

방사평형을 통한 ^{226}Ra 의 감마분광분석을 위한 용기건전성 평가

김창중^{1*}, 임충섭², 지영용¹, 이완로¹, 정근호¹, 강문자¹, 최근식¹

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²과학기술연합대학원대학교, 대전광역시 유성구 가정로 217

*cjkim@kaeri.re.kr

1. 서론

감마분광분석으로 ^{226}Ra 을 분석하기 위한 방법은 ^{226}Ra 에서 방출되는 186.2 keV의 감마선을 직접 측정하는 방법과, ^{226}Ra 의 딸핵종인 ^{214}Pb , ^{214}Bi 등을 방사평형을 통해 간접 측정하는 방법이 있다. 직접 측정방법의 경우 ^{226}Ra 의 186.2 keV 감마선에 대한 ^{235}U 의 185.7 keV의 간섭을 제거해야 한다. 하지만, 이를 위한 ^{235}U 의 다른 감마선들은 그 또한 간섭피크이거나 방출율이 낮아 모든 시료에 대해 직접 측정방법을 적용하기에는 한계가 있다. 이에 반해 간접 측정방법의 경우에는 시료가 방사평형 상태에 도달했다는 가정 하에 감마선 방출율이 높은 ^{214}Pb , ^{214}Bi 등을 이용하므로 방사평형을 위한 검증된 방법이 있다면 분석이 좀 더 용이하다.

일반적으로 모핵종의 반감기가 딸핵종에 비해 대단히 긴 경우에는 일정 시간이 지나면 영속평형 상태에 도달할 수 있다. 이때 딸핵종은 모핵종의 반감기로 붕괴하는 것처럼 보이며, 두 핵종간의 방사능이 같아지게 된다. 본 연구에서 분석하고자 하는 ^{226}Ra 의 붕괴계열 중에는 불활성기체인 ^{222}Rn 이 존재한다. ^{222}Rn 은 반감기가 약 3.8일으로써 ^{226}Ra 의 반감기인 약 1600 년에 비해 매우 짧기 때문에 영속평형 상태에 도달할 수 있다. 따라서, 방사평형을 통한 간접 측정을 위해서는 반감기의 7배인 3 주 이상의 기간 동안 ^{222}Rn 의 누출이 없도록 시료의 상태를 유지 시킬 수 있어야 한다.

이를 위해서 기존의 연구에서는 다양한 용기를 사용하여 시료를 방사평형 시킨 후 ^{226}Ra 을 간접 측정하였다. 하지만 ^{222}Rn 의 누출에 대한 용기의 건전성 및 방사평형에 대한 연구가 제대로 이루어지지 않았으며, 이에 본 연구에서는 몇 가지 용기에 대한 건전성을 평가하여 효과적인 방사평형 방법을 제시하고자 한다.

2. 본론

2.1 재료

실험을 위해서 사용한 용기의 기하구조는 1L Marinelli Beaker, Cylinder (C1: \emptyset 6 cm \times H 5 cm / C2, C3: \emptyset 6 cm \times H 3.2 cm)이며, Marinelli Beaker은 폴리프로필렌 재질, C1은 폴리스티렌 재질, C2는 알루미늄 재질로 두께 1T, C3 역시 알루미늄 재질로 두께 0.3T이다.

건전성 평가를 위해서 ^{226}Ra 액체 표준선원 (Eckert&Ziegler, USA)을 사용하였으며, 추가적으로 NIST SRM 1633c(Coal Fly Ash), 600(Bauxite) 및 일반 시료(Zircon 계열)를 사용하여 고체 시료의 방사평형을 확인하였다.

상대효율 30%의 High Purity Germanium (HPGe, Canberra advanced Measurement Technology Inc, (USA) 검출기를 사용하여 측정하였다.

2.2 방법

각 용기에 ^{226}Ra 액체 표준선원을 spike 하여 목적인 기하구조가 되도록 시료를 만든 후, 용기별로 밀봉을 하였다. Marinelli Beaker와 C1 용기의 밀봉은 에폭시 수지 접착제를 사용하였다. C2 용기의 경우는 밀봉을 위한 결합부를 나사선으로 하여 조일 수 있게 하였고 결합부에 배관밀봉재(LOTITE 577, Henkel, Germany)를 사용하였다. C3 용기는 결합부가 이중으로 말리면서 압착되어 밀봉하는 방식을 사용하였다.

모든 시료는 1개월 동안 방치하여 방사평형이 되도록 하였으며, 초기에 spike 한 ^{226}Ra 방사능도와 감마분광분석한 ^{214}Pb , ^{214}Bi 방사능도 간의 비교를 통해 용기의 건전성을 평가하였다.

고체 시료의 경우에는 C3 용기를 사용하여 방사평형 시켰으며, 밀봉 전과 후의 방사능도를 비교함으로써, 고체 시료 자체에서의 방사평형 정도를 파악하고자 하였다.

