

A Study on the Natural Uranium Contamination Measuring Technology

천연우라늄 오염에 관한 방사선/능 측정기술 연구

Un-Soo Chung, Sang-Bum Hong, Bum-Kyung Seo and Jin-Ho Park

Yong-Woo Cho*, Song-Won Cho* and Jung-Min Lee*

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

*Korea Radiation Technology Institute, 19 Ku-Sung Dong, Yusung-Ku, Daejeon

정운수, 홍상범, 서범경, 박진호, 조용우*, 조성원*, 이정민*

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지,

* 한국방사선기술연구소, 대전광역시 유성구 구성동 19번지,

Abstract

This study is to verify radiation detection method by using α -spectroscopy and γ -spectroscopy for concretes and components which will be generated during the decommissioning of the uranium conversion plant. Components and inside walls of the building were contaminated with natural uranium materials. Some parts of the stainless steel pipes and concretes of the walls were sampled and analyzed their alpha and gamma activities respectively. Alpha and gamma activities are well matched each other in the range of high activity region to 0.01 Bq/g and gamma activities are over estimated comparing alpha activities corresponded in below 0.005 Bq/g region for the natural uranium of AUC sample. The ^{238}U originated from natural products of conversion process could be distinguished by measuring ^{214}Pb or ^{214}Bi and ^{234}Th or $^{234\text{m}}\text{Pa}$. Uranium contaminations mainly are in the wall surface of the plant. Decontamination process of generating wastes which can be reached to background level gamma activities measured by gamma spectroscopy can also be used to conservative assessment data.

Key words : uranium conversion plant, natural uranium, α -spectroscopy, γ -spectroscopy

요약

본 연구는 우라늄변환시설의 해체과정에서 발생하는 콘크리트 및 구성부품에 대한 알파분광과 감마분광에 대한 방사선측정방법의 타당성을 입증하고자 한다. 우라늄변환시설내의 구성부품 및 내부벽면은 천연우라늄 물질로 오염되어있다. 스테인레스 스틸 파이프와 벽면의 콘크리트의 일부에 대하여 시료를 채취하고 알파분석과 감마분석을 수행하였다. 천연우라늄 시료(AUC)의 측정에서 0.01 Bq/g 이상에서는 알파선 측정결과와 감마선 측정결과가 잘 일치하지만, 0.005 Bq/g의 낮은 농도에서는 감마선 측정결과가 상대적으로 높게 평가된다. 변환공정의 천연우라늄인 ^{238}U 은 ^{214}Pb , ^{214}Bi 와 ^{234}Th , $^{234\text{m}}\text{Pa}$ 을 비교 측정하여 그 농도를 구할 수 있다. 우라늄변환시설의 벽면은

대부분 우라늄으로 오염되어 있다. 우라늄변환시설 해체과정에서 발생하는 배경방사능 준위의 폐기물을 감마분광법을 이용하여 측정하여 보수적인 평가 자료로 활용할 수 있다.

중심단어 : 우라늄변환시설, 천연우라늄, 알파분광, 감마분광

1. 서 론

우라늄 변환시설은 연간 100톤의 생산규모로 1982년에 준공하여 당초에는 ADU(Ammonium Diuranate Uranyl Carbonate) 공정으로 시운전하였으나 핵연료의 기술요건을 만족하지 못하여 1988년에는 AUC(Ammonium Uranyl Carbonate)공정을 추가하여 이산화우라늄(UO₂)분말을 제조하였고, 월성1호기에 공급하였다. 1992년 원자력연구소 방침에 의하여 공정이 운전정지 될 때까지 320톤의 이산화우라늄 분말이 생산·공급되었다. 1992년 말에 운전정지가 결정된 이래 변환시설은 최소한 규모로 시설을 유지하여 왔으나, 시설의 노후화로 인하여 주변이 오염될 염려가 있다는 판단으로 원자력연구소는 동 시설이 위치한 건물의 재이용을 위하여 동 시설을 해체하기로 결정하였다.

우라늄변환시설의 해체과정에서 발생하는 대부분의 폐기물은 그 오염도가 매우 낮다. 이러한 폐기물을 처리하기 위하여 대상폐기물에 대한 방사능 농도의 정확한 측정과 평가가 필요하지만 모든 시료에 대하여 화학적 분리를 수행하는데 어려움이 많아 비교적 취급방법이 용이한 감마스펙트럼으로 분석한 후 농도가 높거나 의심스러운 시료 및 낮은 농도의 대표시료에 대해서만 화학분리를 수행한 후 비교·측정한다.

우라늄변환시설과 같이 우라늄만을 취급하는 시설에서는 정련과정을 거친 우라늄을 사용하기 때문에 오염도를 측정하기 위해서 표준선원을 제작하고 측정의 가능성과 결과의 타당성 그리고 측정용기와 측정기에 따른 측정범위와 최소검출방사능(MDA)를 파악하고 화학분석과 기기분석의 장단점 및 시료의 량을 검토하고 변환시설 내에 각종 공정에 사용된 철재의 제염 후 방사능 측정법의 타당성을 파악하여 오염제거에 따른 방사능 농도를 측정하였다. 측정시료에 대해서는 그 오염도를 측정하고, 제염과정을 통해서 시료오염의 기초자료와 오염방법에 따른 제염율을 제시하고 대표시료에 대한 알파분석과 감마분석을 통해 시료의 해석결과를 비교·검토하여 감마선 측정의 장단점 및 측정조건을 제시하였다.

우라늄변환시설은 해체 후 연구실 및 일반실험실로 사용하기 위하여 시설내의 콘크리트 벽과 바닥에 대한 오염도를 분석하였다. 시설내의 벽과 바닥에 대해서 감마선과 알파선을 측정함으로써 위에서 언급한 감마선 측정방법의 타당성과 신뢰도를 파악하여 제염평가 및 폐기물관리의 기본자료로 활용하고자 한다.

