

Cs¹³⁷ 의 迅速 定量 法

金台淳* 朴泰源** 李春寧*** 徐慶淑****

(1960. 12. 31 受理)

Rapid Determination of Cesium-137

By Tai-soon Kim, Tai-won Park, Chun-yung Lee, and Kyung-sook Seu.

Radiochemical Laboratory, The Scientific Research Institute, M.N.D. H. S. A.

Two methods for the determination of Cesium-137 in various foods(ashes) were compared. The one comprises two steps, the first being the separation of alkalis as cobaltinitrites or perchlorates by the radiochemical method, and the second being the measurement of photopeak area due to the presence of Cs-137 by the use of scintillation spectrometer.

The other method is the direct subjection of ash samples to the spectrometry without the radiochemical separation.

The combined contribution of K-40 and Rb-87 to the spectrum was not found on account of the difference in energies of these nuclides.

These two methods gave a good agreement in the determination of Cs-137 in 50-100g ash samples of vegetables or cereals under investigation.

緒 論

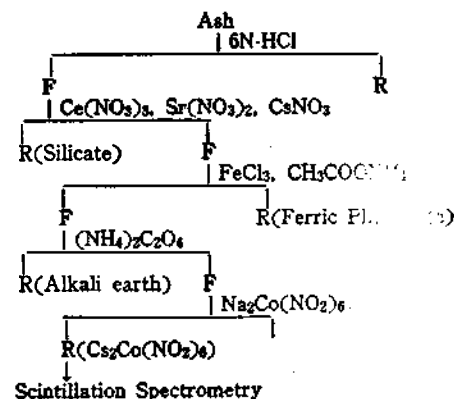
放射性 落下物 中에 含히어 있는 放射性 核種으로 서 人體에 가장 危險하다고 생각되고 있는것은 Sr⁹⁰ 과 Cs¹³⁷ 이다. 後者인 Cs¹³⁷ 의 定量法에는 Shiokawa¹⁾ (Cs perchlorate 로서) Yamagata²⁾ (Dipicrylamine 로서) Osmond³⁾ (Cs platini chloride 로서) 등의 諸方法 이 있지만 Alkali 族 相互間의 分離操作이 複雜함과 長 時間을 要하는 缺點外에 自然放射性 同位元素인 K⁴⁰ 과 Rb⁸⁷ 의 相互 汚染도 考慮하여야 한다. 따라서 放射性 同位元素(以後 RI 로 略함.)가 放出하는 放射線이 RI 에 따라서 特定한 Energy 分布를 가지므로 Cs¹³⁷ (662 KeV γ) 附近에 K⁴⁰ (1.46 MeV γ) 과 Rb⁸⁷ (0.03~0.13 MeV γ) 또는 다른 核種의 γ 線의 photopeak 나 Compton 効果에 의한 γ 線이 없으면 Alkali 元素의 分離 또는 放射化學의 分離를 하지 않더라도 Scintillation Spectrometer 의 Differential Pulse Height Analyzer 를 써서 Cs¹³⁷ 定量이 可能할 것이다. 本實驗室에서는 이러한 原理下에 食品中의 Cs¹³⁷ 定量法을 確立하였기에 그

結果를 이 報告하고자 한다. 即 放射化學의 方法으로 Alkali 金屬을 Cobaltinitrite 로 誘導하고 다음에 Scintillation Spectrometer 로 測定하는 方法과 灰分을 直接 Scintillation Spectrometer 로 定量하는 兩方法을 比較하여 보았다.

方 法

1. 放射化學의 方法

Table 1. separation of Alkalies



* * * * * 國防部 科學研究所 放射化學 研究室

試料은 風乾後 乾式法을 使用하여 灰化하였다. 乾式은 灰分中에 有機物이 殘存하기 쉬우므로 數 ml의 $\text{NO}_3 + \text{HCl}(1:3)$ 을 加하여 蒸發乾固하여 有機物을 處시킨다. 50~100g을 6N-HCl로 處理後 上述한 方法을 Table 1을 參照하여 Alkali 金屬을 分離하 Cs, K를 Cobaltinitrite로서 共沈시킨後 沈澱物 總量을 秤量하고 그中 一定量을 Counting Tray 에 고 Scintillation Spectrometry를 行한다.

2. 直接法

本法은 食品의 放射能이 大部分 K^{40} 에서 由來하므로 食品放射能의 多少는 K含量에 달려있다⁴⁾는 事實에 依하여 Scintillation Spectrometry를 直接行할 것 같으면 Cs^{137} 의 存在가 Cs^{137} 定量에 妨害가 되지않으므로 灰分 定量을 直接 planchet에 넣어 Spectrometry를 行 수 있을 것이다.

