

감마선 측정을 통한 Th-232 붕괴 사슬 반응 분석

The Analysis of Th-232 Decay Chain Reaction Based on Gamma-ray Measurements

김태우, 성진명, 임상규, 유재식, 최대환, 황진석, 박광현

경희대학교

경기도 용인시 기흥읍 서천리 1번지

요약

액티나이드 함유 방사능 폐기물의 비 파괴적 분석은 중요하다. 방사능 물질인 핵연료가 연쇄 붕괴를 하면서 방사능 정도가 변화한다. 이 연구에서는 Th-232 붕괴 시 나오는 감마선을 측정함으로써 시간변화에 따른 방사능 변화를 연구하고 이론값과 비교함으로써 실제 값을 비교 정량 분석하였다. 그 결과 실제 값과 이론값의 상대적 비율은 일치 하였으나 절대치 양은 많은 차이를 보였다. 그 이유는 검출기의 효율과 사용된 프로그램 지니-2000의 백그라운드 오차 등의 때문이다. Th-232 2g를 24시간 조사하여 얻은 결과가 이론값과 같음을 확인하고 정확성을 찾을 수 있었다. 이를 통하여 현재 방사능 물질의 방사능 정도를 측정함으로써 어느 정도의 붕괴가 이루어 졌으며 또한 앞으로 붕괴 정도를 알 수 있다.

Abstract

Non-destructive analysis of radioactive materials especially long-lived nuclides such as actinides. Gamma radiations from the decay of the fuel are very useful in the analysis of unknown radioactive materials. We measured the gamma radiations from Th-232 fuel, and compared them with the theoretical values. Generally, gamma radiations including gamma energy was very similar to the estimation from the radioactive nuclides in the decay chain. however, quantitatively the estimation is somewhat offset to the real measured values. Based on these experiments, we can apply gamma radiation detection to the non-destructive analysis of nuclear materials.

1. 서론

현재 우리나라 원자력 발전소에서 쓰고 남은 핵연료는 발전소 부지에 저장하고 있으나 저장고가 포화상태에 이르러 확장이 요구되고 있다. 그에 따른 해결책으로 부안 원전 수거물 관리 센터를 건설하기 위하여 추진 중이다. 이때 원자력 발전소 내에 저장되어 있는 폐 핵연료를 옮겨야 하지만 운영을 멈춘 상태에서도 연쇄붕괴반응이 일어나 이동시 방사선에 의한 환경오염의 염려가 생한 전자를 측정함으로 감마선을 측정한다.

본 연구는 이러한 방사능 붕괴에 따른 감마선 에너지의 측정을 통해, 이론값과 측정치와의 비교를 주목적으로 하고 있다. 각 핵종 당 발생하는 감마선 에너지의 영역을 우선적으로 이론적인 값을 먼저 분석을 한다. 이론적인 값은 각 핵종 별 반감기를 파악하여, 반감기를 이용 붕괴상수 값을 구한 다음 시간 별 에너지 영역에 따른 핵종별 감마선 에너지에 대한 분석을 한다. 이 후에 Ge-계측기로 측정한 실험 측정치를 위와 같은 방법으로 분석하여, 이론값과 측정치의 분석을 통해 감마선 측정을 통한 토륨 붕괴 사슬 반응을 분석한다. 현재까지 Th-232 붕괴 사슬 반응에 대한 정확한 에너지 값에 대한 비교 분석 연구가 이루어 지지 않았고, 비파괴 분석법의 필요성이 요구되는 바에 따라 각 핵종별 에너지를 분석하고, 붕괴사슬에 따른 감마선 에너지의 분석을 통해 토륨의 붕괴사슬을 정확히 이해하는데 그 목적이 있다고 하겠다. 또한 이 연구를 통하여 Th-232의 붕괴 사슬 반응에 대한 비교 정량적 방사능의 변화를 알 수 있으며 그에 따른 관리를 할 수 있을 것이다.

