

Review of the Gross Alpha for Characterization of Radioactive Waste

방사성폐기물 특성평가를 위한 전알파 분석법 고찰

Hyuncheol Kim*, Jong-Myoung Lim, Mee Jang, and Ji-Young Park

Korea Atomic Energy Research Institute, 111, Daedeok-daero 989beon-gil, Yuseong-gu, Daejeon, Republic of Korea

김현철*, 임종명, 장미, 박지영

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

(Received April 14, 2020 / Revised June 23, 2020 / Approved July 20, 2020)

In this study, we discussed the limitations of gross alpha measurements for the characterization of radioactive wastes produced in nuclear facilities through experimental tests and Monte Carlo N-particle transport simulations. The determination of gross alpha is essential for the disposal of radioactive waste produced in nuclear facilities in Korea. The measurements of gross alpha are easy to perform and yield rapid analytical results, but it cannot be used for quantitative analysis. The error of counting efficiency for gross alpha with various masses of the deposit on planchets using KCl and ^{241}Am was determined. The relative deviation of the counting efficiency in samples having the same mass was 20%. Uranium was extracted from the soil through acid leaching and extraction chromatography, and the concentration of U determined by inductively coupled plasma-mass spectrometry (ICP-MS) was compared with the results for gross alpha. The gross alpha was underestimated by 50% compared to the U concentration by ICP-MS. The counting efficiency depended on the energy from the alpha emitters, which differed by up to three times in determination of the counting efficiency depending on the kinds of alpha radionuclides of interest. Therefore, the gross alpha is not compatible with the sum of radioactivity for each alpha emitter and is suitable as a screening method.

Keywords: Gross alpha, Disposal, Radioactive waste, Radiological characterization

* Corresponding Author.

Hyuncheol Kim, Korea Atomic Energy Research Institute, E-mail: hckim3@kaeri.re.kr, Tel: +82-42-868-4461

ORCID

Hyuncheol Kim

<http://orcid.org/0000-0002-1396-6563>

Jong-Myoung Lim

<http://orcid.org/0000-0003-2434-699X>

Mee Jang

<http://orcid.org/0000-0002-0115-3178>

Ji-Young Park

<http://orcid.org/0000-0001-9672-8685>

우리는 실험과 MCNP 시뮬레이션을 통해 전알파 분석법의 한계를 설명하였다. 국내에서 중·저준위 방사성폐기물 인도 규정 관련, 전알파 분석법은 방사성폐기물을 처분하기 위해 반드시 규명해야 할 방사성 특성평가 인자이다. 전알파 분석법은 시료 준비 절차가 간단하고 신속한 분석 결과를 제공하지만, 정량분석 인자로 사용하는 것은 적절하지 않다. KCl과 ^{241}Am 을 이용하여 시편 건조고형물 무게에 따른 전알파 계측효율을 평가하였다. 동일한 무게의 시편일지라도 계측효율의 차이가 20% 나는 것을 확인하였고, 이는 시편의 물리적 형태가 서로 다르기 때문인 것으로 보인다. 도양 중 우라늄을 화학분리 한 후, ICP-MS로 우라늄을 직접 측정된 결과와 전알파 농도를 비교하였다. 전알파는 실제 우라늄 농도에 비해 50% 과소평가되었다. 알파핵종별 전알파 계측효율이 최대 3배 차이 나기 때문에, 전알파 분석결과는 개별 알파핵종의 합과 비교하기 보다는 스크리닝 개념으로 사용하는 것이 적절하다.

중심단어: 전알파, 처분, 방사성폐기물, 방사성 특성평가

1. 서론

원자력시설 운영 또는 해체 중 필연적으로 방사성폐기물은 발생한다. 2020년 2월 기준, 국내 원자력발전소 부지 내에 임시 보관 중인 운영폐기물은 고리 42,628 드럼, 한빛 20,929 드럼, 월성 15,988 드럼, 한빛 10,731 드럼이다. 이것은 각 부지별 최대 저장량의 63~79%에 해당한다[1]. 임시 저장고 포화도는 원자력시설 운영에 영향을 미칠 수 있기 때문에, 임시 저장고가 포화되기 전에, 방사성폐기물 처분이 시급하다. 고리 1호기 영구정지 이후, 국내에서 원전 해체에 관한 관심이 커지고 있다. 원전 해체 중 발생한 해체폐기물 중 방사성폐기물은 운영폐기물과 함께 방사성핵종 농도 규명 등의 적법한 절차를 거쳐 처분된다. 해체 중 발생한 해체폐기물을 적절하게 처분하지 않으면, 운영폐기물과 마찬가지로 보관장소, 저장기간 등에 따른 문제가 발생할 것이고, 이는 해체 공정 지연으로 이어질 수 있다. 원자력안전위원회 고시 제2017-60호의 중·저준위 방사성폐기물 인도규정에 따르면, 방사성 운영폐기물 또는 해체폐기물을 위탁하려는 자는 폐기물에 포함된 14개 핵종을 규명해야 한다[2]. 또한 14개 핵종에 대한 저준위방사성폐기물 방사능농도제한치의 1% 수준을 평가할 수 있는 능력을 보유한 분석기관에 의해 분석되어야 한다고 명시되어 있다. Table 1은 14개 핵종의 자체처분허용농도, 저준위방사성폐기물 방사능농도제한치, 그리고 핵종별 최소검출가능농도를 나타낸 것이다[2,3]. 방사성폐기물 처분을 위탁하려는 자는 Table 1의 최소검출가능농도를 충분히 만족할 수 있는 수준의 방사성특성평가를

수행하고, 그 결과를 처분장 운영기관에 제출해야 한다.