3. Scintillation Spectrometry

Scintillation Spectrometer로서는 Tracerlab RLP-5 Continuous Scanning Spectrometer를 使用하였으며 detector의 Phosphor는 $\text{NaI}(\text{Tl})$ 로 活性化한것, $1\frac{1}{2}'' \times 1''$, PMT Dumont 6292를 使用하였다. Energy를 測定하기 爲해서는 光電倍增管으로부터 나온 pulse를 比例增幅器에서 增幅하여 pulse波高解析器에서 0~100V의 pulse波高를 5V幅으로 잘라서 그 사이의 크기에 들어오는 pulse 數를 計數하여 縱軸에 cpm 橫軸에 pulse波高를 記錄器에 記錄하였다. 螢光體에서는 γ 線 Energy와 生成된 pulse의 波高가 比例한다. 따라 縱軸을 cpm 橫軸을 Energy로 하여 얻은 Cs^{137} 의 spectrum은 Fig 1과 같다.

γ 線의 Energy와 生成된 pulse의 波高가 比例한다. 따라 縱軸을 cpm 橫軸을 Energy로 하여 얻은 Cs^{137} 의 spectrum은 Fig 1과 같다.

γ 線의 Energy에 相當하는 곳에 peak가 생기며 이보다 낮은 곳에 連續帶가 온다. 이 peak는 光電吸收에 依하여 생기는 것으로 光電 peak라 하며 連續帶는 Compton 散亂에 依하여 생기기 때문에 Compton smear라고 한다.

γ 線의 Energy는 光電 peak의 最大值의 Energy로 測定되며 이 Energy는 既知 Energy의 Cs^{137} 標準試料을 使用하여 校正하였다. 光電 peak는 幅을 가지고 있으며 이 peak內의 面積은 入射한 γ 線의 量子數에 比例하므로 이 面積을 測定하여 그 Energy에 있어서의 計數率을 求하여 Cs^{137} 을 定量할 수 있다. 光電 peak의 半幅值(RHO)는 γ 線의 Energy의 平方根에 比例하며 光電倍增管의 第一極에 들어오는 電子數의 平方에 反比例한다. 이는 實驗條件에 따라 定하여 진다. 面積 A^5 는 peak를 積分하여 얻어진다.

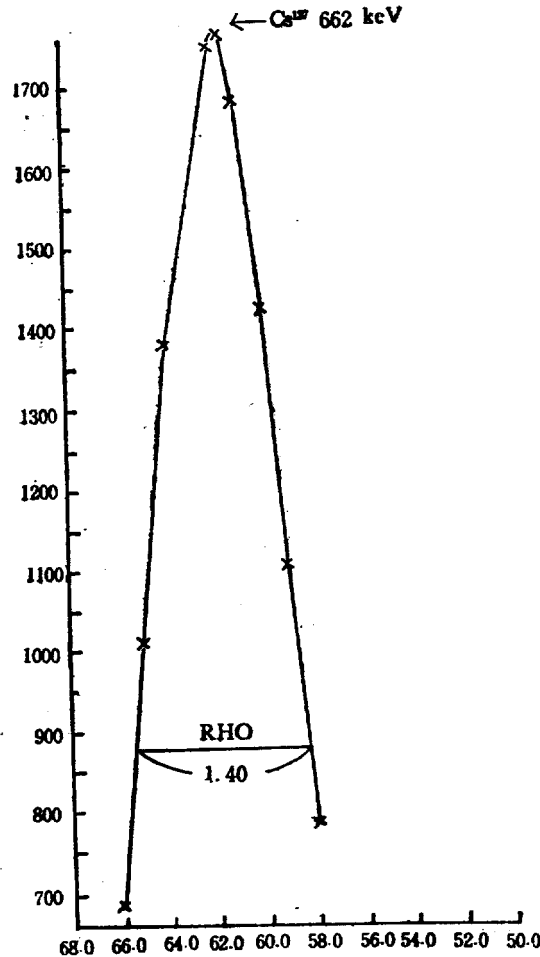


Fig. 1. γ Ray Spectrum(Cs^{137})

$A = \int r dE$ 또는 $A = \Sigma r \Delta E$

r: cpm per window width

ΔE : Increment of energy equal to the window width.

그러나 이 peak는 Gauss分離의 近似하므로 다음과 같은 式으로 表示할 수 있다.

$A = SR_{max} RHO$

R_{max} : Maximum photopeak height in cpm.

RHO: width at half maximum in units of window width.

$S = 1.07$ derived from a table of the normal curve of error.

Cs^{137} 標準器의 崩壞에 對한 補正은 다음과 같이 行하였다.

$\text{Cs}^{137} = 2.96 \times 10^6$ dpm for 662KeV Gamma per 5.00 ml as of Aug. 6, 1958.

上記한 Cs¹³⁷을 1960年 6月16日 補正하여 λ factor로서 0.9604를 얻었다.

