

환경 시료 중 신뢰도 검증을 위한 방사능 분석

강태우^{1,2)*} · 홍경애²⁾

¹⁾제주대학교 제주지방 방사능측정소, ²⁾제주대학교 방사선응용과학연구소
(2007년 5월 15일 접수, 2007년 6월 25일 수리)

Radioactivity Analysis for Reliability Assessment in the Environmental Samples

Tae-Woo Kang^{1,2)*}, and Kyung-Ae Hong²⁾ (¹⁾Jeju Regional Radiation Monitoring Station, Cheju National University, Jeju 690-756, Korea, ²⁾Applied Radiological Science Research Institute, Cheju National University, Jeju 690-756, Korea)

ABSTRACT: The objective of this research was to assess the reliability of data and to improve nuclear analytical techniques concerning the Domestic Radioactivity Intercomparison program for environmental radioactivity monitoring of Jeju from 1998 to 2006. Gross beta for filter papers and water samples was determined, and gamma nuclides for natural and artificial nuclides in soil and water samples were analyzed. The gross beta activity of all samples except for the water samples of 1998 and 1999 showed a good agreement within the confidence intervals. In gamma nuclides, ⁴⁰K and ¹³⁷Cs of soil samples and most nuclides in the water samples, with the exception of several nuclides, were evaluated to be reliable. Based on these results, it is considered that a reliable method for the analysis and monitoring of environmental radioactivity were established, which may play an important role in case of emergency radiation accident.

Key Words: Radioactivity analysis, reliability assessment, gross beta, gamma nuclide, ⁴⁰K, ¹³⁷Cs

서론

1950년 초 대기권 핵실험과 1979년 미국 TMI와 1986년 구소련 체르노빌 원전사고와 같은 대형 방사능 누출 사고 이후 한국은 방사선 이상 여부를 신속히 판단하여 방사능 사고에 효과적으로 대응할 수 있는 환경방사능 감시체계를 구축하여 운영하고 있다^{1,2)}. 이러한 방사선 이상사태를 조기에 탐지하여 원자력 안전에 대한 정확한 정보를 제공하는 것은 원자력에 대한 대중의 신뢰를 확보하는데 있어서 큰 영향력을 미칠 수 있기 때문에 이들 방사능 전문 분석기관의 역할은 매우 중요하다고 할 수 있다.

방사능 분석에 대한 평가를 보증하는 기관은 국제원자력기구(IAEA), 미국 에너지성(DOE) 산하 국립환경방사능측정연구소(EML) 그리고 일본화학분석센터(JCAC) 등이 있으며 이들과 각국의 방사능 분석 연구기관 등과 국제적인 방사능

교차분석이 활발히 이루어지고 있다¹⁻⁹⁾. 국내의 경우는 한국 원자력안전기술원(KINS) 주관하에 1997년부터 현재까지 10년 동안 국내 원자력사업자와 관련 대학 및 방사능 분석 연구 기관 등이 참여하는 방사능 교차분석을 실시함으로써 방사능 분석 기술의 정립을 위한 상호 정보를 교환함으로써 분석 자료의 신뢰도를 향상시키고 있다. 분석 항목은 전베타(Gross beta), 감마(Gamma nuclides), 삼중수소 및 ⁹⁰Sr이며, 시료 종류는 공기부유진 채집 필터, 물, 토양 그리고 감마스펙트럼을 대상으로 핵종을 분석하여 평가하고 있다^{1,2,10)}.

따라서, 본 연구는 방사능 분석 기술의 향상과 신뢰도를 확보하기 위하여 환경 중 방사능 오염경로상의 주요 물질인 공기부유진 필터와 물 그리고 토양을 대상으로 1998년부터 2006년까지 국내방사능 교차분석에 참여하여 수행한 결과들을 제시하고자 한다.