이 연구는 Table 1의 핵종 중 전알파를 다룬다. 원안위 고시에서, 전알파는 ‘해당 포장물 또는 시료에 함유된 알파선을 방출하는 방사성핵종 전체’를 말한다[2]. 전알파 분석법은 액체섬광계수기(LSC, Liquid Scintillation Counter)와 기체비례계수기(GPC, Gas-flow Proportional Counter)법으로 나뉜다[4,5]. LSC는 알파/베타 입자가 섬광용액과 반응하여 방출되는 광자의 특성을 이용해 알파/베타 핵종을 구분한다. 알파입자는 지발인광에 의한 펄스를, 베타입자는 즉발형광에 의한 펄스를 유발한다. 이와 같은 시간차에 의해 펄스붕괴시간(pulse decay time)이나 펄스길이(pulse length)를 측정하여 알파/베타 핵종을 구분한다[6]. 국내 보급된 LSC 중, Quantulus 1220 (Perkin Elmer)은 펄스붕괴시간이 고려된 Pulse Shape Analysis (PSA)를 기준으로, 300SL (Hidex)은 Pulse Length Index (PSI)를 기준으로 알파, 베타핵종을 구분한다. GPC는 펄스높이분석(Pulse height analysis)을 이용해 알파/베타 입자를 구분한다. 검출기내에 입사된 알파입자는 베타입자보다 기체를 많이 이온화 시키므로, 훨씬 큰 출력 신호를 나타낸다. GPC는 이 전기적 신호를 구분하여 알파/베타 핵종을 구분한다.

국내에서 가장 널리 사용되는 GPC는 XLB-5S (Canberra)이다. 단일 채널이지만, 자동시료공급장치를 포함하기 때문에 한 번에 최대 100개 시료를 측정할 수 있다. 전알파 분석 측면에서, LSC (Quantulus 1220 적용)는 약 100% 계측효율(^{241}Am , Utlima Gold AB 10 mL; HDPE vial)을 얻을 수 있는 장점이 있는 반면, GPC (XLB-5S 적용)는 약 36%(^{241}Am

Table 1. Classification of concentration of radionuclides for the disposal (unit: Bq·g⁻¹)

Radionuclide	Limit of low level radioactive waste ¹⁾	Target MDA ²⁾	Clearance level ¹⁾	Radionuclide	Limit of low level radioactive waste	Target MDA	Clearance level
³ H	1.11×10 ⁶	1.11×10 ⁴	1.0×10 ²	⁹⁹ Tc	1.11×10 ³	1.11×10 ¹	1.0×10 ⁰
¹⁴ C	2.25×10 ⁵	2.25×10 ³	1.0×10 ⁰	Gross alpha	3.70×10 ³	3.70×10 ¹	n.a. ³⁾
¹²⁹ I	3.70×10 ¹	3.70×10 ⁻¹	1.0×10 ⁻²	⁹⁴ Nb	1.11×10 ²	1.11×10 ⁰	1.0×10 ⁻¹
⁵⁵ Fe	n.a.	n.a.	1.0×10 ³	⁶⁰ Co	3.70×10 ⁷	3.70×10 ⁵	1.0×10 ⁻¹
⁵⁹ Ni	7.40×10 ⁴	7.40×10 ²	1.0×10 ²	¹³⁷ Cs	1.11×10 ⁶	1.11×10 ⁴	1.0×10 ⁻¹
⁶³ Ni	1.11×10 ⁷	1.11×10 ⁵	1.0×10 ²	⁵⁸ Co	n.a.	n.a.	1.0×10 ⁰
⁹⁰ Sr	7.40×10 ⁴	7.40×10 ²	1.0×10 ⁰	¹⁴⁴ Ce	n.a.	n.a.	1.0×10 ¹

¹⁾: Nuclear Safety and Security Commission (NSSC) Notice 2017-65

²⁾: NSSC Notice 2017-60

³⁾: Not available

디스크 선원 기준)의 계측효율을 보인다. 바탕계수율 측면에서, LSC는 1.8 cpm (0.1 M HNO₃ 10 mL + Ultima Gold AB 10 mL; HDPE vial)을 보이는 반면, GPC는 0.1 cpm 수준이다. Currie의 식을 이용하고[7] 계측시간 100분, 시료 1 g 조건에서, GPC의 최소검출가능농도는 7.3 Bq·kg⁻¹이고, LSC는 10.8 Bq·kg⁻¹을 보인다.