2. 본 론

변환시설과 같이 우라늄을 취급하는 시설에서는 정련과정을 거친 우라늄을 사용하였기 때문에 평형상태에 도달하기 위해서는 수십억년이 소요될 뿐만 아니라, 오염량을 측정하기 위해서는 미량의 우라늄을 측정하고 분석하여야 한다. 이와 같은 목적을 위하여 농도를 알 수 있는 시료를 이용하여 표준선원을 제작하고, 측정의 가능성과 결과의 타당성, 그리고 측정용기와 측정기에 따른 측정범위와 최소검출방사능(MDA)를 파악하였다.

일반적으로 감마선에 의한 우라늄의 분석에 있어서는 U-235에서 방출되는 감마선을 직접 측정하여 U-235의 방사능 농도와 함유량을 파악할 수 있으며, U-238은 영구평형에 도달한 경우에는 Pb-214와 Bi-214에서 방출되는 감마선을 이용할 수 있다. 그러나 평형상태가 아닌 경우에 대한

우라늄의 방사선 농도측정은 어려움이 많다. 평형상태에 도달하지 못한 우라늄의 자연방사능 (Background)준위나 변환시설의 폐기물과 같이 낮은 준위의 방사능 측정은 핵사찰 등의 일부에서만 사용되고 있으며, 일반적으로 화학적 분리를 통한 α -spectrometry 나 Activation(중성자 또는 가속기) Analysis 방법을 이용하고 있다[1].

2-1. 측정방법

본 연구에 적용된 분석방법에 대한 특징을 살펴보면 다음과 같다.

γ -spectrometry 에 의한 방사능 분석방법은 전반적으로 잘 알려져 있으며, 짧은 시간 내에 비교적 저렴한 가격으로 분석을 수행할 수 있다. U-238의 측정시에는 방사평형의 도달 유무에 따라 측정방법이 달라진다. 영구평형에 도달한 경우라면 감마선 방출율이 큰 Pb-214나 Bi-214에서 방출되는 감마선을 측정하여 농도를 측정하지만 영구평형에 도달하지 못한 경우에는 수개월 내에 평형상태를 이루는 Th-234이나 Pa-234m의 감마선을 측정하여 우라늄의 농도를 구할 수 있다. 우라늄의 농도가 낮은 시료를 측정하는 경우에는 토륨이나 칼륨과 같이 주위환경 속에 많이 함유된 핵종에서 방출되는 감마선이나 X-선에 의한 방해로 인하여 측정결과에 많은 오차가 수반된다. 우라늄과 같이 붕괴가 계열을 이루고 있는 경우에는 시료에 존재하는 모든 감마선 방출체에 대한 측정이 가능하므로 시료의 이력을 판단하는 데 도움을 줄 수 있으며, 여러 가지 핵종의 측정치와 비교함으로써 측정의 오류를 판단할 수도 있다.

화학적 분리를 통한 α -spectrometry 방법은 매우 낮은 농도의 알파선 방출핵종을 측정할 수 있는 반면에 많은 시간과 비용이 소요되며, 원소의 종류(Pu, Am, Th 등)에 따라 화학적 분리방법이 상이하므로 특정된 원소의 측정만이 가능하다. 화학적 분리를 수행하는 과정에 일반적으로 강한 산을 사용하게 되며, 인체에 유해한 가스가 방출될 수 있다. 따라서 분석을 수행하기 위해서는 충분한 안전장치를 구비하여야 한다. 또한 시료를 직접 측정하지 않고 시료를 용해시켜 특정핵종을 분리하는 과정을 거치게 되므로 전과정에 대한 회수율의 파악이 필요하다. 우라늄의 측정에 있어서는 불순물이나 동일한 붕괴계열의 다른 핵종에서 방출되는 알파선의 방해로 인해 농도측정이 어려워진다. 또한 불순물이 많이 함유되어 있는 경우에는 시료의 두께가 두꺼워지기 때문에 발생하는 자체흡수에 의해 정확한 농도를 구할 수가 없다.

ICP mass 분석법은 질량분석법으로 매우 낮은 농도의 우라늄 측정에 용이하므로 시료량의 확보가 어려운 경우에는 매우 유용한 방법이지만, 원자량의 차이가 적은 핵종을 구분하기 위해서는 고도의 전문적인 지식이 요구된다. 특히 원자량의 차이가 적은 U-238과 U-235의 구분, U-235와 Th-232의 구분 등이 어려우며, 화합물의 형태에 따라 차이가 발생된다. 변환시설의 폐기물과 같은 자연 우라늄의 분석에 있어서는 U-238의 분석에 비해 함유량이 적은 U-235와 U-234의 분석에 어려움이 많다. 일반적으로 우라늄의 분석에 있어서는 U-238을 측정하게 되며, 특수한 경우에 U-234나 U-235의 양을 동시에 측정하게 된다.

2-2. 우라늄농도의 측정 및 표준시료의 제작

우라늄 광산이나 자연시료와 같이 U-238이 영구평형에 도달한 경우에는 Pb-214와 Bi-214에서 방출되는 감마선을 이용하여 U-238의 농도를 측정할 수 있다. U-238의 붕괴계열을 살펴보면 U-234, Th-230, Ra-226 그리고 Pb-210은 반감기가 매우 길기 때문에 원소를 분리시킨 이후에는 평형상태에 도달하기 까지 100만년 이상이 요구된다. 우라늄 광산이나 자연시료는 영구평형 상태를 유지하고 있으므로 Pb-214나 Bi-214를 측정하고 다음 식1에 의해 U-238의 양을 계산할 수 있다.

어미핵종의 반감기 T_a 가 딸핵종의 반감기 T_b 에 비해 충분히 길고, 핵종을 분리한 후 충분한 시간 t 가 경과한 이후에

$$Nb = \frac{\lambda a}{\lambda b - \lambda a} Na \exp(-\lambda a * t) \text{ 로 부터}$$

$$\lambda a * Na = \lambda b * Nb \text{ 또는 } \frac{Na}{Nb} = \frac{Ta}{Tb} \dots\dots\dots (식 1)$$

를 얻게 된다.

