

RI폐기물 핵종분석을 위한 최소검출방사능농도 산출

송병철, 김영복, 안홍주, 손세철, 지광용
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 nbcsong@kaeri.re.kr

1. 서론

RI폐기물 시료는 산분해에 의한 전처리 과정을 통해서 용해되고, 분석대상 핵종에 따라 별도의 복잡한 화학적 분리 과정을 거치고 나서 최종적으로 방사선 계측기에 의해 방사능이 측정된다. RI폐기물의 방사능 농도가 낮을 경우 실제로 방사능이 존재하지 않는 시료의 계수치가 백그라운드보다 높은 경우가 있을 수 있으며 낮은 방사능을 함유하는 시료의 방사능 존재 여부를 판단하는 근거로 검출 한계치를 설정한다. 방사능 계측기의 최소검출방사능은 주어진 신뢰도에서 검출될 수 있는 최소 방사능을 말하며 이는 기기의 백그라운드, 계측효율, 계측시간 및 시료 양 등에 의해 결정된다. 최소검출방사능을 낮출 수 있는 가장 효과적인 방법은 시료 양을 크게 하거나 계측시간을 길게 하는 방법이 있으나 실험조건에 따라서 상호보완적이어야 한다. 본 연구에서는 RI폐기물에 존재하는 방사성핵종 분석과 관련하여 존재 가능한 핵종을 대상으로 한 최소검출방사능 농도를 산출하고 그 결과 및 경향성을 검토하고자 하였다.

2. 실험 및 결과

RI폐기물 시료 중 ^{51}Cr , ^{60}Co , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{131}I , ^{137}Cs 등의 방사능을 측정하기 위해 감마선 분광분석기를 이용하였으며, ^3H , ^{14}C , ^{32}P 등의 방사능을 측정하기 위해 액체섬광계수기를 이용하였다. 또한 ^{35}S , ^{147}Pm 등의 방사능은 알파/베타 측정 시스템을 이용하여 측정하였으며, 저에너지 X-ray를 방출하는 ^{125}I 의 방사능을 측정하기 위해서 저에너지 분광분석기를 이용하였다.

시료 중의 방사능 존재 여부를 결정하는데 사용하는 결정 한계와 시료에서 오는 신호가 검출된다고 확신할 수 있는 사전 검출 준위를 나타내는 검출 한계는 다음과 같은 식으로부터 산출하였다.

$$\text{결정 한계, } L_c = k_\alpha \sigma_0 = k_\alpha (\mu_B + \sigma_B^2)^{1/2} \quad (1)$$

$$L_c = 1.645(2\sigma_B^2)^{1/2} = 2.33\sigma_B$$

$$\text{검출 한계, } L_D = k^2 + 2L_c \quad (2)$$

$$L_D = 2.71 + 4.66\sigma_B \quad (K=1.645, 95\% \text{ 신뢰도})$$

또한 최소검출방사능농도는 다음과 같은 식으로부터 산출하였다.

$$MDA = \frac{2.71 + 4.66(B)^{1/2}}{EVTY} \quad (3)$$

여기서, B는 바탕 값의 총 계수, E는 계측효율이며 V는 시료 량(mL) 이다. 또한 T는 계측시간(min)이고 Y는 화학적 수율이다.

각 방사선 계측기의 백그라운드 및 계측효율은 주기적으로 측정하였다. 계측효율을 측정하기 위한 표준물질로서 감마선 분광분석기는 실린더형 20 mL 감마선 표준물질을 사용하였고, 액체섬

광계수기는 비소광 ^3H 및 ^{14}C 표준물질을 사용하였으며, 전알파/베타 계측기는 ^{210}Po 과 ^{90}Sr 표준물질을 사용하였다. 방사능 측정 장비의 특성에 따라서 계측효율은 에너지 세기, 소광 효과 및 염의 무게에 따라서 달라지게 되므로 감마선 분광분석기의 경우는 에너지에 따른 계측효율 보정곡선을 구하였고, 액체섬광계수기의 경우는 소광효과에 따른 계측효율을 구하였으며, 알파/베타 측정 시스템의 계측 효율은 각 핵종의 염의 무게에 따른 계측효율을 각각 구하였다.