GPC를 이용한 전알파분석법은 비교적 간단하다. 고체 시료의 경우, 일정량을 플라넷 위에 골고루 펼쳐 고정하는 것으로 충분하다[8]. 액체 시료의 경우, 시료 부피가 크면 증발농축하여 부피를 줄이고, 농축된 시료를 플라넷 위에 옮긴 뒤 완전히 건조하는 것으로서 시편 준비가 끝난다. 플라넷 위의 면적이 제한적이기 때문에, 고체시료나 액체시료의 건조 고형물의 무게에 따라 건조고형물의 무게가 달라진다. 알파 핵종의 자가흡수율을 고려할 때, 건조고형물의 높이를 직접 측정하지 못하기 때문에, 플라넷 위 시편의 무게를 변수로 계측효율을 결정하게 된다.

본 연구는 정량평가 측면에서, 방사성폐기물 특성평가를 위한 전알파 분석결과의 한계를 설명하고자 한다. 이를 위해, 시편 건조고형물의 무게에 따른 전알파 계측효율 보정 곡선을 평가하고 그 오차를 살펴보았다. 전알파 계측효율을 결정할 때 사용하는 선원의 종류가 전알파 방사능 농도 해석에 미치는 결과를 실제 실험과 MCNP 모델링을 통해 알아보았다. 실제 토양 시료를 대상으로 U 농도와 전알파를 분석하여, 개별 알파핵종의 농도와 전알파 분석결과를 비교하였다.

2. 재료 및 방법

2.1 실험 재료 및 기기

계측효율을 평가하기 위해 사용한 알파 개봉선원은 ²⁴¹Am (Eckert&Ziegler)과 U 표준용액(Accustandard)이다. 0.1 M HNO₃으로 희석한 ²⁴¹Am 58 Bq·g⁻¹을 사용하였고, U 표준용액의 농도는 1000 µg·g⁻¹이다. ICP-MS (iCAP-RQ®, Thermo)로 동위원소비를 분석한 결과, ²³⁴U/²³⁸U은 0.00041, ²³⁵U/²³⁸U 0.00584 이다. U 동위원소의 비방사능(specific activity, Bq·g⁻¹)을 고려하면, U 표준용액의 방사능 동위원소비는 ²³⁴U/²³⁸U은 0.77, ²³⁵U/²³⁸U은 0.04 이다. 전알파 측정에 사용한 GPC는 XLB-S5® (Canberra)이고, 알파 Plateau와 베타 Plateau를 결정하기 위해, ²⁴¹Am (Eckert&Zigler), ⁹⁰Sr (Eckert&Zigler) 디스크 선원을 사용했다. ²¹⁰Po 디스크 선원(Eckert&Zigler)은 베타중첩을 평가를 위해 사용되었다. 플라넷 위 액체시료를 골고루 퍼지게 하기 위해, 계면활성제(Triton X100, Alfa Aesar)를 100배 희석해서 사용하였다. 계면활성제는 소수기(hydrophobic)와 친수기(hydrophilic)로 이뤄져 있다. 전알파 시편 준비 위해 증발 건조되는 액체는 표면장력 때문에 플라넷 위에서 균질하게 펼쳐지지 않는다. 소수기(hydrophobic)와 친수기(hydrophilic)로 구성된 계면활성제가 물과 반응하면, 물의 표면장력을 감소시켜 플라넷 위에 균질하게 펼쳐진다[9]. 전알파 시편 건조고형물의 무게에 따른 계측효율을 평가하기 위해 KCl (Sigma-Aldrich)

과 0.1 M Ammonium bi-oxalate (ABO) 용액을 사용하였다. 0.1 M ABO 용액은 TRU[®] resin (100~150 μm, Eichrom)에서 U를 추출하기 위해 사용되었다.

2.2 측정기기 set-up

본 연구에서 사용된 측정기기 XLB-S5는 전알파와 전베타를 분석할 수 있다. 총 3가지 측정 모드; 1) 알파 모드, 2) 알파 후 베타 모드, 3) 알파/베타 동시 모드에서 작동한다. 비례계수기 특성 상, 적절한 동작전압을 결정해야 한다. 알파 모드는 알파표준선원을 이용하여 동작전압을 결정하고, 베타 핵종이 측정되지 않기 때문에 베타핵종에 의한 알파중첩율(Alpha-spillover)을 고려할 필요가 없다. 알파 후 베타 모드는 알파동작전압에서 알파핵종 측정 후, 베타동작전압에서 알파/베타를 측정한다. 베타동작전압의 결과와 알파동작전압의 계수율의 차이로 베타핵종의 계수율이 결정된다. 하나의 시료를 알파동작전압과 베타동작전압에서 연이어 측정해야 하기 때문에 측정 시간이 2배 소요되지만, 알파중첩율과 베타중첩율(Beta-spillover)을 구할 필요가 없는 측정조건이다. 알파/베타 동시 모드는 베타 동작전압에서 운영되기 때문에, 알파중첩율과 베타중첩율을 고려해야 한다. 본 연구에서, 알파/베타 동시 모드를 사용하였다. 알파중첩율과 베타중첩율을 평가하기 위해, 순수알파핵종인 ²¹⁰Po과 순수베타핵종인 ⁹⁰Sr 디스크 선원을 사용하였다. 알파중첩율은 0.1%, 베타중첩율은 2.2%로 나타났다. 본 연구에서 측정된 시료의 베타 계수율은 100 cpm 이하여서, 베타핵종에서 기인한 알파 계수율은 무시할 수 있는 수준이었다.

