

# Calibration Method of the Tomographic Gamma Scan Techniques Available for Accurately Characterizing $^{137}\text{Cs}$ from $^{110\text{m}}\text{Ag}$ Interference

## $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 간섭으로부터 $^{137}\text{Cs}$ 정량평가를 위한 드림핵종분석 교정기술

Sung Yeop Jeong\*

GODO TECH Co. Ltd., Rm 746 ITECO, 150 Jojeong-daero, Hanam-si, Gyeonggi-do, Republic of Korea

정성엽\*

(주)고도기술, 경기도 하남시 조정대로 150 ITECO 746호

(Received October 29, 2015 / Revised November 23, 2015 / Approved December 22, 2015)

The Tomographic Gamma Scan (TGS) technique partitions radioactive waste drums into  $10 \times 10 \times 16$  voxels and assays both the density and concentration of radioactivity for each voxel thus providing for improved accuracy, when compared to the traditional Non-Destructive Assay(NDA) techniques. It could decrease the degree of precision measurement since there is a trade-off between spatial resolution and precision. This latter drawback is compensated by expanding the Region of Interest (ROI) that differentiates the full energy peaks, which, in turn, results in an optimized degree of precision. The enlarged ROI, however, increases the probability of interference among those nuclides that emit energies in the adjacent spectrum. This study has identified the cause of such interference for the reference nuclide of the TGS technique,  $^{137}\text{Cs}$  (661.66 keV, half-life 30.5 years), to be  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  (657.75 keV, half-life 249.76 days). A new calibration method of determining the optimized ROI was developed, and its effectiveness in accurately characterizing  $^{137}\text{Cs}$  and eliminating the interference was further ascertained.

Keywords: Radioactive waste characterization, NDA, Tomographic gamma scan, Calibration method of TGS

\*Corresponding Author.

Sung Yeop Jeong, GODO TECH Co. Ltd., E-mail: [atomic@godo-tech.com](mailto:atomic@godo-tech.com), Tel: +82-70-7510-2000

### ORCID

Sung Yeop Jeong <http://orcid.org/0000-0002-7977-0264>

TGS(Tomographic Gamma Scan)분석 기술은 방사성폐기물 드럼을  $10 \times 10 \times 16$ 개의 단위부피로 분할하여 분할단위 마다 밀도 및 방사능 농도를 각각 측정하기 때문에 기존 기술에 비해 높은 분석정확도를 갖는 장점에 비하여 낮은 정밀도를 갖는 단점이 있다. 이를 보완하기 위해 하나의 에너지를 구별하는 전흡수피크(Full Energy Peak)의 범위(ROI : Region of Interest)를 넓게 설정하여 정밀도를 최적화한다. 하지만 전흡수피크의 범위 증가는 인접한 에너지를 방출하는 핵종간 상호간섭이 발생할 확률이 높아진다. 본 연구에서는 TGS분석에서 기준 핵종인  $^{137}\text{Cs}$ (661.66 keV 반감기 30.5 년) 정량분석에 간섭을 일으키는 원인을 규명하였으며 그 원인으로 인접한  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (657.75 keV 반감기 249.76 일)임을 확인하였다. 이러한 간섭을 제거할 수 있는 방안으로 최적화된 ROI를 결정할 수 있는 새로운 교정기술을 개발하였으며 본 교정기술을 적용 후 정확도 검사에서 기준핵종  $^{137}\text{Cs}$ 을 정확히 판정함을 확인하였다.

중심단어: 방사성폐기물 특성분석, 비파괴 분석, 감마선단층분석, 감마선단층분석 교정방법

## 1. 서론

TGS(Tomographic Gamma Scan)분석 기술은 비균질 방사성폐기물 드럼에 대하여 효과적으로 대응하기 위해 분할 측정단위를 최소화하여( $10 \times 10 \times 16$ 개) 측정함으로써 기존 8개로 분할 측정하는 SGS(Segment Gamma Scan) 분석에 비해 동일한 분석시간 하에서 높은 분석 정확도를 갖는다. 하지만 하나의 분할 측정단위에 할당되는 측정시간이 기존 SGS에 비해 짧기 때문에 낮은 정밀도를 갖는 단점이 있다[1,2]. 이러한 낮은 정밀도 특성을 보완하기 위해, TGS는 하나의 에너지를 구별하는 전흡수피크(Full energy Peak)의 범위(ROI ; Region of Interest)를 기존 SGS보다 약 2~3배 넓게 설정한다[3]. 따라서 TGS에서는 넓은 전흡수피크의 범위 때문에 인접한 피크의 상호간섭이 발생할 수 있으며 대표적으로  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (657.75 keV 반감기 249.76 일)과 기준핵종  $^{137}\text{Cs}$ (661.66 keV 반감기 30.5 년)이 상호 간섭을 일으킬 수 있다.