재료 및 방법

전베타(Gross-β)

전베타 측정용 시료는 공기부유진 필터와 물로 1998년부터

*연락처:

Tel: +82-64-756-1866 Fax: +82-64-755-6186
E-mail: cjkins@hanmail.net

터 2006년까지 9년 동안 KINS로부터 분배 받아 사용하였고, 필터와 물 시료는 KINS에서 직접 제조한 것으로 필터시료인 경우는 분석용 필터와 같은 종류의 background 필터 시료를 같이 제공 받았다. 필터는 전처리 없이 직접 계측 하였으며, 물 시료인 경우는 증발 농축시킨 후 분석용 스테인레스 planchette(diameter 50.8 mm, hight 3 mm)에 옮겨 적외선 램프로 건조시킨 후 계측하였다. 분석은 가스비례형 계수기인 Low α/β counter(Canberra, USA)를 사용 하였으며, 효율 교정은 시료 매질의 두께에 의한 자체흡수를 보정하기 위하여 KCl(순도 99%; Katayama Chemical Co., Japan)를 사용하였는데, KCl은 안정 동위원소 ^{39}K 와 ^{41}K , 그리고 방사성동위원소인 ^{40}K 이 포함되어 있으며 ^{40}K 은 베타선 방출체이며 방출율은 89%이다.

감마핵종(Gamma nuclides)

감마핵종 분석을 위한 토양과 물 시료는 전베타 교차분석용 시료와 같은 방법으로 분배 받은 후 계측용 원통 용기(diameter 50 mm, hight 70 mm; Mizuho Chemical Co., Japan)에 채워 높이와 무게를 확인한 후 고순도 게르마늄 검출기와 다중과고분석기(EG&G Ortec or Canberra, USA)로 구성된 감마분광계를 이용하여 측정하였다. 계측된 시료는 스펙트럼 분석용 프로그램(Aptec Co.)을 이용하여 감마핵종을 판별하였다. 감마분광 시스템의 에너지 및 효율 교정은 ^{109}Cd , ^{57}Co , ^{139}Ce , ^{203}Hg , ^{115}Sn , ^{85}Sr , ^{137}Cs , ^{88}Y 그리고 ^{60}Co 감마 핵종이 혼합되어 있는 감마 교정용 표준 용적선원(QCY44, Amersham Co.)을 사용하였으며, 이들 중에 포함되어 있는 ^{88}Y 와 ^{60}Co 에 의한 동시 흡수효과와 그리고 시료 밀도에 의한 자체 흡수 효과를 보정하였다.

평가 기준

전베타 시료의 평가 기준 설정은 표준용액(^{90}Sr , Amersham Co.)의 인증농도를 기준으로 제조사의 표준용액 제조 오차와 교차분석 수행기관에서의 희석 오차, 참여기관의 계측 및 계측시료 준비 과정상의 오차가 포괄적으로 고려된 것이다. 감마핵종 시료는 교차분석 수행기관에서 방사성 핵종들이 포함된 토양과 물 시료를 직접 채취하여 균질하도록 선별한 후 수행기관의 분석 결과와 참여기관들이 분석하여 제출된 결과를 대상으로 평균값을 산출하여 오차범위에서 벗어난 것을 제외하여 다시 평균값을 구한 후 기준값으로 설정한 것으로, 이는 시료 조제과정에서 발생할 수 있는 오차를 포함한 것이다¹⁰⁾.

교차분석 수행기관에서 제시한 평가 기준은 등급 A(Acceptable), W(Acceptable with Warning), N(Not Acceptable), ND(Not Detected) 그리고 FP(False Positive)로 나누어 평가한다. 등급 A는 분석 값이 신뢰도 범위에 포함된 것으로 매우 우수하게 평가된 것이며, W는 신뢰도 범위에서 약간 벗어난 상태를 나타낸다. 반면, N은 신뢰도 범위에서 벗어난 것으로 분석 값에 대한 원인규명을 통하여 분석능력에 대한

종합적인 검토가 필요한 상태를 의미한다. ND는 감마핵종 스펙트럼인 경우 실제 스펙트럼 상에 존재하는 핵종을 식별해 내지 못한 것을 나타내며, FP는 실제 스펙트럼 상에 존재하지 않은 핵종을 존재하는 것처럼 오인하여 판단한 것을 의미한다¹⁰⁾.