2.3 전알파 계측효율 곡선

지름 50 mm, 높이 4 mm의 스테인리스 스틸(SUS) 플란켓을 사용했다. KCl을 사용하여 시편 건조고형물의 무게를 다양하게(0~100 mg) 구현하였다. 비슷한 무게의 시편을 2개씩 준비했다. 무게를 알고 있는 플란켓에 약 5 Bq의 ²⁴¹Am을 넣었다. 건조고형물이 플란켓 위에 골고루 퍼지도록 계면활성제(TritonX100, 1% w/w) 0.5~1.0 mL를 추가한다. 적외선램프 아래에 두고, 약 4시간 정도 완전히 건조한다. 완전히 건조되었다는 것은 건조 후 플란켓 무게가 더 이상 변동이 없는 것을 뜻한다. 건조고형물의 무게는 건조 전후 플란켓의

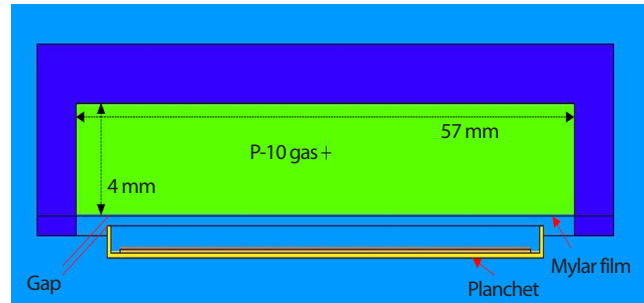


Fig. 1. Geometry of instrument (XLB-S5, GAP: 1.52 mm, Mylar film: 0.58 μm).

무게 차이로 계산한다. KCl을 이용한 전알파 계측효율 곡선 외에도, 토양 중 U 추출 때 사용하는 0.1 M ABO를 이용하여 건조고형물의 무게(10~20 mg)에 따른 계측효율을 평가하였다. 이 계측효율 곡선은 토양 중 U의 농도와 전알파 분석 결과 비교에 사용되었다.

2.4 토양 시료 중 U과 전알파 비교

토양 시료 중 U 농도와 전알파를 분석하였다. 약 5 g의 토양을 왕수(질산:염산=1:3, mol ratio) 20 mL로 환류(reflux)시킨 후(180°C, 4 시간), 여과(GF/F, Whatman)한다. 여과액을 건조시킨 후, 8 M HNO₃ 10 mL로 용해한다. 이 여과액 중 ²³⁸U을 ICP-MS로 측정하여 초기 ²³⁸U₀ 농도(mg)를 결정하였다. 이 용액을 8 M HNO₃으로 최적화한 TRU 컬럼(2 mL, bed volume)에 통과시킨다. 3 M HNO₃과 2 M HNO₃ 용액으로 방해물질을 TRU 컬럼에서 제거한다. TRU에 흡착된 U은 0.1 M ABO 10 mL로 추출된다. U 분리 회수율은 U 추출용액 중 ²³⁸U을 측정(²³⁸U_f)하여 ²³⁸U_f/²³⁸U₀의 계산식에 의해 결정되었다. U 추출 용액 10 mL 중 1 mL를 전알파 분석에 사용하고, 남은 용액은 ICP-MS로 ²³⁸U, ²³⁵U, ²³²U을 분석하기 위해 사용하였다. 전알파 분석에 사용한 1 mL의 건조고형물 무게는 14~16 mg이었다. 2.3에 소개한 방법과 같이 계면활성제 1 mL를 추가한 후 완전히 건조하였다. 이 조건에서 전알파 계측효율을 결정하기 위해, U 추출용액인 0.1 M ABO 용액을 이용해 건조고형물 무게가 12~18 mg 되도록 구현하였다. ²⁴¹Am과 U 표준용액을 각각 이용해서, 건조고형물 12~18 mg에 대한 전알파 계측효율 보정곡선을 평가하였다.

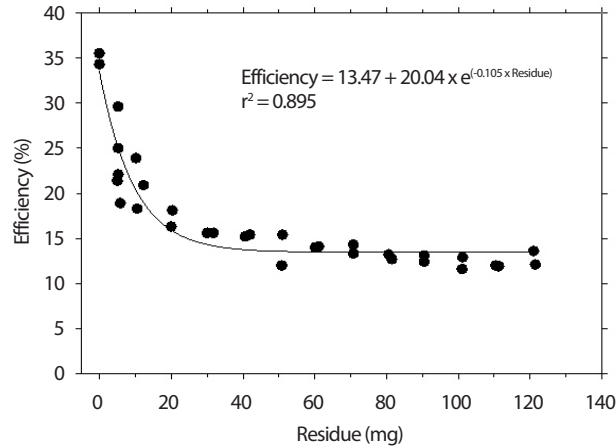


Fig. 2. Self-absorption curve for gross alpha (source: ²⁴¹Am, Residue: deposit on the planchet).