故로 $2.96 \times 10^6 \times 0.9604 = 2.84 \times 10^6 \text{dpm} = 1.279 \mu\text{C}$

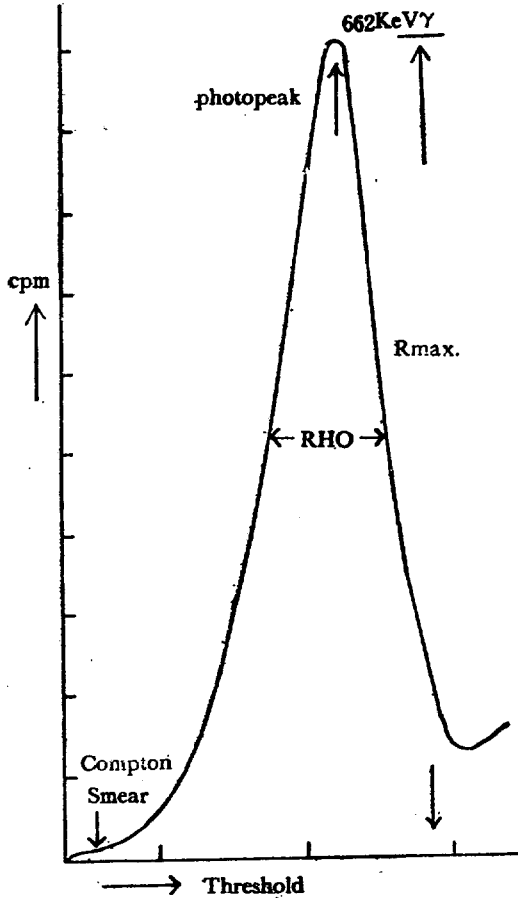


Fig 2. photopeak Area Determination of Cs¹³⁷

Cs¹³⁷ 5ml 中에서 250λ를 planchet에 取하였고 이 標準器의 放射能은,

$$1.279 \times \frac{0.25}{5} = 0.06395 \mu\text{C} = 1.42 \times 10^5 \text{dpm}$$

以上과 같은 Cs¹³⁷ 標準器의 測定條件으로는 High Voltage (RLD-2 Detector) 1200 volts로 하고 Gain은 Fine Gain 2, Coarse Gain 32로 Window width는 5 volts로 하여 Threshold Voltage를 50~70 Volts까지 測定한 結果 Threshold 61.5에서 最大 peak가 나타났다. 따라서 上記한 近似式으로 光電 peak面積을 求하여보면, (Fig 2)

$$A = 1.07 \times 1763 \times 1.4 = 2640.97 \text{cpm}$$

計數效率는,

$$Y = \frac{2.46 \times 10^3}{1.42 \times 10^5} = 0.0185 (1.85\%)$$

$$\therefore 1 \text{cpm} = 53.7 \text{dpm} = 24.18 \mu\text{C}$$

그러나 實際에 있어서는 일일이 이식에 代入하여 計算할 必要는 없다는 것을 實驗에 依하여 確認할 수가 있었다.

即 Threshold는 一定한 window width 內에 入射하는 最少 pulse amplitude이기 때문에 最大光電 peak에 該當하는 Threshold는 光電 peak面積中 半란 나타내므로 RHO와 一致되는 値이로 window width를 測하여 주어야 한다. 本實驗에서는 RHO(7.14/5)가 1.4이므로 Original setting window width를 1.4배하여 Threshold를 反時計針方向으로 回轉시켜 58.5에 固定하여 測定하였다.

Cs¹³⁷(250λ) 標準器를 使用하여 F&C Gain 2 & 32 Threshold 58.5 window width 7에서 測定한 結果 A=2610cpm을 얻었다.

上記한 方法으로 試料의 Cs¹³⁷ spectrum을 Fig 3과 같이 얻었다.

計數誤差: 計數는 preset time operation(60min)을 行하였으며 이때 試料의 카운트數는 300카운트 前後이다.

理論적으로 300 카운트에 對한 Probable error는 ±3.6%이다. 그런데 이러한 작은 數는 總카운트와 自然計數의 比가 10:1 以上일 경우에 限한다. 이러한 條件은 現在로서 Cs¹³⁷의 蓄積量이 적기 때문에 얻기 힘들다. 一般으로 1:1乃至 1:3程度이다. 이러한 條件에서 Probable error는 필연 커져서 ±20%程度이다.

Cs¹³⁷單位: 土壤, 動植物 代謝에 있어서 Cs¹³⁷은 加里와 化學的 性質이 같기때문에 加里와 同一한 舉動을 한다. 따라서 Cs¹³⁷은 加里 1g當 몇 μC로 表示하는데 이를 Caesium Unit라고 부른다.

