

A Study on the Radioactivity Analysis of Decommissioning Concrete Using Monte Carlo Simulation

Monte Carlo 모사기법을 이용한 해체 콘크리트의 방사능 분석법 연구

Bum-Kyoung SEO, Gye-Hong KIM, Un-Soo Chung, Kune-Woo LEE, Won-Zin OH, Jin-Ho Park
Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Deok-Jin Dong, Yuseong-Gu, Daejeon

서범경, 김계홍, 정운수, 이근우, 오원진, 박진호
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

Abstract

In order to decommission the shielding concrete of KRR(Korea Research Reactor)-1&2, it must be exactly determined activated level and range by neutron irradiation during operation. To determine the activated level and range, it must be sampled and analyzed the core sample. But, there are difficulties in sample preparation and determination of the measurement efficiency by self-absorption. In the study, the full energy efficiency of the HPGe detector was compared with the measured value using standard source and the calculated one using Monte Carlo simulation. Also, self-absorption effects due to the density and component change of the concrete were calculated using the Monte Carlo method. Its results will be used radioactivity analysis of the real concrete core sample in the future.

Key Words : decommissioning, Monte Carlo simulation, radioactivity, HPGe, self-absorption,

요약

현재 해체가 진행 중인 연구로 1, 2호기의 원자로 차폐 콘크리트를 해체하기 위해서는 운전기간 동안 중성자 조사에 의한 방사화 정도 및 범위를 정확하게 결정하여야 한다. 차폐 콘크리트의 방사화 정도 및 범위를 결정하기 위해서 코어 시료를 채취하여 분석하여야 하는데, 시료 전처리의 어려움과 표준선원의 준비 및 자체흡수효과에 의하여 정확한 측정효율을 결정하는데 어려움이 있다. 본 연구에서는 방사능 분석에 이용되는 HPGe 검출기의 전에너지 검출 효율을 표준선원을 이용한 측정값과 Monte Carlo 방법을 이용하여 계산값을 비교하였다. 또한, Monte Carlo 모사 기법을 이용하여 콘크리트의 밀도 및 성분 변화에 따른 자체흡수 효과를 계산하였으며, 향후 실제 콘크리트 코어 시료를 채취 시 방사능 분석에 이용할 계획이다.

중심단어 : 해체, Monte Carlo 모사, 방사능, HPGe, 자체흡수

1. 서 론

한국원자력연구소의 대전 이전과 다목적 연구용 원자로인 하나로(HANARO)가 1995년에 가동됨에 따라 서울 공릉동에 위치한 연구로 1, 2호기의 효용성이 상실되어 해체작업이 진행 중에 있으며, 현재는 연구로 2호기 원자로의 콘크리트 차폐체 해체를 준비 중에 있다. 해체 작업에서 가장 중요한 것 중의 하나는 해체 시 발생하는 대량의 폐기물을 효과적으로 처리하여 관리하는 것이다. 해체 시 발생하는 폐기물은 다양한 핵종과 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.

특히, 해체 예정인 원자로 차폐 콘크리트는 방사화 콘크리트와 비방사화 콘크리트를 구분하여 제거하여야 하며, 이들은 각각 저준위 또는 규제해제 폐기물로 처리된다. 그러므로, 원자로 콘크리트를 해체하기 전에 운전기간 동안 중성자 조사에 의한 정확한 방사화 범위를 결정하기 위하여, 콘크리트 코아 시료를 채취하여 분석하여야 한다. 이들 코아 시료들을 방사능 분석하기 위해서는 측정용기 충전할 수 있도록 분쇄과정을 거쳐야 하며, 정확한 방사능을 분석하기 위하여 시료와 동일한 표준선원을 이용하여 검출기의 측정효율을 교정하여야 한다. 그러나, 콘크리트 코아 시료는 분쇄와 같은 시료 전처리가 쉽지 않을뿐더러 측정시료와 동일한 표준선원을 이용하여 효율을 교정한다는 것은 매우 어려운 일이다.

