

원전 방사성폐기물 내 ^{129}I 의 방사능 측정 방법에 대한 고찰

송병철, 김영복, 최계천, 한선호, 이명호, 송규석
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 nbcsong@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력발전소에서 ^{129}I 핵종은 원전 운전과정 중 사용후핵연료로부터 방출되며, 냉각재에 축적되어 중저준위 방사성폐기물에 잔존하게 된다. 원전 방사성폐기물 내 존재하는 ^{129}I 는 반감기가 매우 길 뿐만 아니라 높은 이동성과 인체에 대한 위해도가 크기 때문에 낮은 방사능 준위의 핵종이지만 방사성폐기물 처분장에서도 처분 제한치를 두어 규제하고 있다. 원전 방사성폐기물 내 존재하는 ^{129}I 의 핵종 농도를 측정하는 방법으로는 기체비례계수법, 액체섬광계수법, 감마선분광분석법, 방사화분석법 및 질량분석법등이 사용되고 있다. 본 연구에서는 기체비례계수법, 액체섬광계수법 및 감마선분광분석법의 측정 방법에 따른 최소검출 방사능 농도를 비교 검토하였으며, 실제 원자력발전소에서 발생한 잡고체, 농축분말, 폐필터 및 폐수지 시료에 대하여 감마선분광분석기를 이용하여 ^{129}I 의 방사능 농도를 측정하였다.

2. 본론

2.1 기체비례계수법에 의한 ^{129}I 의 방사능 측정

^{129}I 표준용액을 125 mL 분액여두에 넣고 1.0 mL의 진한 질산을 가한 후 잘 흔들어 주고 10 mL의 CCl_4 를 가하였다. 1000 mg의 $\text{NH}_2\text{OH HCl}$ 를 가하여 환원시키고 5분간 추출한 다음 0.1 N NaHSO_3 10 mL를 가한 후 3분간 역추출하고 AgCl 를 가하여 AgI 침전을 얻었다. 기체비례계수기를 이용하여 30분씩 3회 측정하였다. 시료량 5 g, 측정 시간 30분, 계측효율 8.0%, 바탕값 2.59 cpm으로 계산하였을 때 기체비례계수기에 의한 ^{129}I 의 최소검출 방사능 농도는 0.48 Bq/g 이었다.

2.2 액체섬광계수법에 의한 ^{129}I 의 방사능 측정

^{129}I 표준용액을 기체비례계수법에서와 같은 방법으로 추출하고 역추출한 용액을 전량 계측 바이알에 옮겼다. 이를 증발건고 후 증류수 1 mL로

용해하고 각테일(Ultima Gold XR) 14 mL를 넣고 잘 흔든 후 소광효과에 따른 계측효율이 보정된 액체섬광계수기를 이용하여 30분간 3회 계측하였다. 이때 시료량을 5 g 취하고 측정 시간 30 분, 계측효율 50%, 바탕값을 19 cpm로 산정하였을 때 액체섬광계수기에 의한 ^{129}I 의 최소검출 방사능 농도는 0.08 Bq/g 이었다.

또한 액체섬광계수기를 이용한 ^{129}I 방사능 농도 측정 시 분리되지 않은 베타선 및 감마선 방출 핵종이 계수율에 미치는 영향을 검토하였다. 저준위 액체섬광계수기에 의한 스펙트럼 측정결과, 시료 내 저에너지 영역에서 ^3H 피크가 확인 되었으며, 고에너지 영역에서 감마선에 의한 피크가 확인되었다. 물론 화학분리과정에서 건조 과정을 거치면서 ^3H 은 완전히 분리된 것으로 확인 되었으나 많은 양의 ^3H 이 존재할 경우 순수 분리에 어려움이 있었다. 또한 고에너지 영역에서 나타난 감마선에 의한 영향은 ^3H 의 에너지 영역(0~18.6) keV의 계수율에는 크게 영향을 주지 않는 것으로 나타났다.