결과 및 고찰

전베타 방사능

1998년부터 2006년까지 공기부유진 필터와 물 시료 중 기준치와 분석치 그리고 분석 결과에 대한 신뢰범위를 나타내었다(Fig. 1). 필터 시료는 모든 분석 값이 신뢰도 범위 내였고, 물 시료인 경우는 1998년과 1999년도의 결과를 제외하고는 신뢰도 범위 내의 수치였다. 1998년의 물 시료는 신뢰도 범위에서 아주 벗어난 결과로 이에 대한 원인규명이 필요하며, 1999년인 경우는 분석 값이 신뢰도 범위에서 약간 벗

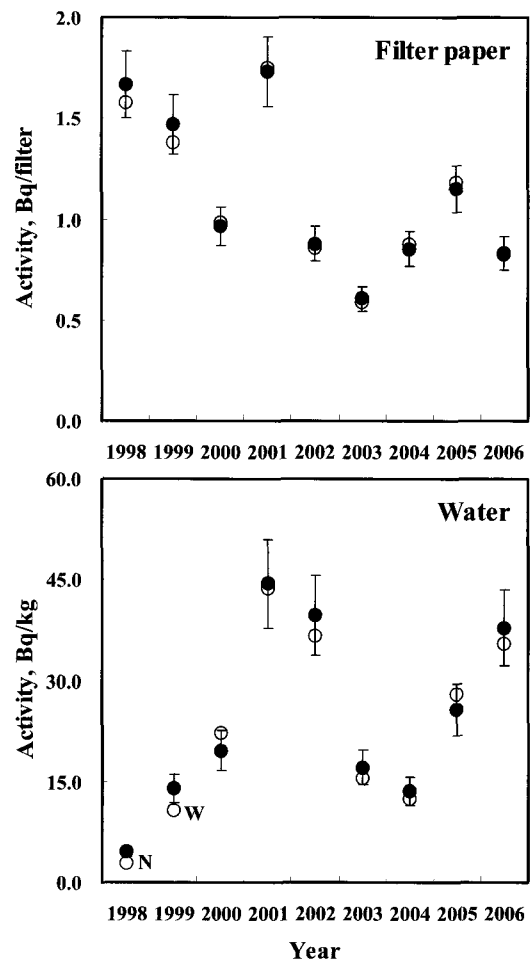


Fig. 1. Reported (○) and reference values (●) of gross beta in filter papers and water samples from 1998 to 2006. N: not acceptable, W: acceptable with warning. Error bar: confidence interval.

이나 다소 신뢰하기 어려웠다.

이러한 현상은 필터 시료의 경우 전처리 과정 없이 직접 측정을 하였기 때문에 전처리 과정에 의한 오차가 거의 발생하지 않았지만, 물 시료는 증발과 건조 과정을 통하여 계측에 알맞은 시료형태로 제조하여 측정하기 때문에 이러한 과정에서 시료의 손실 또는 흡착 등과 같은 전처리 오차가 발생한 것으로 생각되며, 또한 전처리 후에는 잔사가 거의 없는 건조 상태였으나 전베타 계측기 효율교정 시에는 아주 미세한 분말 상태인 ^{40}KCl 을 사용하였기 때문에 방사능 농도에 영향을 미친 것으로 사료된다¹¹⁾. 특히 1998년과 1999년도 시료에서만 오차범위가 큰 것은 교차 분석 시작 초기에 해당하는 시기라 시료의 전처리 과정 미숙에서 오는 오차가 아닌 생각되며, 전반적으로 같은 시기에 대부분의 참여 기관들이 신뢰도가 낮은 결과 보였다(Table 1).

