

원자력시설의 해체시 발생하는 폐기물의 방사능 분석법 연구

The Study for Radioactivity Evaluation of Wastes Produced by Decommissioning of Nuclear Facilities

서범경, 정운수, 정기정
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

서울 공릉동에 위치한 연구로 1, 2호기의 해체로 인한 방사성 폐기물은 자체처분 규정을 만족할 만한 아주 낮은 농도의 방사성 물질을 함유한 폐기물이 많다. 그러나, 현재 규제면제 대상 폐기물이나 비방사성 폐기물로 분류된 폐기물에 대한 종류별 수량 및 농도 확인이 체계적으로 수행되지 않고 있는 실정이다. 사실 정확한 방사능을 결정하기 위해서는 측정시료의 기하학적 조건 및 밀도에 따라서 검출효율을 결정하여야 한다. 그러나 측정시료와 동일한 기하학적 조건 및 밀도를 가지는 표준선원을 이용하여 효율을 결정한다는 것을 사실상 불가능하다. 본 연구에서는 다양한 기하학적 모양의 측정용기에 대해 효율을 결정하였고, 측정시료의 밀도변화에 따른 효율을 변화정도를 결정하여 Monte Carlo 방법에 의한 계산치와 비교하였다.

Abstract

Radioactive wastes produced by decommissioning of research reactor 1 & 2 located in Kongrung-dong, Seoul are mostly low-level wastes. Most of all are satisfiable self disposal regulation. But, identification of radioactivity for non-radioactive waste or free release waste was not systematically accomplished. In order to determine exact radioactivity counting efficiency according to geometrical condition and density must be determined. It is impossible to determine efficiency for counting sample using standard source with same geometrical condition and density. In this study, measuring efficiencies were determined with various counting containers and densities. Also, they were compared with Monte Carlo calculation.

1. 서론

한국원자력연구소의 대전 이전과 다목적 연구용 원자로인 하나로(HANARO)가 정상가동됨에 따라 서울 공릉동에 위치한 연구로 1, 2호기의 효용성이 상실되어 현재 해체작업이 수행 중에 있다. 해체업무에서 가장 중요한 것 중의 하나는 해체시 발생하는 대량의 방사성 폐기물을 효과적으로 처리하여 관리하는 것이다. 해체공사는 국내 법규 및 국제 규제요건에 따라 수행될 것이며, 작업자 및 주민의 피폭선량을 ALARA 원칙에 따라 최소화하므로서 작업자 및 주민의 안전과 환경을 보호하고, 나아가 방사성 폐기물 발생량은 가능한한 최소화하는 것이 목적이다.

방사성 폐기물은 다양한 핵종성분 및 방사능을 가지고 있으므로, 개개의 방사성 폐기물의 처리방법을 결정하기 위해서는 방사성 폐기물 관리절차에 따라 개별적인 평가를 수행하여야 한다. 여기에는 시료채취, 표면오염도 조사, 주요 핵종 분석, 방사능 측정 및 평가 등이 포함된다. 또한, 연구로 1호기 및 2호기의 해체로 발생하는 방사성 폐기물 중에는 규제면제 및 자체처분 규정을 만족할 만한 아주 낮은 농도의 방사능 물질을 함유한 폐기물이 많다. 이들을 일반 폐기물로 처분하기 위해서는 대상 폐기물에 대한 방사능 농도의 정확한 측정과 평가가 선행되어야 한다.

측정 대상의 방사능 농도는 측정의 정확성 뿐만 아니라 평가방법에도 크게 의존한다. 규제면제의 타당성을 검증하기 위한 시료채취 및 분석방법은 다음의 두가지 단계로 구분할 수 있다[1]. 먼저, 대상 폐기물을 그 종류 및 발생원에 따라 가능한 한 균일하게 분류한 뒤, 채취한 시료를 측정하고, 해당 물질의 이력을 고려하여 측정 방법, 적절한 기기 및 검교정 방법을 선정해야한다.

