

A Study on the Statistical Representativeness of Samples taken from Radioactive Soil

방사성 토양폐기물 시료의 통계적 대표성에 관한 연구

Han-Seok Cho, T.K. Kim, K.M. Lee, S.J. Ahn, J.S. Shon

Korea Atomic Energy Research Institute, P.O.Box 105, Yuseong, Daejeon, Korea

조한석, 김태국, 이강무, 안섭진, 손종식

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

Abstract

For the treatment of regulatory clearance of the soils, a procedure for the radionuclides and radioactivity concentration analysis is under development. A strategy for soil sampling including random sampling after homogenization and standardization was set up. Statistical representativeness is considered for not only sampling strategy but also sample size. In this study, designed sample size was designed with confidence interval and error bound of soil using the pilot samples which were taken following the sampling strategy.

Key Word : Sampling of Soil, Sample Size, Regulatory Clearance, Analysis of Radioactivity, Radioactive Waste, Waste Treatment

요 약

한국원자력연구소에서는 토양폐기물의 규제해제를 통한 처리를 위하여 토양의 핵종 및 방사능 분석에 대한 절차를 개발하고 있다. 토양의 규제해제를 위한 기반작업으로 대표성 있는 시료를 추출하기 위하여 균질화, 평균화를 거쳐 임의추출(random sample)하는 시료추출의 방법론을 결정하였다. 통계학적인 관점에서의 대표성은 시료추출의 방법론 뿐만 아니라 시료의 크기를 얼마로 할 것인가에 대한 설계가 선행 되어야 한다. 본 연구에서는 토양폐기물에서 시료를 채취하는 절차에 따라 예비시료를 추출한 후 핵종 및 방사능평가 작업을 수행한 결과를 사용하여 신뢰구간과 오차 한계에 따른 시료의 개수를 산정하였다.

중심단어 : 토양 시료, 시료의 크기, 토양, 규제해제, 방사능분석, 방사성폐기물, 폐기물처리

1. 서 론

한국원자력연구소에 현재 임시저장하고 있는 방사성폐기물 중 1988년 서울사무소의 폐쇄 과정에서 발생한 토양 및 콘크리트 드럼이 4,500드럼 정도가 보관되어 있다. 이 중 3,150여 드럼의 토양폐기물은 발생 당시부터 방사능 준위가 높지 않았으며, 토양내 존재하고 있는 주요 방사성 핵종이 Co-60과 Cs-137로 각 핵종의 반감기를 고려하였을 때 16년의 저장기간 동안 방사능 농도가 많이 낮아졌을 것으로 판단할 수 있다. 따라서 토양에 대한 방사능 분석을 수행하여 규제해제 대상으로 분류하는 방안을 고려하고 있다.

규제해제 대상폐기물에 함유된 방사능을 가장 정확하게 평가하는 방법은 폐기물 전체에 대한 방사능분석을 수행하는 것이다. 그러나 폐기물전체에 대한 방사능 분석은 현실적으로 불가능하며 비용과 효율의 측면에서도 바람직하지 않다. 따라서 전체 폐기물 중 일부에 대한 방사능 분석결과를 이용하여 전체 폐기물의 방사능 농도를 추정하는 방안이 고려되어야 한다. 일반적으로 토양폐기물에 대한 시료의 대표성은 균질화, 평균화를 거쳐 임의추출(random sample)된 시료를 분석하여 확보 할 수 있다는 시료추출의 방법론이 알려져 있다.¹⁾

통계학적인 관점에서의 대표성은 시료추출의 방법론 뿐 만 아니라 시료의 크기를 얼마로 할 것인가에 대한 설계가 선행 되어야 한다. 시료의 크기(sample size)는 데이터의 변동(data variation)을 조절하기 위하여 통계적 추정량의 신뢰구간(confidence interval)과 오차한계(error bound)를 설정해야 한다. 본 연구에서는 균질화, 평균화를 거쳐 추출된 토양폐기물 예비시료(pilot sample)의 방사능 결과값을 이용하여 신뢰구간과 오차한계에 따른 시료의 크기를 제시한다.

본 논문에서 제시되는 오염토양의 시료추출방법과 시료의 크기에 대한 결과는 향후 원자력시설의 폐쇄 작업에서 대량으로 발생하는 토양 폐기물의 처리과정에서 활용될 수 있을 것이다.

