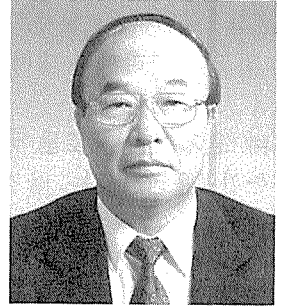


# 환경방사능 분석기술



이 정 호

한국원자력연구소  
원자력환경연구팀장

## 1. 서 론

1960년대 강대국의 핵무기 실험으로 많은 양의 방사성 물질이 대기권으로 방출되었다. 또한 1986년 구소련 체르노빌 원자력발전소 사고로 Xe-133, Cs-137 및 I-131 등의 방사성 물질이 환경으로 방출되었다. 이 중에서 반감기가 비교적 짧은 I-131(반감기 8일) 및 Sr-85(반감기 53일)은 대부분 감쇄되었고, 반감기가 긴 Sr-90, Cs-137 및 플루토늄 동위원소 등은 아직도 방사능 낙하물 형태로 환경에서 검출된다.

최근 원자력시설 증가와 더불어 원자력시설에서 방출되는 방사능물질에 의한 환경오염 등에 대한 국민적 관심이 높아지고 있는 실정이다. 반감기가 길고 인체에 독성이 강한 Sr-90, Cs-137 및 플루토늄 동위원소 등에 대한 정확한 분석자료 확보는 사고시 기초자료로 활용 및 인체 피폭선량 평가에 매우 중요하다고 사료된다. 따라서, 환경방사능분석을 원활하게 수행하여 신뢰성 있는 자료의 확보는 방사선 방호 및 국민 신뢰도 확보, 나아가 원자

력산업의 안정적 발전을 위해 매우 중요하다.

본 주제에서는 환경방사능관리 종사자들이 실무에 필요한 환경방사능분석 개요, 환경방사능 분석시 문제점 및 환경방사능분석의 향후 전망에 대해 간략하게 서술하였다.

## 2. 환경방사능분석 목적

환경방사능 분석목적은 알파, 베타 및 감마 핵종에 대해서 알파스펙트로메타, 액체섬광계수기, 저준위 알파·베타 계측기 및 감마스펙트로메타에 의한 핵종분석과 TLD 및 ERM으로 집적선량과 공간선량을 등의 방사능 측정을 한 후, 기상자료 등의 각종 요소를 조합하여 환경모니터링을 형성한다. 환경모니터링을 실시하여 환경방사능분석의 최종목적인 환경영향평가를 한다. 환경방사능분석을 실시하여 그 최종목적에 도달하려면 체계적인 “환경방사능분석 cycle”이 필요하다. 환경방사능분석 cycle의 첫 단계는 시료채취이다. 환경을 대표하는 시료채취는 환경감시에 매우 중요하다. 대표적인 시료가 채취되면 환경

감시 혹은 환경영향을 파악하는 작업의 절반 정도가 끝났다고 생각해도 좋다. 다음 수준으로는 채취한 시료에 적절한 전처리가 필요하다. 만일 전처리가 적절치 못하면 이후 조작에서 문제점이 발생하므로 전처리시 주의를 해야 한다. 계속하여 전처리한 시료에 정확한 분석을 하여 충분한 측정을 한다. 이러한 단계로 얻어진 자료에 공정한 평가를 함으로써 “환경방사능분석 cycle”이 형성된다.

### 3. 대표시료 채취

환경방사능분석 cycle 시작은 대표시료 채취이다. 시료채취시 환경시료 자체가 불균일성과 특이성이 있으므로 유의해야 한다. 토양 중에 fallout 유래핵종인 Ce-144, Zr-95 및 Pu 동위원소 등은 입자(particulate)로 존재할 가능성이 커서 지역적으로 편재되는 경우가 많다.