또한, 체적선원(voluminal source)의 경우는 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 검출기의 측정효율을 보정하여야 한다. 자체흡수 효과는 시료의 겉보기 밀도에 주로 의존하며, 효율 교정시 대부분의 경우에 밀도가 1.0 g/cm^3 인 수용액 상태의 표준선원을 사용하므로, 표준선원과 측정시료의 밀도 차이로 인한 시료 내에서 자체흡수 효과의 차이로 방사능 분석 시 많은 오차를 야기시킨다.

이러한 자체흡수 효과를 평가하기 위하여 Sánchez et al.[1]은 Petri vial과 Marinelli 비커에서 Monte Carlo 계산을 이용하여 자체흡수 효과를 계산하였고, Cutshall et al.[2], Kitto[3], 그리고 Ramos-Lerate et al.[4]은 원통형 용기에 토양시료를 충전한 뒤, 직접 투과법을 이용하였다. 그리고, Debertain et al.[5]과 Dryák et al.[6]은 Marinelli 비커에서의 자체흡수 효과를 연구하였다. 대부분의 측정에서 기하학적인 조건은 표준선원과 동일한 측정용기를 사용함으로써 해결될 수 있다. 그러나 원자력 시설의 해체와 같이 다양한 종류 (종이류, 유리류, 철재류, 콘크리트 등)의 폐기물을 측정대상으로 할 경우에는 측정시료와 동일한 기하학적 조건 및 밀도를 가지는 표준선원을 이용하여 효율을 결정한다는 것은 사실상 불가능하다. 이러한 문제점을 해결하기 위하여 현재 Monte Carlo 계산법을 이용하여 다양한 기하학적 모양 및 밀도의 대하여 자체흡수에 대한 연구가 수행되고 있다[7-16].

본 연구에서는 Monte Carlo 방법을 이용하여 해체 콘크리트의 방사능 분석을 위한 HPGe 검출기의 전에너지 피크효율을 계산하여 실제 측정효율과 비교하였다. 또한, 콘크리트의 밀도 및 성분 변화에 따른 자체흡수 효과에 따른 효율의 변화 정도를 비교하였다.

2. 재료 및 방법

2.1. HPGe 검출기의 전에너지 피크효율 결정

다른 모양의 측정용기에 대한 전에너지 피크효율은 HPGe 검출기를 이용하여 한국표준연구원 에서 제작·보급한 원통형 표준선원(55 mL 원통형 비커, CB1)과 Amersham의 혼합 감마선원을 증류수에 희석하여 제조한 표준선원(8L 원통형 용기, CB2)을 이용하여 측정하였다. 한국표준연구원 에서 제작된 표준선원의 매질은 한천(agar)이며, 밀도는 1.0 g/cm^3 이다. 이 때 사용된 표준선원 의 핵종, 에너지 그리고 반감기는 표 1과 같다. 실험에 사용한 검출기는 Canberra 사의 동축형 HPGe 검출기이다. Ge 결정은 직경이 62 mm이고, 길이가 58 mm이며, ^{60}Co 의 1332.5 keV 감마선에 대하여 에너지 분해능은 1.8 keV, 상대효율은 47.1 %, 그리고 피크 대 콤프턴 (peak-to-compton) 비는 68.1이다.

표 1. 방사성 표준선원의 감마선 에너지, 세기 및 반감기

Nuclides	Photon energy (keV)	Intensity(%)	Half life
^{241}Am	59.54	35.90	432.20 y
^{109}Cd	88.03	3.61	462.60 d
^{57}Co	122.06	85.60	271.79 d
	136.47	10.68	
^{139}Ce	165.85	79.90	137.64 d
^{113}Sn	391.69	64.20	115.09 d
^{85}Sr	514.01	95.71	64.84 d
^{137}Cs	661.66	85.12	30.07 y
^{60}Co	1173.24	99.90	5.27 y
	1332.50	99.98	
^{88}Y	989.04	93.68	106.65 d
	1836.06	99.24	

2.2. Monte Carlo 계산

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 다양한 콘크리트의 밀도와 성분 에 대하여 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 계산 표 4. 원통형 용기 CB2에서 HPGe 검출기의 측정 및 계산 효율 비교에서 전에너지 피크효율에 대하여 통계적 정밀도는 결과의 타당성을 확신하기 위해서 3% 이하로 유지하였다.

