

중저준위 방사성폐기물 내  $^{59}\text{Ni}$  및  $^{63}\text{Ni}$ 의 방사능 측정 방법에 대한 고찰

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

## 1. 서론

원자력시설에서 발생된  $^{59}\text{Ni}$ 는 원자로 내에서 중성자에 의하여  $^{58}\text{Ni}(n, r)^{59}\text{Ni}$  핵반응으로 생성되며 방사화된 금속이나 냉각수 내에 존재하는 핵종들을 포집하는 수지등에 존재하며, 반감기가  $7.5 \times 10^4$ 로 매우길어 폐기물 처분시 중요하게 취급되는 핵종이다. 또한  $^{63}\text{Ni}$ 은  $^{62}\text{Ni}(n, r)^{63}\text{Ni}$  핵반응으로 생성되며 반감기가 99.5년으로 매우 길다. 이들 핵종들의 방사능 농도를 측정하는 방법으로는 저에너지 감마선 분광분석법 및 액체섬광계수법등을 이용한다. 본 연구에서는 저에너지 감마선 분석기 및 액체섬광계수기의 적정 조건을 확립하였으며,  $^{59}\text{Ni}$ 의 표준물을 제조하여 사용하였다. 또한 저에너지 감마선 측정방법 및 액체섬광계수법등의 측정 방법에 따른 최소검출방사능 농도를 산출 하였으며, 실제 중저준위 방사성 폐기물 시료 내 존재하는  $^{59}\text{Ni}$  및  $^{63}\text{Ni}$ 의 방사능 농도를 측정하였다.

## 2. 본론

2.1 저에너지 감마선분광분석기를 이용한  $^{59}\text{Ni}$ 의 방사능 측정 방법

저에너지 감마선 및 X-ray를 방출하는  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{129}\text{I}$  등을 측정하기 위하여 NaI(Tl) Thin layer 검출기(3xM.040/3B, BICRON), Radiation Analyzer (Model 5000, Nucleus) 및 Spectra Analyzer(PCA-II, TENNELEC)로 LEPS(Low Energy Photon Spectrometer)시스템을 구성하였다. 저에너지 표준선원으로  $^{109}\text{Cd}$  과  $^{55}\text{Fe}$ 등을 사용하여 LEPS 시스템의 에너지 보정을 하였으며,  $^{59}\text{Ni}$  표준물 제조를 위하여 산화니켈( $\text{NiO}$ , MW 74.7) 0.4384 g을 하나로에서 48시간 중성자 조사 하였으며, 진한염산(37 %, Aldrich) 2 mL를 넣어 용해 시킨후 증발 건조 후 0.1 M HCl 5 mL로 녹인 후 25 mL Vol-flask에 옮기고 표선까지 증류수로 채웠다. 산화니켈 0.4384 g의 방사능은  $2.845 \times 10^4$  Bq 이며 용액 25 mL에 들어있는 방사능량은

1138 Bq/mL (10 mg Ni/mL) 이었다.

$^{59}\text{Ni}$ -DMG의 침전 무게에 따른 계측효율을 구하기 위하여 산화니켈 표준물(13.7 mg/mL, 1 M HCl)를 각각 0.05 mL, 0.10 mL, 0.15 mL, 0.20 mL, 0.25 mL 및 0.30 mL 원심분리관에 넣고 1 M HCl로 최종부피가 2 mL 되도록 채우고 증류수 7.5 mL, Acetone 13 mL, tataric acid 용액(250 mg/mL) 3 mL를 넣는다. 진한 암모니아수를 pale blue 색이 나타나고 약간의 암모니아 냄새가 날 때까지(pH 9) 방울 방울 넣고 65 °C에서 약 2분간 중탕하고 1 % DMG (95 % ethanol)를 5 mL 넣는다. 150 °C에서 1시간 건조시키고 무게를 기록하고 Collodion희석용액(collodion:EtOH-1:20) 소량으로 침전물을 고정시키고 계측한다. 염의 무게에 따른 계측효율을 구하고 다음과 같은 보정식을 얻었다.

$$\text{Log}(\text{Eff}) = -0.00513 \times w + 1.1128$$

시료는 산분해 및 마이크로웨이브를 이용하여 용해되었으며, 순수하게 분리된 Ni을 dimethylglyoxime을 사용하여  $\text{Ni}(\text{DMG})_2$  침전을 얻었고, 계측효율보정곡선으로부터 시료의 침전 무게에 따라서 계측효율을 결정하고 방사능을 구하였다.