2. 시료의 대표성 확보에 대한 국내외 사례

한국원자력안전기술원의 규제해제 시 시료 및 측정결과의 대표성 확보방안은 크게 두 가지이다. 첫째, 균질화 방안으로 동일한 종류의 폐기물 전체를 균일하게 혼합하여 채취한 시료에 대한 방사능 분석결과 이용하는 방법과 둘째, 평균화 방안으로 동일한 종류의 폐기물 중 무작위로 다수의 시료를 채취하여 분석된 방사능 농도의 평균치를 적용하는 방법이다. 대부분의 경우 균질화와 평균화를 함께 고려하여 적용하여야 함을 권고하고 있다.¹⁾ 또한 자체처분에 있어서 단위 폐기물 수량에 대한 방사능 측정 시 평균화를 인정할 수 있는 최대 폐기물의 양은 200kg 또는 200리터이며 채취된 시료의 양은 당해 시료가 대표하는 폐기물의 1/200 이상이어야 한다고 제시하면서 동시에 신청자는 채취된 시료가 대상 폐기물 단위 수량의 대표성을 확보하고 있음을 입증하여야 한다고 권고하고 있다.²⁾

IAEA-TECDOC-855에 제시된 권고안은 규제해제 적용의 타당성을 검증하기 위한 시료채취 및 측정방법에 대한 것으로, 대상 폐기물을 그 종류 및 발생원에 따라 가능한 균일하게 분류하고 해당물질에 적합하게 평균화가 허용되는 최대 면적 또는 질량 단위를 결정하여야 한다고 제시되어 있다. IAEA-TECDOC-1000에는 단일 포장물의 폐기물을 최소한 10개 이상으로 분할하고 각 분할체의 방사능을 측정하여야 한다고 제시되어 있다. IAEA Technical Report 383에는 좀 더 구체적인 시료채취 기준이 나와 있는데, 용기 내 폐기물의 방사능에 대한 정규분포(Normal Distribution)를 가정할 수 없는 경우, 포장물 내의 폐기물을 종류별로 분리하여 각각의 시료를 채취하도록 권고하고 있다.

미국의 EPA/600/4-90/013에서는 정규분포 또는 정규분포로 변환할 수 있는 경우, 특정 신뢰도를 확보하기 위하여 요구되는 시료의 개수를 Table 형태로 제시하고 있다. 또한 모집단의 실제 분산(variance)에 대한 추정의 정밀도는 추정의 자유도(degree of freedom)에 따라 달라지며, 추정의 자유도는 시료의 개수와 직접적인 관련이 있다고 제시되어 있다.

대부분의 국가에서 제시된 권고안은 주로 넓은 대지의 토양이 오염된 경우에 대한 방사능 평가 방법에 대한 것이다.

3. 저장 중인 토양폐기물의 특성

현재 연구소에 임시저장하고 있는 토양폐기물은 1988년 서울사무소의 폐쇄 시 표면선량이 기준치 이상으로 측정된 지역의 토양을 지적하면서 굴삭기를 이용하여 200리터 포장용기에 포장하였다. 따라서 단위 폐기물의 방사능농도는 각각의 단위포장물(드럼) 내 편차가 작고, 드럼 간의 편차

는 어느 정도 있을 것으로 추정할 수 있다. 즉, 당시 토양폐기물의 포장 작업 과정에서의 방사능 농도는 드럼 내 편차 보다는 드럼 간의 편차가 더 크게 진행 되었다고 볼 수 있다.

발생당시의 핵종분석 결과도 γ -선 방출핵종은 Co-60과 Cs-137만이 검출되었고, 방사능농도 값도 그리 높지 않음을 나타내고 있다.

전체적인 토양폐기물의 방사능농도 값은 0에 가까운 값으로 추정할 수 있다. 따라서 0에 가깝지만 음수로 나타나지 않는 방사능농도 값을 고려 할 때, 오염토양의 방사능농도 값은 좌우대칭인 정규분포를 따른다고 가정하기는 어렵다고 볼 수 있다.

4. 토양폐기물의 시료추출 방법

시료를 추출할 때 가능한 한 모집단을 잘 반영할 수 있는 표본을 선택해야 한다. 대표성이 있는 표본이라면 모집단의 모든 특성을 그대로 반영하는 축소판 이어야 하지만, 물론 그러한 완벽한 표본은 존재할 수 없다. 왜냐하면 모집단에 대해 전혀 알지 못하는 상태에서 현재 추출된 표본이 완벽한 표본인지 아닌지 누구도 장담할 수 없기 때문이다. 통계학에서는 어떻게 표본을 선택해야 모집단을 대표하는가에 대한 방법론으로 임의표본(random sample)을 제시하고 있다.

