

Analysis of ^{99}Tc and Its Activity Level in the Korean Soil

한국 토양의 ^{99}Tc 분석 및 방사능 농도 준위

Chang Woo Lee¹⁾, Kun Ho Chung, Young Hyun Cho, Mun Ja Kang,
Wanno Lee, Hee Reyoung Kim and Geun Sik Choi
Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeokdaero, Yuseong-gu, Daejeon

이창우¹⁾, 정근호, 조영현, 강문자, 이완로, 김희령, 최근식
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

(Received August 20, 2008 / Revised October 08, 2008 / Approved October 21, 2008)

Abstract

An analytical method of ^{99}Tc concentration in soil was set up and discussed considering the ^{99}Tc concentration in Korean soil measured with its analytical method. A selective TEVA resin was used to separate and purify the ^{99}Tc in the soil sample. $^{99\text{m}}\text{Tc}$ from a commercial $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ generator was used as a yield tracer for the chemical separation of ^{99}Tc and its problem when using $^{99\text{m}}\text{Tc}$ as a tracer was discussed. The chemical recovery yield of ^{99}Tc was above 70 %. The optimum conditions of inductively coupled plasma mass spectrometry system(ICP-MS) were set up to determine the ^{99}Tc after the separation process. The minimum detectable activity(MDA) was 15 mBq/kg-dry in this analytical procedure. The ^{99}Tc concentration in soils of Jeju and Kori were measured in the range of 33.73 - 89.16 mBq/kg-dry. Those values were less than those reported in other countries and seemed to be originated from atmospheric fallout.

Key words : ^{99}Tc analysis, TEVA resin, Yield tracer, ICP-MS, ^{99}Tc concentration.

요약

토양중 ^{99}Tc 의 배경준위를 측정할 수 있는 분석법을 수립하고 한국 토양중의 ^{99}Tc 농도를 비교 검토하였다. 토양중의 ^{99}Tc 을 분리 정제하기 위해서 선택성 TEVA수지를 사용하였다. 화학분리 회수율을 계산하기 위해 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 생성기에서 생산한 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 를 추적자로 사용하고 그 문제점을 검토하였다. $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 추적자를 사용하여 계산한 화학분리 회수율은 70% 이상이 가능하였다. 순수 분리된 ^{99}Tc 의 측정을 위한 유도결합플라즈마 질량분석기(ICP-MS)의 최적 조건을 수립하였다. 이 분석법에 의한 토양의 최소검출하한치(MDA)는 15 mBq/kg-dry 이었다. 제주와 고리 주변 토양 시료의 ^{99}Tc 농도는 33.73 - 89.16 mBq/kg-dry 였다. 이러한 수치는 다른 보고치에 비하여 낮은 편이며 대기권 핵실험에서 기인한 낙진의 영향으로 추정된다.

중심단어 : ^{99}Tc 분석법, TEVA 수지, 추적자, 질량분석기, ^{99}Tc 농도

1) Corresponding Author. E-mail : cwlee@kaeri.re.kr

I. 서론

테크네튬(⁹⁹Tc)은 핵분열 생성물인 ⁹⁹Mo(T_{1/2}=67 h)가 베타 붕괴하여 생기며 핵분열 생성수율이 6% 정도로 높다. ⁹⁹Tc는 순수 베타방출체(E_{max}=294 keV)이며 반감기가 긴(T_{1/2}=2.13×10⁵ y) 핵종이다. 그래서 환경에 누출될 경우 미래에 장기간 인체피해를 유발할 수 있는 주요 선원이므로 방사성폐기물 관리 대상으로 주목받고 있다. 한국의 중·저준위폐기물처분장에 반입되는 폐기물의 인도규정에서 ⁹⁹Tc는 방사능 농도 제한 대상 핵종이며[1], 또한 경주에 건설 중인 중·저준위 폐기물 처분장 주변 환경 감시의 주요 지표핵종의 하나로 선정되어 있다[2]. 그러나 ⁹⁹Tc는 핵연료주기 상에서 보면 재처리 시설 운영 과정에서 가장 환경에 누출되기 쉽다. 핵연료 재처리 시설을 운영하고 있는 영국의 셀라필드 지역의 해안은 누출된 ⁹⁹Tc의 환경 영향에 대한 평가가 지속적으로 이루어지고 있으며[3, 4] 일반적인 ⁹⁹Tc의 방사성생태학적인 연구도 진행되어 왔다[5].