2.5 MCNP 시뮬레이션

이 연구에서 사용한 측정기에 대해 전알파 효율을 몬테카를로 코드인 MCNPX를 사용하여 시뮬레이션 하였다. Fig. 1은 MCNP 모델링 위한 측정기기 구조, 시편 형태를 나타낸 것이다. 건조고형물은 플란켓 12.6 cm²(지름 40 mm)에 균일하게 분포하고, 밀도는 1.5 g·cm⁻³으로 가정하였다. 이 때 ²⁴¹Am과 0.1 M ABO 용액으로 준비한 시편의 건조고형물의 무게에 따라, 건조고형물의 두께가 달라지도록 시뮬레이션 하였다. 측정기기 제조사에서 제공한 기기 제원과, 건조고형물의 분포를 바탕으로 F8 tally를 이용하여 계측효율을 계산하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 전알파 계측효율 보정곡선

KCl과 ²⁴¹Am을 사용한 건조고형물의 무게(Residue)와 전알파 계측효율(ϵ)의 상관관계를 Fig. 2에 나타냈다. 전알파 계측효율은 아래 식과 같이 계산한다. 전알파는 기본적으로 대상핵종을 분리하는 절차가 없기 때문에, 회수율을 고려하지 않는다. 플란켓 면적이 일정하기 때문에, 건조고형물의 무게가 커질수록 두께가 커진다. 건조고형물이 두꺼워질수록, 알파핵종의 자가흡수가 커지기 때문에 계측효율은

낮아지고 건조고형물 무게에 따라 지수적으로 감소한다. 건조고형물의 무게가 90 mg, 즉 7 mg·cm⁻² 이상 일 때, 계측효율은 더 이상 감소하지 않고 약 13.5%로 일정하게 나타났다.

$$\epsilon = \frac{C_{smp} - C_{blk}}{A_{\alpha}} \quad (1)$$

ϵ : 계측효율

C_{smp} : 시료 계수율(cps)

C_{blk} : 바탕 계수율(cps)

A_{α} : 표준선원 방사능(Bq)

건조고형물 무게가 50 mg 일 때, 계측효율은 15.6%, 12.5%로 각각 나타났다. 15.6%와 12.5%의 계측효율 차이는 단순히 3%라고 볼 수 없다. 각 계측효율을 전알파 농도 계산식에 적용하면, 전알파 농도는 25% 차이 난다. 계측효율 12.5%를 기준으로, 계측효율 15.6%는 25% 증가한 값이기 때문이다.

$$GA = \frac{C_{smp} - C_{blk}}{\epsilon} \quad (2)$$

GA : 전알파(Gross alpha)

일반적으로 전알파 계측효율 보정곡선은 알파핵종의 자가흡수율이 반영된 것이고, 플란켓 위 건조고형물 두께의 영향을 받는다. 플란켓 위 동일한 면적에 건조고형물이 골고루



Fig. 3. Schematic of the sample prepared for gross alpha analysis

(a) homogeneously distributed sample, (b) heterogeneously distributed sample; Both of red color box indicate the residue having the same mass).

Table 2. Comparison of radioactivity concentration of total U and gross alpha in soil

Sample code	$^{238}\text{U}_0$ ($\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}\text{-dry soil}$)	Total U ($\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}\text{-dry soil}$)	Gross alpha ($\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}\text{-dry soil}$)	Recovery (%)	Total U / Gross alpha
soil-#1-1	0.68 ± 0.10	17.2 ± 0.9	11.4 ± 1.2	99	1.5
soil-#1-2	0.72 ± 0.12	18.3 ± 0.7	11.7 ± 1.3	93	1.6
soil-#1-3	0.85 ± 0.13	21.6 ± 1.1	11.3 ± 1.2	103	1.9
soil-#2-1	1.23 ± 0.15	31.3 ± 1.3	19.6 ± 2.1	97	1.6
soil-#2-1	1.46 ± 0.21	37.2 ± 1.9	23.2 ± 2.4	92	1.6
soil-#2-3	1.26 ± 0.21	32 ± 1.3	23.0 ± 2.4	98	1.4
soil-#3-1	0.72 ± 0.10	18.3 ± 0.5	12.5 ± 1.3	97	1.5
soil-#3-2	0.80 ± 0.12	20.3 ± 0.8	13.1 ± 1.4	100	1.5
soil-#3-3	0.92 ± 0.13	23.4 ± 0.9	16.2 ± 1.7	90	1.4
				Average	1.5
					Assigned U ($\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$)
Method- standard ¹⁾		7.1 ± 0.3	4.9 ± 0.6	92	7.4 ± 0.2
					Relative deviation (%)
					-4.3

¹⁾: 0.1 g of $1000 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ U

퍼진다는 전제 하에, 시편의 무게는 건조고형물의 두께를 반영한다. 분석자가 플란켓 위 건조고형물의 두께를 측정할 수 없기 때문에, 시편의 무게를 사용하는 것이다. 즉, 건조고형물의 무게를 기준으로 알파핵종의 자가흡수가 고려된 계측 효율을 결정할 수 있다. 동일한 무게임에도 20%의 계측 효율 차이가 나타나는 것은 플란켓 위 건조고형물의 물리적 형태가 서로 다르기 때문인 것으로 보인다. 전알파 계측 효율 보정곡선은 시편이 Fig. 3(a)와 같이, 플란켓 위에 고르게 퍼져 있다는 것을 가정한다. 그러나 Fig. 3(b)처럼, Fig. 3(a)와 동일한 무게의 건조고형물이 불균질하게 분포할 수 있다. 즉, 어떤 부분은 건조고형물의 두께가 두꺼워 알파 계측 효율이 낮아지고, 두께가 얇은 부분에서는 알파 계측 효율이 높아질 수 있다. 건조고형물 두께에 따라 계측 효율은 선형적이지 아닌