시료채취시 다른 유의점은 특이성인데, 환경시료는 개체 및 특별한 장거나 기관에 의존하는 특이성이 있다. 예를 들면 젖소가 생활하는 환경과 섭취하는 물질(풀)에 의존하여 체외로 배출되는 우유성분 및 탄분 방사능 농도가 변한다. 특이성의 다른 요인으로는 생물시료에 관해서 특별한 장거나 기관에 특이적으로 방사성핵종이 농축되는 경향이 있다. 예를 들면 심장 조직에는 Co-60, 갑상선에는 I-129, 131, 뼈에는 Sr-90 및 Pu 동위원소 등이 쉽게 농축된다. 따라서 환경방사능 농도가 시료 자체의 불균일성과 특이성에 따라서 변동폭이 심하므로 시료채취시 이러한 요인들을 유의해야 한다.

### 4. 적절한 전처리

전처리 목적은 목적핵종의 완전한 보존을 위해 채취한 시료에 대해 부피를 줄이고 균

일화 및 변성을 이행하는데 있다. 다량의 유기물을 함유한 환경시료에 대한 최초의 분석 조작은 탄화이다. 탄화는 습식과 건식이 있는데 시료의 양과 상태, 유기물의 산화에 대한 저항력의 차이 및 목적하는 핵종의 휘발성에 관계한다. 탄화조작에서 시간과 온도는 중요한 인자이다. 저온도에서 탄화하는 것은 부드럽고 폭신폭신히게 탄화되나 높은 온도에서는 탄화시 시료의 일부가 용기의 재질과 함께 녹아서 침전물을 형성하는 경우도 있으니 주의해야 한다. 탄소를 완전히 제거할 필요가 있을 경우 전기로내에 산소를 통하거나, 옥살산을 혼합하여 탄화시키거나, 어느정도 탄화시킨것을 포화질산 알루미늄 용액을 가해 다시 탄화시키는 것이 좋다. 이러한 탄화법은 Sr-90 분석법에 이용된다. 어떤 시료를 전기로에서 장시간 탄화하면 탄화시료에 결합이 발생하여 이후 탄화시료에 대하여 분석할 경우 분석도중 침전물로 부터 목적핵종이 잘 분리되지 않아 회수율이 낮아지므로 이런 경우에 탄화조작을 중지하고 습식산화로 처리한다. 건식탄화는 습식보다 간편하나 많은 원소가 탄화온도에 대한 휘발성이 있어 불리한 점도 있다. 이러한 단점은 습식 탄화법으로 해결된다. 습식조작은 처음에 담체를 가해 목적핵종과 반응시켜 비휘발성 화합물을 만들어서 탄화과정에서 휘발성 목적핵종의 손실을 방지하므로 휘발성 핵종에 대해서는 건식 탄화법보다 안정하다. 예를 들면 I-129 및 I-131 경우 건조시 쉽게 휘발하는 성질이 있기 때문에 알칼리용액(NaOH) 속에 고정시킨후 건조하여 비교적 휘발성이 없는 화학형(NaI)으로 변화시킨후 처리한다. 그러나 습식 탄화법은 시료양이 많을 경우 상당히 번거로운 방법이다.

분쇄·혼합의 경우 분쇄에서 사용되는 기계의 재질로부터 철이나 코발트가 유입되어 시료의 조성을 변화시킬 우려가 있으므로 귀중

한 환경시료의 경우 주의할 필요가 있다.

감마스펙트로메트리를 목적으로 측정시료 조제시 시료에 압력(press)을 가해 특정용기를 packing한다. 이때 단순한 press와 packing 만으로는 불균일한 상태에서 측정시료가 만들어지므로 주의해야 한다.

해수, 하천수 등의 물시료에 대해서는 대상 핵종 흡착방지를 목적으로 산침가(pH < 1), 휘발방지를 목적으로 알칼리침가 등을 하나, 그후 처리조작에서 방해물 고려하여 적절한 산 및 알칼리를 선정할 필요가 있다.