환경 시료 중의 전베타 방사능 감시는 시료에서 방출되는 베타선을 에너지 구분 없이 측정하는 것으로 방사성 핵종의 종류는 알 수 없으나 potassium과 같은 표준시료와 비교하여 총 방사능을 구하여 신속하게 이상 유무를 판단한 후 감마핵종분석 등과 같은 정밀 분석을 수행할 것인가에 대한 판단을 함으로써 감마핵종분석을 수행하는데 소요되는 시간과 노력을 최소화 할 수 있으므로 전베타 방사능 감시는 환경시료 중의 방사능 분석을 위한 신뢰도 검증의 초기 단계로 아주 중요한 과정이라 할 수 있다.

감마핵종

1998년부터 2006년까지 토양 시료에 대한 ^{40}K 와 ^{137}Cs 의 방사능 농도는 기준치와 비교했을 때 신뢰도 범위내에 있었

Table 1. Evaluation results of gross beta for filter papers and water samples and gamma nuclides in soil and water samples from 1998 to 2006

Year	Numbers			Evaluation (%)			
	Gamma ^{a)}	Gross β ^{b)}	Total	Gamma		Gross β	
				A ^{c)}	T-A ^{d)}	A	T-A
1998	2	2	4	100	82.4	50.0	39.4
1999	7	2	9	100	80.5	50.0	73.0
2000	15	2	17	100	95.3	100	89.5
2001	11	2	13	90.9	88.4	100	78.9
2002	10	2	12	90.0	93.2	100	78.4
2003	13	2	15	100	91.5	100	90.2
2004	7	2	9	100	84.8	100	95.2
2005	7	2	9	85.7	88.1	100	100
2006	6	2	8	100	92.7	100	97.6

^{a)}Numbers of analysis nuclides including soil and water samples, ^{b)}Numbers of sample matrix, ^{c)}Acceptable (A score), ^{d)}Distribution for A score of the all analytical institute

다(Fig. 2). 토양에 포함되어 있는 ^{40}K 은 천연방사성 핵종으로 환경 중에 많이 존재하여 배경방사능에 대한 영향을 많이 받는 것인데도 불구하고 신뢰도 범위 내의 값에 포함된 것은 배경방사능에 대한 기여분을 잘 고려하고 있음을 보여주고 있으며, ^{137}Cs 는 인공방사성 핵종으로 핵실험 및 원자력 발전소 사고 등에 의하여 주로 낙진(fallout) 형태로 토양에 존재하는 것으로 긴 반감기(30.2 년)와 강한 감마선(662 keV)을 방출하기 때문에 체내외 피폭을 평가하는데 아주 중요한 방사성 핵종이기 때문에 ^{137}Cs 분석은 환경방사능 평가에 아주 중요한 요소라 할 수 있다. 이러한 결과들은 토양 시료와 효율 교정용 용적선원의 밀도 차에서 기인하는 감마선 자체 흡수 효과에 대한 보정이 잘 이루어지고 있는 것으로 판단된다⁹⁾.

물 시료 중 자연 및 인공 방사성 핵종들의 방사능 농도는 몇 개의 핵종들을 제외하고는 모두 신뢰도 범위 내의 값을 보였기 때문에 감마분광계 효율 교정 과정이 잘 이루어지고 있는 것으로 사료되었으나(Fig. 3, 4), 2001년의 경우 채널파 에너지와의 관계가 정확히 교정되지 않아 ^{123m}Te 를 ^{46}Sc 로 판