규제기관 및 각국의 토양시료 추출 방법에 따른 권고안을 기준으로 균질화 및 평균화 방법에 타당하도록 시료추출 방법을 설정하였다. 시료 추출과정은 임의의 토양폐기물 드럼을 선정하여 표면선량률을 측정 후 Tray에 내용물을 쏟아 부어 골고루 펼친다. 이 단계에서 토양 이외의 이물질들을 별도로 수집하고 전체적으로 균질하게 혼합하면서 표면선량률을 측정한다. 표면선량률이 높게 나오는 부분도 별도로 분류한다. 이러한 과정이 끝난 토양의 tray에 미리 만들어 놓은 10×10 grid를 얹어 토양을 전체적으로 100개의 구역으로 나눈다. 나누어진 각 구역에 일련번호를 1부터 100까지 부여한 후 최종 단계에서 균등분포(Uniform Distribution)를 이용하여 30개 정도의 난수(random number)를 생성한다. 임의로 정한 30개의 구역에서 시료를 채취하며, 통계적인 시료추출 방법론은 단순임의추출(SRS; Simple Random Sampling)을 사용하게 된다.

이때 얼마의 양을 시료로 추출하여야 단위 폐기물에 대한 대표성을 입증할 수 있는가에 대한 문제가 제기되고, 이에 대한 표본추출 시 대표성의 통계학적인 설명이 필요하다.

통계학적인 관점에서의 대표성은 시료추출의 방법론 뿐 만 아니라 시료의 크기를 얼마로 할 것인가에 대한 설계가 선행 되어야 한다. 시료의 크기(sample size)는 데이터의 변동(data variation)을 조절하기 위하여 통계적 추정량의 신뢰구간(confidence interval)과 오차한계(error bound)를 설정해야 한다. 일반적으로 알려진 모집단의 평균에 대한 추정 시 시료의 크기를 구하는 공식은 다음과 같다.

$$n = \left(\frac{ts}{e} \right)^2$$

여기에서, t : 신뢰도와 자유도에 따른 t 분포 값,

s : 예비시료의 표준편차,

e : 최대 추정오차

위 식에서 시료의 크기는 예비시료의 표준편차가 크거나, 높은 신뢰도, 즉 유의수준(α)을 작게 하여 t 값이 크거나, 정확도를 높혀 e 를 작게 할 때 n 이 커지므로 시료의 크기를 정할 때는 이를 고려하여야 한다. 따라서 예비시료에서의 편차가 가능한 한 크게 하도록 하는 것이 시료의 크기를 크게 할 수 있으며, 보수성도 확보할 수 있다. 토양폐기물 발생 당시 서울사무소 지역의 토양에 대하여 포장 작업 과정에서의 방사능농도는 드럼 내 편차 보다는 드럼 간의 편차가 더 크게 진행

되었다고 볼 수 있으므로, 예비시료를 복수개의 단위폐기물(드럼)별로 추출하여 시료의 크기를 계산하는 식에 적용하는 것이 보수성을 확보할 수 있는 방안으로 판단된다. 앞서 제시한 시료추출 방법에 근거하여 12개 단위폐기물(드럼)별로 예비시료를 추출한 후 원자력환경연구부(KORAS 인증기관)에 의뢰하여 방사능농도를 분석한 결과는 표.1과 같다.

표 1. 토양폐기물 예비시료의 핵종 및 방사능농도 측정결과

시료번호	시료부피 (cc)	핵종별 방사능농도(Bq/g)	
		Cs-137	Co-60
1	150	7.5E-3 ± 5.0E-4	2.4E-2 ± 1.2E-3
2	150	3.7E-3 ± 4.0E-4	1.0E-2 ± 8.0E-4
3	150	4.1E-3 ± 3.0E-4	1.0E-2 ± 7.0E-4
4	150	1.2E-2 ± 6.0E-4	2.8E-2 ± 1.3E-3
5	150	7.1E-2 ± 3.0E-3	1.1E-2 ± 6.0E-4
6	150	1.5E-2 ± 8.0E-4	4.3E-2 ± 2.0E-3
7	150	1.1E-2 ± 6.0E-4	4.0E-2 ± 1.7E-3
8	150	1.3E-2 ± 7.0E-4	3.5E-2 ± 1.6E-3
9	150	2.2E-2 ± 1.0E-3	4.3E-2 ± 1.9E-3
10	150	1.4E-2 ± 7.0E-4	2.3E-2 ± 1.0E-3
11	150	2.5E-2 ± 1.1E-3	7.0E-2 ± 2.8E-3
12	150	2.8E-2 ± 1.2E-3	9.3E-2 ± 3.8E-3