본 연구에서는 방사성폐기물 드럼분석에서 기준핵종인  $^{137}\text{Cs}$  정량평가에 간섭을 일으키는 원인을 규명하기 위해 경과시간에 따른 스펙트럼 비교와 핵종별 붕괴속도 일치 여부를 통하여  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 가 간섭 원인임을 확인하였으며  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 의 간섭을 제거할 수 있는 새로운 교정기술을 개발하였다. 본 교정기술의 유효성확인의 일환으로  $^{137}\text{Cs}$  핵종의 정확도 분석을 수행하였다.

## 2. 본론

### 2.1 원인규명

$^{110\text{m}}\text{Ag}$ 와  $^{137}\text{Cs}$ 을 포함하는 방사성폐기물 드럼에 대하여 TGS분석 기술을 이용하여 각각 폐기물 발생시점 및 4년 경과, 7년 경과 후 두 핵종의 방사능을 측정하였으며 측정결과는 Table 1과 같다. Table 1과 같이 최초  $^{137}\text{Cs}$  측정량에 비해 4년 경과 후 및 7년 경과 후의 측정농도가  $^{137}\text{Cs}$ 의 반감기인 30.5년에 비해 급격히 감소하여 측정결과의 불일치를 확인하였으며 그 원인조사를 수행하였다. 원인규명을 위한 1차 방안으로 측정시점별 스펙트럼 육안검사를 수행하였으며 2차 방안으로 두 핵종의 반감기 차이를 이용하여 경과 시간에 따른 핵종별 붕괴속도 일치여부를 확인하였다.

먼저 1차 육안검사 결과 Fig. 1과 같이 폐기물 발생시점에서 취득한 스펙트럼에서는 높은  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 의 존재량으로 인하여 인접한 두 피크의 간섭이 발생하는데 반하여 7년 경과 후 취득한 스펙트럼에서는 상대적으로 반감기가 짧은  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 의 붕괴로 인하여 간섭현상이 현저히 감소함을 확인할 수 있었다.

Table 1.  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  concentrations by assay calendar time

Nuclide	Specific Activity (Bq/g)		
	Initial Assay	4yr later Assay	7yr later Assay
$^{137}\text{Cs}$	$3.09 \times 10^2$	$9.03 \times 10^0$	$2.53 \times 10^0$
$^{110\text{m}}\text{Ag}$	$3.89 \times 10^2$	$6.96 \times 10^0$	$4.87 \times 10^{-1}$
$^{137}\text{Cs} / ^{110\text{m}}\text{Ag}$	0.794	1.300	5.2400

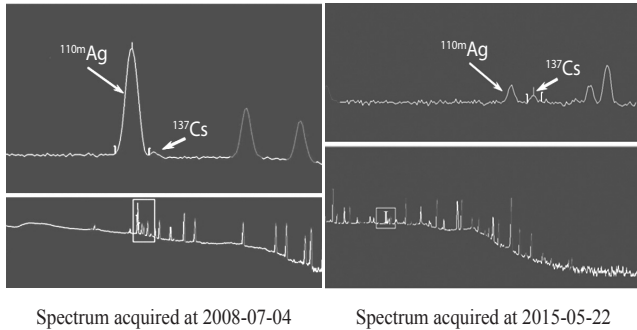


Fig. 1. Spectrum comparison.

상기 1차 원인조사 결과를 바탕으로 2차 조사를 위해 Fig. 2와 같이  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  및  $^{137}\text{Cs}$ 의 경과시간에 따른 측정량과 각 핵종의 이론적 붕괴곡선을 비교하였다. 여기서  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 는 최초 측정량을 기준으로 7년 후까지 이론적 붕괴곡선을 계산하였으며  $^{137}\text{Cs}$ 은 7년 경과 후 측정량을 기준으로 최초 존재량을 계산하여 붕괴도를 작성하였다. 그 이유는 최초 분석 시  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 가  $^{137}\text{Cs}$ 에 비하여 상대적으로 방사능이 높아  $^{137}\text{Cs}$ 의 간섭을 무시할 수 있으며, 7년 경과 시점에서는  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 는 대부분 붕괴되어  $^{137}\text{Cs}$  측정에  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 가 간섭을 일으키지 않기 때문이다.