2. 이론

가. Th-232의 연쇄붕괴

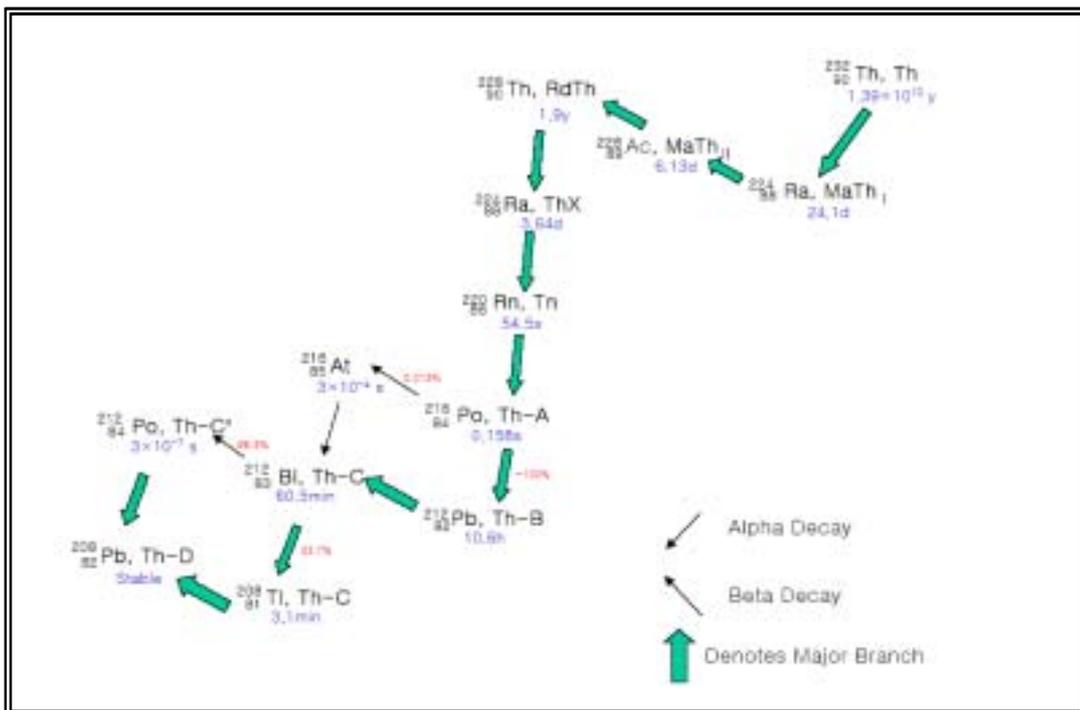


그림 1. 토륨-232의 붕괴사슬반응도

그림 1은 토륨-232의 연쇄 붕괴 반응을 나타낸다. 토륨-232의 붕괴로 인해 10개 이상의 딸 핵종이 발생되고 그에 따른 방사능 변화가 있음을 알 수 있다. 그러나 그림의 각 핵종별 반감기를 보면 많은 차이를 보이는 구간이 있다. 이 구간에서 과도평형 상태에 이른다. 그러므로 이 구간 이후부터 방사능의 양이 일정비율로 진행된다.

나. 게르마늄 검출기

충만대와 전도대 사이의 에너지 갭(gap)이 작아서 상온에서도 열적인 여기에 의해 충만대에 있던 전자가 전도대로 이동할 수 있는 물질을 반도체라고 부른다. 이와 같이 방사선의 에너지 흡수에 의해서 뿐 아니라 상온에서도 열전여기에 의해 반도체 검출기에는 항상 미량의 전류가 흐르기 때문에 사용 시에는 반드시 액체질소로 냉각시켜주어야 한다. 충만대에 있던 전자가 전도대로 이동하면 충만대에는 정공이라 부르는 전자의 빈자리가 만들어지고 이는 양전자 효과를 낸다. 반도체에서 전자·정공쌍을 만드는데 필요한 에너지는 게르마늄이 2.9eV이고 실리콘이 3.6eV로 기체(30eV)에서 보다 상당히 작으므로 동일한 에너지의 입사방사선에 대하여 생성되는 정보전달자의 수가 많아서 출력펄스가 커진다. 따라서 입사방사선의 에너지를 구분하는 에너지 분해능이 우수하다. 근래에는 게르마늄의 불순물 정제기술이 발달하여 게르마늄(리튬)대신에 고순도 게르마늄 검출기(High Purity Ge detector, HPGe)가 널리 사용된다. 게르마늄(리튬)은 상온에서 리튬이 이동하기 때문에 항상 액체질소로 냉각해야하는 부담이 있는 반면에 고 순도 게르마늄 검출기는 열전자에 의한 잡음을 줄이기 위해 사용중에만 냉각하면 된다. 실리콘(리튬)은 X-선 측정용으로 게르마늄(리튬)은 감마선 측정용으로 주로 사용한다.

