

기체유출물의 ¹⁴C 분석을 위한 Dual Label 소광보정법 적용

박경록, 이정진, 박종길

한국수력원자력(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1

krpark@khnp.co.kr

1. 서론

국내 원전에서 방출되는 기체유출물에 존재하는 ¹⁴C의 방사능을 분석하는데 액체섬광계수기를 활용하고 있다. 액체섬광계수기는 시료의 소광현상에 따라 효율이 변화하기 때문에 정량분석을 위해서는 이를 보정하여야 한다. 소광현상 보정법으로는 일반적으로 분석대상에 따라 Single Label 보정법과 Dual Label 보정법을 활용하고 있다. 현재 원전에서는 단일핵종 보정법으로 Single Label 보정법을 주로 사용하고 있으며 이는 분석하고자 하는 핵종을 타 핵종의 간섭으로부터 분리하는 전처리 과정을 거쳐 분석하는 방법으로 ³H의 경우에는 쉽게 분석할 수 있다. 그러나 기체유출물의 ¹⁴C를 전처리하지 않고 직접혼합할 경우 한 시료에 ³H와 ¹⁴C이 혼합되어 있기 때문에 Single Label 보정법으로는 과대평가될 가능성이 크다. 따라서 원전 현장에서 ¹⁴C 분석시 일상분석법으로 용이하게 활용하기 위한 Dual Label 보정법의 활용 타당성에 대해 기술하고자 한다.

2. 본론

2.1 실험방법

국내의 ¹⁴C 분석방법으로는 시료를 전처리하여 분말형태로 만든 후 산을 떨어뜨려 CO₂를 발생시키고 이를 CO₂ 흡수제(Carbosorb)에 흡수시킨 후 섬광체(Permarflour)와 혼합하여 측정하는 직접흡수법(Direct Absorption Method, 이하 DAM)과 포집용액(NaOH)과 섬광체(Hionic 또는 Hisafe3)를 일정비율로 직접 혼합하는 직접혼합법(Direct Mixing Method, 이하 DMM)의 전처리 방법을 이용한 후 액체섬광계수기(LSC)로 측정하는 방법이 있다[1]. 직접흡수법(DAM) 전처리 방법을 활용하는 경우에는 단일핵종인 ¹⁴C 표준선원을 이용하여 소광보정을 한다. 그러나 기체유출물의 ¹⁴C 분석에 있어서 DAM 방법을 활용하는 경우에는 전처리 과정이 복잡하여 원전 현장에서 일상적으로 분석하는데 어려움이 있다.

시료내에 혼합되어 있는 ³H/¹⁴C의 분리 측정을 위해 2개 (³H/¹⁴C)의 표준선원을 이용한 Dual Label 소광보정을 수행하였다. 표준선원으로는 ³H/¹⁴C Low Level Quenched Standard Set(PerkinElmer)를 사용하였다.

2.2 실험 및 결과

원전에서 방출되는 기체유출물 중 ¹⁴C의 경우가성소다(NaOH)에 포집한 후 섬광체와 직접 혼합하여 측정하면 Fig 1과 같이 ³H/¹⁴C이 혼합된 스펙트럼을 볼 수 있다.

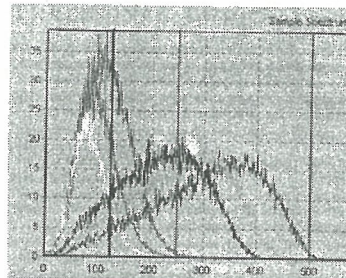


Fig. 1. Sample Spectrum of ³H/¹⁴C

이와 같이 2개 핵종 혼합시료의 경우에는 채널분리를 통해 각각의 소광정도에 따른 효율이 보정되어야 한다. Dual Label 소광을 보정하는 방법으로는 다음과 같은 식을 사용한다[2].

$$\begin{aligned} Y_1 &= E_{q1} \times A_q + E_{p1} \times A_p \\ Y_2 &= E_{q2} \times A_q + E_{p2} \times A_p \dots\dots\dots (1) \\ Y_3 &= E_{q3} \times A_q + E_{p3} \times A_p \end{aligned}$$

상기 Y₁, Y₂, Y₃는 3개 Window에 대한 계수율이고 Eq_{1...3}, Ep_{1...3}는 사전에 측정된 각 핵종의 효율이며, A_q 및 A_p는 측정코자 하는 2개 핵종의 방사능량이다. 상기 3개의 식을 최소자승법(Method of Least Square)으로 풀면 알고자 하는 두 핵종의 방사능 A_q와 A_p는 다음과 같이 정리할 수 있다.

$$A_q = (L - M) / (L^2 - M^2 K), \quad A_p = (L - K) / (L^2 - M^2 K) \dots\dots (2)$$

여기서,

$$K = \frac{E_{q1}^2}{Y_1} + \frac{E_{q2}^2}{Y_2} + \frac{E_{q3}^2}{Y_3}, L = \frac{E_{q1} * E_{p1}}{Y_1} + \frac{E_{q2} * E_{p2}}{Y_2} + \frac{E_{q3} * E_{p3}}{Y_3},$$

$$M = \frac{E_{p1}^2}{Y_1} + \frac{E_{p2}^2}{Y_2} + \frac{E_{p3}^2}{Y_3}$$

본 실험에서는 Dual Label 소광보정을 이용하여 ¹⁴C을 정량화하기 위한 것으로 ³H는 제외하고 ¹⁴C에 대해서만 검증하여 직접혼합법의 ¹⁴C 정량화 타당성을 검토하였다.