정련한 후 수 백년 동안은 Pb-214나 Bi-214의 핵종에서 방출되는 감마선은 강도가 매우 낮으므로 측정이 불가능하다. 따라서 변환시설과 같이 평형상태에 도달하지 않은 시료의 오염도를 측정하기 위해서는 새로운 방법의 개발이 필요하다. 새로운 방법의 개발을 위해 변환시설에서 사용한 AUC (Ammonium Uranyl Carbonate)를 이용하여 γ -spectrum을 측정하고, spectrum을 분석하여 오염도 측정에 사용될 수 있는 핵종과 측정방법을 확립시키는 방법으로 선택하였다.

그림 1에 AUC 시료의 감마선 스펙트럼을 보여주고 있다. 스펙트럼에서 U-235와 Pa-234m의 피크들이 명확히 나타나며, Th-234, Pb-214 그리고 Bi-214의 피크가 약하게 나타남을 볼 수 있다. 스펙트럼에 나타난 Pb-212와 Tl-208 피크는 주위의 환경이나 시료 중에 함유된 불순물에서 방출된 것으로 보이며, Pb-214나 Bi-214의 피크는 주위의 환경과 시료 내에 존재하는 미량의 핵종에서 방출된 것으로 보인다. U-238의 붕괴계열과 그림 1의 스펙트럼을 통하여 Th-234와 Pa-234m으로 U-238의 농도를 측정할 수 있음을 알 수 있다. Th-234와 Pa-234m은 반감기가 25일 미만으로 1년 이내에 U-238과 평형상태를 이루어 (식 1)로부터 U-238의 농도를 계산할 수 있다.

스펙트럼의 측정에 사용된 AUC는 농축을 수행하지 않았기 때문에 자연상태의 우라늄과 동일하게 U-235의 함유량이 U-238의 0.7%에 불과하지만 스펙트럼에서는 U-235에서 방출되는 감마선의 강도가 Pa-234m에서 방출되는 감마선보다 매우 높게 나타나고 있다. 이는 핵종이 붕괴할 때 방출되는 감마선의 방출분율에 기인한 것이다. 또한 U-235의 딸핵종의 피크가 관측되지 않는 것은 U-235의 함유량이 적을 뿐만 아니라 U-235의 붕괴계열에서 알 수 있는 바와 같이 Pa-231의 반감기가 매우 길기 때문에 평형상태에 도달하지 못하였기 때문이다.

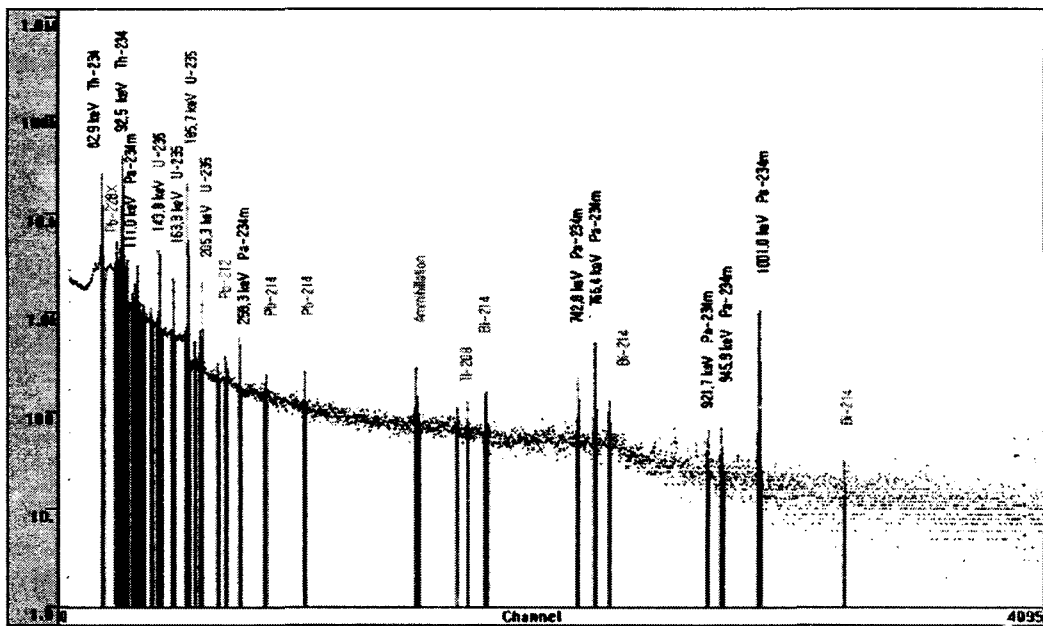


그림 1. AUC의 감마선 스펙트럼 분포.

변환시설의 우라늄 오염도를 측정하는 데 이용될 수 있는 피크는 Th-234의 62.9 keV와 92.5 keV, U-235의 185.7 keV, Pa-234m의 766.4 keV와 1001.0 keV 뿐이다. 스펙트럼에 나타난 Bi-212나 Tl-208의 피크는 10cm이상의 납차폐에도 불구하고 나타나는 백그라운드들이다. Th-232의 딸핵종인 이들은 감마선 측정에 항상 방해피크로 작용한다.

일반적으로 사용하고 있는 Standard Coaxial Germanium Detector는 100 keV로 부터 3000 keV까지의 영역에서 주로 사용하며, 100 keV 이하의 낮은 에너지에서 검출효율이 급격히 낮아진다. 100 keV 이하의 낮은 에너지를 측정하기 위해서는 특별히 제작된 LEPD(Low Energy Photon Detector)를 사용하여야 한다.