3. 실험

이번 실험을 수행할 때 천연 ThO_2 를 이용하여 HPGe(coaxial P type) Type, 300V, side-looking 형태의 반도체 검출기를 이용하여 24시간동안 측정하였다.

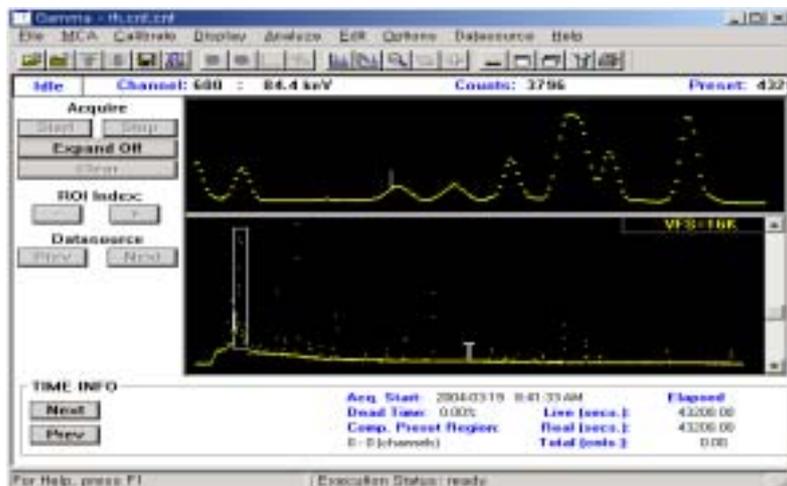


그림 2 detector를 이용한 데이터 분석
(Genie-2000 Basic Spectroscopy Software)

먼저 Genie-2000을 이용해 각 채널별로 측정된 계수율을 엑셀로 옮겨서 데이터베이스화한 후, Peak가 측정된 곳의 핵종과 에너지를 조사한다. 그리고 Th-232의 붕괴 사슬의 감마선 소스의 핵자료를 수집(ENDF)[3], 피크가 측정된 곳의 핵종과 Energy Level과 비교한다.