2.3. 원자로 차폐구조

연구로 2호기의 원자로 구조는 그림 1과 같다. 원자로는 콘크리트 차폐구조로 되어 있으며, 콘크리트 차폐체는 일반 콘크리트이며, horizontal thermal column door는 밀도가 3.5 g/cm^2 인 고밀

도 콘크리트로 구성되어 있다. 토양의 오염을 막기 위해 원자로 수조탱크의 아래쪽도 약 152 cm 두께의 일반 콘크리트 기층으로 되어 있다. 표 2는 연구용 원자로 1,2호기의 해체계획서 작성 시 계산한 방사화 콘크리트의 예상 방사능을 나타낸 것이다.

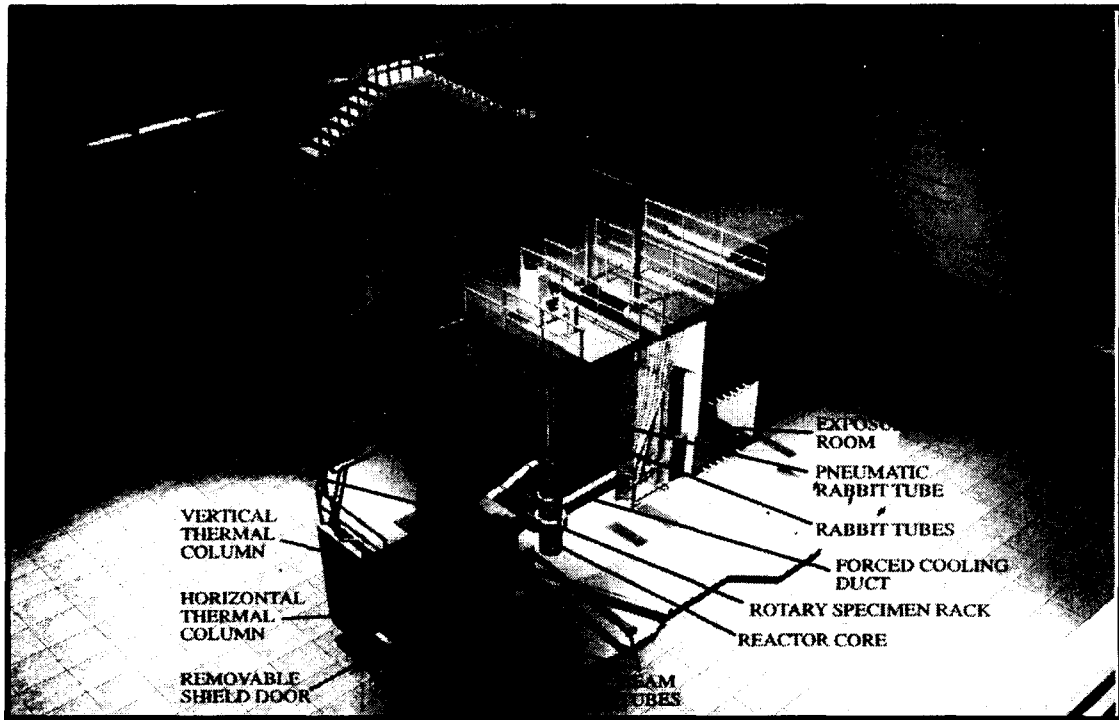


그림 1. KRR-2의 원자로 차폐 콘크리트 구조도

표 2. 연구로 1, 2호기 콘크리트 차폐체의 예상 방사능 농도

핵종	방사능 (Bq/m ³)	
	연구로 1호기	연구로 2호기
²² Na	1.6 × 10 ⁴	2.4 × 10 ⁶
⁵⁴ Mn	1.9 × 10 ⁴	9.8 × 10 ⁶
⁵⁵ Fe	9.7 × 10 ⁵	1.4 × 10 ⁸
⁶⁰ Co	7.1 × 10 ⁵	8.2 × 10 ⁷
¹⁵² Eu	1.5 × 10 ⁶	1.4 × 10 ⁸
¹⁵⁴ Eu	1.0 × 10 ⁶	1.0 × 10 ⁷