표준시료를 제조하여 앞에서 조사된 자료를 이용하여 우라늄의 농도를 알고 있는 시료를 측정함으로써 측정범위와 측정결과의 타당성을 파악하고자 하였다. 농도를 알고 있는 시료는 측정방법의 개발에 사용된 AUC를 사용하여 제조하였고, 그 특성은 AUC 558.28g 속에 우라늄이 238.03g 함유되어 있으며 물에 매우 잘 용해된다.

AUC 1g 내에 함유된 U-238과 U-235의 질량을 이용하여 원자의 수를 계산하여 대입시킴으로써 AUC 1g 내 핵종에 따른 방사능 농도를 계산할 수 있다. 계산된 비방사능과 AUC 1g에서의 방사능 농도를 표 1에서 보여주고 있다.

표 1. 우라늄의 방사능 특징 (단, U-234와 U-238은 영구평형에 있다.)

핵종	반감기 (Year)	비방사능 (Bq/g)	AUC 1g내의 방사능 (Bq)	비 고
U-238	4.468E9	1.245E4	5.269E3	
U-234	2.455E5	2.304E8	5.269E3	
U-235	7.038E8	8.002E4	2.426E2	

AUC에 함유된 우라늄의 방사능 농도를 알고 있으므로 일정량을 채취하여 용액을 제조함으로써 농도가 파악된 시료를 얻을 수 있다. 또한 용액 중에서 일부를 취해 희석시키는 방법을 이용하여 매우 낮은 농도의 시료를 제작할 수 있다. 변환시설의 오염도를 0.04 Bq/g까지 정량하여야 함으로 0.004 Bq/g까지의 측정가능성을 파악하여야 한다. 따라서 시료는 다음과 같이 만들었다.

- 1) AUC 화합물 1.2 g을 취하여 6 M 질산으로 녹인 후 용액을 1.2 L로 만들었다. 질산을 이용한 것은 AUC가 물보다 질산에서 용이하게 용해되기 때문이다. 이와 같이 제작한 시료의 U-238 농도는 5.269 Bq/cc가 된다.
- 2) 농도를 1/10로 줄이기 위해 1)용액중 120 mL를 취하여 1.2 L로 희석시킨다.
- 3) 2)의 과정을 반복함으로써 시료내의 U-238 농도를 계속하여 줄일 수 있다. 제조된 시료는 5.269 Bq/cc로부터 0.0005269 Bq/cc까지 각기 다른 농도의 5가지 시료를 조제하였다.
- 4) 제작된 시료를 각각 1 L씩 취해서 1L의 marinelli 비이커에 채워서 측정을 수행한다.

표준시료의 제작이 문헌에 의존하여 제작하였으므로 측정에 의한 농도의 확인이 필요하다. 그러나 모두 동일한 방법에 의한 것이므로 특정한 시료 한가지만 선정하여 측정을 수행하면 된다. 이러한 목적을 위해 0.5269 Bq/cc인 시료를 선정하여 감마와 알파분광, 그리고 ICP mass로 측정하였으며, 측정결과를 표 2에서 보여주고 있다.

표 2. 표준선원의 측정결과

[단위 : Bq/cc]

	Calculation	감마분광	알파분광	ICP mass	비교
U-238	0.5269	0.501	0.504	0.564	
U-234	0.5269		0.491		
U-235	0.0243	0.033	0.021		

모든 측정방법의 측정결과는 계산에 의한 방법과 10%이내의 편차 범위 내에서 일치하고 있다. 여기서 ICP mass에 의한 측정결과는 45.35 ppm으로 측정된 질량을 방사선 농도로 환산한 것이다. 측정결과에 의하면 표준시료의 제작과 농도의 계산방법은 정확하게 이루어 졌음을 확인할 수 있으며, 감마분광에서 U-235의 농도를 과대평가하는 원인은 U-235의 가장 강한 피크인 135 keV 피크에 Ra-226의 피크가 겹치고, 또한 U-235의 143.8 keV 피크는 감마선의 방출강도가 적고 background가 높기 때문으로 판단된다.

2-3. 표준시료에 의한 우라늄 농도의 측정

우라늄 농도의 측정에 적합한 측정기로서는 앞의 U-238 측정원리에서 언급한 바와 같이 Reverse-Electrode (REGE)가 Standard Coaxial Germanium Detector에 비하여 우수하지만, 모든 시료는 Standard Coaxial Germanium Detector로 측정하고 REGE는 한정된 시료에 대하여 확인 및 검토용으로 사용하였다.

예비측정과 분석결과에 의하면 Pa-234m 피크를 이용한 모든 해석결과에서 방사능 농도를 과대 평가하는 경향을 보였으며, 여러 가지 원인을 분석한 결과 Library에서 사용되고 있는 방출율의 차이에서 발생한 것임을 확인할 수 있었다. 우라늄분석에 사용되는 핵종의 감마선 방출분율을 문헌에 따라 비교하여 보여주고 있다. 현재 사용중인 eml300.lib[8] 에서 Pa-234m의 1001 keV의 방출분율이 최근에 입수한 Master.lib[3]에 비해 약 20% 정도 낮게 되어 있다. 반면에 Table of Isotope[4]에는 감마선들의 상대강도만이 표시되어 있어서 정확한 방출분율을 파악할 수 없었다. 또한 Th-234의 92.38과 92.80 keV의 피크는 스펙트럼 상에서 분리가 되지 않으므로 eml300.lib에서와 같이 하나의 피크로 간주하여도 무방하다. 대부분의 Library들을 생산할 때 사용되는 참고자료들이 거의 동일하기 때문에 가능한 최근의 자료를 포함한 library를 사용하였다.

표준시료 농도의 계산값과 측정값의 관계를 그림 2에서 보여주고 있다. 사용된 측정기는 Standard Coaxial Germanium Detector (Detector-#9)와 REGE (Detector-#4)이며, 우라늄 농도는 Th-234와 Pa-234m에서 방출되는 감마선을 이용하였다. 여기서 Th-234D는 Th-234의 분리되지 않는 92.38과 92.80 keV를 이용한 것이다.