비교결과  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 의 경우, 최초시점에서 7년 경과까지 측정량과 붕괴곡선이 비교적 잘 일치한다. 그 이유로는 첫째, 드럼 내에  $^{137}\text{Cs}$ 의 상대적 존재량이 매우 작아 간섭을 무시할 수 있었으며, 둘째,  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 는 간섭을 받는 657.76 keV 이외에도 620.36 keV, 677.62 keV, 884.68 keV 등 간섭이 없는 감마선을 측정하여 정확한 방사능 측정이 가능하기 때문이다. 반면  $^{137}\text{Cs}$ 의 경우는 최초시점에서 4년 경과시점까지 측정량은 오히려  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  붕괴곡선에 일치하고 그 이후부터 붕괴 속도가 완만해짐을 확인하였다.

상기와 같은 분석을 통해  $^{137}\text{Cs}$  측정량이 불일치되는 원인은  $^{137}\text{Cs}$ (661.66 keV)에 인접한  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (657.75 keV)의 간섭으로 인하여  $^{137}\text{Cs}$  방사능 측정량이 과대평가됨을 확인하였다.

## 2.2 신 TGS교정기술

감마선 분광분석에서는 핵종의 농도에 비례하는 전흡수 피크의 면적을 계산하는데 가장 중요한 요소로 전흡수 피크의 ROI 설정이 있으며 이 값들은 검출기의 반치폭(FWHM; Full Width at Half Maximum)의 배율로 결정한다. 기존

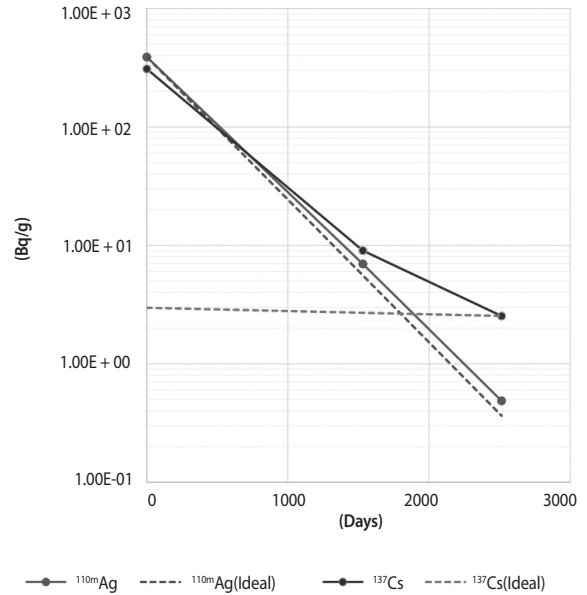


Fig. 2. Decay of nuclides activity in drum.

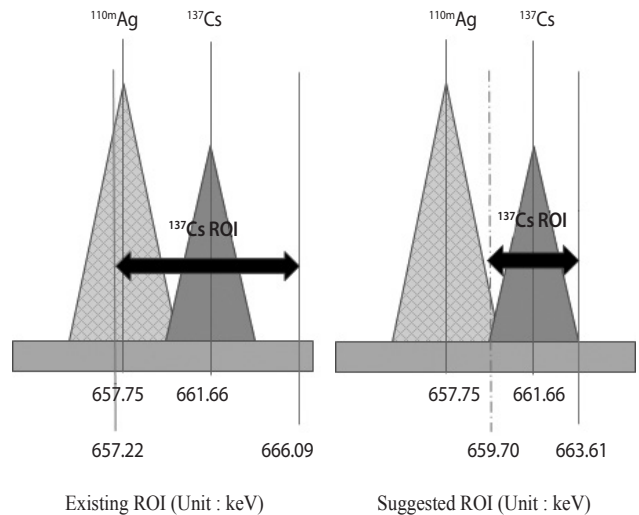


Fig. 3. Comparison between existing and suggested ROI.

TGS 교정기술은 상기 원인규명과 같이  $^{137}\text{Cs}$  전흡수피크의 ROI 설정에  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (657.76 keV)의 간섭이 존재하므로 이를 개선해야 한다.

기존 TGS 교정에서 전흡수피크(Full Energy Peak)의 ROI는 수식 (1), (2)와 같이 반치폭의 3배를 이용하여 결정하며 Fig. 3과 같이  $^{137}\text{Cs}$ 의 전흡수피크 ROI가  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  전흡수피크의 일부를 포함하고 있다[3].