※ 영국의 ICI 원자로의 자료를 기초로 계산한 값으로서, 실제 연구로 1,2호기의 차폐 콘크리트 방사능 분석 시 콘크리트 조성비의 차이 때문에 핵종 및 농도는 달라질 수 있음.

3. 결과 및 논의

Monte Carlo 모사기법을 이용하여 정확한 계산 결과를 얻기 위해서는 검출기의 특성을 정확하

게 모사하여야 한다. 실제 측정에 이용되는 검출기의 특성을 모사하기 위하여 두가지 측정용기인 CB1과 CB2를 이용하여 효율을 측정하고, 그 결과를 계산 결과와 비교하였다. 이들 두가지 측정용기는 실제 현장에서 콘크리트 시료의 방사능 분석 시 사용하는 것으로서, 분말과 같이 시료량이 작은 경우에는 CB1을 사용하고, 콘크리트 덩어리와 같이 부피가 큰 시료를 측정할 때는 CB2를 사용한다.

측정 용기와 동일한 모양의 용기에 표준선원을 준비하여 HPGe 검출기의 효율을 결정하였고, 측정 시와 동일한 기하학적인 조건을 사용하여 MCNP 코드로 효율을 계산하였다. 계산한 결과는 표 3과 4에 나타내었는데, 계산의 정확성을 기하기 위하여 개개의 용기에 대하여 서로 다른 두가지의 조건으로 측정하였다.

표 3과 4에서 볼 수 있는 바와 같이, 표준선원을 이용하여 실제 측정된 효율과 MCNP 코드를 이용하여 계산한 효율은 전체 측정에너지 영역에 대하여 약 10% 상대오차 범위 내외로 잘 일치하는 것을 볼 수 있다. 즉, 기존의 효율 교정 방법인 표준선원을 이용하지 않고, 검출기의 효율을 10% 오차범위 이내로 결정할 수 있다는 것을 알 수 있다.

표 3. 원통형 측정용기 CB1에서 HPGe 검출기의 측정 및 계산 효율 비교

Energy (keV)	효율					
	20 mm			50 mm		
	ME(%)	CE(%)	RE(%)	ME(%)	CE(%)	RE(%)
88.03	8.29	8.49	2.42	4.85	4.84	- 0.21
122.06	9.34	9.33	- 0.15	5.53	5.35	- 3.22
165.86	8.36	8.25	- 1.36	5.06	4.84	- 4.40
279.20	6.01	5.65	- 5.91	3.54	3.37	- 4.84
391.70	4.56	4.19	- 8.06	2.83	2.52	- 10.81
514.01	3.77	3.33	- 11.62	2.32	2.07	- 10.97
661.66	3.01	2.72	- 9.51	1.90	1.66	- 12.71
898.04	2.15	2.16	0.39	1.41	1.33	- 5.66
1173.24	1.72	1.80	4.38	1.13	1.09	- 3.56 *
1332.50	1.53	1.63	6.33	1.03	1.04	0.76
1836.06	1.22	1.30	6.57	0.82	0.81	- 2.12