## 5. 정확한 분석

### 5.1 준비단계

준비단계로는 전분해, 침출법, 증발법, 이온교환수지법 및 공침법이 있다. 대표적인 전분해 방법으로는  $\text{NaNO}_3\text{-KOH}$ ,  $\text{K}_2\text{CO}_3\text{-KOH}$  혹은  $\text{KF-K}_2\text{S}_2\text{O}_8$ 을 사용한 알칼리, 염용융이 있으며, 토양 및 탄화시료를 이방법으로 처리한다. 또한 토양중에 존재하는  $\text{SiO}_2$ 를 녹일 경우  $\text{HF-HCl}$ 를 사용한다. 이러한 전분해 조작시 전분해후 다음 단계에 어떤 영향을 미치는가를 충분히 검토한 후 사용한다.

침출법은 비교적 쉽고 간편한 방법이다. 시료표면에 부착된 분석성분을 용해할 목적으로 산 또는 알칼리용액으로 침출한다. 침출법으로는 질산, 염산 및 탄산칼륨을 사용한다. 단순히 물을 사용하여 수용성 성분만을 침출하는 경우도 있으나 이 경우 매트릭스 성분중에 함유된 U 및 Th 등은 거의 침출되지 않는다. 토양시료에 대한 우라늄 및 토륨 분석시 매트릭스중에 우라늄 토륨 성분이 상당히 함유되어 있으므로 앞에서 기술한 전분해와 침출법으로 매트릭스를 부수어야 한다.

환경시료가 액체 즉, 물시료인 경우 농축처리의 대표적인 방법은 증발법, 이온교환수지법 및 공침법 등이 있다. 증발법은 단순히 하

천수 및 지하수를 hot plate상에서 가열하여 부피를 줄여서 전알파, 베타 측정시료로 만든다. 그러나 이 방법은 시료량이 많을 경우 처리한계가 있어 그 대안으로 이온교환법이 사용된다.

이온성이 강한 스트론튬과 세슘 등의 원소에 대해서는 양이온 교환수지 컬럼을 통하여 회수 가능하나 물시료 종류에 따라 부유물에 흡착된 방사성핵종에 유의해야 한다.

고염분의 해수에 대해서는 이온교환수지의 교환능력을 유효하게 사용할 수 없기 때문에 많은 경우에 공침법으로 농축한다. 그러나 공침법은 방사성핵종에 대한 선택성이 없어서 목적핵종 이외의 많은 핵종이 동시에 농축되어서 그후 화학분리조작이 필요하다. 그러나 Cs분석시 암모늄 몰리브덴 포스페이트(AMP)를 사용하면 세슘이온을 선택적으로 AMP에 공침할 수 있다. 수산화물 공침법은 해수 및 담수시료에 대한 목적핵종 농축시 사용한다. 그러나 이 방법은 금속원소 대부분이 공침되어 목적핵종만을 분리, 정제시에는 부적당하다.

불화물 공침법은 철이온을 함유한 용액에 희토류 및 악티나이드 등을 공침시키고 그외 목적하지 않는 금속원소를 용액중에 잔류시킨다. 그러나 이경우 공침처리한 이후 단계에 문제가 발생한다. 옥살산공침법은 철, 인 등의 방해이온으로 부터 희토류나 악티늄을 분리할 수 있다. 또한 유기은화합물 공침법은 염화이온( $\text{Cl}^-$ )을 다량 함유한 해수중  $\text{I}^-$  이온만을 선택적으로 공침한다.

### 5.2 분리·정제

분리·정제 조작의 목적은 목적원소만을 포집하는데 있으며 목적원소에 대하여 방해원소의 거동과 양을 충분히 유의하여 적절한 분리·정제법을 이용한다.

이온교환법은 분리정제의 대표적인 방법으

로 교환용량, 분배비 및 방해이온양에 충분히 유의하여 사용하면 유효한 분석방법이다. 종래부터 사용되는 양이온 교환체는 양이온교환수지, AMP, KCFC, 산성백토 및 합성지올라이트 등이 있고 Cs, Sr, Co, 희토류 및 Am 분리에 사용한다. 음이온 교환체는 음이온교환수지, 염기성 백운모,  $Fe_2O_3 \cdot Al_2O_3$  및 활성탄이 있고 질산 혹은 염산용액상에서 Pu, Np, U, Th 등의 분리정제에 이용된다. 그밖에 비이온교환체로는 XAD가 있는데 킬레이트화합물을 선택적으로 흡착하여 목적원소의 원자가나 이온화상태 등을 적절하게 조합하여 사용한다.