4. 실험 결과 및 논의

가. Genie-2000을 이용한 정량적 분석

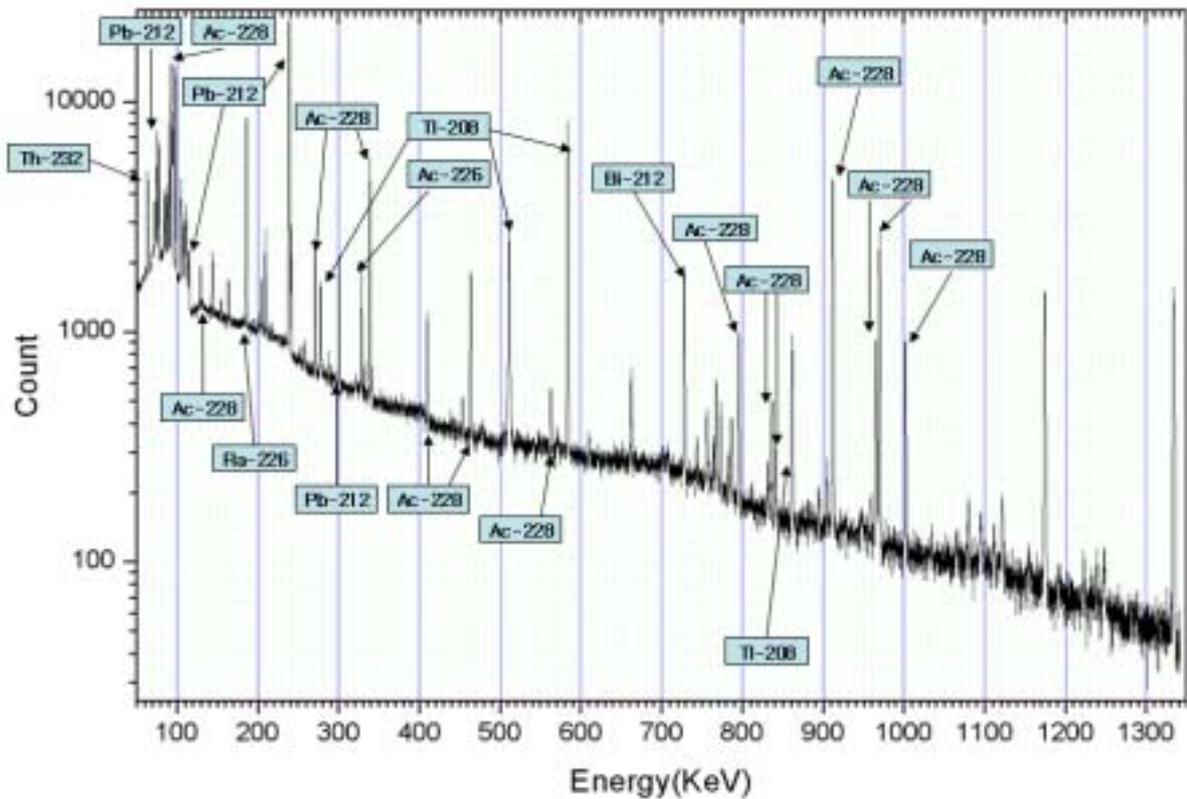


그림 3 Th-232 붕괴사슬 중 각 감마선의 계수율

계측기가 8136채널에서 감지한 피크들을 Genie-2000을 통해 각 피크의 정점을 찾아 임의의 에너지를 가지는 핵종의 종류와 계수율을 밝혀 내었다. 백그라운드 이하의 계수율은 무시한다. 그리고 3개의 계수율을 찾아 평균 Counts를 계산하였다.

나. 핵종의 에너지별 실제 계수치와 이론붕괴분율 비교

f : Cs-137 (661.6 KeV)을 기준(1)으로 감마선 측정효율을 아래와 같이 나타낼 수 있다.