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

표 4. 원통형 용기 CB2에서 HPGe 검출기의 측정 및 계산 효율 비교

Energy (keV)	Counting Efficiencies					
	4 L			8 L		
	ME (%)	CE (%)	RE (%)	ME (%)	CE (%)	RE (%)
88.03	0.32	0.29	- 9.83	0.18	0.18	- 3.07
122.06	0.42	0.43	0.68	0.24	0.22	- 11.28
165.86	0.45	0.42	- 6.59	0.24	0.24	- 0.74
391.70	0.31	0.29	- 6.05	0.19	0.16	- 11.80
514.01	0.26	0.24	- 8.75	0.16	0.15	- 5.84
661.66	0.23	0.23	- 2.69	0.14	0.14	- 3.78
898.04	0.20	0.17	- 13.71	0.12	0.12	0.68
1173.24	0.17	0.17	- 3.75	0.11	0.10	- 6.98
1332.50	0.16	0.17	4.57	0.10	0.10	3.47
1836.06	0.13	0.13	- 1.77	0.09	0.08	- 7.60

원자로 차폐 콘크리트 구조물을 해체하기 위한 사전 단계로서 원자로 운전기간 동안 중성자 조사에 의하여 방사화된 콘크리트의 정확한 방사화 범위와 농도를 결정하여야 하는데, 이는 코어 시료를 채취하여 깊이별로 방사능 농도를 구함으로서 얻을 수 있다. 실제 코어 시료 측정 시 최적의 시료 두께를 구하기 위하여 시료의 두께에 따른 검출기의 질량 효율을 계산하여 그림 2에 나타내었다. 계산에서 사용한 시료의 직경은 실제 해체 현장에서 콘크리트 시료를 채취하기 위한 코어 시료 채취장치와 동일한 50 mm이며, 두께는 5에서 30까지 5 mm 간격으로 변화시키면서 계산하였다.

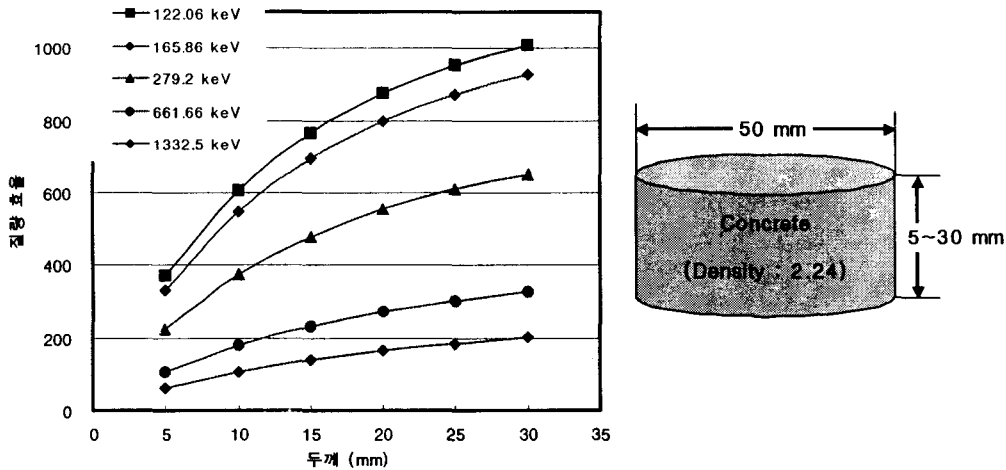


그림 2. 콘크리트 코어 시료의 두께에 따른 질량효율 변화

그림 2의 계산 결과에서 볼 수 있듯이, 콘크리트 두께에 따라서 측정 시료의 질량 효율은 점점 커지는 것을 알 수 있다. 그러나, 코어 시료의 두께가 커지면서 시료 내에서의 자체흡수 효과의 증가로 질량 효율은 거의 변하지 않는다. 즉, 코어 시료의 일정 두께 이상은 측정 시 이득이 없다는 것을 알 수가 있다. 실제 차폐 콘크리트 구조물의 코어 시료 채취 후 방사능 분석 시 방사화 정도를 알고자 하는 영역별로 수 mm에서 수십 mm까지 측정 시료의 두께에 따른 계산 효율을 적용하여 방사능을 결정할 수 있을 것이다.