용매추출법은 사용시 유출속도, 분배비 및 분리성 등에 유의해야 한다. 분리성에 있어서 충분히 진탕한 후 용매가 에멀션 상태로 되어 수층과 잘 분리되지 않는 경우도 있으니 주의해야 한다. TBP나 HDEHP 등의 용매는 Ce, U, Pu 및 Th 등을 분리하는데 사용하고, TOPO, TOA, TLA 및 TTA 등은 Pu, U, Th 및 Am 등의 악티나이드를 분리하는데 사용한다.

침전법은 오래전부터 사용되는 방법으로 공침에 의해 다른 방해원소가 포집되어 침전이 오염될 경우가 있으므로 주의해야 한다. 희토류 및 악티나이드를 분리할 목적으로 불화물 침전법이 이용되며 알칼리 및 알칼리토금속을 제거하기 위해 수산화물 침전법이, Ca, Sr을 침전시키고 U 등을 제거하기 위해 탄산염 침전법이, 발연질산에 의해 Sr을 정제하기 위해 질산염 침전법이 사용된다.

특수한 용법으로 증류, 건류법이 있다. Ru의 경우 사산화루테늄 형태의 증류법으로 분석한다. 산화제는 알칼리나 산성이나 관계없이 사산화루테늄이 되나 산화제와 루테늄 화합물간의 반응성 정도에 따라 유출속도가 변한다. I의 경우 산소를 이용하여 건류시키며 그 경우 높은 온도에서 I를 연소시킨다. 증류·건류법은 목적원소의 완전한 포집이 중요하다.

### 5.3 측정시료의 조제

분리정제된 시료에 대해 알파선 및 베타선 방출핵종에 적합한 측정시료를 조제할 필요가 있다. 알파선 측정시료 조제는 전착법 및 마운트법 이외에도 액체섬광법이 있다. 전착(증착)법은 스텐레스판위에 Pu, U, Am 등의 악티나이드를 전해질속에서 전기전착시켜서 알파선 측정시료로 한다. LSC법은 분리·정제의 최종단계에서 용매추출 조작을 할 경우 추출 후 용매를 LSC 측정용 용기로 옮겨 측정시료로 조제한다. 이 경우 주의점은 목적핵종이외의 알파, 베타 방출체의 공존으로 인한 방해가 없도록 충분히 분리·정제할 필요가 있다. 베타선 측정시료는 탄산염, 옥산염 및 수산화물 등의 침전형태로 조제한다. Sr-90의 경우 옥산염 침전으로 측정시료를 조제하며 H-3, C-14의 경우 수층에 적당한 비율로 섬광체를 섞어서 측정시료로 조제한다.

### 5.4 회수율 측정

최초의 환경시료에서 최후의 측정시료 조제 및 측정 사이에 회수율을 측정하여 보정할 필요가 있다. 이 경우 동위체(tracer)를 사용하는 방법과 화학적 성질이 유사한 원소를 사용하는 방법이 있다. 동위체를 사용할 경우 방사성동위체로는 I-125, Pu-236, Pu-242, U-232, Th-229 및 Am-243 등이 있다. 안정원소를 사용하는 경우 Sr, Ce, Co, Cs 및 Ru 등의 분석에 안정원소를 첨가하여 중량법, 비색법 및 원자흡광법 등으로 회수율을 측정한다. 그러나 Sr, Co, Ce 등은 환경중에 안정원소가 비교적 많이 존재하여 그 경우 미리 시료중에 함유한 안정원소 중량을 측정하여 회수율을 구할때 보정해야 한다. Ce 등의 원소는 육상시료에는 그다지 함유되어 있지 않으나 해저토에는 많이 함유되어 있다. 그외의 방법으로는 화학적 성질이 유사한 원소를 사용하는 방법으로 Am 분석시 Cm-244나 Gd-148 등

의 방사성원소를 사용하는 경우가 있다. 전자는 같은 악티나이드 3가 원소로써 Am과 같은 화학적 거동을 하고 후자는 란타나이드 원소로 Am과 성질이 유사하다. 환경방사능 분석에서 같은시료에 대해 회수율이 큰 차이가 발생할 경우 신뢰성이 저하되어 좋지 않다. 회수율을 개선하기 위해서는 방법의 개선이나 분석자의 기술을 향상시켜 가능하면 높은 회수율을 지향한다.

