

## 모듈식 자동 방사성핵종 분리기와 ICP-MS를 이용한 처분장 지하수의 Tc-99 분석

정근호, 권용대, 최상도, 이완로, 김희령, 조영현, 이창우, 최근식, 강문자  
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045  
[chungkh@kaeri.re.kr](mailto:chungkh@kaeri.re.kr)

### 1. 서론

테크네튬-99 (Tc-99)는 순수 베타 방출체로서  $E_{max} = 294 \text{ keV}$ 이고 반감기는 213,000년이다. Tc-99는 우라늄의 핵분열 생성물이며 Mo-99의 베타선 붕괴 반응에 의해 생성된다. Tc-99는 천연우라늄의 자발적 붕괴에 의해서 일부 생성되나 대부분의 Tc-99는 원자로의 운영이나 원자력 재처리 설비로부터 생성되어 환경으로 누출될 수 있는데 환경에 누출될 경우 장기간 인체 피폭을 유발할 수 있는 주요 선원이다.

Tc-99는 월성 중·저준위 방사성폐기물처분시설 부지주변의 지하수 이동을 통한 방사성핵종 누출 여부를 평가하기 위한 핵종 중 하나이다. Tc-99의 방사능은 질량분석기(ICP-MS)나 액체섬광계수기(LSC)를 이용하여 분석한다. ICP-MS나 LSC를 이용하여 Tc-99를 분석하기 위해서는 반드시 분석에 방해가 되는 핵종을 제거하여야 한다. 본 연구실에서는 방해 핵종 제거를 위해 시간과 인적실수를 효율적으로 줄일 수 있는 “모듈식 자동 방사성핵종 Tc-99 분리기(MARS Tc-99)”를 개발하였다. MARS Tc-99는 중력흐름(gravimetric flow)에 의한 칼럼분리 방식보다 재현적이며 선택적으로 지하수 시료로부터 Tc-99를 분리할 수 있었다.

본 연구에서는 MARS Tc-99를 사용하여 중·저준위 방사성폐기물 처분장에서 채취한 지하수 시료로부터 Tc-99를 선택적으로 신속하게 자동분리하기 위한 방법을 개발하였으며, ICP-MS를 이용하여 Tc-99의 방사능을 측정하기 위한 조건을 설정하였다.

### 2. 실험방법

월성 중·저준위 방사성폐기물처분시설 부지주변의 시추공에서 채취된 물 시료를 glass fiber 필터를 통해 여과한다. 여과된 지하수 시료와 초순수 바탕용액(Blank solution) 250 ml에 정제된 Tc-99m 추적자 ~50 kBq을 첨가한다. 시료에 첨가된 양과 동일한 양의 Tc-99m 추적자를 LSC용 20 ml 유리 바이알에 담아 2% HNO<sub>3</sub> 용액으로 10 ml 까지 보충하고, 회수율 측정용 기준시료 및 ICP-MS 백그라운드로 사용하기 위해 보관한다. Tc-99m 추적자는 의료용 Mo-99/Tc-99m generator로부터 용출시킨 용액을 MARS Tc-99로 정제한 후 사용했다.

TEVA 수지는 0.1 M HNO<sub>3</sub> 용액에 하룻밤 방치한 후, 워시 용액을 스포이드로 제거하여 80% 슬러리 상태로 만든다. MARS Tc-99의 유리 칼럼 (내경 10 mm, 길이 100 mm)에 80% 슬러리 용액 5 ml을 채운다. MARS Tc-99를 사용하여 지하수 중의 Tc-99를 선택적으로 자동분리하기 위한 운전 조건은 표 1과 같다. 지하수 시료 중의 Tc-99 분석 절차도는 그림 1에 나타났다.