측정하고자 하는 코어 시료의 정확한 방사능을 결정하기 위해서는 시료의 밀도 별로 효율을 구하여야 한다. 계산에서는 콘크리트 시료의 밀도를 2.0에서 3.5까지 0.1 간격으로 변화시켜서 구하였지만, 그림 3에서는 대표적으로 몇가지 밀도에 대한 에너지별 효율을 나타내었다.

그림 3에서 볼 수 있는 바와 같이, 실제 측정 시 코어 시료의 정확한 밀도를 결정하지 않고 방사능 분석 시에는 많은 오차를 발생할 수 있다는 것을 알 수 있다. 계산 결과 약 100 keV 에너지 영역에서는 밀도가 0.5 g/cm^3 의 차이에 의하여 약 5% 정도의 효율을 차이를 보이며, 500 keV 이상의 고에너지 영역에서는 1 ~ 2% 정도의 효율의 차이를 보인다.

연구로 1,2호기의 차폐체 콘크리트는 일반 콘크리트와 강화(heavy) 콘크리트가 같이 사용되었다. 이는 실제 방사능 분석 시 밀도 뿐만 아니라 콘크리트 구성 성분의 차이에 따른 효율을 적용하여야 한다. 이를 위하여 일반 콘크리트와 강화 콘크리트의 밀도 범위인 2.0에서 3.5 g/cm^3 까지 0.5 간격으로 변화시키면서 Fe의 무게함량에 따른 효율을 계산하였다. 계산 결과는 그림 4에 나타내었다.

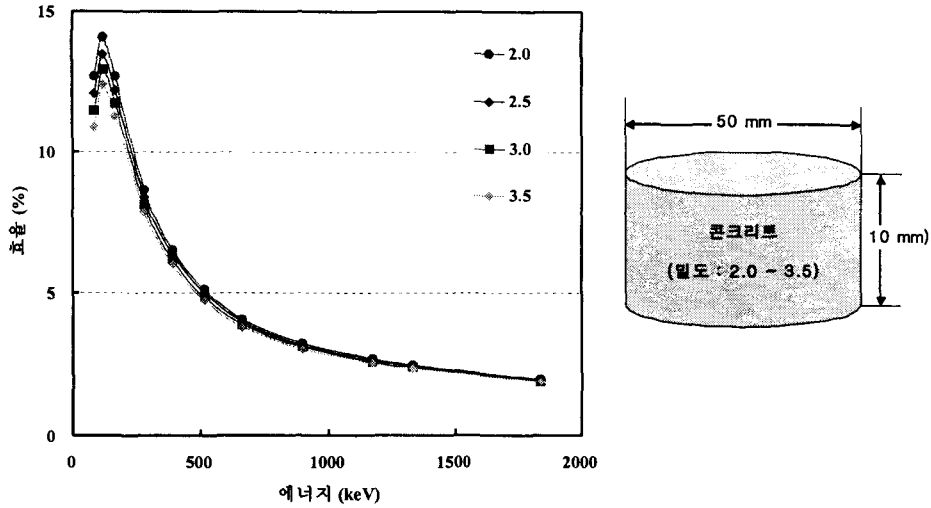


그림 3. 콘크리트 코어 시료의 밀도에 따른 에너지별 효율 변화

각 밀도 별로 Fe의 함량에 따라 효율의 차이를 100 keV 에너지 근방의 저에너지 영역에서 큰 차이가 나타나는 것을 볼 수 있다. Fe 무게 함량의 5% 정도 차이에 따라 효율은 약 2% 정도 차이가 난다. 이는 Fe 함량이 증가함에 따라 시료 내부에서 자체흡수가 크게 나타난다는 것을 알 수 있다. 그러나 200 keV이상의 에너지 영역에서는 Fe 함량의 차이에 따른 효율의 변화 정도는 거의 무시할 수 있는 정도이다.