⁹⁹Tc 분석은 까다롭기 때문에 현재도 많은 연구자들이 최적의 분석법을 연구하고 있다[6, 7, 8]. ⁹⁹Tc는 순수 베타 방출체이므로 우선 이를 순수 분리해야 한다. 이후에 시료의 방사능 준위를 고려하여 정제 및 농축 과정을 거친다. 이 방법들은 모두 용매추출이나 이온교환에 의해 ⁹⁹Tc를 농축 및 정제하는 과정을 포함하고 있다. 최근에는 ⁹⁹Tc만을 선택적으로 분리할 수 있는 추출크로마토그래피법이 개발되었다[9, 10]. 분리 정제된 ⁹⁹Tc의 농도 측정은 방사선계수법[10, 11]이나 질량분석법[6-9, 12, 13]을 이용한다. 방사선 계수법은 검출 하한치가 높기 때문에 준위가 비교적 높은 일부 폐기물시료 분석에 사용하고 있다. 그러나 준위가 낮은 환경시료를 분석하기 위해서는 질량분석법을 이용한다[7, 12]. 이러한 ⁹⁹Tc 분석법들은 소요시간과 고비용 때문에 실험실에서 일상적으로 활용하기 어려운 점이 있다.

환경 중의 ⁹⁹Tc 준위는 주로 대기권 핵실험에서 발생한 낙진에 의한 것이다. 따라서 원자력 시설의 운영에 의한 추가 오염이 없는 지역에서는 낙진에 의한 ⁹⁹Tc 방사능이 환경 배경준위가 된다. 전 지구적으로 토양 중 낙진에 의한 ⁹⁹Tc 준위는 1 Bq/kg-dry 이하로 보고되고 있다[14]. 그러나 이 보고치들은 측정지역 또는 연구자에 따라 편차가 큰 편이다. 이를 지리적인 특성 차이 라고 설명하고 있지만 또한 ⁹⁹Tc 방사능 분석법 상의 오차에 기인한 것일 수도 있다. 지금까지 한국의 환경에서 ⁹⁹Tc 준위가 보고 된 바 없다. 따라서 중·저준위 방사성폐기물 처분시설의 가동을 앞두고 ⁹⁹Tc의 환경 배경 준위를 조사해야 할 필요성이 커졌다.

본 연구에서는 환경감시에 적용할 수 있도록 환경 배경준위

를 측정할 수 있는 저준위 ⁹⁹Tc 분석법을 정립하고자 하였다. 특히 ⁹⁹Tc의 분석에서는 테크네튬의 분리 회수율을 정확히 측정해야하는데 이때 사용할 수 있는 추적자의 선택에 어려움이 많았다. 본 연구에서는 의료용으로 쉽게 얻을 수 있는 ^{99m}Tc를 추적자로 사용한 분리 공정을 수립하고 문제점을 검토하였다. 이 공정을 환경 토양에 적용하여 분리 및 정제 절차를 수립하고자 하였다. 또 ICP-MS의 최적 운전 조건을 도출하고 검출한치를 검토하였다. 이 분석법을 적용하여 한국 토양 중 낙진에 의한 ⁹⁹Tc의 배경준위를 고찰하였다.

II. 실험

가. 토양 시료 채취

토양시료는 원자력시설의 영향이 적을 것으로 예상되는 제주도의 2 지점에서 채취하였다. 제주도의 성판악과 영실 지역의 교란이 없는 평탄한 지형에서 표토 깊이 5 cm 이내에서 채취하였다. 한편 고리 주변의 ¹³⁷Cs 농도가 비교적 높은 지역으로 삼각산 지역 2 지점을 선정 채취하였다. 제주도와 고리 주변 토양은 유기물의 함량이 특히 높은 지역이다. 이는 대기 중 낙진을 추적하기 쉬운 조건이므로 낙진에 의한 ⁹⁹Tc의 영향을 쉽게 찾을 수 있도록 유기물 함량이 높은 토양을 채취하였다. 채취한 토양은 서늘한 곳에서 말리고 굵은 이물질을 골라낸 후 105℃에서 하룻밤 건조하였다.

나. 보정용 모래 시료

⁹⁹Tc가 완전히 제거된 정제된 모래시료를 백그라운드 보정 시료로 선정하였다. 이 모래시료는 토양시료와 전 분석과정을 동일한 조건으로 병렬로 진행하였다. 모래시료 분석결과로 토양시료의 최종결과를 보정할 수 있도록 하였다.