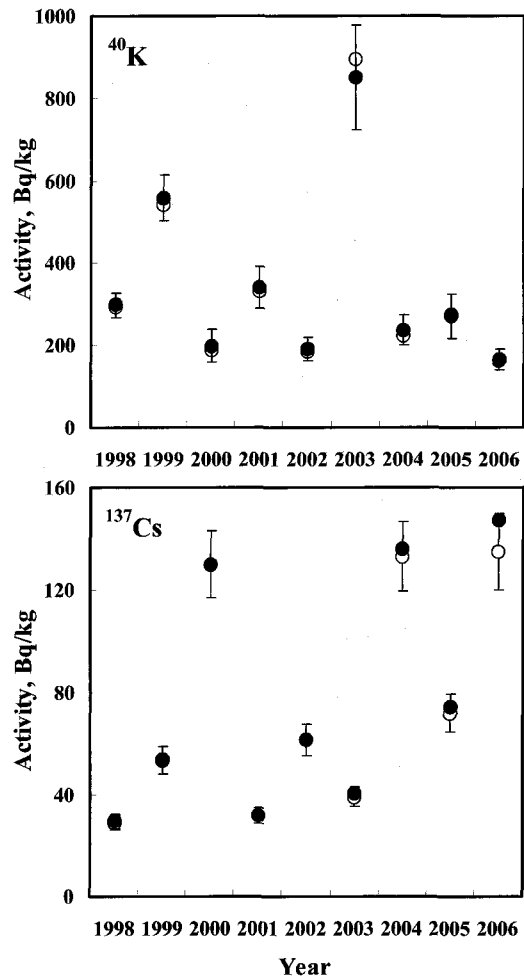


Fig. 2. Reported (○) and reference values (●) of ^{40}K and ^{137}Cs in soil samples from 1998 to 2006. Error bar: confidence interval.