현재 발생되고 있는 폐기물은 방사성 폐기물, 규제면제 폐기물 및 비방사성 폐기물로 분류하고 있다. 자체처분하고자 하는 규제면제 폐기물이나 비방사성 폐기물 모두는 과기부 고시[2]에 의거하여 처분제한치 미만이어야 하며, 처분시점에서 규정의 제반기준을 만족하여야 한다. 처분제한치라 함은 개인에 대한 연간 피폭방사선량이 10 μ Sv 이상이거나 집단에 대한 연간 총 피폭방사선량이 1 man·Sv 이상으로 과학기술부장관이 정하는 허용기준 및 핵종별 농도 이상을 말한다. 상기 규정에 의하면 자체처분 폐기물의 발생원, 종류 및 수량, 표면선량률 및 방사능 농도, 그리고 부수적으로 발생하는 폐기물의 수량 등이 확인되어야 한다. 그러나 현재 규제면제 대상 폐기물이나 비방사성 폐기물로 분류된 폐기물에 대한 종류별 수량 및 농도 확인이 체계적으로 수행되지 않고 있다.

자체처분 대상의 폐기물은 방사능 준위가 아주 낮기 때문에 측정 시 많은 양의 시료가 요구된다. 즉, 시료량의 증가로 인하여 방출된 감마선이 시료 자체에서 산란되거나 흡수될 확률이 증가하게 되므로 검출기에 도달할 확률은 감소하게 된다. 이러한 자체흡수효과를 보정하기 위해서는 측정시료의 기하학적 조건 및 밀도에 따른 효율을 보정하여야한다. 대부분의 측정에서 기하학적인 조건은 표준선원과 동일한 측정용기를 사용하므로서 해결될 수 있다. 그러나 원자로 해체와 같이 다양한 종류(종이류, 유리류, 철재류, 고밀도 콘

크리트 등)의 폐기물을 측정대상으로 할 경우에는 측정시료와 동일한 기하학적 조건 및 밀도를 가지는 표준선원을 이용하여 효율을 결정한다는 것은 사실상 불가능하다.

이러한 문제점을 해결하기 위하여 본 연구에서는 다양한 기하학적 모양의 측정용기에 대한 HPGe 검출기의 전에너지 피크효율의 측정하여, Monte Carlo 방법에 의한 계산치와 비교하였다. 또한 다양한 밀도에 대한 자체흡수효과를 평가하기 위하여 수용액 상태의 표준선원에 용해도가 높고 밀도가 큰 NaI를 첨가하면서 밀도차이에 따른 검출기의 효율을 결정하였고, Monte Carlo 방법에 의한 계산결과와 비교하였다.

2. 재료 및 방법

다양한 기하학적 모양의 측정용기에 대한 HPGe 검출기의 전에너지 피크효율은 원통형(직경 60 mm, 높이 30 mm, 55CB) 및 Marinelli형 (450 및 1000 ml, 각각 450MB, 1000MB) 표준선원을 이용하여 측정하였다. 연구용 원자로(HANARO)에서 중성자로 조사시킨 시약을 사용하여 표준선원을 제조하였다. Table 1에 방사화 시약 및 핵종, 에너지 그리고 방출률 등을 나타내었다. 이들 시약은 시중에서 쉽게 구할 수 있는 것이며, 원자로에서 실험조건 등을 고려하여 약 1분간 조사시킨 후에 용매로 녹인 다음 혼합하여 제조하였다.

Table 1. Nuclear data of standard sources and reagent

| Nuclides | Half-life | Photon energy (keV) | Intensity (%) | Reagent | Solvent |
|-------------------|-----------|---------------------|---------------|---|-------------|
| ¹⁴⁷ Nd | 10.98 d | 91.11 | 27.90 | Nd ₂ O ₃ | Nitric acid |
| | | 531.02 | 13.09 | | |
| ¹⁴¹ Ce | 32.50 d | 145.44 | 48.20 | Ce(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O | Water |
| ¹³⁴ Cs | 2.06 y | 604.70 | 97.56 | Cs ₂ CO ₃ | Water |
| | | 795.85 | 85.44 | | |
| ⁶⁰ Co | 5.27 y | 1173.24 | 99.88 | CoCl ₂ | Water |
| | | 1332.50 | 99.98 | | |

실험에 사용한 검출기는 EG&G ORTEC 사의 동축형 HPGe 검출기이다. Ge 결정은

직경이 54.0 mm이고, 길이가 49.5 mm이며, ^{60}Co 의 1332.5 keV 감마선에 대하여 에너지 분해능은 1.8 keV, 상대효율은 20%, 그리고 피크 대 콤프턴(peak-to-compton) 비는 51이다.

