

고온연소로와 액체섬광계수기를 이용한 해조류중의 요오드-129 방사능 분석

강문자, 김희령, 조영현, 정근호, 이완로, 이창우, 최근식
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
munkang@kaeri.re.kr

1. 서론

요오드-129는 핵분열물질로 원자력발전이나 핵연료 재처리 과정에서 요오드-125, 요오드-131과 함께 발생하는 주요 핵종이다. 원자력발전소에서 발생하는 중·저준위 방사성폐기물을 처분할 때 요오드는 테크네튬과 함께 유동성이 매우 큰 핵종으로 알려져 처분장 부지 주변 방사선환경 모니터링에 포함되어야 하는 핵종이다. 처분장 주변 지하수와 해조류가 요오드-129 방사능 분석 대상이 되고 있다. 요오드-129는 반감기가 1.57×10^7 년으로 매우 길며 39.6 keV 이하의 낮은 감마선이나 X-선 영역의 에너지와 154keV의 베타선 에너지를 가지고 있다. 그러므로 다른 핵종들과 함께 존재하거나 분석시 LOD를 낮추기 위해서는 요오드-129를 화학적 방법으로 순수 분리해야 한다. 본 연구에서는 해조류 시료중의 요오드-129를 고온에서 연소 및 산화시켜 화학적으로 분리하고 분리된 요오드-129를 액체섬광계수기를 측정하는 방법을 설명하고자 한다.

2. 본론

2.1 고온연소 조건

해조류의 연소조건을 설정하기 위해 고온연소로의 온도를 상온에서 800 °C까지 3 °C/min 또는 5 °C/min 조건으로 상승시키면서 100 °C 간격으로 포집기를 교체하고 온도 간격별로 포집 용액에 포집되는 요오드-129 방사능 농도를 측정하였다. 연소 및 포집 조건에 대한 실험은 국내에서 채취한 미역을 건조하여 분쇄한 시료를 사용하였고 알고 있는 농도의 요오드-129 추적자 (약 100 Bq/g)를 건조한 미역 시료에 혼합하여 사용하였다. 이들 결과로부터 상온에서 700 °C까지는 포집된 방사능이 시료의 초기 방사능의 4%로 거의 포집되지 않았음을 알 수 있었고 700 ~ 800 °C까지 30%가, 800 °C에서 5시간 유지하는 나머지 66%가 포집되었다. 해조류중 요오드-129 방사능 분석에 사용된 고온연소로와 포집기의 도식은 Fig. 1. 과 같다.

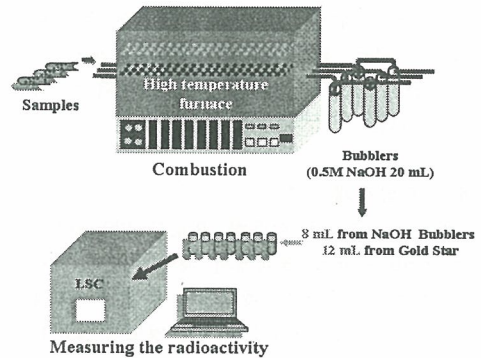


Fig. 1. 요오드-129 방사능 분석을 위한 고온연소로와 포집 장치

2.2 포집 용액 조건

고온에서 연소 및 산화된 해조류의 요오드는 해 요오드분자(I₂) 형태로 존재할 가능성이 높으며 이를 포집하기 위해 포집용액으로 NaOH를 사용하였다. 포집용액은 0.5 M NaOH와 1 M NaOH, 2 M NaOH 용액을 시험하였는데, 0.5 M NaOH와 1 M NaOH용액에서는 시료중의 요오드-129의 95%가 포집되었고 2 M NaOH 용액을 사용한 경우는 58%가 포집되었다. 그리고 포집된 요오드분자를 요오드 음이온으로 고정시키기 위해 포집 용액에는 환원제를 첨가하였는데 이때 환원제는 sodium sulfite를 사용하였고 환원제는 포집용액 10 ml당 0.15 ~ 0.2 g이 적절하였다. 해조류중에는 안정 요오드 원소가 다량 함유되어 있어 포집 용액의 요오드 원소의 포집율이 매우 중요하다. 이런 이유로 요오드 포집 용액의 부피를 변화시키면서 요오드-129의 포집율을 살펴본데 포집 용액을 20 ml 사용한 경우는 포집율 94%이며 40 ml 사용한 경우 96%로 큰 차이가 없음을 알 수 있었다. 그리고 포집기를 연달아 두 개 설치한 경우도 첫 번째 포집기에서 94%가 포집되었고 두 번째 포집기에서 1% 이하가 포집되었다.

