감마분광분석을 이용한 원료물질 및 공정부산물의 ^{226}Ra 186.2 keV 피크 분석에서 ^{235}U의 기여 보정방법

임충섭[1,2], 정근호[2], 김창종[2], 지영용[2*]
[1]과학기술연합대학원대학교, 대전광역시 유성구 가정로 217
[2]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*yyji@kaeri.re.kr

1. 서론

HPGe검출기를 이용한 ^{226}Ra의 방사능 농도 분석 방법에는 간접측정방법과 직접측정방법이 있다. 간접측정방법은 방사평형 후 지표핵종으로 목적핵종 농도를 추정하는 정량방법이다. 그러나 ^{222}Rn에 대한 용기의 건전성이 확보되어야 하며, 3 주 이상의 방사평형 도달 기간이 필요하다. 직접측정방법은 ^{226}Ra의 186.2 keV 피크를 직접적으로 분석하는 방법으로 시간 단축과 용기의 선택에서 상대적으로 자유로운 이점이 있으나 분광분석시스템에서 ^{226}Ra의 186.2 keV와 ^{235}U의 185.7 keV는 하나의 피크로 인식되기 때문에, 반드시 ^{235}U의 185.7 keV 피크의 기여를 보정해야 한다. ^{226}Ra을 직접 측정하는 방법 중 ^{235}U가 포함된 ^{226}Ra피크의 방사능 값에 0.572 인자를 이용하여 ^{235}U의 기여를 보정해주는 간단한 방법이 있다[1]. 이 인자는 ^{238}U과 ^{235}U 간에 자연존재비가 유지되고 우라늄 붕괴계열 내 ^{238}U과 ^{226}Ra사이에 영속평형 관계가 유지한다는 가정 하에 유도된 값이다.

본 연구에서는 지르콘, 인광석 보크사이트 등의 원료물질과 석고 및 석탄회 등의 공정부산물에 대하여 ^{226}Ra의 방사능을 측정하였다. 이때 0.572 인자를 이용한 직접측정방법과 ^{226}Ra의 지표핵종인 ^{214}Bi의 방사능을 비교함으로써 보정인자를 이용한 ^{226}Ra 직접측정방법의 적용성을 평가하였다.

2. 본론

2.1 ^{226}Ra 방사능에 대한 보정인자 계산

자연 중 ^{238}U과 ^{235}U의 존재비는 각각 99.274 wt%와 0.720wt% 이며, 천연 우라늄 1 g을 기준으로 ^{238}U와 ^{235}U는 약 0.99274 g와 0.0072 g 존재하게 된다. 따라서 식(1)의 비방사능에 각 핵종의 존재비에 따른 무게를 곱하면 천연 우라늄 1 g당 존재하는 ^{238}U과 ^{235}U의 방사능을 구할 수 있다.

$$A = \frac{0.693}{T_{1/2}} \cdot \frac{N_A}{M} \cdot m \qquad (1)$$

여기서 A는 각 핵종의 방사능 농도(Bq 혹은 Ci), $T_{1/2}$은 반감기(sec), N_A는 아보가드르 수(mol^{-1}), M은 몰질량(mol·g^{-1}), m은 천연 우라늄 1 g안의 동위원소 무게(g)이다. 자연 중 우라늄 붕괴계열에서 ^{238}U과 ^{226}Ra 사이 핵종의 방사평형을 가정하여 식(2)와 같은 $A(^{235}U)$와 $A(^{226}Ra)$ 관계식을 만들 수 있다.

$$A(^{235}U) = 4.6617 \times 10^{-2} \cdot A(^{226}Ra) \qquad (2)$$

즉, $A(^{226}Ra)$이 1개 붕괴할 때 $A(^{235}U)$는 약 4.6617×10^{-2}의 비율로 붕괴한다는 것을 의미한다. 피크의 순 계수로부터 방사능 농도 계산식은 식(3)과 같다.

$$A = \frac{N}{\epsilon \cdot \Upsilon \cdot t} \qquad (3)$$

여기서 N은 스펙트럼에 기록되는 순 계수(counts), ϵ는 계측기의 효율이며, γ는 각 핵종의 방출률, t는 측정시간(sec)이다.

위 식에서 측정시간 및 ^{235}U 185.7 keV와 ^{226}Ra 186.2 keV의 계수효율이 거의 같기 때문에, ^{235}U와 ^{226}Ra의 감마선 방출비를 사용하여 식 (4)와 같이 186.2 keV의 순 피크면적에서 ^{235}U와 ^{226}Ra에 대한 순 계수비를 유도할 수 있다.

$$N(^{235}U) = 0.75 \cdot N(^{226}Ra) \qquad (4)$$

여기서, ^{235}U과 ^{226}Ra의 감마선 방출률은 3.55 및 57.1%를 각각 사용하였다.