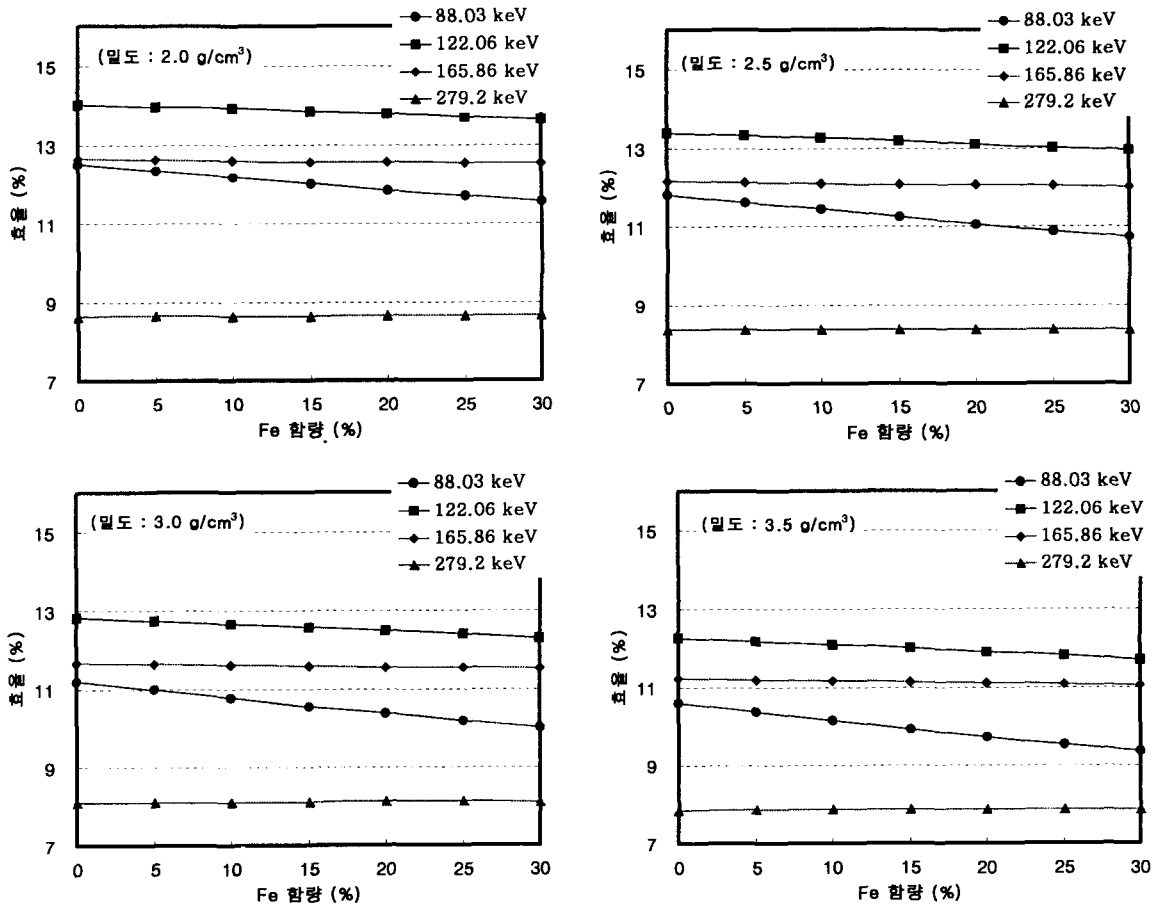


그림 4. 밀도별 Fe 무게 함량에 따른 효율의 변화

이상에서 콘크리트 시료의 두께, 밀도, 그리고 Fe 함량에 따른 효율을 계산하였다. 이 결과는 실제 원자로의 콘크리트 차폐체의 방사능 분석 시 자체흡수 효과를 포함한 효율 결정에 유용하게 이용할 수 있을 것이다.

4. 결 론

연구로 1, 2호기의 원자로 차폐 콘크리트를 해체하기 위한 사전작업으로서 방사화 범위 및 농도를 결정하여야 한다. 기존의 방법으로는 시료 전처리의 어려움과 표준선원의 준비 및 자체흡수 효과에 의하여 정확한 측정효율을 결정하는데 어려움이 있기 때문에, Monte Carlo 모사기법을 이용하여 효율을 평가하고 비교하였다. 또한, 계산 결과의 타당성을 입증하기 위하여 표준선원을 준비하여 HPGe 검출기의 효율을 결정하였고, 동일한 기하학적인 조건을 사용하여 MCNP 코드로 효율을 계산하여 적용성을 확인하였다.