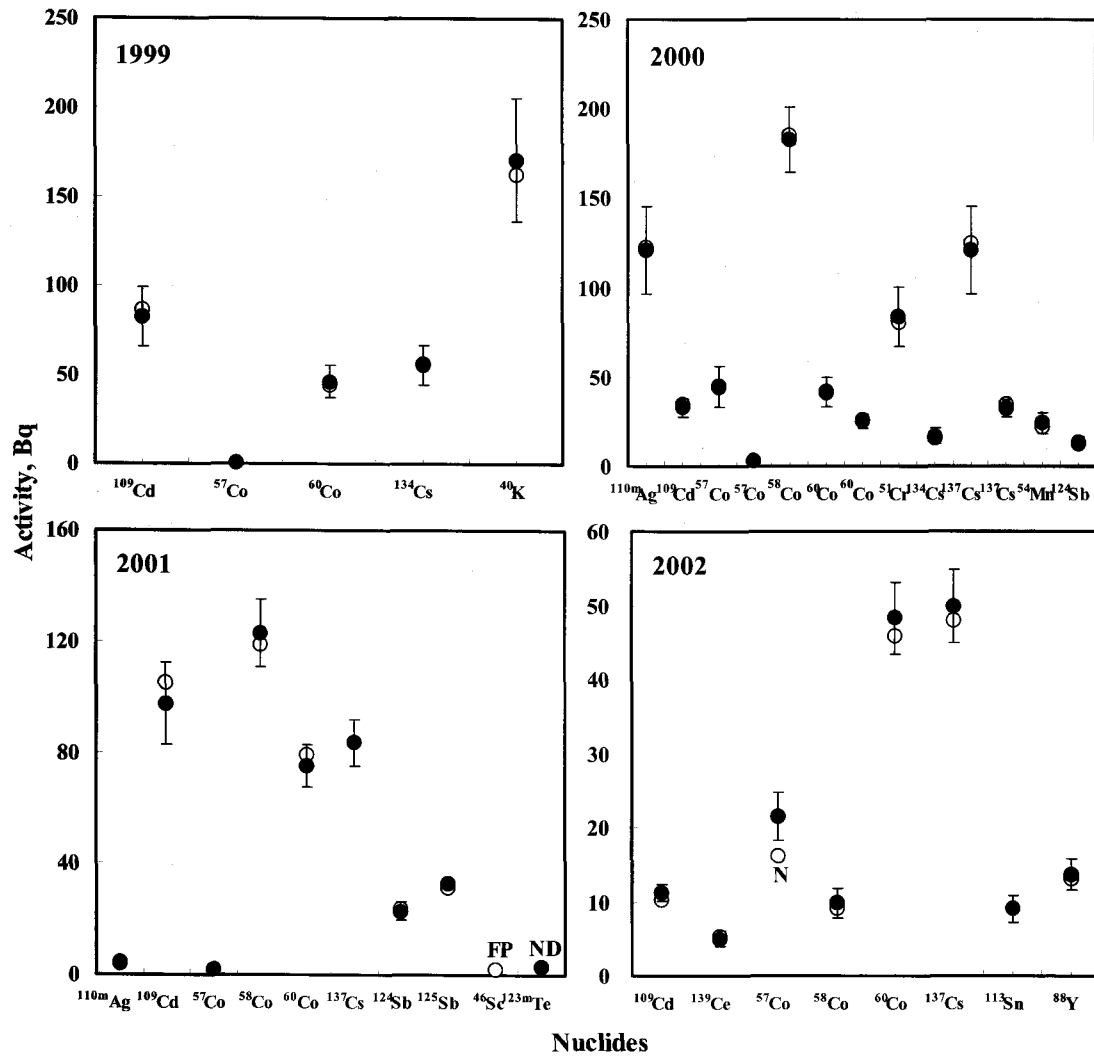


Fig. 3. Reported (○) and reference values (●) of radionuclides in the water samples from 1999 to 2002. FP: false positive, ND: not detected, N: not acceptable. Error bar: confidence interval. ¹⁰⁹Cd, ⁶⁰Co, ⁵¹Cr and ¹³⁷Cs of 2000 and ¹³⁷Cs activity of 2002: $\times 10^1$, ⁵⁸Co of 2000 and ¹⁰⁹Cd activity of 2002: $\times 10^2$.

단한 것과 2002년 및 2005년의 다른 여러 가지 에너지를 방출하는 ⁵⁷Co과 ¹²⁵Sb 핵종 판별 과정에 있어서 감마 방출율을 고려하지 않아 다소 기준값에 벗어난 결과를 보였다.

감마핵종 방사능 분석은 전베타 방사능 분석과는 달리 정확한 핵종을 판별한 다음 방사능농도를 계산하는 것이기 때문에 가장 중요한 점은 에너지 및 효율 교정이 잘 이루어져야 하고, 효율 교정에 있어서는 상이한 시료인 표준 선원과 계측시료 간의 시료 매질에 따른 밀도 차이를 잘 보정해 주어야 한다⁹⁾. 특히, 핵종 판별과정에서 분석자의 축적된 경험과 탁월한 분석 능력이 뒷받침되어야만 정확한 핵종을 판별할 수 있음을 숙지할 수 있었다.

종합 평가

1998년부터 2006년까지 9년 동안 국내 방사능 교차분석에 참여한 핵종별 분석 수와 종합 평가 결과를 Table 1에 나

타내었다. 처음 국내 방사능 교차분석에 참여하여 최근까지 평가 결과를 살펴보면, 매우 우수하게 평가된 "A" 등급 분포도는 감마핵종 분석인 경우 85.7% 이상이었으며, 전베타 분석은 처음에 다소 만족할 만한 결과를 받지 못했으나 그 이후에는 분석 기술의 능력이 향상되어 우수한 결과를 보였다. 또한 모든 참여 분석 기관들의 "A" 등급 분포도는 교차분석 초기인 1997년부터 1999까지는 다소 만족하지 못했으나 그 이후에는 대부분 70% 이상으로 매우 높게 평가 되었다.