結 果

上記한 兩法으로 同一試料에 對하여 Cs¹³⁷을 測定한 結果(平均値)를 表示하면 Table 2와 같다.

Table 2. Cesium of Cs-137 in Korean Foods

Sample	Year of Production	Potassium mg/100 mg ash	Radiochemical Method μC/g K	Direct Method μC/g K
Rice(polished)	1957	13.2	89.95	90.10
Spinach	1960	28.1	9.52	10.33
Goat Milk	1960	23.2	113.28	114.64
Leek	1960	25.6	40.25	41.60
Chinese Cabbage	1960	20.4	28.86	30.03

이 結果에 依하면 直接法의 結果가 放射化學的 方法

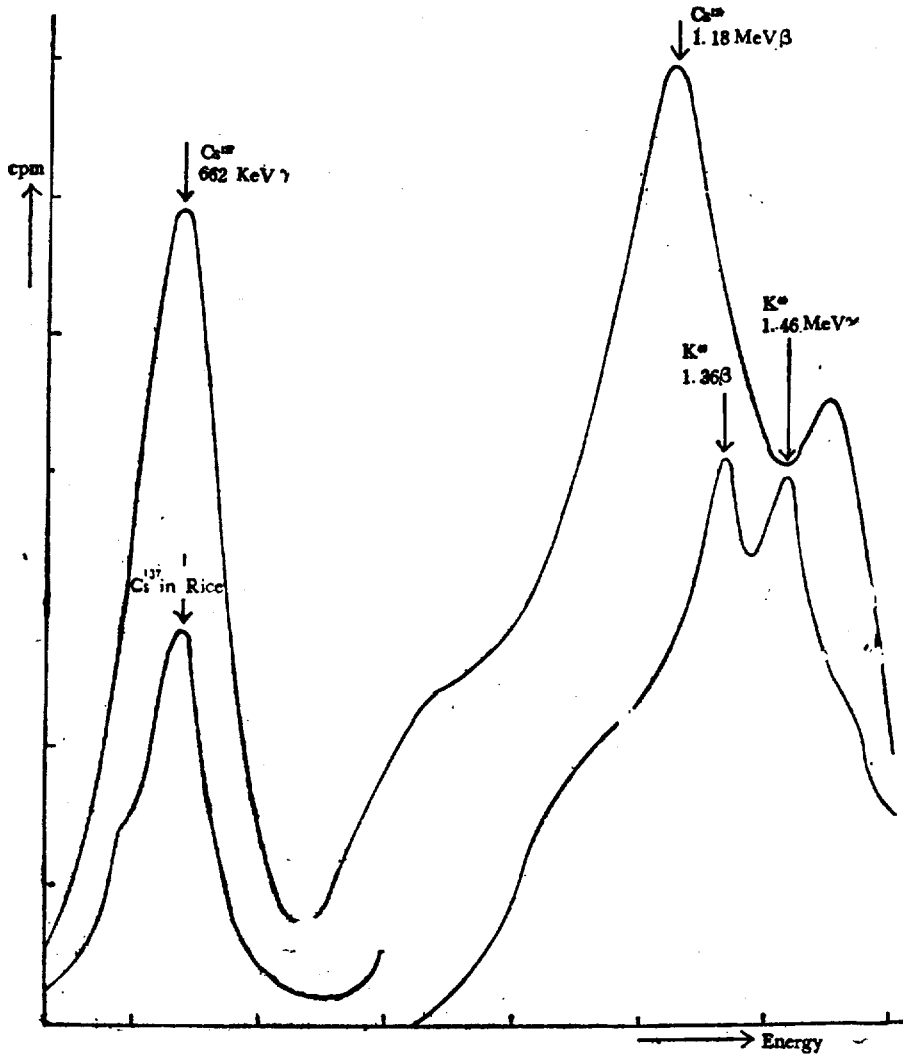


Fig 3. Spectra of Cs^{137} in Rice and K^{40} in KCl

의 그것에 비하여若干 높은 感이 있으나 大體로 數 퍼센트의 誤差範圍로 잘 一致함을 알수있다.

本簡略法の 檢討는 더 많은 試料에 對한 試驗이 必要하겠지만 以上 結果로 보아서는 複雜한 從來의 化學的方法을 代身할 수 있지 않을까 생각된다.

引用文獻

- (1) T. Shiokawa et al.: *Isotopes and Radiation* 1. (1958)
- (2) N. Yamagata and T. Yamagata: *Analyst*. 85, 282. (1960)
- (3) R.G. Osmond et al.: *A.E.R.E. C/R* 2165.
- (4) 朴泰源 · 金台淳 · 李春華 : 農化學會誌에 發表豫定.
- (5) R.E. Connally et al.: *Anal. Chem.* 25, 7. (1953)