원통형 측정용기의 시료의 높이에 따른 효율의 변화정도를 알아보기 위하여 20 mL에서 60 mL까지 10 mL 단계로 표준용액의 양을 증가하면서 효율을 결정하였다. 모든 측정결과는 Monte Carlo 방법에 의한 계산효율과 비교하였다.

밀도의 차이로 인한 자체흡수 효과를 평가하기 위하여 준비한 표준선원 용액에 NaI를 첨가하였다. NaI는 물 1 mL에 약 2g 정도가 녹을 정도로 용해도가 높고, 밀도가 $3.67 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 으로 클 뿐만 아니라 저에너지에서 감마선에 대한 자체흡수가 큰 요오드(iodine) 때문에 선택하였다.

먼저 비커에 1 L의 표준선원 용액을 준비한 다음에 일정량의 NaI를 첨가하여 부피를 측정하여 밀도를 결정한 뒤, 측정용기에 담아서 HPGe 검출기로 계측효율을 결정하였다. 이러한 절차를 수회 반복하여 밀도가 $1.6 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 가 될 때까지 실험을 수행하였다. 또한 측정시 통계오차를 1% 미만으로 줄이기 위하여 용기별로 3000초에서 10000초 까지 측정하였으며, 매 측정마다 5회 반복 측정하였다.

HPGe 검출기의 전에너지 피크효율을 계산하기 위하여 사용한 Monte Carlo 코드는 다양한 분야에 적용할 수 있는 MCNP이다. MCNP는 초기에 중성자 수송을 위하여 개발된 코드이지만, 최근에는 전자와 광자에까지 적용되고 있다. 본 연구에서는 광자 모드만을 사용하여 원통형과 Marinelli형(450 및 1000 ml) 측정용기에 대해 전에너지 피크효율을 계산하였다.

모든 효율계산에 대해 채널폭은 실제 측정의 에너지 폭과 맞추기 위하여 0.5 keV로 정하였다. 측정효율은 피크 계수치에서 이웃 에너지 빈(bin)의 계수치 평균을 소거하여 얻었다. 실험과 계산에서 전에너지 피크효율에 대하여 통계적 정밀도는 결과의 타당성을 확신하기 위해서 3% 이하로 유지하였다.

3. 결과 및 논의

방사능 분석에서 가장 우선시 되어야 할 것이 측정시료에 대한 정확한 효율을 결정하는 것이다. 여기서는 방사능 분석에서 주로 이용되는 있는 세가지 측정용기에 대한 효율을 결정하였다. 원자로에서 조사한 시약을 녹여서 직접 제조한 표준선원을 측정용기에 채운 후, HPGe 검출기를 이용하여 측정한 효율은 각 용기에 대해 Fig. 1과 같다. 원통형 측정용기(55CB)가 Marinelli 형 측정용기(450MB, 1000MB)보다는 측정효율이 큰 것을 볼 수 있다. 그러나, 원통형 용기보다는 Marinelli 용기에 10배 이상의 시료를 담을 수 있기 때문에 동일한 계측조건에서는 Marinelli 형 측정용기의 사용이 권장된다.

Table 2는 세가지 측정용기에 대한 측정효율을 Monte Carlo 방법을 이용하여 계산한

효율과 비교한 것이다. 측정효율은 계산한 결과와 상대오차 10 % 내외에서 아주 잘 맞는 것을 확인할 수 있다. 이는 측정시료의 정확한 기하학적 조건만 알 수 있다면, 표준선원을 이용하여 효율을 교정하지 않고도 Monte Carlo 방법에 의하여 계산함으로써 큰 오차없이 측정효율을 평가할 수 있다는 것을 알 수 있다.