이러한 환경방사능 분석 프로그램 과정을 통하여 방사능 분석 기술을 향상시킬 수 있었으며, 일련의 축적된 기술을 바탕으로 만일의 원자력 사고로 인한 환경 중 방사능 오염에 대처할 수 있는 신뢰도를 확보함으로써 원자력에 대한 국민의 이해 기반을 증진시키는데 조금이나마 기여하고자 한다. 또한, 앞으로 환경오염에 대한 관심이 높아지면서 더불어 환경방사능에 대한 인식도 많이 달라질 것으로 보인다. 따라서

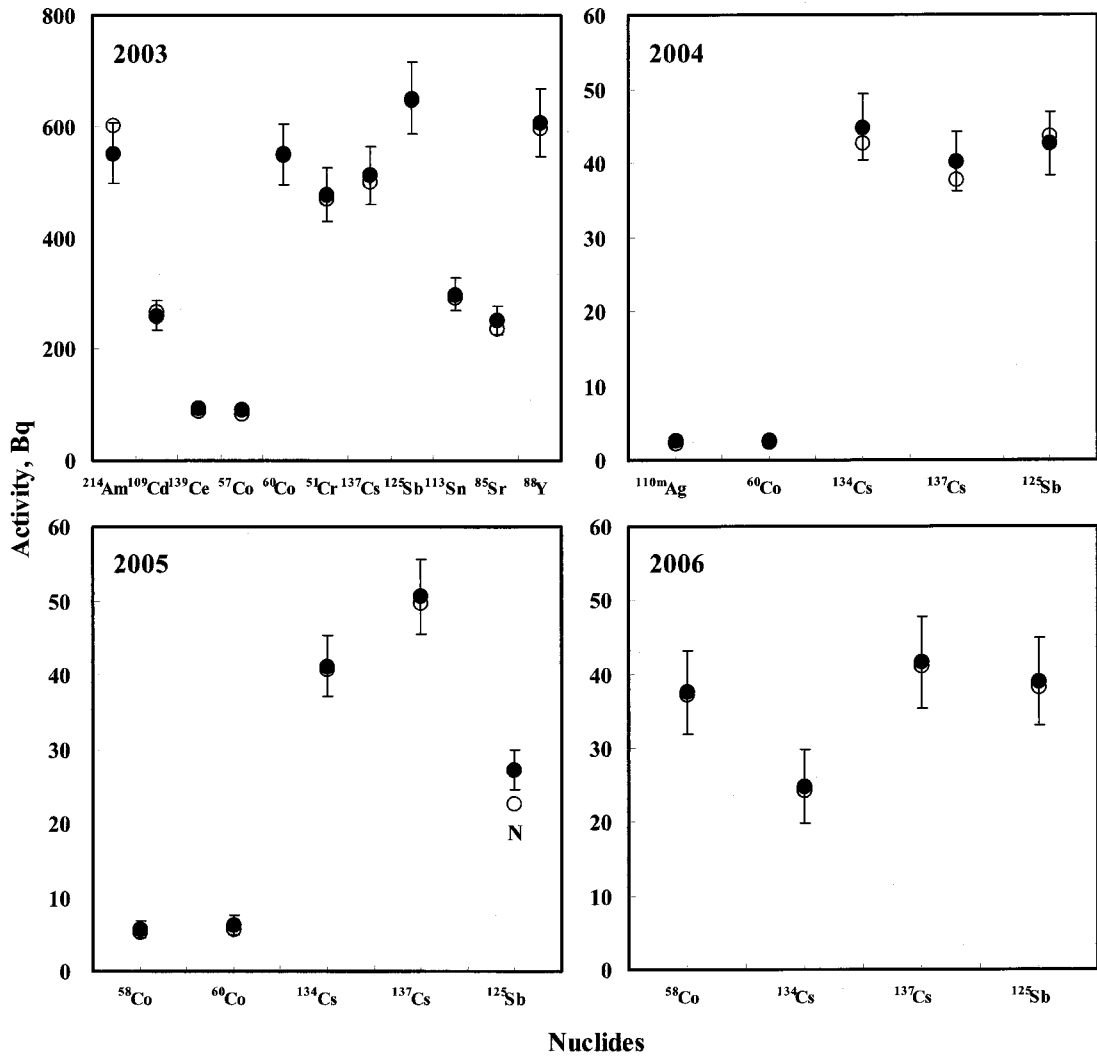


Fig. 4. Reported (○) and reference values (●) of radionuclides in the water samples from 2003 to 2006. FP: false positive, ND: not detected, N: not acceptable. Error bar: confidence interval. ¹⁰⁹Cd of 2003 and ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs activity of 2005: ×10⁴.