2.3 결과 및 고찰

Table 1. Level of radioactive equilibrium for each container

Geometry	Radioactivity(Bq/kg)			Ratio of $^{214}\text{Bi}/^{226}\text{Ra}$
	^{226}Ra	^{214}Pb	^{214}Bi	
MB	282.5	149.2	152.7	0.54
	313.2	168.3	172.4	0.55
C1	30.6	5.4	5.0	0.16
	27.6	4.7	4.5	0.16
C2	171.9	129.5	131.2	0.76
	175.7	127.3	131.6	0.75
	160.5	113.2	118.0	0.73
C3	162.9	117.3	125.1	0.77
	50.7	46.1	48.3	0.95
	94.5	83.2	86.4	0.91
	150.2	134.6	137.8	0.92
	606.8	539.8	545.0	0.90
	1079.8	952.6	972.94	0.90
	1438.2	1263.3	1293.00	0.90

Table 1에서는 방사평형 시킨 각 기하구조의 용기별로 spike한 ^{226}Ra 의 방사능농도와, 감마분광분석한 ^{214}Pb , ^{214}Bi 의 방사능농도를 볼 수 있다. 용기별로 ^{226}Ra 의 농도의 차이를 두었으며, C3 용기의 경우 농도 단계별로 시료를 제작하였다. ^{214}Pb , ^{214}Bi 각각의 농도는 비슷한 분석결과를 보이며, 이는 ^{226}Ra 으로부터 붕괴한 딸핵종인 ^{214}Pb , ^{214}Bi 가 방사평형 관계라는 것을 확인할 수 있다. 두 핵종 중 ^{214}Bi 와 ^{226}Ra 의 비를 통해 용기의 건전성을 평가하였을 때, spike한 ^{226}Ra 의 농도와 ^{214}Bi 의 농도가 같다면 그 비가 1이 되어 완전한 방사평형이 됐다고 볼 수 있다. 본 실험에서 사용한 용기 중에서는 C3 용기가 가장 방사평형에 대한 건전성이 좋은 것으로 평가되었다. MB, C1의 경우 ^{214}Bi 와 ^{226}Ra 의 비가 0.5 미만으로 나타나며, 이는 용기의 재질 자체와 결합부에서 ^{222}Rn 기체가 누출되는 원인에 의한 것으로 보인다. 합성수지의 경우 ^{222}Rn 기체를 투과시키므로 방사평형을 위한 용기의 재질로는 적합하지 못한 것으로 판단된다. C2 용기의 경우 C3 용기와 같은 재질에 더 두꺼운 조건이지만 건전성이 떨어지는 것은 결합부에서 ^{222}Rn 기체의 누출이 있기 때문으로 판단된다. C3 용기가 가장 건전성이 좋은 것으로 평가되었으며, ^{214}Bi 와 ^{226}Ra 의 비는 0.9 이상이다. 상대적으로 가장 높은 비를 나타내지만 완전한 방사평형 상태인 1에는 미치지 못하였다. 이는 C3 용기가 상용으로 쓰이는 can의 형태로써 밀봉한 후 개봉을 할 수 있는 마개가 있으며, 그 부분과 결합부에서 ^{222}Rn 기체의 누출이 있을 것으로 예상된다.

Table 2. Radioactive equilibrium for solid samples

Sample	Radioactivity(Bq/kg)				Ratio of $^{214}\text{Bi}(\text{Before}) / ^{214}\text{Bi}(\text{After})$
	Before equilibrium		After equilibrium		
	^{214}Pb	^{214}Bi	^{214}Pb	^{214}Bi	
SRM 1633c	132.2	123.4	111.7	121.7	1.01
SRM 600	118.5	112.9	112.4	117.4	0.96
Zircon1	3289.3	3289.1	3480.5	3510.5	0.94
Zircon2	895.5	849.6	854.4	884.4	0.96
Zircon3	1579.9	1581.9	1629.1	1659.1	0.95
Zircon4	1639.9	1600.6	1634.7	1664.7	0.96

Table 2에서는 고체 시료 자체에서의 방사평형 정도를 알아보기 위해서 C3 용기를 사용하였으며, 밀봉하기 전과 후, 즉 방사평형 하기 전과 후의 ^{214}Pb , ^{214}Bi 의 농도비를 통해 이를 확인 하였다. 그 결과 모든 고체 시료에 대해서 방사평형 전과 후의 비가 1에 가까운 것을 확인할 수 있다. 이것은 이미 시료 자체에서 방사평형이 되어있다는 것을 의미하며, 시료의 결정 내 ^{226}Ra 이 ^{222}Rn 로 붕괴할 때 밖으로 빠져나가지 않고 대부분 결정 내에 잡혀 있기 때문으로 판단된다. 일부 결정표면에 있는 ^{226}Ra 은 α -recoil 과정에 의해 ^{222}Rn 이 공극이나 수분으로 이동해서 결정 밖으로 빠져나가게 되나, 본 실험의 고체 시료들은 건조된 상태였기 때문에 수분에 의한 영향도 작았을 것이라고 예상된다.

3. 결론

본 연구에서는 몇 가지 용기에 대해서 방사평형을 위한 용기건전성을 평가하였으며, 그 중에서는 알루미늄 재질의 이중 압착 방식인 용기가 가장 건전성이 좋은 것을 확인하였다. 또한 일부 고체 시료에 대해서는 시료 자체에서 이미 방사평형이 되어 있어, 분석을 위해 추가적인 방사평형과정이 필요 없음을 확인하였다.

4. 참고문헌

- [1] F. Mamedov, "Measurement of radon diffusion through shielding foils for the SuperNEMO experiment", 12th International workshop on radiation imaging detectors, July 11-15, Cambridge U.K. (2010).