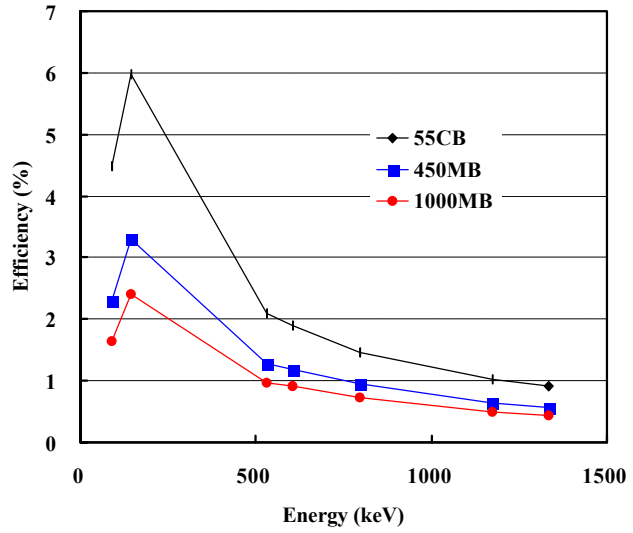


Fig. 1. Measuring efficiencies in the various counting containers

Table 2. Comparison between measured efficiency and calculated one in the counting containers.

| Counting Efficiencies | | | | | | | | | |
|-----------------------|--------|---------|----------|-------|-------|-------|--------|-------|--------|
| Energy (keV) | 55CB | | | 450MB | | | 1000MB | | |
| | ME*(%) | CE**(%) | RE***(%) | ME(%) | CE(%) | RE(%) | ME(%) | CE(%) | RE(%) |
| 91.11 | 4.48 | 4.47 | -0.22 | 2.29 | 2.48 | 8.14 | 1.65 | 1.79 | 8.50 |
| 145.44 | 5.97 | 5.67 | -5.02 | 3.29 | 3.36 | 2.15 | 2.41 | 2.46 | 2.11 |
| 531.02 | 2.10 | 1.98 | -5.86 | 1.27 | 1.25 | -1.33 | 0.96 | 0.92 | -3.79 |
| 604.70 | 1.89 | 1.76 | -6.78 | 1.19 | 1.12 | -5.78 | 0.91 | 0.85 | -6.88 |
| 795.85 | 1.47 | 1.44 | -2.10 | 0.94 | 0.87 | -8.20 | 0.73 | 0.64 | -12.52 |
| 1173.24 | 1.02 | 1.02 | 0.17 | 0.65 | 0.64 | -1.12 | 0.50 | 0.47 | -5.79 |
| 1332.50 | 0.91 | 0.91 | 0.74 | 0.57 | 0.60 | 5.63 | 0.44 | 0.46 | 2.81 |

* Measured efficiency, ** Calculated efficiency, *** Relative error

측정대상의 시료량은 항상 일정한 것이 아니기 때문에, 측정시료와 동일한 부피의 표준선원을 이용하여 효율교정을 하여야한다. Fig. 2는 원통형 측정용기(55CB)에서

시료량에 따른 측정효율의 변화정도를 나타낸 것이다. 점들은 시료량에 따른 효율을 나타낸 것이고, 실선은 이들 점들을 2차 다항식으로 짜맞춤(fitting)한 것이다. 전에너지 영역에 대하여 시료량이 증가할수록 효율은 감소하는 것을 볼 수가 있다. 에너지 영역에 따라서 효율의 감소정도는 차이가 나지만 시료량이 10 mL 정도(높이는 ~3.5 mm) 증가하므로써 효율은 대략 10 %정도 감소하였다. 즉, 원통형 측정용기를 이용하여 방사능을 결정하고자 할 경우에는 각 측정시료의 부피에 대한 정확한 효율을 결정하여야 한다. 그렇지 않으면 원하는 결과를 얻게 될 것이다.

원통형 측정용기의 시료량에 따른 효율 또한 Monte Carlo 방법을 이용하여 계산하였는데, 계산결과는 측정효율과 10 % 오차범위 이내의 값이었다. 즉, 측정시료와 동일한 시료량의 표준선원을 이용하여 실험적으로 효율을 결정하지 않고서도, Monte Carlo 계산으로 큰 오차없이 효율을 결정할 수 있다는 것을 알 수 있다.