그림 2에서 0.1 Bq/g 이상의 농도를 측정하는 경우에는 오차도 적고 측정기의 종류에 따른 효과도 적은 반면에 0.01 Bq/g 이하의 농도를 측정하는 경우에는 측정기의 종류에 따라 정확도가 낮아지고 오차도 매우 커지게 된다. 그림 3에 측정기와 핵종에서 방출되는 감마선의 에너지에 따른 최소검출방사능(MDA)를 보여주고 있다. Standard Coaxial Germanium Detector의 MDA가 대부분 0.01 Bq/g 정도인 반면에 REGE Detector는 0.005 Bq/g 정도이다.

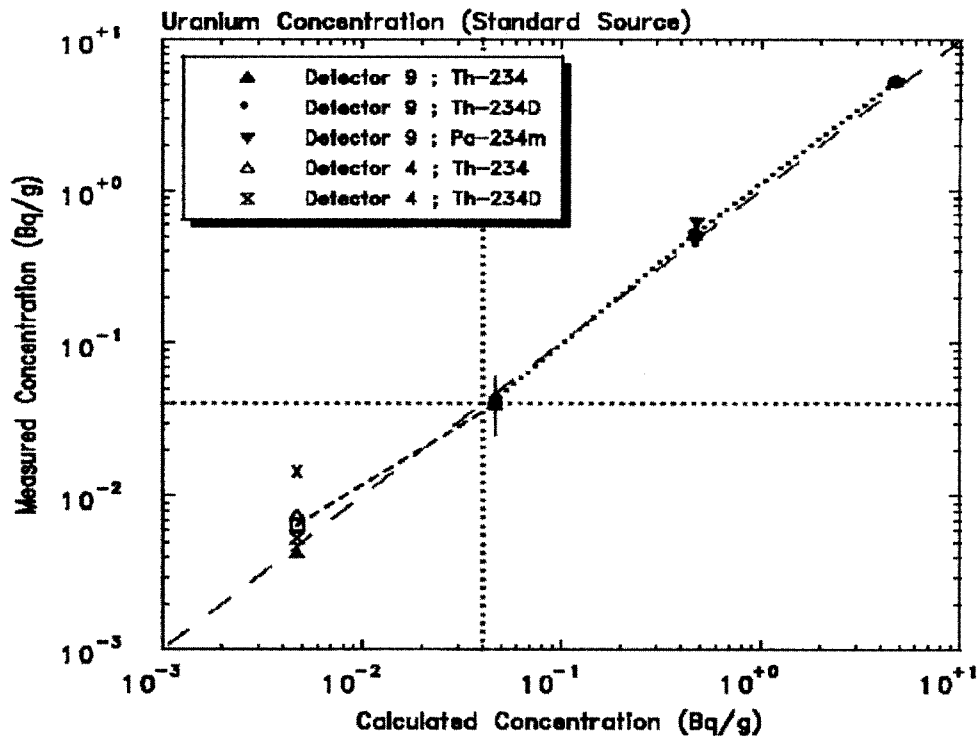


그림 2. 계산결과와 측정결과에 의한 우라늄 함유량 비교

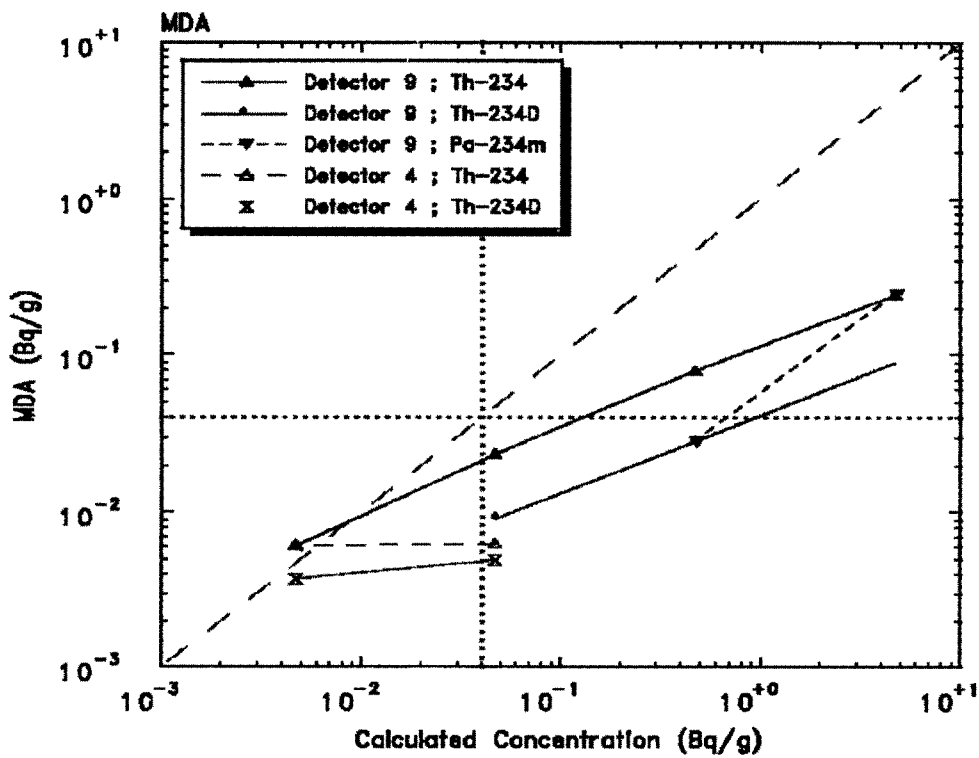


그림 3. 측정기와 핵종에 따른 우라늄 함유량의 MDA.

2-4변환시설 콘크리트의 우라늄 측정

우라늄변환시설 내의 벽과 바닥에 대한 방사선/능 측정을 통하여 앞에서 언급한 표준시료 측정에서 언급한 감마선 측정방법에 의한 우라늄 측정방법의 타당성과 신뢰도를 파악하기 위하여 측정대상 시료를 선택하여 감마와 알파분석에 의한 해석결과를 비교하여 측정하였다.