2.2 액체섬광계수기를 이용한  $^{63}\text{Ni}$ 의 방사능 측정 방법

중저준위 방사성폐기물 내  $^{63}\text{Ni}$  방사능을 측정하기 위하여 액체 섬광계수기가 이용되었으며, 시료는  $^{59}\text{Ni}$  측정이 끝난  $\text{Ni}(\text{DMG})_2$  침전물을 1 mL의 1 M 질산을 넣고 IR 램프 아래에서 녹인다음 1 mL의 1 M 질산으로 10 mL 유리 비이커로 옮기고 가열판 위에서 타지 않도록 증발건조시킨다. 유기물을 분해시키기 위하여 3 mL의 진한  $\text{HClO}_4$ 를 넣고 흰 증기가 발생할 때까지 가열하였다. 니켈 산화물의 색깔인 검은색이 나타날 때까지 가열하고 2 mL의 0.7 M HCl로 저온 가열시켜 용해시킨 후 LSC 계측용 바이알로 옮겼다. 15 mL의 Ultima Gold LLT를 가하고 50분간 계측하였다.

소광효과에 따른 계측효율 보정곡선으로부터 시료의 계측효율을 구하고  $^{63}\text{Ni}$  방사능을 구하였다.

### 2.3 $^{59}\text{Ni}$ 및 $^{63}\text{Ni}$ 의 최소검출방사능 산출

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.

저에너지 감마선분광분석를 사용하여  $^{59}\text{Ni}$  에너지 영역에서 ROI(Region of Interest)를 설정하고 바탕값을 3000 초 동안 3회 측정하였을 때 바탕값 평균은 0.1cps 이었으며 바탕 값으로부터 구한 최소 검출 계수율은 0.03 cps 이었으며, 시료량을 1g, 측정효율을 0.11로 계산 하였을때  $^{59}\text{Ni}$ 의 최소 검출방사능은 0.47 Bq/g 이었다.

또한 액체섬광계수기를 사용하여  $^{63}\text{Ni}$  영역에서 300초 동안 바탕 값을 측정하였을때 0.4 cps로 최소검출계수율은 0.06 cps 이었으며, 시료량을 1g, 계측효율을 0.63으로 계산하였을때  $^{63}\text{Ni}$ 의 최소 검출 방사능 농도는 0.16 Bq/g 이었다.

### 2.4 중저준위 폐기물 내 $^{59}\text{Ni}$ 및 $^{63}\text{Ni}$ 의 방사능 측정

중저준위 방사성폐기물 시료 내  $^{59}\text{Ni}$ 를 화학적으로 분리하여 Ni-DMG 침전을 얻은 후 저에너지 감마선분광분석기를 사용하여  $^{59}\text{Ni}$ 의 방사능을 측정하였을 때  $1 \sim 1 \times 10^3$  Bq/g 정도의 방사능이 검출되었으며, 상대표준 불확도는 9.9 %이었다. 또한 Ni-DMG 침전을 산으로 용해한 후 액체섬광계수기를 이용하여  $^{63}\text{Ni}$ 의 방사능을 측정 하였을때  $10 \sim 1.5 \times 10^6$  Bq/g 정도의 방사능이 검출되었으며, 상대표준 불확도는 7.1 %로 평가 되었다.

## 3. 결론

중저준위 방사성폐기물 내 함유되어 있는  $^{59}\text{Ni}$  및  $^{63}\text{Ni}$ 의 방사능을 측정하기 위하여 저에너지 감마선분광분석기 및 액체섬광계수기가 사용되었다. 저에너지 감마선 분광분석기의  $^{59}\text{Ni}$  에너지영역에서의 백그라운드 및 계측효율은 각각 0.1 cps 및 11 %로 이었으며,  $^{63}\text{Ni}$  에너지영역에서의 백그라운드 및 계측효율은 각각 0.4 cps 및 63 %이었다.

저에너지 감마선 분광분석기 및 액체섬광계수기를 이용하여  $^{59}\text{Ni}$  및  $^{63}\text{Ni}$ 의 방사능을 측정할 때 최소검출한계는 각각 0.03cps 및 0.06cps이었다. 또한 중저준위 방사성폐기물 시료 1g을 3000 초 동안 측정하였을 때 최소검출 방사능 농도는 각각 0.47 Bq/g 및 0.16 Bq/g 이었다. 중저준위 방사성 폐기물 시료 내  $^{59}\text{Ni}$  및  $^{63}\text{Ni}$ 의 방사능 농도는 각각  $1 \sim 1 \times 10^3$  Bq/g 및  $10 \sim 1.5 \times 10^6$  Bq/g로 검출되었으며,  $^{63}\text{Ni}$  및  $^{59}\text{Ni}$  방사능 농도비가 100~ 200배로  $^{63}\text{Ni}$ 의 방사능이 높게 나타났다.

## 4. 참고 문헌

- [1] C. C. Lin, "Radiochemistry in nuclear power reactors", National academy press, E-23-28 (1996)
- [2] B. R. Harvey, A. G. Sutton, "Liquid scintillation counting of  $^{63}\text{Ni}$ ", J. Int. J. appl. Radiat. Isotopes 21., 519-523 (1970).
- [3] J. H. Kaye, R. S. Strebin, A. E. Nevissi, "Measurement of  $^{63}\text{Ni}$  Highly radioactive hanford waste by liquid scintillation counting", J. Radioanal. Nucl. chem.. 180 197-200 (1994).