체적시료에서는 자체흡수 효과에 의하여 시료의 겉보기 밀도에 따라 측정효율이 달라지게 된다. 그러나, 같은 밀도에 대해서 화학적 성분의 차이로 인한 효율변화는 무시할 수 있다고 보고되었기 때문에[3], 본 연구에서는 고려하지 않았다.

통상의 방사능 분석실험실에서는 밀도가 1.0 g/cm^3 인 수용액 상태의 표준선원을 이용하여 효율 교정을 한 후, 다른 밀도의 측정시료에 대해서도 동일한 효율을 적용하고 있는 실정이다. 이러한 표준선원과 측정시료의 밀도차이로 인한 효율의 변화정도를 알아보기 위하여 표준용액의 밀도를 변화시키면서 효율을 결정하였다. Fig. 3, 4, 그리고 5는 세가지 측정용기(원통형, 450 mL 그리고 1000 mL Marinelli 비커)에서 $1.0 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 에서 $1.6 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 까지 밀도를 변화시키면서 측정한 효율을 나타낸 것이다. 각 용기별로 밀도의 증가로 인한 효율의 감소정도는 거의 유사한 경향을 가지고 감소하는 것을 알 수가 있는데, 각각의 그림에서 볼 수 있는 바와 같이 낮은 에너지 영역(<200 keV)에서는 밀도가 증가할수록 효율은 급격히 감소하지만, 500 keV 이상의 감마선에 대해서는 밀도의 증가에 따른 효율의 변화정도는 아주 작다는 것을 알 수 있다. 예로서, 밀도가 $1.0 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 인 경우와 $1.6 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 인 경우에 대해 효율의 차이를 비교해 보면, 91.11 keV 감마선에 대해서는 원통형과 1000 mL Marinelli 비커의 경우는 200 % 이상의 차이를 보이고 있으며, 450 mL Marinelli 비커의 경우는 약 150 %

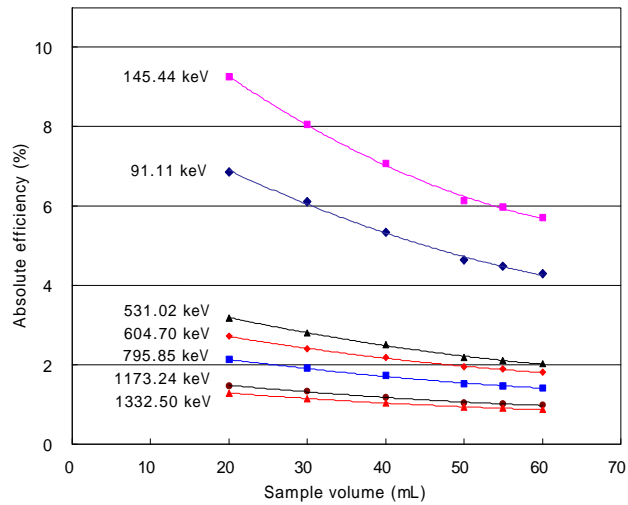


Fig. 2. Efficiency variation with sample volume in cylindrical container.

정도의 차이를 보인다. 또한, 145.44 keV 감마선에 대해서는 세가지 측정용기에 대하여 거의 40 ~ 50 %의 효율차이를 보이고 있다. 그러나 500 keV 이상의 감마선에 대해서는 세가지 측정용기에서 밀도 $1.0 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 과 $1.6 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 의 효율차이는 5 % 이하였다.

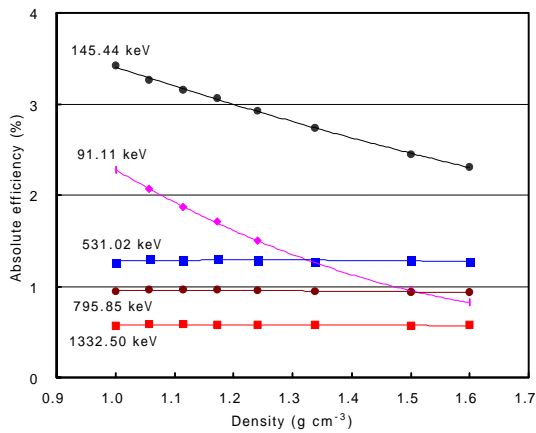


Fig. 4. Efficiency variation with sample density in 450 mL Marinelli beaker.