다. ⁹⁹Tc 분석

토양 시료의 전처리 및 분석 절차는 Tagami 등[6]이 제안한 방식을 기본으로 하여 Fig. 1에 정리하였다. 건조한 토양을 0.5 mm 체로 친 후 30 g 취한다. 토양 시료는 연소로에서 450℃로 6 시간 동안 가열하여 유기물을 산화시켜 제거한다[14]. 여기에 회수율을 측정하기 위해 일정량의 ^{99m}Tc를 첨가한다. 시료에 1 M 질산 150 mL를 가하여 140℃에서 6 시간 동안 추출한 후 원심 분리하여 고형물질을 제거한다. 용액중의 부유물들은 다시 GP/C 필터로 걸러낸다. 여액을 다시 0.1 M 질산 200 mL로 희석한 후 미리 0.1 M 질산을 흘려서 조정해둔 TEVA 칼럼(EIChroM Ind, Inc., U.S.A.)에 통과시켜 흡착시킨다. 흡착 후 TEVA 칼럼은 2 M 질산 50 mL를 흘려 불순물을

제거한 후 8 M 질산 20 mL로 Tc를 추출해 낸다. 추출된 Tc 용액을 감마계수기로 측정하여 회수율을 결정한다. 추출액은 다시 증발 건조한 후 2% 질산 10 mL를 가하여 용해한 후 질량분석기(ICP-MS)로 분석한다.

회수율 측정에 사용된 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 는 의료용으로 사용되고 있는 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 발생기(Samyong Unitech, Daejeon, Korea)로부터 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 를 밀킹하여 생산하였다. 회수율은 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 의 140 keV 감마선을 HPGE 감마검출기(well-type HPGE gamma-spectrometer, EG&G, ORTEC)로 계수하여 계산하였다. 한편 건조한 토양의 ^{137}Cs 농도는 일상적인 감마스펙트로미터(planar-type HPGE gamma-spectrometer, EG&G, ORTEC)로 측정하였다.

^{99}Tc 의 질량을 분석하기 위해 사중극자 유도결합 플라즈마 질량분석기(Quadrupole ICP-MS, Varian, RedTop)를 사용하였다. ICP-MS의 운전 조건은 Table 1에 정리하였다.

III. 결과 및 고찰

가. ^{99}Tc 의 분리 회수율

화학적 분리과정에서 반드시 ^{99}Tc 의 회수율을 측정해야한

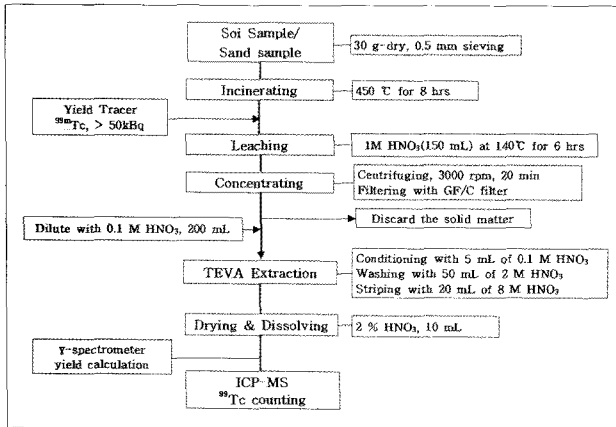


Fig. 1. Schematic diagram for determination of ^{99}Tc in soil sample.

Table. 1. Operation conditions of ICP-MS.

RF power	1.2 kW
Plasma flow rate	15.0 L/min
Auxiliary flow rate	1.65 L/min
Nebulizer flow rate	0.70 L/min
Sampling pump rate	5 rpm
Dwell time at mass 99	100 ms
Scan mode	Peak hopping
Scan/replicate	250
Replicate/sample	5
Mass range	97-102

다. 회수율 측정에 사용하는 추적자로서 Re(Rhenium)이 쓰인 적도 있었다[15]. 이는 Tc와 Re의 화학적 특성이 유사함을 이용한 것이다. 그러나 Re 추적자를 사용하면 ^{99}Tc 가 과대 계산될 우려가 있어서 지금은 잘 사용하지 않는 방법이다. 추적자로서 가장 적합한 것은 $^{95\text{m}}\text{Tc}$ 이다. $^{95\text{m}}\text{Tc}$ 는 감마방출체(204 keV)이고 반감기($T_{1/2}=61$ d)도 적절한 편으로 편하게 사용할 수 있다. 그러나 상업적으로 판매되는 제품에는 ^{99}Tc 를 포함한 다른 테크네튬 동위원소도 함께 포함할 수 있어서[14] 주의해야 하고 근래에는 구입하기도 어려운 실정이다. 가속기를 이용하여 순수한 $^{95\text{m}}\text{Tc}$ 를 만드는 것이 최상의 방법이나 일반 실험실에 활용이 가능하지 않다.