표 1. MARS Tc-99를 사용하여 지하수 중의 Tc-99를 선택적으로 자동분리하기 위한 운전 조건

	Reagents	Volume (ml)	Flow rate (ml/min)	Duration (min)
conditioning	0.1 M HNO <sub>3</sub>	20	5	4
loading	Groundwater	250	5	50
rinsing	0.1 M HNO <sub>3</sub>	30	3	10
stripping	8 M HNO <sub>3</sub>	20	1.5	13.3
cleaning	D.I. water	20	5	4
Total	-	390	-	81.3

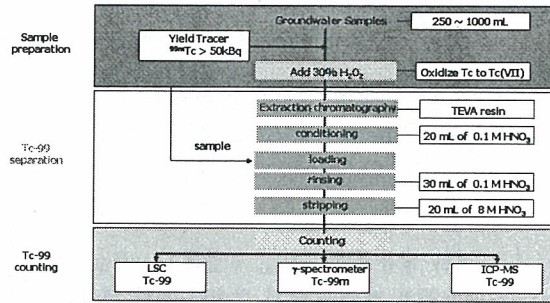


그림 1. 지하수 시료의 Tc-99 분석 절차도

Tc-99 농도 분석은 ICP-MS (Varian, 810-MS)를 사용하였다. 2% HNO<sub>3</sub> 용액을 기질용액(matrix)으로 하여 시료를 분석하였다. 6개의 표준용액을 사용하여 검량곡선을 작성하였다.

### 3. 결과

표 1로부터 MARS Tc-99 장치를 이용하여 지하수 250 ml로부터 Tc-99를 선택적으로 분리하는 데 소요되는 시간은 81분으로, 중력흐름(< 1 ml/min) 방식보다 약 5배 정도 절약된다는 것을 확인할 수 있었다. MARS Tc-99 장치의 Tc-99 분리 효율은 시료에 첨가한 Tc-99m 방사능 농도를 HPGe 감마핵종 분석기로 측정하여 계산하였다. 표 2에 나타낸 바와 같이 전체 분석과정에 대한 평균 화학수율은 96% 이상이었다. 품질관리용 표준시료에 대한 분석결과는 기준값과 3.8% 이내에서 잘 일치하였다. 월성 중·저준위 방사성폐기물처분시설 부지주변에서 채취된 5개 지하수 시료의 Tc-99 농도는 MDA (Minimum Detectable Activity) 이하를 나타냈다.

본 분석방법에서  $MDA = LOD \times (V_n/V_s) \times (100/R)$  이며, LOD (limit of detection of ICP-MS)는 ICP-MS의 검출 한계,  $V_n$ 는 2% HNO<sub>3</sub> 상태의 ICP-MS 분석용 시료 부피,  $V_s$ 는 분석에 사용된 지하수 부피, R은 화학수율(%)을 나타낸다. 본 연구에 사용된 조건은  $V_s = 250 \text{ ml}$ ,  $V_n = 10 \text{ ml}$ ,  $R = 96.3\%$ 이다.  $LOD = 3 \times \sigma_B / ((S-B)/C)$ 이며, B와  $\sigma_B$ 는 바탕시료 (2% HNO<sub>3</sub>)의 계수율과 표준편차이고 S와 C는 분석시료의 계수율(counts/s)과 농도를 나타낸다. (S-B)/C는 ICP-MS 검량곡선의 기울기에 해당하며, 계측기의 효율을 나타낸다. 본 분석방법에서  $\sigma_B$ 는 11 counts/s이고, (S-B)/C = 284 (counts/s)/(mBq/ml)이므로  $LOD = 0.12 \text{ mBq/ml}$ 로 계산된다. 그러므로 본 분석 방법의 MDA는 5.0 mBq/l이다. 최종 ICP-MS 분석용 시료 부피인  $V_n$ 를 5 ml로 감소시키면 MDA를 2배 낮출 수 있으며, 또한 분석에 사용된 지하수 부피인  $V_s$ 를 1000 ml로 증가시키면 추가로 MDA를 4배 낮출 수 있다. MARS Tc-99와 ICP-MS를 이용하여 분석한 지하수 중의 Tc-99 분석방법은 중·저준위 방사성폐기물 처분장의 환경감시에 효과적으로 적용될 수 있음을 확인하였다.

표 2. MARS Tc-99와 ICP-MS를 이용하여 분석한 지하수 중의 Tc-99 농도

samples	Chemical yield (%)	Activity (mBq/l)
Method blank	95.92	< MDA
Method standard (spiked: 1658.1 mBq/l)	94.15	1594.68±11.75
PW-1	97.02	< MDA
KB-1	98.01	< MDA
KB-3	98.10	< MDA
DB1-1	95.43	< MDA
DB1-6	95.68	< MDA