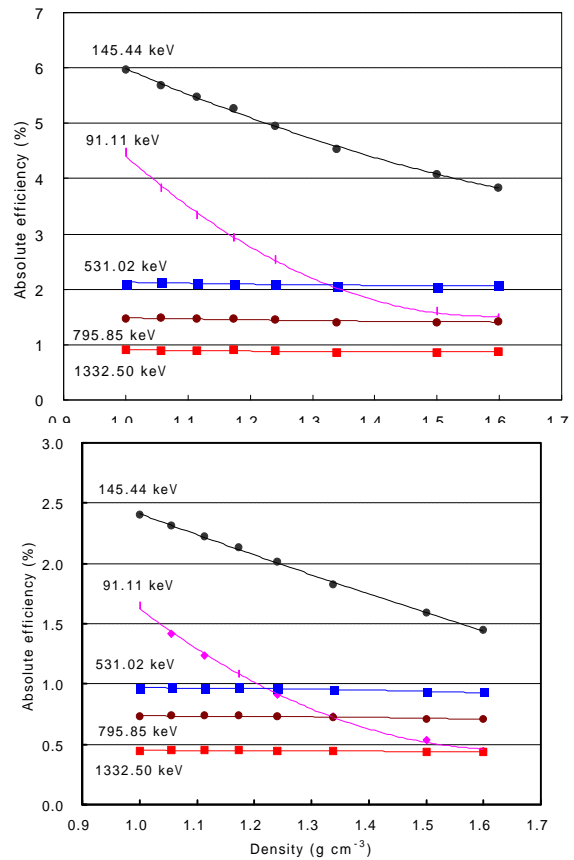


Fig. 5. Efficiency variation with sample density in 1000 mL Marinelli beaker.

밀도변화에 따른 효율의 변화정도가 500 keV 이하의 낮은 에너지 영역에서 아주 크다는 것을 알 수가 있는데, 이는 밀도를 변화시키기 위하여 첨가한 NaI의 I(iodine)가 저에너지 감마선에 대한 흡수가 크기 때문이다.

이상의 실험을 통하여 알 수 있듯이, 통상의 방사능 측정실험실에서 수행하고 있는 밀도가 $1.0 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 인 수용액을 이용하여 효율교정을 한 후, 밀도가 큰 시료에 그대로 적용한다면, 높은 에너지 영역에 대해서는 통상적인 오차범위 이내의 값으로 결과를 얻을 수 있겠지만, 낮은 에너지 영역에서는 원하지 않는 결과를 초래할 것이다.

위와 마찬가지로 표준시료의 밀도변화에 대한 효율을 MCNP 코드를 이용하여 계산하였으며, 그 결과는 Table 3과 같다. 모든 측정효율에 대해 계산을 하였지만, Table 3에는 450 mL Marinelli 측정용기의 몇가지 밀도에 대하여 측정값과 계산값을 비교하였다. 실제 측정값과 계산값은 상대오차 10 % 내외로 잘 맞고 있다.

Table 3. Comparison between measured efficiency and calculated one with sample density in the 450 mL Marinelli beaker

| Energy (keV) | 1.11 g/cm ³ | | | 1.34 g/cm ³ | | | 1.60 g/cm ³ | | |
|-----------------|------------------------|-----------|-----------|------------------------|-----------|-----------|------------------------|-----------|-----------|
| | ME (%) | CE (%) | RE (%) | ME (%) | CE (%) | RE (%) | ME (%) | CE (%) | RE (%) |
| 91.11 | 1.87 | 1.97 | 5.23 | 1.25 | 1.29 | 3.38 | 0.83 | 0.83 | 0.67 |
| 145.44 | 3.16 | 3.13 | -0.99 | 2.74 | 2.71 | -1.12 | 2.31 | 2.26 | -2.31 |
| 531.02 | 1.29 | 1.24 | -4.15 | 1.27 | 1.22 | -4.09 | 1.27 | 1.19 | -6.67 |
| 604.70 | 1.21 | 1.12 | -7.60 | 1.18 | 1.09 | -7.53 | 1.17 | 1.07 | -8.62 |
| 795.85 | 0.96 | 0.86 | -10.15 | 0.94 | 0.85 | -9.49 | 0.94 | 0.84 | -10.81 |
| 1173.24 | 0.65 | 0.64 | -2.46 | 0.64 | 0.63 | -1.58 | 0.64 | 0.62 | -2.52 |
| 1332.50 | 0.58 | 0.60 | 2.17 | 0.57 | 0.59 | 3.20 | 0.57 | 0.59 | 2.41 |