본 연구에서 추적자로 사용한 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 는 의료용으로 사용되는 상업용 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 발생기에서 쉽게 얻을 수 있다[16, 17]. 그러나 몇 가지 주의해야 할 점이 있다. 발생기의 컬럼에 붙어 있는 ^{99}Mo ($T_{1/2}=67$ h)는 바로 붕괴하여 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ($T_{1/2}=6$ h) 되고 다시 ^{99}Tc 로 변한다(Fig. 2). $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 은 반감기가 짧아서 밀킹하여 제거 하더라도 모 핵종인 ^{99}Mo 에서 바로 생성되기 시작하여 25 시간 정도 지나면 방사평형에 도달하게 되고 또한 ^{99}Tc 도 계속 생성되어 축적되게 된다. 따라서 별다른 전처리 조작 없이 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 를 취하여 추적자로 사용하면 축적된 ^{99}Tc 를 동반하게 되므로 질량분석 시에 농도를 증가시키는 요인이 된다. 본 연구에서는 이온교환주를 0.9% NaCl 용액(약 20 mL)으로 6 회 이상 연속해서 씻어 내어 생성기 내부에 테크네튬을 완전히 제거 하였다. 제거 후 즉시 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 이 생성되기 시작한 후 약 10 분정도 경과 후 0.9% NaCl 로 밀킹하여 추적자로 사용하였다. 그러나 이렇게 하더라도 밀킹 용액 속에는 이온교환주에서 떨어져 나온 ^{99}Mo 가 섞여 있어서 질량분석에 영향을 준다. 본 연구에서는 ^{99}Mo 불순물을 TEVA 컬럼에 통과 시켜 제거 하였다. Fig. 3는 추적자 용액의 감마스펙트럼을 보여주고 있다. Fig. 3 a)에는 생성기에서 바로 채취한 추적자 용액에 ^{99}Mo 가 포함 되어 있음을 보여주고 있다. 이 추적자 용액을 TEVA 컬럼에 통과 시키면 Fig. 3 b)에서 보는 바와 같이 ^{99}Mo 가 제거된 순수한 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 용액을 얻을 수 있다. $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 발생기에서 밀킹하여 얻어낸 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 용액은 수

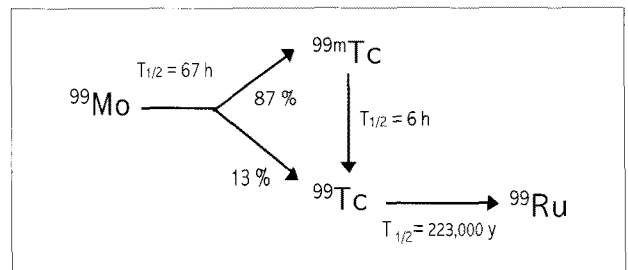


Fig. 2. Decay scheme of ^{99}Mo .