표 3. 변환시설 콘크리트의 방사능 측정결과

분 류		핵 종	시설내 벽면 (표면)	시설내 벽면 (10mm 깊이)	시설내 벽면 (50mm 깊이)	건물 외벽 (표면)	건물 외벽 (10mm 깊이)	
감마 분석	U-238 (일부평형)	Th-234	1.6000±0.1787	0.0482±0.0143	0.0354±0.0163	0.0194±0.0154	0.0207±0.0104	
		Th234D	1.8020±0.1302	0.0592±0.0086	0.0291±0.0085	0.0355±0.0095	0.0608±0.0063	
		Pa-233m	2.3140±0.7067	-	-	-	-	
		평균	1.9053±0.2468	0.0537±0.0083	0.0323±0.0092	0.0275±0.0090	0.0408±0.0061	
	U-238 (영구평형)	Pb-214	0.0177±0.0102	0.0204±0.0028	0.0230±0.0029	0.0243±0.0029	0.0192±0.0016	
		Bi-214	-	0.0163±0.0042	0.0205±0.0050	0.0215±0.0041	0.0180±0.0031	
		평균	0.0177±0.0102	0.0184±0.0025	0.0218±0.0029	0.0229±0.0025	0.0186±0.0017	
	U-235	측정	0.0996±0.0173	0.0053±0.0010	0.0036±0.0011	0.0047±0.0011	0.0037±0.0005	
		보정	0.0996±0.0173	0.0021±0.0004	0.0015±0.0004	0.0019±0.0004	0.0015±0.0002	
	농축도 (%)		0.8118±0.1779	0.6096±0.1534	0.6992±0.2945	1.0569±0.4305	0.5611±0.1156	
	Th-232 (영구평형)	Tl-208	0.0135±0.0126	0.0209±0.0034	0.0297±0.0044	0.0233±0.0050	0.0345±0.0040	
		Pb-212	0.0118±0.0076	0.0298±0.0016	0.0404±0.0026	0.0320±0.0030	0.0438±0.0020	
		Bi-212	-	0.0276±0.0097	0.0395±0.0101	0.0351±0.0096	0.0400±0.0066	
		Ac-228	-	0.0236±0.0055	0.0313±0.0070	0.0277±0.0064	0.0245±0.0060	
		평균	0.0127±0.0074	0.0255±0.0029	0.0352±0.0033	0.0295±0.0032	0.0390±0.0025	
		Background	K-40	0.4870±0.1194	0.8530±0.0327	0.8960±0.0336	0.8450±0.0507	0.9243±0.0498
		알파 분석	U-238	1.9732±0.2144	0.0677±0.0033	0.0304±0.0017	0.0251±0.0012	0.0263±0.0022
	U-234		1.9028±0.2068	0.0668±0.0032	0.0295±0.0017	0.0246±0.0011	0.0261±0.0022	
	U-235		0.0813±0.0102	0.0030±0.0004	0.0015±0.0003	0.0010±0.0002	0.0013±0.0004	
	농축도 (%)		0.6395±0.1061	0.6908±0.0955	0.7553±0.1352	0.6353±0.1092	0.7688±0.2162	

우라늄 변환시설의 콘크리트 시료는 다음과 같은 방법에 의하여 시료를 채취하였다.

우선 변환시설 1층과 2층의 내부 벽 2군데를 선택하여 시료 1층은 두겹게 피막 된 에폭시 수지를 제거하고 그라인더로 5mm 이하의 두께로 벽면을 갈아 1차 시료를 채취한 후 먼지를 완전히 제거하였다. 먼지가 완전 제거된 벽면을 1cm 정도의 깊이로 취하여 2차 시료로 하였고 마찬가지로 먼지를 완전히 제거한 후 2cm이상의 깊이에서 시료를 채취하여 3차 시료로 하였다. 2층의 내부 벽은 에폭시 수지를 제거하지 않고 직접 그라인더로 5mm 두께로 취하여 1차 시료로 하였고 2,3차 시료는 1층 시료 채취 방법과 마찬가지로 시료를 채취하였다. 비교시료(Reference sample)로 변환시설 건물 외부 벽을 선택하여 내부 시료 2차와 3차 시료채취와 같은 방법으로 1cm와 2cm 이상을 채취하여 blank시료 1과 blank시료 2로 하였고, 채취한 시료는 잘게 분쇄하여 감마선 측정

용 용기에 충전하였다.

알파분석을 위하여 TBP용매 추출법으로 우라늄을 분리하고, 분리된 시료를 황산과 암모니아를 이용하여 pH를 약산성으로 맞춘 후 전기전착장치를 이용하여 스테인레스 전착판에 750mA로 전착한 후 가스토치를 이용하여 우라늄을 고정한 후 전착된 전착판을 10^{-2} Torr이하의 진공에서 α -Spectrometer로 1000분이상 계측하였다. 시료의 양과 자기흡수, 시료자체에 함유된 우라늄을 고려하여 U-8용기에 100g 정도를 충전하여 24시간 측정하였다.

감마선분석에서는 건자재에 함유된 우라늄의 분석에 이용될 수 있는 Pb-214와 Bi-214, U-238 과 단시간에 평형상태를 이루는 Th-234와 Pa-234m, 그리고 U-235의 3개의 그룹으로 나누어 계산하였으며, 건자재에 함유된 토륨을 별도로 취급하였다. 방사선 농도는 각 그룹별로 동일하여야 하지만 측정의 불확실성에 의해 많은 편차를 가지고 있으므로 전반적인 판단은 각 그룹의 평균값을 이용하였다. Th-234나 Pa-234m의 농도에서 Pb-214나 Bi-214의 농도를 제외시킴으로서 우라늄의 오염을 구할 수 있으며, U-235와 U-238의 농도를 이용하여 우라늄의 농축도를 판단하였다.