$$f = 0.3109 + 3.2711 \exp(- E(\text{KeV}) / 462.78)$$

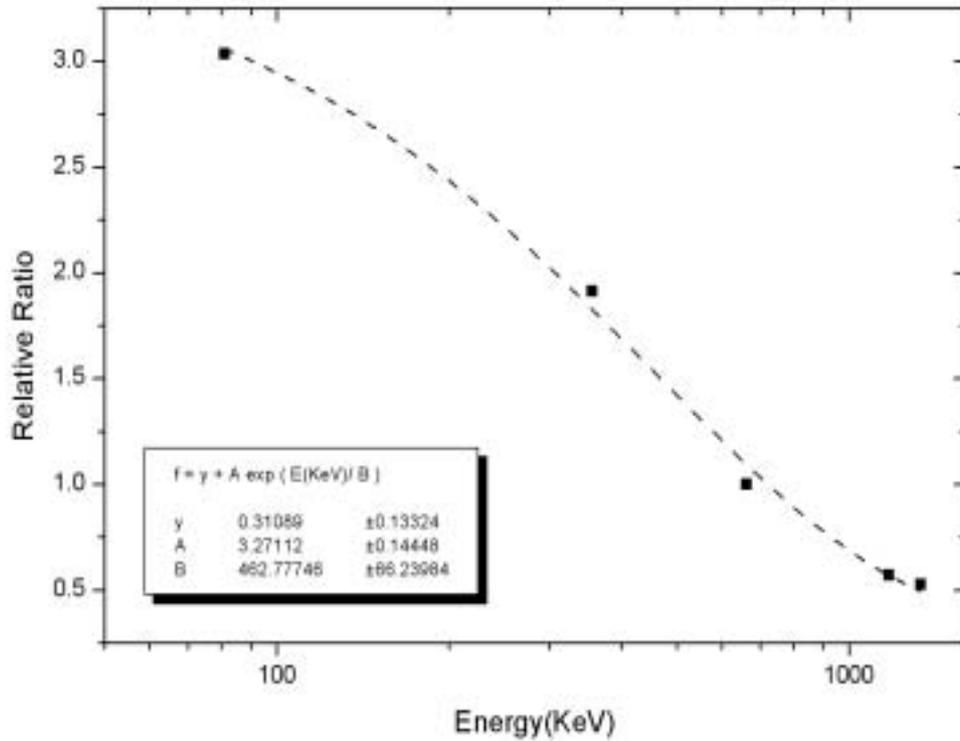


그림 4 Cs-137 (661.6 keV)을 기준으로 계산한 감마선 측정효율 그래프

다. 각 핵종별 보정계수치와 발생분율

핵 종	에너지(keV)	보정 계수치(count/f)	발생분율 (이론%)
Th-232	63.8	14703.77553	0.26
Ac-228	93.3	42822.17998	3.5
	129.06	5070.365525	2.8
	209.25	6549.700728	4.4
	270.24	4693.092577	3.6
	328.0	3486.050918	3.2
	338.32	10314.2443	11.4

	409.46	1951.935804	2.13
	463.0	2691.355948	4.4
	794.95	859.338566	4.6
	835.7	424.234181	4
	911.2	3506.15636	27.7
	968.9	1898.57479	16.6
	1175.3	806.799117	0.13
Th-228	84.3	12440.605	3
Ra-224	240.98	6408.77994	3.97
	74.810	22073.9	10.5
	77.110	19736.3	17.6
Pb-212	87.300	13241.1	7.9
	238.633	51248.2	42.6
	300.087	4115.21	3.3
Bi-212	727.181	1715.6	6.65
	277.360	3333.77	6.36
Tl-208	510.770	3916.43	22.8
	583.190	10248.1	85.2

예를 들면, 1173 KeV의 감마선을 Ge-계측기로 측정할 경우, 661 keV의 감마선 측정에 비해 57%의 효율을 갖는다. 다시 설명하면, 100개의 661 keV의 감마선이 Ge-계측기에 입사하여, 그 중 50개가 측정되었다고 가정하자. 만약 100개의 1173 keV 감마선이 이 Ge-계측기에 입사하였다면, 28개 ($50 \times 0.57 = 28.5$)의 감마선을 측정할 수 있다는 것이다. 따라서, 실제 계측기에 입사한 감마선의 갯수는 측정된 값에 이 상대효율, f 를 나눠야 구할 수 있다.

위 표에서 실험 결과치를 보정한 값과 감마핵종의 발생분율을 비교 분석하면 상당한 오차가 발생한다. 검출기의 계수로부터 효율을 구한 다음 상대적 보정 계수치를 통해 이론 발생분율을 비교한다는 것에 상당한 어려움이 예상된다.

라. 각 핵종별 보정계수치와 Cs-137의 방사능과 계수율의 비를 이용하여 계산된 핵종별 실제 Activity(μCi)