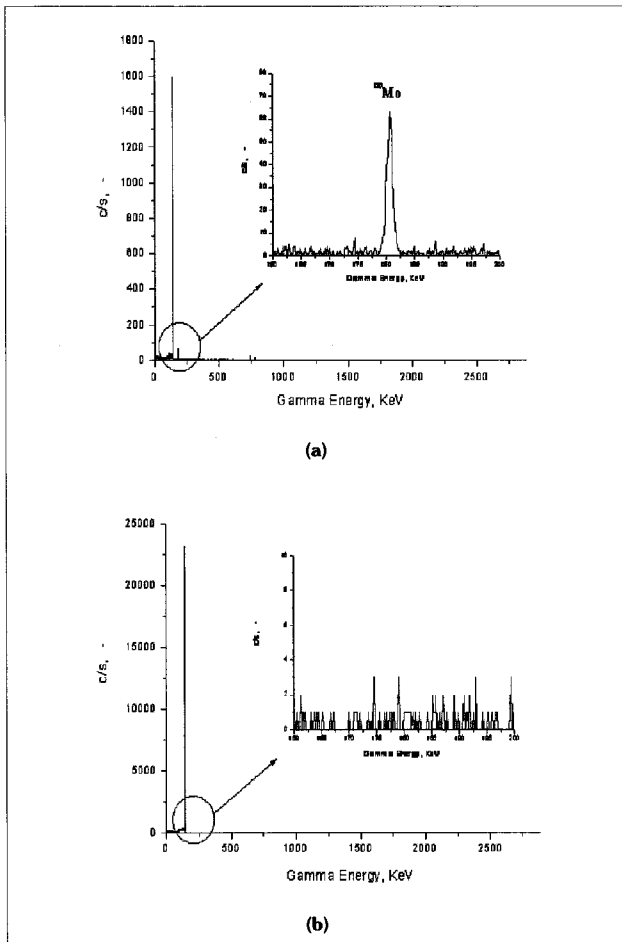


Fig. 3. Gamma-spectrums of ^{99m}Tc spike solution, a) containing ⁹⁹Mo produced from ⁹⁹Mo/^{99m}Tc generator, b) purified with TEVA column.

MBq 정도이다. 이 밀킹 용액에서 ⁹⁹Mo를 제거하고 순수 ^{99m}Tc 추적자 용액을 제조 하는데 걸리는 시간은 4시간 정도이다. 이렇게 정제된 ^{99m}Tc 추적자 용액을 희석하여 사용하였다. 추적자의 첨가량은 ^{99m}Tc의 짧은 반감기와 분리 정제에 소요되는 시간을 감안하여 결정해야 한다. 본 연구에서 사용한 ^{99m}Tc 추적자는 약 50 KBq 정도에 이르는 상당히 고농도였다. 따라서 가능한 한 분리 정제 시간을 짧게 하고 고방사선의 방호에도 주의해야 한다. 실험에서 추적자를 첨가한 후 Fig. 1에 나타낸 분석절차도를 따라 분리정제 후 회수율 측정 까지 걸리는 시간은 8 시간 정도였다. 회수율 측정이 끝난 시료는 방사능이 거의 감쇄될 때 까지 하루정도 방치한 후 질량분석기로 분석하였다. 이 실험에서 첨가한 추적자의량은 환경토양준위의 ⁹⁹Tc와 비교하여 적은 량이지만 낮은 농도의 토양 분석에서는 영향을 줄 수 있다. 그래서 동일한 조건으로 ^{99m}Tc 추적자를 첨가하여 진행한 모래시료의 측정결과를 빼줌으로서 추적자 첨가에 의해 과대평가가 되지 않도록

하였다. 본 실험에서 계산한 화학분리 회수율은 60% - 80% 정도였으며 일상적인 작업조건에서 70% 이상의 회수율이 가능하였다.

나. 질량분석 검출하한치

질량분석에서 주의할 점은 동중원소(isobaric isotope)에 의한 간섭을 제거하는 것이다. ⁹⁹Tc와 성질이 비슷하면서 질량 간섭을 가져올 수 있는 원소는 자연 환경에 존재하는 루테튬(Ru: Ruthenium)이다. Ru 중 ⁹⁹Tc 분석에 영향을 줄 수 있는 것은 ⁹⁸Ru, ⁹⁹Ru, ¹⁰⁰Ru, ¹⁰¹Ru, 및 ¹⁰²Ru 등이 있는데 이들의 자연 존재비는 각각 1.9%, 12.6%, 12.6%, 17.0% 및 31.6%이다. 본 연구에서 사용한 분리 정제법은 이들 Ru 동위원소를 완벽히 제거할 수 있었으며 이들이 질량분석 스펙트럼에서 검출되지 않음을 확인 하였다.

본 연구에서 사용한 ICP-MS 장비의 계측하한치를 아래의 식(LOQ : Limit of Quantification)으로 계산하면 LOQ는 0.034 mBq/mL였다.

$$LOQ=2.54(1+ \sqrt{(1+2.48B^2)}) \dots\dots\dots (1)$$

윗 식에서 B는 백그라운드 계수이다[17].

최소검출하한치(MDA : Minimum Detectable Activity)를 다음 식으로 계산하였다.

$$MDA=(LOQ \cdot V) / (M \cdot R) \dots\dots\dots (2)$$

윗 식에서 V는 질량분석에 사용하는 용액부피, M은 토양시료의 량 이고 R은 화학회수율이다.

본 연구에서 사용한 분석조건인 질량분석용액(V) 10 mL, 토양시료의 량 0.03 kg-dry soil, 회수율 0.75를 적용하면 검출하한치(MDA)는 약 15 mBq/kg-dry soil 이었다. 이 정도의 검출하한치는 액체섬광계수기(LSC)를 사용하는 경우 보다 50배 정도 낮은 값이다. 이는 일반 환경 토양의 ⁹⁹Tc 농도를 유의수준에서 검출가능하다고 판단된다.

