림 4는 플라스틱섬광체 두께와 ZnS(Ag) 섬광체 거리에 따른 ^{241}Am 에 대한 알파 영역의 계수치를 나타낸다. 알파선 검출 효율에 미치는 요소로는 크게 플라스틱섬광체 입사창과 섬광이 발생한 지점과의 거리, 섬광이 발생한 위치에 따른 플라스틱섬광체 입사창에서 섬광의 입사각 그리고 섬광이 발생한 지점에서 입사창을 바라보는 입체각으로 생각할 수 있는데 ZnS(Ag) 섬광체와 플라스틱섬광체 입사창의 거리는 각각의 섬광체 두께의 경우 2 cm에서 3 cm일 때 대체적으로 큰 계수치를 나타냈는데 여기서 가장 효율이 좋음을 확인할 수 있다. 그리고 플라스틱섬광체 두께와 알파선 검출 효율에는 어떤 상호관계를 보이지 않으며 서로 독립적임을 알 수 있었다.

원통형 ZnS(Ag) 섬광체 직경에 따른 알파/베타(감마)선 검출 성능 평가를 위해 측정한 계수치를 그림 5에 나타냈다. ZnS(Ag) 섬광검출기의 직

경이 클수록 검출 효율이 증가함을 볼 수 있는데, 이것은 알파선의 공기 중에서의 감쇠와 알파선 검출기의 기하학적인 검출효율의 감소가 주원인이다. 그러나 ZnS(Ag) 섬광 검출기가 배관 내부에 밀착되지 않은 상태에서도 알파선 검출 가능성을 확인하였다. 즉, 원통형 ZnS(Ag) 섬광체의 직경이 50 mm일 때와 비교해 45 mm, 40 mm일 경우 각각 약 80, 60%의 검출효율을 보였다.

일반적인 혼합 방사선장에는 알파 또는 베타선 뿐만 아니라 감마선도 같이 방출한다. 그런데 PSD 방법을 이용한 검출 시스템에서 이 감마선 신호가 베타선 영역에 같이 나타나기 때문에 감마선이 베타 영역에 미치는 영향을 확인하였다. ^{137}Cs 점선원을 플라스틱섬광체 입사창 중심에서 2 cm의 거리에서 측정한 결과 플라스틱섬광체에 의한 감마선의 검출효율은 베타선 검출효율의 10^{-7} 정도로서 거의 무시할 수 있었다.

결 론

배관 내부와 같은 국소 지역의 오염도를 측정하기 위하여 알파선과 베타선을 동시에 측정할 수 있는 phoswich 검출기를 개발하여 배관 내부에 검출 시스템을 장착하여 알파/베타선의 검출 특성을 평가하였다. 다른 형태의 방사선을 동시에 측정하기 위한 일반적인 phoswich 검출기와는 형태가 다른 ZnS(Ag)/플라스틱섬광체의 조합의 phoswich 검출기를 설계하였고 그 성능을 실험적으로 평가하였다. PSD 방법으로 방사선을 측정한 결과 기존의 오름 시간 분별 시스템이 가진 성능 이상으로 충분히 일파와 베타선이 잘 분리되었으며 배관 내부와 같이 접근이 곤란한 국소 지역의 알파/베타선을 동시에 측정할 수 있는 검출기 개발하였다. 이 시스템을 국소지역으로 이송이 가능한 장비와 결합할 경우 작업자의 안전성 확보 및 작업 시간을 단축할 수 있는 원격장치 개발이 가능할 것이다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력증장기연구개발 사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고문현

1. U.S. Department of Energy. Pipe Explorer™ Surveying System; INNOVATIVE TECHNOLOGY Summary Report, DOE/EM-0440. 1999.
2. U.S. Department of Energy. Pipe Crawler® Internal Piping Characterization System; INNOVATIVE TECHNOLOGY Summary Report, DOE/EM-0355. 1998.
3. Overman RT, Clark HM. Radioisotope Techniques. New York; McGraw-Hill, 1960.
4. Chase GD, Rabinowitz JL. Principles of Radioisotope Methodology. Minneapolis; Burgess Publishing Company, 1967.
5. ASTM; American Society for Testing and Materials, Standard Test Methods for Detector Calibration and Analysis of Radionuclides. ASTM E181-98, 2003:16.
6. Kriss AA and Hamby DM. Beta spectroscopy with a large-area avalanche photodiode module and plastic scintillator. Nucl. Instr. Meth. A. 2004 Feb;525:553-559.
7. Miramonti L. A plastic scintillator detector for beta particles. Radi. Meas. 2002 Aug;35:347-354.
8. Tarancón A, García JF and Rauret G. Mixed waste reduction in radioactivity determination by using plastic scintillators. Anal. Chim. Acta. 2002 Jul;463:125-134.
9. Thorngate JH and El-Razek MMA. Limits to the applicability of commonly used pulse-shape figures of merit and possible alternative measures of performance. Nucl. Instr. Meth. 1977 Jul;144:209-214.
10. Winyad RA, Lutkin JE and McBeth GW. Pulse shape discrimination in inorganic and organic scintillators. I. Nucl. Instr. Meth. 1971 Aug;95:141-153.