Table 2. Peak ROIs for existing method and suggested method in this study

Item	Nuclide	Energy(E <sub>k</sub> ) (keV)	FWHM(E <sub>k</sub> ) (keV)	ROI	
				Start(keV)	End(keV)
Existing ROI SF=3	<sup>110m</sup> Ag	657.75	1.4747	653.33	662.17
	<sup>137</sup> Cs	661.66	1.4790	657.22	666.09
Suggested ROI SF=1.257	<sup>110m</sup> Ag	657.75	1.5516	655.80	659.70
	<sup>137</sup> Cs	661.66	1.5559	659.70	663.61

$$ROI_{Peak\ Start} = E_{peak} - 3 \times FWHM(E_{peak}) \quad (1) \quad ^{137}\text{Cs과 } ^{110m}\text{Ag의 전흡수피크의 ROI 중첩은 발생되지 않는다.}$$

$$ROI_{Peak\ End} = E_{peak} + 3 \times FWHM(E_{peak}) \quad (2) \quad \mathbf{2.3\ 신\ TGS\ 교정\ 기술의\ 측정\ 정확도\ 시험}$$

전흡수피크 ROI 설정에서 중첩이 발생될 경우, 상호간섭을 방지하기 위해 반치폭의 배율을 최적화해야한다. 신 TGS 교정기술은 기준핵종(Key Nuclide)인 <sup>137</sup>Cs의 전흡수피크의 ROI 설정에 있어서 반치폭 배율을 인접한 두 피크의 에너지 차이의 1/2배를 넘지 않도록 제한하는 것이다. 즉, 기준핵종 반치폭 배율(SF(E<sub>k</sub>))은 수식 (3)과 같이 기준핵종 감마선에너지(E<sub>k</sub>)와 간섭핵종 감마선에너지(E<sub>i</sub>) 차이에 1/2 값을 반치폭의 값으로 나누어 기존 배율(3)보다 작은값으로 제한한다. 이 배율을 이용하여 기준핵종 전흡수피크의 ROI 설정을 각각 수식 (4), 수식 (5)와 같이 계산하여 간섭핵종의 중첩을 방지한다.

$$SF(E_k) = \frac{|E_k - E_i| / 2}{FWHM(E_k)} \quad (3)$$

$$ROI(E_k)_{Peak\ Start} = E_k - SF(E_k) \times FWHM(E_k) \quad (4)$$

$$ROI(E_k)_{Peak\ End} = E_k + SF(E_k) \times FWHM(E_k) \quad (5)$$

여기서 두 피크의 에너지 차이 값의 1/2배는 중첩되지 않는 범위에서 둘 중 어떤 한 개의 피크가 가질 수 있는 이론적인 최대 범위이다. 여기서 수식 (3)에 의해 계산한 반치폭의 배율이 3 보다 크면 반치폭 배율은 3으로 고정하고, 1 < SF(E<sub>k</sub>) < 3 이면 계산된 값으로 반치폭의 배율을 정하고, SF(E<sub>k</sub>) < 1 이면, 두 피크는 구분할 수 없다.

신 TGS교정기술로 <sup>137</sup>Cs 핵종에 대한 전흡수피크의 새로운 ROI는 Table 2와 같으며 기존 TGS교정기술과 비교할 때

신 TGS교정기술을 적용하면 결론적으로 기존 TGS교정기술에 비하여 <sup>137</sup>Cs 핵종의 전흡수피크 ROI가 축소된다. 이러한 설정에서 <sup>137</sup>Cs 핵종에 대한 분석 신뢰도가 유지되는지 확인하여 위해 인증표준물질 (CRM ; Certified Reference Material) 과 교정용 드럼(균질매질드럼)을 이용하여 선원 인증값과 분석결과가 일치하는지 확인하였다.

수행방법은 일반적으로 TGS 분석보다 핵종 분해능이 우수한 SGS 분석기술과 상호 비교하였으며 각각은 고선량 측정기하(TGS-FON ; Far detector position, Open shield, Narrow open collimator geometry)와 저선량 측정기하(TGS-NOW : Near detector position, Open shield, Wide open collimator Geometry)에서 정확도 시험을 수행하였다. 또한 두 가지 표준용기를 이용하여 총 8회 분석을 실시하였다. 본 시험에서는 SGS분석과 정확도 비교를 위해 균질한 매질의 교정용 드럼을 사용하였다. 참고로 TGS분석은 비균질 매질에서 SGS보다 월등한 정확도를 갖는다.