2-5 변환시설 내 철제시료의 측정

변환시설 내의 각종 공정에 사용된 철제 배관의 제염 후 방사능 측정법의 타당성을 파악하기 위하여 일부 시료를 채취하여 오염제거에 따른 방사능을 분석하였다. 분석방법은 아래의 그림5와 같다.

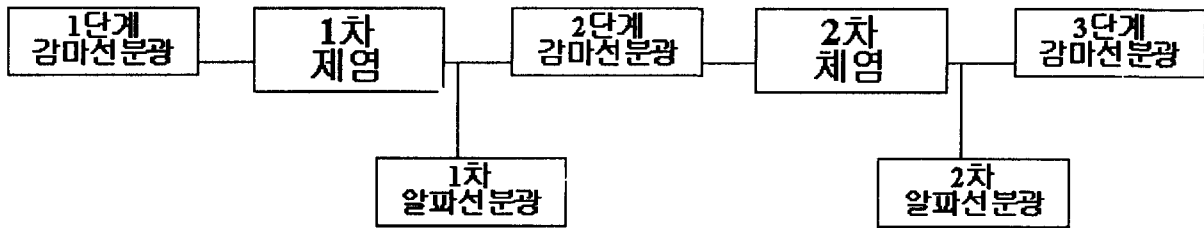


그림 4. 우라늄변환시설 철제시료의 분석방법.

측정대상 시료는 변환시설 내부 1층과 2층의 공정인 용해, 여과, 용매추출, ADU, AUC, 폐기물의 6개 공정에 대한 각 공정별로 오염이 많을 것으로 추정되는 2~3개 정도의 지점을 선정하여 18개의 시료를 채취하였다.

알파선분광을 위한 우라늄 순수분리 절차는 콘크리트 내의 우라늄분리법에 적용된 TBP 용매 추출법을 적용하였다. 우라늄이 순수 분리된 시료를 전기 전착장치를 이용하여 스테인레스 전착판에 전착하였다. 전착판을 α -Spectrometer로 10^{-2} Torr이하의 진공상태에서 1000초 이상 계측 하였다.

감마분석의 경우 Standard Coaxial Germanium Detector를 사용하여 측정방법의 문제점을 파악하고 필요한 경우에 REGE Detector를 사용하여 문제점을 확인하고 해결방법의 타당성을 검증하는 경우에 한해 제한적으로 사용하기로 하였다.

감마분석과 알파분석의 측정값의 비교를 그림 6에서 보여주고 있다. 알파분석에 사용된 방사선의 농도는 용액으로 추출된 양으로 가정하였으므로 이와 비교하기 위하여 사용된 감마선의 농도는 전 단계의 측정값과 현 단계의 측정값과의 차이를 사용하였다. 그림에서 알 수 있는 것은 대부분의 시료가 감마분석과 알파분석에서 큰 차이를 보이고 있지 않지만 일부는 알파분석에 의한

측정값이 높게 나타나고, 반면에 일부는 감마분석에 의한 측정값이 높게 나타났다.

그림 6의 1단계(1step)의 알파 농도는 알파의 1차 측정결과이며, 감마농도는 1차 측정결과와 2차 측정결과와의 차이를 비교하고 있다. 1단계의 알파와 감마선에 의한 농도가 대체

적으로 일치하고 있지만 콘크리트의 측정결과에 비하여 편차가 크게 나타나는 시료들이 있었다. 콘크리트의 측정에서는 시료 내에 오염물질이 균일하게 분포되어 있으므로 편차가 적은 반면에 철재시료에서는 오염물질의 분포가 균일하지 않으므로 오염물질의 위치에 따른 편차가 발생할 수 있다. 시료에서 오염된 부위는 대부분 파이프나 탱크의 내부이며 모든 위치에서 균일하지 못하기 때문에 측정용기에 충전하는 경우에 따라 오염부위와 측정기 사이의 거리가 변화될 수 있다. 그러나 용출된 용액을 사용하는 경우에는 용액내의 오염농도는 모두 균일하다.

2단계(2 step)의 알파농도는 2차 측정결과이며, 감마 농도 1단계의 비교와 동일하게 2단계의 측정값과 3단계의 측정값의 차이를 사용하였다. 모든 시료의 감마분석 측정값이 알파분석보다 높게 나타남을 볼 수 있다. 감마분석에 의한 측정값이 높게 나타나는 이유는 앞에서 언급한 우라늄 오염의 위치 또는 주위방사선(background, X-ray)의 방해효과에 의한 것으로 볼 수 있다.