표 1.에 나타나 있는 방사능농도 값은 불확실성정도를 알고 있는 측정값으로 평균과 최대값(평균+불확도)을 산정 할 수 있다. 또한 방사능농도 값은 0에 가깝지만 정규분포를 가정할 수 없다. 이러한 특성의 값을 로그변환하면 정규분포에 근사됨을 알 수 있다. 즉, 방사능농도의 분포는 로그 정규분포(Lognormal Distribution)에 근사 된다. 방사능농도 값의 분포와 이를 로그 변환한 값의 분포를 알아보기 위하여 그림 1에 히스토그램과 정규곡선을 표현하였다.

시료의 크기를 산정하기 위하여 예비시료의 방사능농도 값에 로그를 취한 방사능농도의 통계량을 표 2에 제시하였다. 관심이 있는 모수(parameter)는 두 가지로, Co-60과 Cs-137의 방사능농도 값이다. 두 가지 모수를 알기 위하여 예비시료의 통계량을 산출하였고, 변동계수(CV; Coefficient of Variance)를 사용하여 Co-60과 Cs-137 중 어느 것이 평균에 비하여 편차가 크게 나타나는지 알 수 있다. Co-60의 변동계수가 크므로 시료의 수를 산정할 때 편차가 더 큰 모수인 Co-60을 추정하는 것이 보수성을 확보할 수 있기 때문이다.

표 2. 토양폐기물 예비시료의 핵종 및 방사능농도 통계량 및 로그변환 값

구분	측정값				로그변환값(ln측정값)				
	방사능농도		방사능농도+불확도		방사능농도		방사능농도+불확도		
	Cs-137	Co-60	Cs-137	Co-60	Cs-137	Co-60	Cs-137	Co-60	
시 료 번 호	1	0.0075	0.0240	0.0080	0.0252	-4.893	-3.730	-4.828	-3.681
	2	0.0037	0.0100	0.0041	0.0108	-5.599	-4.605	-5.497	-4.528
	3	0.0041	0.0104	0.0044	0.0111	-5.497	-4.566	-5.426	-4.501
	4	0.0118	0.0282	0.0124	0.0295	-4.440	-3.568	-4.390	-3.523
	5	0.0707	0.0105	0.0737	0.0111	-2.649	-4.556	-2.608	-4.501
	6	0.0151	0.0426	0.0159	0.0446	-4.193	-3.156	-4.141	-3.110
	7	0.0113	0.0401	0.0119	0.0418	-4.483	-3.216	-4.431	-3.175
	8	0.0131	0.0350	0.0138	0.0366	-4.335	-3.352	-4.283	-3.308
	9	0.0222	0.0432	0.0232	0.0451	-3.808	-3.142	-3.764	-3.099
	10	0.0144	0.0228	0.0151	0.0238	-4.241	-3.781	-4.193	-3.738
	11	0.0253	0.0702	0.0264	0.0730	-3.677	-2.656	-3.634	-2.617
	12	0.0279	0.0932	0.0291	0.0970	-3.579	-2.373	-3.537	-2.333
평균	0.0189	0.0359	0.0198	0.0375	-4.283	-3.559	-4.228	-3.509	
표준편차	0.0180	0.0251	0.0187	0.0260	0.821	0.732	0.807	0.723	
변동계수	0.9523	0.6994	0.9445	0.6940	0.192	0.206	0.191	0.206	