한편 ^{226}Ra과 ^{235}U가 중첩된 피크를 N(T)라 할 때, 식 (5)와 (6)으로부터 ^{235}U와 ^{226}Ra이 중첩된

186.2 keV의 순 피크면적 중 ^{226}Ra이 차지하는 비율이 약 57.2%라는 관계식을 얻을 수 있다.

$$N(T) = N(^{235}U) + N(^{226}Ra) = 1.75 \cdot N(^{226}Ra) \quad (5)$$

$$N(^{226}Ra) = \frac{1}{1.75} \cdot N(T) \fallingdotseq 0.572 \cdot N(T) \quad (6)$$

따라서 186 keV 순 피크면적을 모두 ^{226}Ra으로 간주하여 식 (3)으로부터 계산된 방사능을 ^{226}Ra(T)라 하고, 여기에 0.572를 보정하면 식(7)과 같이 순수 ^{226}Ra의 방사능 농도를 산출할 수 있다.

$$^{226}Ra = {}^{226}Ra(T,\ 186keV) \times 0.572 \quad (7)$$

2.2 재료 및 실험 방법

과거 원자력연구원에 분석 의뢰된 시료들 중 빈도수가 높은 원료물질 3종과 공정부산물 2종을 선정하였다. 구성과 개수는 원료물질의 경우 Zr 19개와 인광석 21개, Bauxite&alumina 7개이며, 공정부산물은 석고18개와 Ash 12개를 이다. 계측에 사용된 장비는 상대효율 45%의 n-type HPGe 검출기이며 각 시료들은 용기건전성이 확인된 용기에 담아 약 3 주 이상 보관하여 방사평형에 도달하게 한 후, ^{226}Ra의 지표핵종인 ^{214}Bi 방사능과 0.572인자를 이용한 ^{226}Ra의 방사능 농도를 비교 하였다.

2.3 결과 및 고찰

원료물질 및 공정부산물을 대상으로 앞서 산출된 보정인자의 유효성을 평가하기 위해서 식(7)을 사용하여 계산한 방사능과 ^{214}Bi 방사능을 비교하였다. ^{214}Bi값을 기준으로 대부분의 시료는 Fig. 1과 같이 상대오차 범위 ± 20% 내에서 유효하였지만, 석고 그룹은 상대오차 범위를 벗어나는 경향이 뚜렷하게 관찰되었다. 석고 그룹의 기여율을 평가한 결과 ^{226}Ra(T)에 대한 실제 ^{226}Ra기여율은 약 79.2%로 상대적으로 ^{235}U의 감마선 기여도가 작아졌다는 것을 확인할 수 있다. 이는 석고 제조 공정 중 황산을 이용한 침전과정을 거치면서 화학적 특성 상 우라늄의 손실이 상대적으로 많이 발생한 것으로 사료된다. 따라서 석고 시료의 특이성을 고려한 0.792 인자를 사용하여 농도의 분포를 확인한 결과는 Fig. 2와 같고 상대오차 ± 10 % 내에서 유효함을 확인하였다.

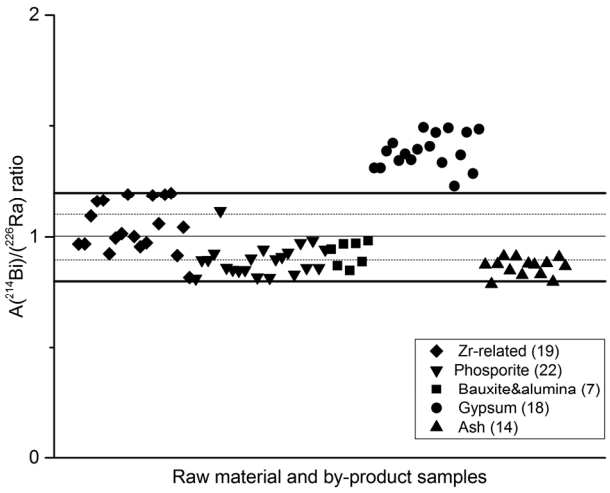

Fig. 1. Comparison between ^{214}Bi and ^{226}Ra for raw material and by-product samples.

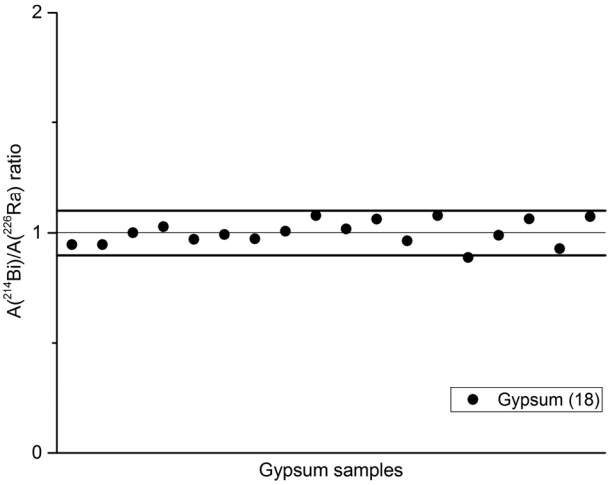

Fig. 2. Comparison between ^{214}Bi and ^{226}Ra for gypsum.

3. 결론

천연우라늄의 자연존재비와 각 핵종의 감마선 방출률로부터 0.572 보정인자를 산출하고 원료물질 및 공정부산물의 ^{226}Ra 직접측정방법에 대한 적용성을 평가하였다. 또한, 석고의 경우 제조 공정과정의 특이성을 고려한 0.792의 보정인자를 산출하였다. 각각의 보정인자를 이용하여 ^{226}Ra 농도 평가시 상대오차 ± 20 %와 ± 10 % 내에서 유효함을 확인하였다. 본 연구에서 산출된 보정인자를 활용해 ^{226}Ra의 신속한 농도분포 평가가 가능할 것으로 사료된다.

4. 참고문헌

[1] Giles, J.R., TAN TSF-07 Pond Ra-226 Concentrations and Corrections, INEEL/EXT-98-00505, June 1998.