Table. 2. Concentrations of ⁹⁹Tc in Korean soil samples.

Sample Location	Activity Concentration		⁹⁹ Tc/ ¹³⁷ Cs (× 10 ⁻³)	Organic Content %
	⁹⁹ Tc mBq/kg-dry	¹³⁷ Cs Bq/kg-dry		
Jeju Seongpanak	33.73 ± 10.59	198.6 ± 8.702	0.17	39.97
Jeju Youngsil	70.09 ± 12.68	75.36 ± 4.874	0.93	41.55
Samgagsan-South	52.74 ± 14.05	211.4 ± 9.28	0.25	47.94
Samgagsan-North	89.16 ± 9.97	143.1 ± 6.42	0.62	38.65

다. 토양중의 ⁹⁹Tc 농도

이 연구에서 측정된 한국 토양중의 ⁹⁹Tc 농도를 Table 2에 정리하였다. 제주도와 삼각산에서 채취한 토양은 유기물 함량이 40% 내외로 높았다. 일반적으로 낙진 중 방사성 핵종은 유기물에 많이 축적된다고 알려졌다[18, 19]. Table 2에서 보면 토양의 ⁹⁹Tc 농도는 33.73 mBq/kg에서 89.16 mBq/kg였다. 이는 이제까지 보고된 토양중 농도에 비하여 낮은 편이다. 지난 1980년대 까지 대기권 핵실험에 의해 대기권으로 방출된 ⁹⁹Tc는 140 TBq 정도이다[20]. 한편 낙진중 ⁹⁹Tc는 핵분열 산물인 ¹³⁷Cs과 동반하여 침적하는 동반 핵종으로 볼 수 있다. 핵분열 시에 ⁹⁹Tc의 생성수율은 6% 정도로 ¹³⁷Cs(T1/2=30 y)과 비슷하다. 따라서 반감기의 차이를 고려하면 핵분열 생성물로서 두 핵종간의 이론적 방사능비(⁹⁹Tc/¹³⁷Cs)는 1.44×10^{-4} 정도이다[20]. 그러나 핵실험 이후 지난 시간 경과동안 ¹³⁷Cs의 붕괴 정도를 고려하면 낙진중 방사능 비는 이보다 클 것이다. Table 2 에는 토양에서 측정된 ¹³⁷Cs 농도를 함께 나타내었다. 토양의 ¹³⁷Cs 방사능은 일반토양 보다 높은 편이었는데 이는 유기물 함량이 높기 때문으로 보인다. Table 2에서 두 핵종간의 방사능비(⁹⁹Tc/¹³⁷Cs)를 계산해 보면 이론치 보다 2배~6 배 정도 높았다. 또 ⁹⁹Tc와 ¹³⁷Cs 사이의 비례관계도 보여주지 않았다. 이러한 결과는 미국과 일본에서 보고한 자료에서도 나타나고 있는 데 더 많은 자료가 모아진 후에 규명해야 할 것이다[7, 14, 21, 22, 23].

Table 3에서는 한국 토양의 ⁹⁹Tc 농도를 다른 나라의 토양 농도와 비교하였다. Table 3에서 Tagami와 Morita 등[12, 14, 22, 23]이 1990년대 초반에 측정된 일본 토양의 ⁹⁹Tc는 본연구의 측정치 보다 높은 편이다. 또한 이들은 ⁹⁹Tc/¹³⁷Cs 비가 이론치보다 10 배정도 높게 보고하고 있는 데 특별한 이유를 설명하지 않았다. 한편 Seki와 Kondol[7]가 2004년에 측정된 일본 토양의 경우에는 ⁹⁹Tc가 지하 30 cm 까지 분포하고 있으며 ¹³⁷Cs보다 지하 이동 속도가 빠르다고 보고하였다. 이들이 토양에 침적한 총 채고량 기준으로 계산한 방사능비는 이론치에 접근하였다. 이상에서 보면 낙진에 의한 토양 중 ⁹⁹Tc의 농도는 지역과 연구자에 따라 큰 차이가 있을

을 알 수 있다. 일반적으로 낙진의 침적 특성은 기후, 지형 및 지질학적인 환경특성의 차이에 크게 영향을 받는다고 알려져 있다[18, 19]. 그러나 ⁹⁹Tc의 분석적인 측면에서 보면 환경 배경 준위 정도의 저준위 분석기술에서는 까다롭고 오차가 많이나기 때문이기도 하다. 실질적으로 근래에 개발된 고분해능 질량분석 기술이 도입되고서야 정밀한 측정이 가능해 졌다[12]. 재처리 시설 가동에 의해 오염된 셀라필드의 해양 환경에서는 ⁹⁹Tc 농도가 수십 내지는 수백 Bq/kg 까지 이르며 분석도 가스비례계수기로 측정이 가능할 정도이다 [3, 4]. 한국의 토양은 아직 원자력 시설의 운영이나 사고에 의해 오염된 적이 없다고 간주된다. 따라서 월성에 건설 중인 저준위 방폐장의 환경감시프로그램에서는 고시에 제시된 ⁹⁹Tc 검출하한치를 맞추기 위해서 질량분석법을 적용할 필요가 있다.