실험에 사용된 표준선원으로는 1set에 10개의 다른 소광정도를 갖는 표준선원이 들어있는 ³H, ¹⁴C 각각의 표준선원 중 5 개씩 사용하였다.

2개 핵종(³H/¹⁴C)의 혼합시료를 Single Label 측정법으로 측정하려면 ¹⁴C만 별도로 추출하는 전처리과정을 거치거나 2개 핵종이 혼합된 스펙트럼 중 ³H를 제외하기 위한 Window 설정을 적절히 Setting하는 방법을 사용해야한다. 하지만 이런 방법은 원전에서 일상적인 분석법으로 활용하기에는 매우 어렵다. 직접혼합법(DMM)을 사용하여 측정할 경우에는 포집시료에 ³H/¹⁴C이 동시에 포집되기 때문에 Fig. 2와 같은 스펙트럼이 나타난다. 따라서 2개 핵종을 분리해서 정량화 해야한다.

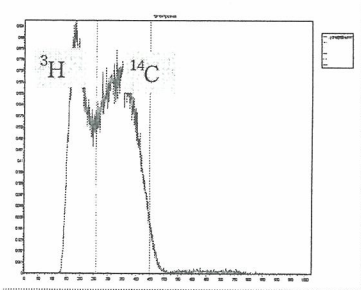


Fig. 2. Real Spectrum of ³H/¹⁴C Mixed Sample

본 실험의 타당성 검증을 위해 Dual Label 소광보정 후 측정된 값과 Single Label(¹⁴C 만 측정) 소광보정 후 미지시료 중 ³H/¹⁴C이 혼합된 시료를 Single/Dual Label 2가지 방법으로 측정하여 ¹⁴C 방사능을 비교하였다. 실험에 사용된 액체섬광계수기는 Quantulus 1220(Wallac)이다. 2개의 핵종이 혼합된 미지시료 6개를 만들고 각각 측정방법에 따라 2회 측정 후 평균값을 비교하였다.

Table 1.에서 보듯이 Single Label과 Dual

Label 측정 방법에 대한 차이는 최소 2.3%에서 최대 9.5%로 나타났다.

Single Label을 기준으로 Dual Label 측정값에 대한 오차가 대부분 측정오차 이내인 것으로 보아 Dual Label 측정법도 ³H/¹⁴C 혼합시료의 ¹⁴C 측정에 활용이 가능한 것으로 판단된다. 향후에는 측정하는 Sample 수를 늘리고 측정시간 배분 및 측정횟수를 증가시키는 등 오차범위를 벗어난 시료의 오차를 감소시키는 방안을 강구할 필요가 있다.

Table 1. Results of Single/Dual Label Measurement

Sample	Single Label (dpm±2σ%) 95% 신뢰도, k=2	Dual Label (dpm±2σ%) 95% 신뢰도, k=2	평균값 오차 (%)
S-1	218.4±2.3	212.9±4.5	2.5
S-2	29.8±3.5	29.1±5.2	2.3
S-3	23.0±6.9	21.4±5.0	6.9
S-4	29.8±5.2	29.0±3.9	2.7
S-5	18.9±6.1	20.7±7.1	9.5
S-6	19.5±6.1	20.8±4.1	6.7

3. 결론

PWR 원전의 기체유출물 중 ¹⁴C을 분석시 원전 현장의 분석 편이성을 고려하여 쉽게 분석할 수 있는 방안을 검토하였다. 직접혼합법(DMM)을 사용했을 경우 ³H의 간섭사항을 배제하여 방사능이 과대평가 되지 않도록 측정하는 Dual Label 측정법에 대한 활용 가능성을 확보하였다. 사용자가 사용하고 있는 기기마다 성능이 다르기는 하나 스펙트럼을 수집하여 Window 설정을 임의로 할 수 없는 경우나 ³H/¹⁴C이 혼합된 시료에서 각각 분리하여 2개 핵종의 방사능 농도를 정량화 할 필요가 있을 경우에 Dual Label 소광보정 방법이 활용 가능한 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

- [1] 박경록 외 2인, 기체유출물의 ¹⁴C 분석을 위한 소광보정 방법 비교 평가, 2008년 춘계 방사성 폐기물학회, P.326-326.
- [2] PerkinElmer, Spectrum analysis program for 1220 Quantulus and system 1400 DSA Liquid Scintillation Counter, P.64-67 .