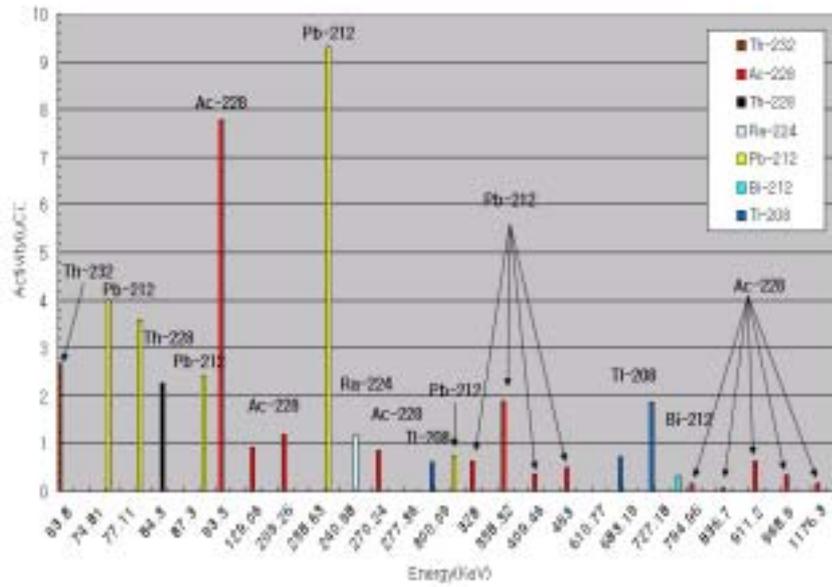


그림 5 Th-232 붕괴사슬의 각 핵종의 에너지당 방사능 (2g, 24hours)

$$\text{식 (1) : } \frac{\mu Ci \text{ of } Cs}{\text{Counts of } Cs} \times \text{Detected of Counts} = \text{Detected of } \mu Ci$$

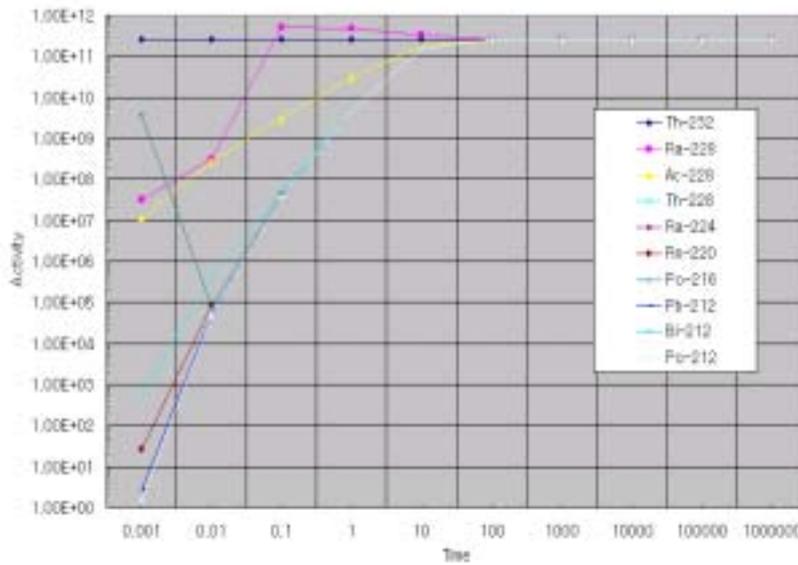


그림 6 Th-232 붕괴사슬의 각 핵종의 Energy별 Activity (2g, 0.001year~1000000year)

5. 결 론

그림 5에서와 같이 시편으로 사용된 Th-232(2g) 붕괴사슬의 각 핵종의 에너지당 방사능을 구할 수 있다. 그리고 이론적으로 Th-232(2g)의 년도별 방사능 변화량(그림6)을 알 수 있다. 다시 말해, 계측기로 측정되고 보정된 임의의 핵종의 방사능을 알 수 있다면, 그 시료가 현재 얼마만큼의 붕괴가 일어났는지 예측할 수 있다. 그러므로 현재 원자력 발전소에서 생산되고 있는 방사능 폐기물의 연대 측정이 비파괴적으로 위와 같은 방법으로 예측할 수 있다. 또, 이와 같은 방사능 폐기물이 인체나 자연에 무해한 정도의 방사능으로 붕괴가 되는지 예측하여, 원전 수거물 관리센터에서도 수거물의 보관 기간을 예측할 수 있다.

참고문헌

1. Karl Heinrich Lieser. "Nuclear and Radiochemistry Fundamentals and Applications". (1997)
2. B.Ma. "Nuclear Reactor Materials and Applications".
3. <http://t2.laui.gov/data/decayd.html>(ENDF)