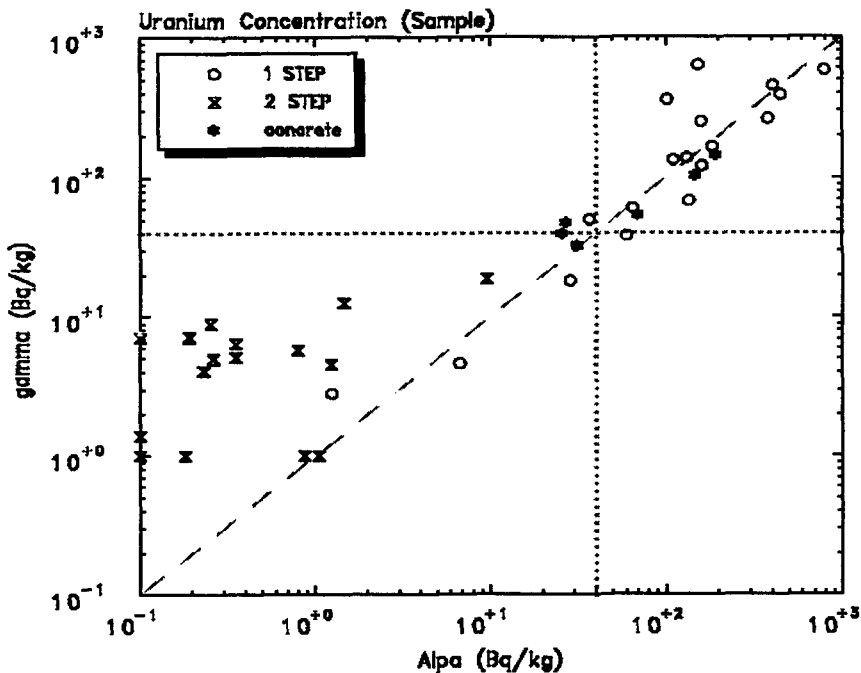


그림 5. 제염단계에 따른 알파분석과 감마분석에 의한 우라늄농도 비료

3. 결론

본 연구는 우라늄변환시설의 해체과정에서 발생하는 농도가 낮은 방사성폐기물 또는 제염 후 농도가 낮아진 방사성폐기물에 대해서 정확한 측정과 평가를 위하여 화학적 분리과정을 거쳐야 하는 알파분광과 취급방법이 용이한 감마분광에 대해서 비교측정 후 그 타당성을 입증하고자 한다. 일반적인 우라늄 농도의 측정방법에 대해 장단점을 검토하고, 자연우라늄 시료를 감마분광으로 측정함으로써 측정방법의 타당성, 측정기와 측정조건, 측정범위 등을 파악하였으며, 변환시설 내의 콘크리트와 철재 시료에 대한 오염도를 파악하였다.

자연우라늄 표준시료(AUC)의 측정에서는 U-238과 U-235 그리고 그들의 딸핵종 중에서 감마분광을 이용하여 우라늄 농도에 사용될 수 있는 핵종의 특성을 파악하고, 예비측정을 수행하여 측정조건을 결정하였다. 감마선 방출 핵종으로 Pa-234m, Th-234, U-235 등이 있지만 방출강도가 0.01 gamma/decay 이하로 매우 낮으며, 대부분의 경우에 감마선의 에너지가 매우 낮다. 0.5 Bq/g의 시료에 대한 감마선의 측정결과가 알파나 ICP에 의한 측정결과와 일치하며, 0.01 Bq/g 이상에서는 계산에 의한 농도와 비례성이 좋지만 0.005 Bq/g 이하의 낮은 농도에서는 감마선에 의한 측정결과가 과대평가된다. 측정결과로 측정기는 100 KeV 이하에서도 검출효율과 에너지 분해능이 우수한 LEPD(Low Energy Photon Detector)를 사용하며, 10cm 이상의 납 차폐가 요구된다. 차폐를 보완하기 위해서는 2cm 이상의 구리 차폐를 사용하는 것이 바람직하다는 것과 감마붕괴의 방출강도가 문헌에 따라 많은 차이를 보이고 있으므로 가능한 최신자료(1995년 이후)를 사용하여야 한다. 0.005 Bq/g 이하의 MDA를 달성하기 위해서는 시료의 양이 1kg 이상이어야 하고, 자체흡수를 고려하여 시료의 두께는 1.5 cm 이하여야 한다.

변환시설 콘크리트 벽면의 오염농도 확인 및 감마선 분광에 의한 우라늄 측정의 가능성을 파악하기 위하여 내부와 외부벽면에 대해 각각 2 곳을 선정하고 깊이에 따라 3가지 시료를 채취하였으며, 측정용기로 U-8 용기를 사용하였다. 스펙트럼의 분석은 영구평형에 도달하는 데 오랜 시간이 소요되는 Pb-214와 Bi-214, 짧은 시간 내에 평형에 도달하는 Th-234와 Pa-234m에 대하여 수행함으로써 오염에 의한 농도와 콘크리트 자체 내에 함유된 U-238의 농도를 구분할 수 있다. 감마분석에 의한 우라늄 분석결과에서 감마 방출핵종의 분포가 균일하므로 매우 낮은 농도를 제외하면 알파분석의 결과와 큰 차이가 없지만, 감마분석에서는 오차가 크기 때문에 측정값의 편차가 비교적 크다. 또한 오염은 벽면의 외부나 페인트에서만 관측되었다.

변환시설 내의 현장시료에 대한 우라늄 측정은 현장시료 측정 시 발생하는 문제점 파악, 측정결과의 신뢰성 검증, 제염효과의 확인 그리고 시설 내의 초기 오염도에 대한 자료생산 등을 목적으로 변환과정별로 3~4개(총 18개)의 시료를 채취하여, 오염제거를 수행하면서 감마선과 알파선으로 방사능을 측정하였다. 감마와 알파선에 의한 측정결과가 큰 편차를 갖고 있지만 전반적으로 일치하는 것으로 볼 수 있었고, 또한 농도가 낮은 경우에는 감마선의 측정결과가 과대평가하는 경향이 있다. 또한 본 실험에 사용된 제염방법이 1회의 처리만으로 금속표면에 부착된 오염물을 완전히 제거시키기에는 불충분하며, 3~4회의 제염을 거친 후에 모든 시료의 방사능 농도가 0.01 Bq/g 이하로 낮아진다. 방사선 농도의 해석에 있어서 시료의 자체흡수에 대한 보정은 반드시 수행하여야 한다. 보정을 수행하지 않는 경우에 50% 정도로 낮게 평가할 수도 있으며, 농도가 낮은 경우에 핵종과 감마선의 에너지 따라 편차가 크게 나타나므로 오염여부를 판단하는데 신중을 기하여야 한다.

참고문헌

1. D.Reilly, et al, "Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials," NUREG/CR-5550, LA-UR-90-732, Los Alamos National Labretory, 1991
2. EML, "EML300M.Lib," Environmental Measurements Laboratory, 1998
3. BNL, "Master.Lib. PCNUDAT Decay Radiation," NNDC., Brookhaven National Laboratory, 2003
4. R.B.Firestone, et al., "Table of Isotope, 8th Edition," John Willey & Sons Inc., 1966