IV. 결 론

한국 토양의 ⁹⁹Tc 농도를 측정하기 위해서는 선택성 TEVA 수지를 사용하여 분리정제 후 ICP-MS로 질량을 분석하는 분석법이 가장 현실적인 방법이다. 화학분리 회수율을 계산하기 위해 ⁹⁹Mo/^{99m}Tc 생성기에서 생산한 ^{99m}Tc를 추적자로 사용할 수 있었다. 의료용으로 생산되는 ^{99m}Tc는 ⁹⁹Tc를 많이 포함하고 있으므로 바로 사용하면 질량분석 결과가 과대평가 된다. ⁹⁹Mo/^{99m}Tc 생성기를 6회 이상 세척하여 Tc를 제거해야 한다. 또 추적자로 생산한 ^{99m}Tc 용액에 ⁹⁹Mo가 섞여 있으므로 다시 TEVA에 통과 시켜 제거해야 순수한 ^{99m}Tc용액을 추적자로 쓸 수 있다. ^{99m}Tc 추적자를 사용하여 계산한 화학분리 회수율은 70% 이상이 가능하였다. 순수 분리된 ⁹⁹Tc의 측정을 위해 사중극자 유도결합플라즈마 질량분석기(ICP-MS)의 최적 조건을 수립하였다. 본 연구에서 수립한 분석법에 의한 토양의 최소 검출하한치(MDA)는 15 mBq/kg-dry 이었다.

제주와 고리 주변 토양 시료의 ⁹⁹Tc 농도는 33.73~89.16 mBq/kg-dry soil 이었다. 이러한 수치는 다른 보고치에 비하여 낮은 편이며 대기권 핵실험에서 기인한 낙진의 영향으로 추정된다. 토양의 ⁹⁹Tc 농도는 보고자에 따라 많은 편차를 보이고 있다. 기후 및 지역적인 특성을 고려하더라도 정확한 분석법의 확립이 중요하다. 본 연구에서 수립한 분석법은 환경 감시 활동에서 한국 토양 분석에 적용할 수 있을 것으로 사료된다.

감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환

Table 3. Concentrations of ⁹⁹Tc in various soil samples.

Sample (Place)	Year	⁹⁹ Tc Bq/kg-dry	⁹⁹ Tc/ ¹³⁷ Cs (× 10 ⁻²)	Reference
Soil(U.S.A)	1982	0.10	0.53	Garland, et al.[21]
Soil(Japan)	1989	0.33	-	Morita, et al.[12]
Soil(Japan)	1991-1992	0.11-0.46	0.4-3.8	Tagami and Uchida[22]
Soil(Japan)	1993	0.08-0.18	0.15-0.48	Morita, et al.[23]
Soil(Japan)	1991-1992	0.05-0.11	0.38-0.84	Tagami and Uchida[14]
Soil(Japan)	2004	0.00077-0.029	0.0065-0.013	Seki and Kondol[7]
Soil(Korea)	2008	0.034-0.089	0.017-0.093	This work

으로 수행하였습니다.