2.3 방해 핵종의 분리

해조류중의 요오드 포집을 위해 사용된 NaOH 용액은 시료의 고온연소 후 생성되는 요오드 분자 뿐만 아니라 이산화탄소도 함께 포집할 수 있다. 해조류의 경우 H-3과 C-14 방사능을 분석해보면 H-3은 MDA 이하의 값이 얻어지지만 C-14의 경우 미량 존재한다. 포집용액에 포함된 CO₂를 분리하기 위해 최종적으로 얻어진 포집용액에 BaCl₂ 용액을 첨가하여 탄산이온을 제거하고 윗물에 남은 요오드 음이온만으로 계측용 시료를 제조하였다.

2.4 액체섬광계수법

액체섬광계수기를 이용한 요오드-129 방사능 계측은 high energy 영역에서 채널 70 ~ 500 범위에서 하였다. 액체섬광계수기의 효율은 정확한 농도의 요오드-129 추적자 14 Bq 정도에 NaOH용액의 부피를 3 ~ 10 ml 변화시켜 섬광정도를 달리하여 교정용 시료 8개를 제조하였다. 교정용 시료를 같은 조건에서 계측하여 알고 있는 요오드-129 추적자의 농도로부터 효율을 계산한다. 교정용 시료로부터 얻은 섬광정도 (SQPE)와 효율에 대한 결과를 Fig. 2.에 나타내었다. 이때 얻어진 섬광정도와 효율과의 상관관계식은 $y = -0.0008351x^2 + 1.4850x - 576.89$ ($R^2 = 0.9931$) 이었다.

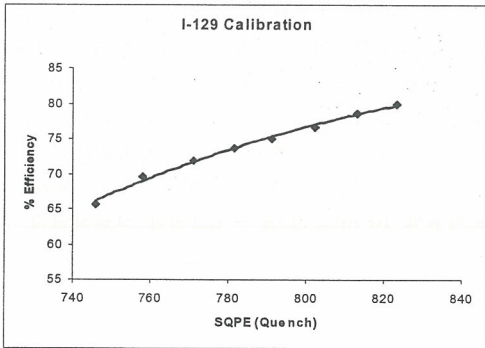


Fig. 2. 요오드-129에 대한 섬광정도에 따른 계측 효율

2.5 방사능 농도와 MDA의 계산

해조류 시료를 고온연소로를 이용하여 연소 및 산화시키고 포집용액에 포집한 후 액체섬광계수기를 이용하여 계측한 후 다음의 식으로 방사능 농도를 계산한다.

포집용기에 포집된 요오드-129의 방사능 농도

A_B (Bq/g)은

$$A_B = \frac{C-B}{60} \times \frac{100}{E} \times \frac{1}{m} \dots\dots\dots (1)$$

여기서 C는 시료의 count rate, B는 바탕시료의 count rate, E는 액체섬광계수기의 계측효율, m은 계측에 사용된 포집용액의 무게이다.

시료중 요오드-129 방사능 농도 A_s (Bq/g)은

$$A_s = A_B \times \left(\frac{m_f - m_t}{m_s} \right) \times \frac{100}{R} \dots\dots\dots (2)$$

여기서 m_t 는 연소후 포집용액의 최종무게, m_f 는 연소전 포집용액의 무게, m_s 는 시료무게, R은 회수율이다.

요오드-129 방사능 계측시 MDA(Minimum Detectable Activity) (Bq/g)은 다음 식으로 계산한다.

$$MDA = \frac{2.71 + 4.65 \times \sqrt{B + T_B}}{T_B \times \frac{E}{100} \times \frac{R}{100} \times \left(\frac{m_s}{m_f - m_t} \right) \times m} \dots\dots (3)$$

2.6 미역 시료중의 요오드-129 방사능 분석

국내에서 채취한 미역 3종류를 건조한 후 분쇄하여 시료로 준비한다. 건조한 무게로 7.5 g 고온연소로로 연소시켜 미역에 포함된 요오드-129를 측정하였다. 같은 시료에 대해 요오드-129 추적자를 spiking하여 분석한 결과 회수율은 91 ~ 97 % 사이 값이었고 연소후 LOI 는 시료 종류에 따라 19 ~ 36 % 사이의 값이었다. 국내산 미역중의 요오드-129 측정값은 모두 MDA이하의 값이었고 이때 MDA는 0.6 Bq/kg-fresh로 계산되었다.

3. 결론

해조류중의 요오드-129는 분석이 어려운 핵종이었으나 고온연소로를 이용하여 연소 및 산화시키고 NaOH 용액으로 포집하여 액체섬광계수기를 이용하여 분석하는 방법을 확립하였다. 이 방법은 원자력발전소나 방사성폐기물 부지 주변에서 채취되는 해조류 시료의 분석에 적용가능하다.

4. 참고문헌

[1] X, Hou 외, Analytica Chimica Acta, 632 (2009) 181-196
 [2] J.A. Suarez 외, Nucl. Instr. Meth. A 369 (1996) 407-410