지수적으로 감소하기 때문에, 동일한 무게이지만 물리적 형태가 다른 시편의 계측 효율 값은 서로 다르게 나타날 수 있다. 전알파 시편의 건조고형물이 플란켓 위 동일한 면적에 골고루 퍼지게 하는 것은 쉬운 일은 아니며, 이를 확인할 방법도 마땅하지 않다.

3.2 알파핵종별 전알파 계측 효율

토양 시료 중 U를 추출한 뒤, U 농도와 전알파 분석 결과를 Table 2에 나타냈다. U의 방사능 농도는 ^{238}U , ^{234}U , ^{235}U 농도의 합으로 나타냈다. TRU에서 추출한 U 용액 중 ^{238}U 과 ^{235}U 을 ICP-MS로 분석하였고, U 동위원소 질량구성비는 $^{238}\text{U}:^{235}\text{U}=1:0.00727$ 이다. ^{238}U 의 방사능은 ICP-MS로 분석한

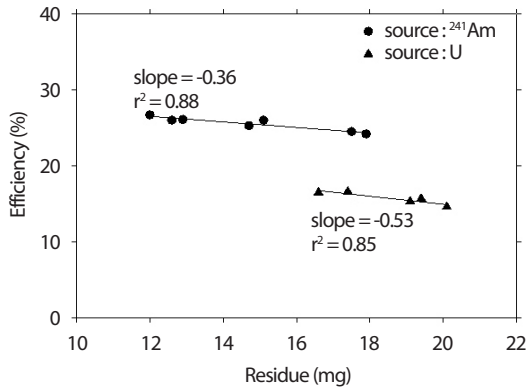


Fig. 4. Efficiency gross alpha with a source of ²⁴¹Am and U.

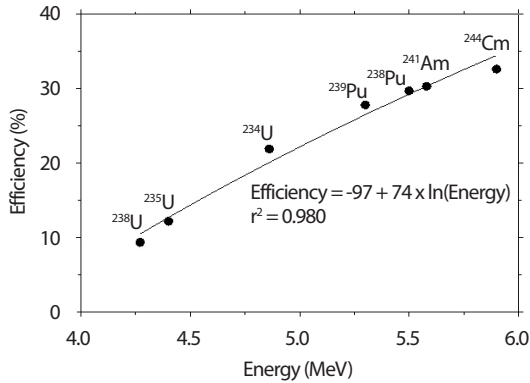


Fig. 5. Counting efficiency of gross alpha with alpha energy using MCNP simulation (mass thickness: 1.35 mg·cm⁻²).

²³⁸U 농도와 ²³⁸U의 비방사능(12,445 Bq·mg⁻¹)을 고려하여 계산하였고, ²³⁸U과 ²³⁴U의 방사능 비율은 1:1로 보았다. ²³⁵U의 방사능은 ²³⁸U/²³⁵U의 질량비와 ²³⁵U의 비방사능(80 Bq·mg⁻¹)을 고려하여 계산하였다. 토양 시료에서 추출한 U 회수율은 92~103%로 나타났다. 기본적으로 전알파는 특정 핵종을 분석하는 인자가 아니기 때문에 회수율을 고려하지 않는다. 다만 이 실험에서, 토양 중 U 추출용액을 대상으로 전알파를 분석하였기 때문에, 전알파를 계산할 때 U의 회수율을 고려하였다. ²⁴¹Am을 사용한 전알파 계측효율 보정곡선과 준비된 건조고형물의 무게를 고려하여 계측효율을 결정하였다. ICP-MS로 측정된 토양 중 U은 17.2~37.2 Bq·g⁻¹으로 분포한 반면, 전알파는 11.4~23.2 Bq·g⁻¹으로 나타났다. 전알파 값이 U 농도에 비해 상대적으로 30~50% 낮게 나타났다. U

1000 μ·g⁻¹ 용액 0.1 g이 포함된 Method-standard의 분석 결과를 살펴보면, U을 직접 측정한 결과는 7.1±0.3 Bq·g⁻¹으로, 실제 U 농도와와의 상대편차는 -4.3%이다. 그러나 전알파 농도(4.9±0.6 Bq·g⁻¹)는 실제 U 농도인 7.4±0.2 Bq·g⁻¹보다 30% 낮게 분석되었다.