Monte Carlo 모사기법을 이용하여 콘크리트의 두께, 밀도, 그리고 Fe 함량에 따른 효율을 계산하였다. 이는 향후 원자로 차폐 콘크리트 구조물의 코아 시료 분석 시 정확한 방사능을 결정하는데 유용한 자료로 활용될 것이다.

참고문헌

1. F. Sánchez, E. Navarro, J.L. Ferrero, A. Moreno, C. Roldán, A. Baeza and J. Paniagua, "A Monte Carlo based method of including gamma self-absorption for the analysis of environmental samples", Nucl. Instr. Meth., B61, 535-540 (1991).
2. N.H. Cutshall, I.L. Larsen and C.R. Olsen, "Direct analysis of ^{210}Pb in sediment samples : self-absorption corrections", Nucl. Instr. Meth., 206, 309-312 (1983).
3. M.E. Kitto, "Determination of photon self-absorption corrections for soil samples", Appl. Radiat. Isot., 42(9), 835-839 (1991).
4. I. Ramos-Lerate, M. Barrera, R.A. Ligeró and M. Casas-Ruiz, "A new method for gamma-efficiency calibration of voluminal samples in cylindrical geometry", J. Environ. Radioactivity, 38(1), 47-57 (1998).
5. K. Debertin and R. Jianping, "Measurement of the activity of radioactive samples in Marinelli beakers", Nucl. Instr. Meth., A278, 541-549 (1989).
6. P. Dryák, P. Kovář, L. Plchová and J. Šuráň, "Corrections for the Marinelli geometry", J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters 135(4), 281-292 (1989).
7. K.M. Wainio and G.F. Knoll, "Calculated gamma ray response characteristics of semiconductor detectors", Nucl. Instr. Meth., 44, 213-223 (1966).
8. B. Lal and K.V.K. Iyengar, "Monte Carlo calculations of gamma ray response characteristics of cylindrical Ge(Li) detectors", Nucl. Instr. Meth., 79, 19-28 (1970).
9. G. Gaggero, "Monte Carlo calculations for the photofractions and energy loss spectra of Ge(Li) semiconductor detectors", Nucl. Instr. Meth., 94, 481-492 (1971).
10. Ch. Meixner, "A Monte Carlo program for the calculation of gamma-ray spectra for germanium detectors", Nucl. Instr. Meth., 119, 521-526 (1974).
11. T. Nakamura, "Monte Carlo calculation of peak efficiencies and response functions of

- coaxial-type Ge(Li) detectors for disk gamma-ray sources", Nucl. Instr. Meth., 131, 521-527 (1975).
12. K. Debertin and B. Grosswendt, "Efficiency calibration of semiconductor detectors by primary standard sources and Monte Carlo calculations", Nucl. Instr. Meth., 203, 343-352 (1982).
 13. T. Nakamura and T. Suzuki, "Monte Carlo calculation of peak efficiencies of Ge(Li) and pure Ge detectors to voluminal sources and comparison with environmental radioactivity measurement", Nucl. Instr. Meth., 205, 211-218 (1983).
 14. C.E. Moss and J.R. Streetman, "Comparison of calculated and measured response functions for germanium detectors", Nucl. Instr. Meth., A299, 98-101 (1990).
 15. M.I. Abbas, "HPGe detector photopeak efficiency calculation including self-absorption and coincidence corrections for Marinelli beaker sources using compact analytical expressions", Appl. Radiat. Isot., 54, 761-768 (2001).
 16. T. Boshkova and L. Minev, "Corrections for self-attenuation in gamma-ray spectrometry of bulk samples", Appl. Radiat. Isot., 54, 777-783 (2001).