감마선분광분석기의 백그라운드 및 표준시료에 대한 방사능을 측정하였을 때 백그라운드는 1.61 cps이었으며, 표준시료에 대한 방사능은 45168 cps로 거의 2 σ 이내에서 크게 벗어나지 않았다. 액체섬광계수기에 대한 ^3H 및 ^{14}C 영역에서의 백그라운드와 계측효율을 측정하였을 때 ^3H 영역에서의 백그라운드 및 계측효율은 각각 14.1 cpm과 62.99 %이었으며, ^{14}C 영역에서의 백그라운드와 계측효율은 각각 22.90 cpm과 96.30 %이었다. 전알파/베타 계측기를 동시모드에서 동작전압을 1500 V로 설정하고 백그라운드를 50 분씩 15회 측정한 결과 알파 백그라운드는 0.244 cpm 이고 계측효율 34.34 %이었으며 베타 백그라운드는 1.29 cpm이고 베타 계측효율 46.01 %이었다. 방사선 계측기의 백그라운드 및 계측효율은 주기적으로 측정하였으며 계측장비 품질관리를 위하여 관리도를 작성하였다. 감마선분광분석기의 경우에 ^{137}Cs 영역에서 백그라운드는 35,105 카운트이었으며, 계측효율은 0.224 %이었다. 식 (2) 및 (3)에 의하여 ^{137}Cs 의 최소검출방사능농도를 산출하였으며 이외에 ^{58}Co , ^{60}Co , ^{134}Cs 등에 대하여도 같은 방법으로 시료의 유형에 따라서 최소검출 방사능 농도를 산출하였다.

실제 시료에 있어서는 시료를 산에 용해한 후 용해용액 20 mL를 감마선 분광분석기를 이용하여 10,000초 동안 감마선 방출핵종을 측정하였으며, 베타방출 핵종의 경우는 5 g의 시료를 추출한 후 ^3H , ^{14}C , ^{32}P 를 개별 분리한 후 각테일과 섞어 액체섬광계수기로 50 분간 측정하였다. 또한 베타 방출 핵종인 ^{35}S , ^{147}Pm 등은 산처리한 용해용액을 핵종별로 분리한 후 알파/베타 계측시스템을 이용하여 50 분간 측정하였다.

3. 결론

본 연구에서는 RI폐기물의 유형 및 방사성 핵종에 따라서 백그라운드 및 계측효율로부터 최소 검출방사능농도를 설정함으로써 낮은 준위의 RI폐기물 시료의 측정 가능한 범위의 방사능 농도를 구하였다. 감마선 분광분석기에 의한 ^{51}Cr , ^{60}Co , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{131}I 및 ^{137}Cs 의 최소검출방사능 농도는 각각 0.08, 0.18, 0.01, 0.09 및 0.34 Bq/g이었으며, 액체섬광계수기에 의한 핵종별 최소검출방사능 농도는 ^3H , ^{14}C 및 ^{32}P 에서 각각 0.02, 0.01, 0.01 Bq/g이고, 기체비례계수기를 이용한 ^{35}S 및 ^{147}Pm 에 대한 최소검출방사능 농도는 0.01 Bq/g이었다. 이러한 최소검출 방사능 농도는 계측효율, 시료량 및 계측시간에 따라서 변동되므로 실제 시료에 대하여는 상호 보완적으로 적용되어야 할 것이다.

참고 문헌

1. Michael F. L'Annunziata, A Handbook of Radioactivity Analysis, pp. 316-318, Academic press, San Diego (1998).
2. J. E. Noakes, Franz Schonhofer, H. A. Polach, "Liquid Scintillation Spectrometry 1992", pp. 37-50, Radiocarbon Department of Geosciences, The university of Arizona.
3. J. A. Cooper, Factors Determining the Ultimate Detection Sensitivity of Ge(Li) Gamma-Ray Spectrometers, pp. 273-277, North Holland Publishing Co. (1970).