동일한 시료를 대상으로 직접 측정한 U 방사능 농도와 전알파 농도가 30~50% 차이 나는 이유는 전알파 계산 때 사용한 계측효율 때문인 것으로 보인다. 이를 확인하기 위해, TRU에서 U 추출할 때 사용한 0.1 M ABO 용액을 이용하여 U과 ²⁴¹Am에 대한 전알파 계측효율을 평가하였다(Fig. 4). 전알파 계측효율 보정곡선이 선형적으로 보이는 것은 건조고형물의 무게가 10~20 mg으로 다소 좁은 범위이기 때문이다. KCl을 사용한 전알파 계측효율 곡선(Fig. 2)과 0.1 M ABO를 사용한 계측효율 곡선(Fig. 4)이 다소 차이 나는 것은 건조고형물의 상이한 밀도 차이에서 기인하였다. 시편의 무게가 17 mg일 때, U과 ²⁴¹Am에 대한 전알파 계측효율은 각각 16%, 25%이다. ²⁴¹Am 표준선원을 사용했을 때의 전알파 계측효율이 U을 표준선원으로 사용한 전알파 계측효율보다 50% 높다. 앞서 Table 2에서 전알파 농도가 U 농도에 비해 과소평가된 이유는 ²⁴¹Am을 사용한 표준선원 계측효율 보정곡선에서 계산된 계측효율을 사용했기 때문이다. 전알파 농도 계산에 적용된 계측효율이 어떤 알파핵종을 이용하여 결정되었는지에 따라, 동일한 시료의 전알파 분석 결과가 1.5배 차이 날 수 있다.

3.3 알파핵종별 전알파 계측효율

Fig. 4의 ²⁴¹Am을 사용한 전알파 계측효율 값을 기준으로, 알파핵종별 전알파 계측효율을 Monte Carlo 전산모사하였다. 건조고형물 무게 17 mg (밀도 1.5 g·cm⁻³)이고, 알파핵종이 균일하게(면적 12.6 cm²) 분포한다고 가정하였다. 알파에너지가 클수록 전알파 계측효율은 증가한다(Fig. 5). 알파입자의 비정거리는 에너지에 비례하기 때문이다. 알파핵종별 전알파 계측효율은 10~32% 범위로, 최대 3배까지 차이난다. 시료가 여러 알파핵종을 포함하거나, 시료에 포함된 알파핵종이 전알파 계측효율 보정곡선에 사용한 알파선원과 다를 경우, 전알파 분석결과는 실제값보다 과소 또는 과대평가된다. 예를 들어, ²⁴¹Am으로 전알파 계측효율 보정곡선을 결정했을 때, 미지시료에 ²⁴¹Am보다 에너지가 낮은 알파입자가 포함되어 있는 시료의 전알파는 과소평가된다.

3.4 방사성폐기물 특성평가를 위한 전알파 분석 한계

전알파는 알파핵종 분석법 중 시료 전처리가 가장 간단하기 때문에, 널리 사용되고 있다. 특히 물이나 토양 시료의 방사능을 분석하기 위한 첫번째 분석방법으로 선호되고 있다. 그러나 간단한 분석법이라는 장점 외에, 그 분석결과를 신뢰하기 어려울 때도 있다. 2012년 유럽의 71개 실험실이 음용수 중 전알파 교차분석에 참여하였다[10]. 교차분석에 참여한 실험실은 알파핵종 계측효율 보정곡선을 위해 ^{241}Am , U_{nat} , ^{239}Pu , ^{226}Ra , ^{210}Po , ^{236}U 중 하나를 표준선원으로 사용하였다. 시편 준비 방법은 증발건조, 건조 후 공침 또는 증발 후 섭광용액과 혼합 등이 적용되었고, 측정 장비도 LSC, GPC 그리고 Si detector를 사용하는 등 각각 달랐다. 동일한 시료 ($0.95 \pm 0.08 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$)임에도 불구하고, 실험실 사이의 전알파 농도 차이는 최대 100배까지 나타났다. V. Jobbagy 등은 그 원인이 1) 시편 준비 과정, 2) 계측효율 결정에 사용한 표준선원의 차이로 봤다[10]. 전알파 자가흡수를 고려한 건조고형물 무게별 계측효율 보정곡선은 사용된 건조고형물의 종류와 알파핵종에 따라 다르다. 건조고형물의 밀도는 알파핵종의 비정거리에 영향을 미친다. 동일 시료에 대한 전알파 분석결과를 비교하기 위해서는 시편 준비, 계측효율에 사용된 알파핵종 등의 표준화된 분석절차가 선행적으로 공유되는 것이 필요하다.

전알파는 분석결과 불확실성이 매우 크기 때문에 정량분석 인자로 사용하는 것은 적절하지 않다[4,11]. 알파핵종별 계측효율이 다르기 때문에, 전알파 농도는 개별알파핵종의 합과 다르다. 시편의 기하학적 형태를 매번 동일하게 구현할 수 없기 때문에, 알파핵종의 자가흡수를 정량적으로 평가하기가 쉽지 않다. 그러나 동일한 장소에서 농도 변화의 추이를 살펴보는 분석인자로서 전알파를 사용하는 것은 적절하다[4,11]. 방사선관리구역 내에서, 방사능 오염 여부를 살피는 방법으로 스메어필터를 이용한 전알파 분석법이 있다. 분석 결과 자체에 의미를 두기 보다는, 이전 결과와의 차이를 평가함으로써, 오염 여부를 판단하기 위한 근거로 전알파 분석법은 사용될 수 있다. 따라서, 전알파 분석 결과가 일정 기준치 이상의 값이 측정되면 정밀분석을 해야 한다는 스크리닝 개념으로 사용하는 것이 적절하다. WHO (World Health Organization)는

음용수 중 전알파 농도가 $0.5 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$ 를 초과하면, 개별알파핵종을 정량분석한다[12]. 개별알파핵종 규명을 위한 정량분석이 시작되면, 전알파 농도는 더 이상 의미를 갖지 않는다. 전알파 농도가 기준치 이하이면, 더 이상 추가조치를 취하지 않는다.