지속적인 환경방사능에 대한 관리를 위해서 시료의 종류와 분석 핵종수를 늘릴 필요가 있으며, 분석 결과에 대한 평가뿐만 아니라 오차 범위를 줄이기 위한 시료의 전처리 과정부터 분석까지 모든 시스템을 검증할 수 있는 체계를 갖추어야 할 것으로 사료된다.

요 약

1998년부터 2006년까지 국내 방사능 교차분석에 참여하여 제주지역의 환경방사능 감시를 위한 방사능 분석 기술의 능력 검증과 신뢰도를 확보하기 위하여 수행되었다. 전베타 방사능 분석 시료는 공기부유진 필터와 물이었고, 감마 분석은 토양과 물 시료 중 자연 및 인공 방사성 핵종들이었다. 전베타 방사능 분석 값은 1998년과 1999년 물 시료를 제외하

고는 모두 신뢰도 범위내의 값을 가졌고, 감마 핵종은 토양 시료 중의 ⁴⁰K와 ¹³⁷Cs 그리고 물 시료 중 몇 개의 핵종을 제외하고는 대부분 매우 우수한 평가를 받았다. 따라서 방사선 이상 사고시 원자력 안전을 위한 제주지역의 환경방사능 감시를 위한 신뢰도를 확보하여 자체적으로 환경방사능을 분석할 수 있는 능력을 함양하였다.

참고문헌

1. Lee, J. K. (2004) Forty Years of Environmental Radiation Monitoring in Korea. Proceedings of the International Symposium on the 40th anniversary of Environmental Radioactivity Monitoring

-
- in Korea, Korea, Nov. 10, 2004, p. 99-110.
 2. Park, J. W., Oh, Y. K. and Rho, B. H. (2003) Environmental radiation monitoring in Korea. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 255(1), 27-36.
 3. Betti, M. and de las Heras, L. A. (2004) Quality assurance for the measurements and monitoring of radioactivity in the environment. *J. Environ. Radioactivity* 72, 233-243.
 4. Erickson, M. D. (1997) EML Procedures Manual, HASL-300, 28th ed. US Department of Energy, New York.
 5. Oropesa, P., Hernandez, A. and Gutierrez, R. (2000) Technical factors of quality management in gamma-ray spectrometry of environmental samples. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 243(3), 809-816.
 6. Parr, R. M., Fajgelj, A., Dekner, R., Vera Ruiz, H., Carvalho, F. P. and Povinec, P. P. (1998) IAEA analytical quality assurance programmes to meet the present and future needs of developing countries. *Fresenius J. Anal. Chem.* 360, 287-290.
 7. Povinec, P. P. and Pham, M. K. (2001) IAEA reference materials for quality assurance of marine radioactivity measurements. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 248(1), 211-216.
 8. Vianna, M. E., Tauhata, L., Oliveira, J. P., Garcia, L. C., da Conceicao, C. S. and Clain, A. F. (1995) Quality of radionuclide analysis in environmental samples. *Sci. Total Envir.* 173-174, 15-18.
 9. Woods, M. J., Jerome, S. M., Dean, J. C. J. and Perkin, E. M. E. (1996) A Review of NPL Environmental Radioactivity Measurement Intercomparison Exercises: 1989-1994. *Appl. Radiat. Isot.* 47(9/10), 971-979.
 10. Korea Institute of Nuclear Safety (1997-2006) Domestic Radioactivity Intercomparison. KINS/AR-590.
 11. Pujol, Li. and Suarez-Navarro, J. A. (2004) Self-absorption correction for beta radioactivity measurements in water samples. *Appl. Radiat. Isot.* 60, 693-702.
-