참고문헌

- [1] 과학기술부, 중.저준위 방사성 폐기물 인도 규정, 과학기술부 고시 제2005-18호(2005).
- [2] 백정석, 정의영, 안상복, 김완, "방사성폐기물 처분시설 주변의 방사선 환경조사," 방사성폐기물학회지, 6(4), p 387-398(2008).
- [3] V. Smith, M. Fegan, D. Pollard, S. Long, E. Hayden and T. P. Ryan, "Technetium-99 in the Irish marine environment," Journal of Environmental Radioactivity. 56, pp. 269-284 (2001).
- [4] K. S. Leonard, D. McCubbin, P. McDonald, M. Service, R. Bonfield and S. Conney, "Accumulation of technetium-99 in the Irish Sea," Journal of Environmental Radioactivity. 322, pp. 255-270 (2004).
- [5] R. Bennett and N. Willey, "Soil availability, plant uptake and soil to plant transfer of ^{99}Tc - a review," Journal of Environmental Radioactivity. 65, pp. 215-231 (2003).
- [6] K. Tagami, S. Uchida, T. Hamilton, and W. Robison, "Measurement of technetium-99 in Marshall Islands soil samples by ICP-MS," Applied Radiation and Isotopes. 53, pp 75-79 (2000)
- [7] R. Seki and M. Kondo, "An improved method for technetium determination in environmental samples," Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 263(2), pp. 393-398 (2005).
- [8] L. Skipperud, D. H. Oughton, L. S. Rosten, M. J. Wharton and J. P. Day, "Determination of technetium-99 using electrochemical vaporization inductively coupled plasma-mass spectrometry (ETV-ICP-MS) and NH_4OH as chemical modifier, 98, pp. 251-263 (2007).
- [9] S. Uchida and K. Tagami, "Improvement of ^{99}Tc separation procedure using a chromatographic resin for direct measurement by ICP-MS," Analytica Chimica Acta, 357, pp. 1-3 (1997).
- [10] A. Bartosova, P. Rajec and M. Reich, "Preparation and characterization of an extraction chromatography column of technetium separation based on aliquat-336 and silica gel support," Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 261(1), pp. 119-124 (2004).
- [11] F. Wigley, P.E. Warwick, I. W. Croudace, J. Caborn and A.L. Sanchez, "Optimized method for the routine determination of technetium-99 in environmental samples by liquid scintillation counting," Analytica Chimica Acta, 380, pp. 73-82 (1999).
- [12] S. Morita, C. K. Kim, Y. Takaku, R. Seki and N. Ikeda, "Determination of technetium-99 in environmental samples by inductively coupled plasma mass spectrometry," Applied Radiation and Isotopes, 42(6), pp. 531-534 (1991).
- [13] J. L. Mas, M. Garcia-Leon, J.P. Bolivar, " ^{99}Tc atom counting by quadrupole ICP-MS. Optimisation of the instrumental response," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. A484, pp. 660-667 (2002).
- [14] K. Tagami and S. Uchida, "Analysis of technetium-99 in soil and deposition samples by inductively coupled plasma mass spectrometry," Applied Radiation and Isotopes, 47(9/10), pp. 1057-1060 (1996).
- [15] M. Attrep, A. Enochs and L. D. Broz, "Atmospheric Technetium-99," Environmental Science and Technology, 5(4), pp. 344-345 (1971).
- [16] X. Hou, M. Jensen and S. P. Nielsen, "Use of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ from a commercial $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ generator as yield tracer for the determination of ^{99}Tc at low levels," Applied Radiation and Isotopes, 65, pp. 610-618 (2007).
- [17] J. L. Mas, M. Garcia-Leon, J. P. Bolivar and C. Sanchez-Angulo, "The use of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ as a tracer in the determination of ^{99}Tc by ICP-mass spectrometry," Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 15, pp. 1369-1373 (2000).
- [18] M. H. Lee, C. W. Lee and B. H. Boo, "Distribution and characteristics of $^{230,240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in the soil of Korea," Journal of Environmental Radioactivity, 37(1), pp. 1-16 (1997).

- [19] M. H. Lee and C. W. Lee. "Association of fallout-derived ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr and ^{230,240}Pu with natural organic substances in soils," *Journal of Environmental Radioactivity*, 47, pp. 253-262 (2000).
- [20] A. Aarkrog, H. Dahlgaard, L. Hallstadius, E. Holm, S. Mattson and J. Rioseco, *Technetium in the Environment : Time trend of ⁹⁹Tc in seaweed from Greenland waters*, pp. 69, Elsevier Appl. Sci. Pub., New York (1986).
- [21] T. R. Garland, D. A. Cataldo, K. M. McFadden, R. G. Schreckhise and R. E. Wildung, "Comparative behavior of ⁹⁹Tc, ¹²⁹I, ¹²⁷I and ¹³⁷Cs in the environment adjacent to a fuel reprocessing facility," *Health Physics*, 44, pp. 658 (1983).
- [22] K. Tagami and S. Uchida, "Separation procedure for the determination of technetium-99 in soil ICP-MS," *Radiochimica Acta*, 63, pp. 69(1993).
- [23] S. Morita, K. Tobita and M. Kurabayashi, "Determination of technetium-99 in environmental samples by inductively coupled plasma mass spectrometry," *Radiochimica Acta*, 63, pp. 63(1993).