## 6. 방사능 분석에서의 유의사항

방사능 분석시 유의사항으로는 첫째, 목적핵종의 환경중 물리·화학적 성질을 파악한다. 즉, 목적핵종의 안정한 원자가는 어떤 형태이며, 환경중에 어떤 형태의 화합물로 존재하는지를 파악하여야 하며 분석시료양을 결정하기 위해 목적핵종의 존재량을 예측하는 것은 중요하다. 또한 분석조작시 원자의 변화유무 및 목적핵종의 방사선 에너지가 측정시료에 적합한지 검토해야 한다. 둘째, 분석조작의 검증이다. 즉, “언제, 무엇을, 얼마만큼을, 어떻게 했는가?”를 분석조작 후 판단하는 것은 중요하다. 이러한 검증은 어떤 원인으로 회수율이 낮은 결과치를 보였는가 혹은 생각지도 않은 결과가 도출될 경우 원인규명에 상당히 용이하다. 셋째, 분석장소의 정리, 정돈, 청결, 청소에 노력한다. 마지막으로 어떤 원인으로 문제가 발생한 경우 분석자로서 분석에 자신감을 갖는 것이 중요하다. 예상치 않은 분석결과에 대한 원인이 규명되면 객관적이고 겸허한 자세로 수용해야 한다.

## 7. 앞으로 전망

1960년대와 비교하면 방사능낙진(fallout)양이 감소하면서 환경방사능 농도가 감소하고 있다. 또한 각 원자력 시설에서도 방출방사능

의 저감화에 노력하고 있어 원자력시설로 인한 환경영향도 감소하고 있기 때문에 환경중에 존재하는 방사성핵종을 검출한계치 이상으로 검출하는 것은 환경방사능분석에 대한 신뢰성 확보 측면에서 중요하다. 이러한 목적에 부합하여 최근에 검출한계치가 매우 낮은 ICP-MS(Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer), TIMS(Thermal Ionization Mass Spectrometer) 및 RIMS(Resonance Ionization Mass Spectrometer)등의 고감도 분석기기가 개발되었으나 분석장비가 워낙 고가이기 때문에 아직 일상적인 환경방사능분석에 활용하지 못하고 연구 수준에 머무르고 있다. 이러한 현재상황에서 환경방사능분석을 원활하게 수행하기 위해서는 기술 혁신에 의한 신분석법의 개발, 즉, 종래 방법과 비교하여 보다 쉽고 신속한 고감도의 분석기술 개발이 매우 중요하다고 사료된다. 다른 측면에서 보면 현재 환경방사능준위 감소에 대해 상대적으로 천연핵종이 문제가 되어 U 및 Th 계열 등의 천연핵종에 대한 연구도 강화할 필요가 있다. 또한 비방능이 적다든지, 방출하는 방사선이 약하다든지, 혹은 분석방법이 매우 어려운 이유 때문에 분석되지 않았던 Tc-99, I-129 및 초우라늄 원소에 대한 연구도 필요하다고 생각된다.

### 【참 고 문 헌】

1. 일본분석센타 광보 No.12 pp 15-22, JCAC (1986)
2. 환경방사선 모니터링, 실무테스트 시리즈 No. 4, 원자력안전연구협회(1987)
3. Merrill Eisenbud, “Environmental Radioactivity”, Academic Press, INC(1987)
4. 환경시료 채취법, 방사능 측정법 시리즈 16, 일본과학기술청(1982)