4. 결론

연구용 원자로의 해체 현장에서 발생하는 자체처분 대상의 폐기물은 방사능 준위가 아주 낮기 때문에 측정 시 많은 양의 시료가 요구된다. 이러한 저준위 방사능 측정에서는 많은 양의 시료를 담을 수 있는 원통형과 Marinelli 형의 측정용기가 주로 사용된다. 또한 이러한 체적시료의 경우는 자체흡수 효과에 의한 보정을 해주어야 한다. 또한 원자로 해체와 같이 다양한 종류의 폐기물을 측정대상으로 할 경우에는 측정시료와 동일한 기하학적 조건 및 밀도를 가지는 표준선원을 이용하여 효율을 결정한다는 것은 사실상 불가능하다. 이러한 문제점을 해결하기 위하여 본 연구에서는 이러한 측정시료의 기하학적인 조건과 밀도 차이에 의한 효율의 변화정도를 살펴보았으며, 또한 모든 측정 결과는 Monte Carlo 방법으로 계산한 결과와 비교하였다.

측정시료의 부피에 따른 효율의 변화정도를 살펴보기 위하여 원통형 측정용기에 표준용액의 양을 증가시키면서 효율을 측정하였다. 에너지 영역에 따라서 효율의 감소는 어느정도 차이가 나지만 시료량이 10 mL 정도(높이는 ~3.5 mm) 증가하므로써 효율은 대략 10 %정도 감소하였다. 또한 MCNP 코드를 이용하여 계산한 효율은 측정값과 상대오차 10 % 내외의 범위였다.

또한 밀도변화에 따른 효율의 변화정도를 조사하기 위하여, 세가지 측정용기(55 mL C.B., 450 mL 그리고 1000 mL M.B.)에서 1.0 g · cm⁻³에서부터 1.6 g · cm⁻³까지 밀도를

변화시키면서 측정하였다. 그 결과, 세가지 측정용기(원통형, 450 및 1000 mL Marinelli 비커) 모두다 밀도가 $1.0 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 인 통상의 표준선원을 사용하여 교정한 후 밀도변화에 따른 자체흡수 효과를 보정하지 않고 일반적인 환경시료에 적용할 경우, 높은 에너지 영역(500 keV 이상)에 대해서는 5 % 이내의 오차범위로 방사능을 결정할 수 있겠지만, 낮은 에너지 영역에서는 수십 % 이상의 오차가 발생하게 되어 원하지 않는 결과를 얻게 될 것이다. 동일한 측정값에 대하여 Monte Carlo 방법으로 계산한 효율은 10 % 정도의 오차범위 이내로 결정할 수 있었다.

표준선원을 이용하여 검출효율을 결정하고 실제 시료에 적용하기 위해서는 측정시료의 기하학적 조건과 밀도가 표준선원과 동일해야한다. 그러나, 모든 높이와 밀도에 대해서 표준선원을 이용하여 효율을 결정한다는 것은 절차가 복잡하고 많은 노력이 필요하다. 따라서 본 연구에서 계산한 Monte Carlo 방법에 의한 효율결정은 간단할 뿐만 아니라 수퍼센트 오차범위 이내로 다양한 분야에 적용될 수 있을 것이다.

참고문헌

- [1] IAEA-TECDOC-855
- [2] 과기부 고시 제2001-30호, “방사성폐기물의 자체처분에 관한 규정”, 과학기술부, 2001.
- [3] F. Sánchez, E. Navarro, J.L. Ferrero, A. Moreno, C. Roldán, A. Baeza and J. Panigaua, "A Monte Carlo based method of including gamma self-absorption for the analysis of environmental samples", *Nucl. Instr. Meth.*, B61, 535-540 (1991).