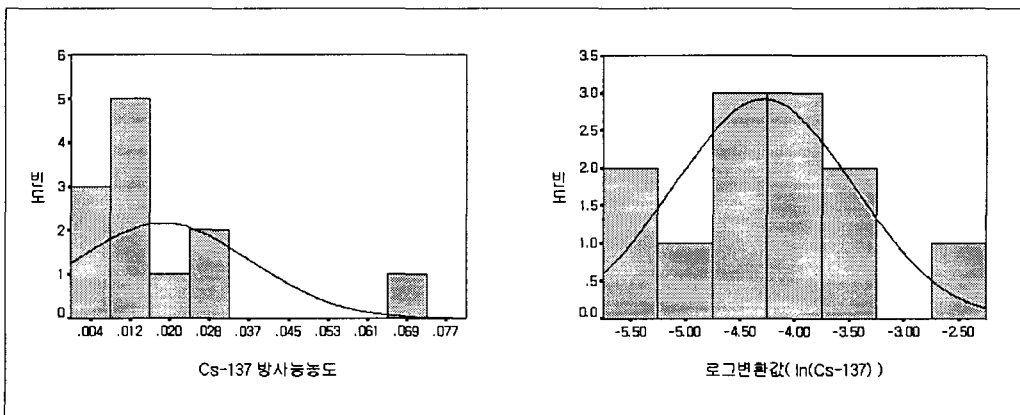


그림 1. 방사능농도값의 로그변환

5. 통계적인 시료의 크기 산정

12개 예비시료를 1회 방사능농도 측정 시 그 부피는 150cc이다. 따라서 시료단위(sample unit)를 150cc로 정하고, 편차를 크게 하여 보수성을 확보하기 위해 12개 예비시료를 단위폐기물(200리터 드럼)에서 추출된 것이라고 할때, 모집단 즉, 단위폐기물은 1,333개의 시료가 된다. 신뢰구간을 95%, 98%, 99%로 변화시키면서 예비표본의 표준편차를 1배, 2배, 3배로 최대허용오차를 변화시키면서 시료의 개수를 산정하였으며, 표 3은 이러한 결과를 요약한 표이다.

신뢰구간	t (자유도=11)	핵종	최대허용오차 (e)	시료의 개수 (150cc 기준)
95%	2.201	Co-60의 방사능농도	0.732 (s)	4.85
			1.464 (2s)	1.21
			2.196 (3s)	0.54
		Co-60의 방사능농도+불확도	0.723 (s)	4.84
			1.446 (2s)	1.21
			2.169 (3s)	0.54
98%	2.718	Co-60의 방사능농도	0.732 (s)	7.39
			1.464 (2s)	1.85
			2.196 (3s)	0.82
		Co-60의 방사능농도+불확도	0.723 (s)	7.38
			1.446 (2s)	1.85
			2.169 (3s)	0.82
99%	3.106	Co-60의 방사능농도	0.732 (s)	9.66
			1.464 (2s)	2.41
			2.196 (3s)	1.07
		Co-60의 방사능농도+불확도	0.723 (s)	9.64
			1.446 (2s)	2.41
			2.169 (3s)	1.07

6. 결론

토양폐기물의 시료 추출 및 방사능평가에 있어서 시간과 비용의 문제가 제기 되므로 시료의 대표성을 설명할 수 있으면서 최소한의 시료를 추출하는 것이 필요하다. 본 연구에서는 대표성 있는 시료를 추출하기 위하여 작성된 작업절차에 따라 예비시료를 추출한 후 핵종 및 방사능농도의 측정값을 활용하여 통계적으로 보수적인 시료의 수를 산정하였다. 95%신뢰구간에서는 약 5개, 98%신뢰구간에서는 약 8개, 99% 신뢰구간에서는 약 10개 정도의 150cc의 시료가 필요하다.

향후 다양한 원자력시설의 폐쇄 과정에서 방사성 오염토양의 발생은 필연적이므로 본 연구에서 고려한 시료의 수에 대한 산정 방법은 타 연구에서 충분히 활용될 수 있을 것으로 판단된다.

참 고 문 헌

1. 방사성폐기물 규제기술개발 - 방사성폐기물 규제해제 요건 개발, 한국원자력안전기술원, KINS/RR-144 (2002).
2. 극저준위 폐기물 자체처분에 관한 규제입장(안), 한국원자력안전기술원, 제6회 원자력안전기술 정보회의 (2000)
3. 표본조사방법론, 성내경, 자유아카데미 (2005)
4. 분석화학에서 이용하는 통계적 방법, 한국원자력연구소, KAERI/TR-843/97 (1997)
5. Preparation of Soil sampling Protocols, EPA/600/R-92/128 (1992)
6. Soil Sampling for Environmental Contaminants, IAEA, TECDOC-1415 (2004)