4. 결론

원자력시설 운영 또는 해체 중 발생한 방사성폐기물은 방사성특성평가 후 절차에 따라 처분된다. 원자력안전법에 따라 14개 핵종의 농도를 규명해야 하고, 전알파 분석은 그 중 하나이다. 전알파 분석은 알파핵종 분석 방법 중 가장 간편한 전처리 절차를 필요로 하고, 신속한 분석법이긴 하나, 정량분석 방법으로는 적절하지 않다. 전알파 분석용 시편 준비 과정에서, 우리는 20%의 계측효율 오차를 확인하였다. 경우에 따라, 그 오차는 커질 수 있다. 시편 준비 과정이 간단한 반면, 기하학적으로 동일한 형태의 시편을 제조하는 것이 수월하지 않고, 자가흡수라는 알파핵종의 특성 때문이다. 실험과 MCNP 시뮬레이션을 이용하여, 알파핵종의 종류에 따라 전알파 계측효율이 3배까지 차이 나는 것을 확인하였다. 따라서 특정 알파핵종을 사용하여 계측효율을 결정하는 전알파분석법은 혼합된 알파핵종의 방사능 총합을 정량평가하기 위한 방법으로서 적절하지 않다.

이와 같이, 방사성폐기물 처분을 위한 전알파 분석 결과는 정성분석 개념으로 사용되는 것이 바람직하다. 알파핵종의 반감기가 길기 때문에, 중저준위 방사성폐기물 처분장 관리 측면에서 개별 알파핵종의 농도를 요구할 수 있다. 아직 국내에 관련 규정이나 절차는 없지만, 개별 알파핵종 분석을 결정할 전알파 기준치가 마련될 필요가 있다. 이 때, 시편 준비 및 계측효율 평가 방법을 포함한 전알파 분석법이 먼저 표준화 되는 것이 중요하다.

Acknowledgement

본 연구는 한국연구재단의 지원을 받아 “사고단계별 복합 방사선환경 탐지 핵심기술 개발” 과제의 일환으로 수행되었습니다(원자력연구개발사업, No. 2017M2A8A4015256).

REFERENCES

- [1] Korea Hydro and Nuclear Power Co., Inventory of Operational Radioactive Waste in the Interim Storage of Khnp. Accessed Apr. 6 2020. Available from: https://npp.khnp.co.kr/board/view.khnp?boardId=BBS_0000011&menuCd=DOM_000000103003001000&startPage=1&dataSid=3811.
- [2] Nuclear Safety and Security Commission, General Acceptance Criteria for Low and Intermediate Level Radioactive Waste, NSSC Notice No. 2017-60 (2017).
- [3] Nuclear Safety and Security Commission, Regulation on the Criteria for the Classification and Clearance of Radioactive Wastes, NSSC Notice No. 2017-65 (2017).
- [4] International Standard Organization, “Water Quality-Measurement of Gross Alpha and Gross Beta Activity in Non-Saline Water-Thin Source Deposit Method”, ISO 10704 (2009).
- [5] American Society for Testing and Materials International, “Standard Test Method for Alpha and Beta Activity in Water by Liquid Scintillation Counting”, ASTM D7283-13 (2013).
- [6] Y. Jung, H. Kim, K. H. Chung, and M. J. Kang. “Study of the Determination of ^{226}Ra in Soil Using Liquid Scintillation Counter”, *Anal. Sci. Technol.*, 29(2), 65-72 (2016).
- [7] The Lund/Lbnl Nuclear Data Serach. Accessed Mar. 10, 2017. Available at: <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>.
- [8] International Standard Organization, “Measurement of Radioactivity in the Environment-Soil-Part 6: Measurement of Gross Alpha and Gross Beta Activities”, ISO 18589-6 (2009).
- [9] R.J. Robson and E.A. Dennis. “The Size, Shape, and Hydration of Nonionic Surfactant Micelles. Triton X-100”, *J. Phys. Chem.*, 81(11), 1075-1078 (1977).
- [10] V. Jobbágy, J. Merešová, E. Dupuis, P. Kwakman, T. Altitzoglou, A. Rožkov, M. Hult, H. Emteborg, and U. Wätjen. “Results of a European Interlaboratory Comparison on Gross Alpha/Beta Activity Determination in Drinking Water”, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 306, 325-331 (2015).
- [11] International Atomic Energy Agency, “Determination and Interpretation of Characteristic Limits for Radioactivity Measurements”, IAEA/AQ/48 (2017).
- [12] World Health Organization, “Guidelines for Drinking-Water Quality” (2011).