TGS분석의 2가지 측정기하는 저선량 측정기하(TGS-NOW)와, 고선량 측정기하(TGS-FON)으로 구성되고 SGS분석의 2가지 측정기하는 저선량 측정기하(SGS-NOW)와 고선량 측정기하(SGS-FON)으로 구성된다. 또한 표준용기는 200 리터 교정용 드럼과 320리터 교정용 드럼으로 구성되며 드럼 내부에는 동일한 인증표준물질을 포함하여 분석하였다. 분석결과, 측정값과 선원 인증값의 방사능 비율은 Table 3 과 같으며 신 TGS교정기술이 적용된 TGS분석에서도 <sup>137</sup>Cs 핵종에 대한 정량평가가 ±10%이내에서 정확도가 유지됨을 확인하였다.

Table 3. TGS Accuracy Test Results

Container Volume	$^{137}\text{Cs}$ Activity Ratio (Measured Value/Reference Value)			
	TGS		SGS	
	NOW <sup>1)</sup>	FON <sup>2)</sup>	NOW	FON
200	0.93	0.99	1.00	0.98
320	0.96	0.95	1.01	0.97

<sup>1)</sup> NOW : Near position, Open shield, Wide collimator geometry

<sup>2)</sup> FON : Far position, Open shield, Narrow collimator geometry

### 3. 결론

본 연구는  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 과  $^{137}\text{Cs}$ 을 포함하는 방사성폐기물 드럼에 대하여 TGS분석으로 폐기물 특성평가를 수행할 때 분석시점에 따라  $^{137}\text{Cs}$ 의 정량평가가 불일치하는 문제점이 발견되어 그 원인조사를 수행하였으며, 스펙트럼 육안검사를 통하여  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 의 간섭 개연성을 확인하였고 두 핵종에 대한 폐기물 발생초기 및 4년 후, 7년 후의 측정결과와 붕괴곡선의 일치 여부를 통하여 최종적으로  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 의 간섭을 확인하였다.

이러한 간섭현상은 모든 전흡수피크의 ROI 설정을 반치폭의 3배로 고정화한 기존 TGS 교정기술 때문임을 확인하였으며 최적의 ROI 설정을 위하여 신 TGS교정기술을 개발하였다. 신 TGS교정기술은 전흡수피크의 ROI를 계산하는 반치폭의 배율을 결정하는데 있어 인접한 두 피크의 에너지 차이의 1/2배를 넘지 않도록 제한하는데 있다.

이러한 신 TGS교정기술의 유효성을 확인하기 위해 그 일환으로 정확도 시험을 실시하였다. 시험방법은 2가지 측정방법(TGS, SGS)에 대하여 각각 2가지 측정기하(저선량, 고선량)를 이용하여 2가지 표준용기(200 리터, 320 리터)에 동일한 방사능 인증표준물질(CRM)을 탑재하여 총 8회 분석을 수행하였으며 그 결과 신 TGS교정기술을 이용한 TGS분석에서도 SGS분석과 마찬가지로  $^{137}\text{Cs}$ 을  $\pm 10\%$ 이내에서 정확히 분석함을 확인하였다. 향후 TGS교정방법의 유효성 확인을 완성하기 위해 정밀도 검사 및 측정불확도 평가, 측정하한 평가 등을 수행할 예정이다.

### 감사의 글

본 연구는 한국원자력환경공단과 한국수력원자력주식

회사의 도움으로 수행되었습니다.

### REFERENCES

- [1] R. Venkataraman, M. Villani, S. Croft, P. McClay, R. McElroy, S.C. Kane, W. Mueller, and R.J. Estep, "An Integrated Tomographic Gamma Scanning System for Non-Destructive Assay of Radioactive Waste", Proc. of 11<sup>th</sup> Symposium on Radiation Measurement and Application. Vol. 579, Issue 1, 357~379, August 21, 2007, Ann Arbor, MI.
- [2] R. Venkataraman, S. Croft, M. Villani, and R.J. Estep, "Performance Study of the Tomographic Gamma Scanner for the Radioassay of Drums", Proc. of 45<sup>th</sup> Annual INMM Meeting, 18~22, July 2004, Orlando, FL.
- [3] R. Venkataraman, M. Villani, S. Croft, P. McClay, R. McElroy, and S.C. Kane, "NDA System KHNP TGS Calibration and Verification", Procedures Manual (2006).