2.3 감마선분광분석법에 의한 ^{129}I 의 방사능 측정

요드용액(2mg/mL) 10 mL에 ^{129}I 표준물(34.5 Bq/mL)을 1 mL넣고 AgCl 용액을 가하여 AgI 침전을 얻은후 마일라 필름이 부착된 측정용기에 골고루 분산시켜 옮긴다. 감마선분광분석기(HPGe GMX 60-83-XLB-S)의 동작전압을 -4000 V로 올리고 표준물이 들어있는 측정용기를 검출기 상단에 올려놓고 10000 초 동안 계측하였으며, 표준물로부터 방출되는 29.5 keV 피크의 계수율로부터 감마선분광분석기의 계측효율을 구하였으며, 계측효율은 6.3%로 계산되었다. 원전 방사성폐기물 시료에 대하여 시료량을 5 g, 계측효율 6.3%, 백그라운드 총 계수가 396 카운트 이었을때 최소 검출 방사능 농도는 7.8×10^{-3} Bq/g 이었다.

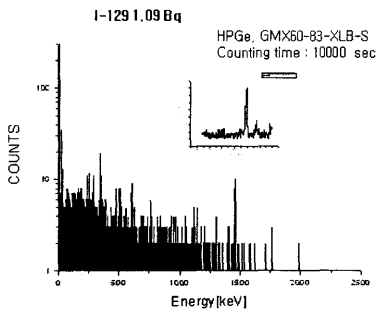


Fig. 1. Gamma-ray Spectra of ¹²⁹I Source

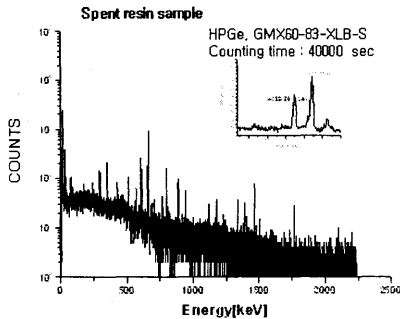


Fig. 2. Gamma-ray Spectra of Spent resin

2.4 원전 폐기물 내 ¹²⁹I의 최소검출방사능

방사능 계측기의 최소검출방사능은 주어진 신뢰도에서 검출될 수 있는 최소 방사능을 말하며 이는 기기의 백그라운드, 계측효율, 계측시간 및 시료 량 등에 의하여 결정되고, 최소검출방사능을 낮출 수 있는 가장 효과적인 방법은 시료 량을 크게 하거나 계측시간을 길게 하는 방법이 있으나 실험조건에 따라서 상호보완적이어야 한다.

원전 폐기물 내 ¹²⁹I의 최소검출방사능은 기체비례계수법, 액체섬광계수법 및 감마선분광분석법의 최소검출 방사능 농도는 각각 0.48, 0.08 및 7.8×10^{-3} Bq/g 이었다. 이를 바탕으로 많은 양의 시료

를 취할 수 있고 측정시간을 최대한 크게 할 수 있는 저에너지감마선분광분석법을 선택하여 원전 방사성폐기물 내 ¹²⁹I의 방사능 농도를 산출하였다.

3. 결론

원전 방사성폐기물 내 함유되어 있는 ¹²⁹I의 방사능을 측정하기 위하여 저에너지 감마선분광분석기가 사용되었으며, 저에너지 분광분석기의 ¹²⁹I 에너지영역(29.6 keV)에서의 백그라운드 및 계측효율은 각각 7.3×10^{-3} cps 및 6.3%로 나타났다. 원전 방사성폐기물 시료 내 ¹²⁹I를 화학적으로 분리하여 AgI 침전을 얻은 후 감마선분광분석기를 사용하여 ¹²⁹I의 방사능을 측정하였을 때 일부 고준위 폐수지에서 0.02 Bq/g 정도의 ¹²⁹I의 방사능이 검출되었다. 검출되지 않은 잡고체, 농축폐액, 폐수지 폐필터 시료에 대한 최소검출 방사능 농도 범위는 시료량에 따라서 $5 \times 10^{-4} \sim 4.8 \times 10^{-3}$ Bq/g로 산출되었다.

4. 참고 문헌

[1] NCRP(National Council on Radiation Protection and Measurement): "Iodine-129 Evaluation of releases from nuclear power generation", NCRP REPORT No. 75(1983).
 [2] J. A. Suarez, A. G. Espartero, M. Rodriguez, "Radiochemical analysis of ¹²⁹I in radioactive waste streams", Nucl. Instr. and Meth., 407-410(1996).
 [3] Zs. Szanto, Z. Szucs, E. Svingor, M. Molnar, L. Palcsu, I. Futo, "Determination of ¹²⁹I in low level radioactive waste by two different methods", International conference Nuclear Energy in central Europe 2001, Sep. 10-13 (2001).