

Simultaneous analysis method of ^{89}Sr and ^{90}Sr in liquid sample using automated separation system

Heewon Kim¹, Yong-Jin Lee^{1,2}, Sun-Ha Kim¹, Jin-Hong Lee²,
Jong-Myoung Lim¹, and Hyuncheol Kim¹★

¹Environmental Radioactivity Assessment Team, Korea Atomic Energy Research Institute,
111 Daedeok-daero 989beon-gil, Daejeon 34057, Korea

²Environmental Engineering, Chung-Nam University, 99 Daehak-ro, Yuseong-gu, Daejeo 34134, Korea

(Received November 13, 2020; Revised December 14, 2020; Accepted December 15, 2020)

자동핵종분리장치를 이용한 액체시료 중 ^{89}Sr , ^{90}Sr 동시분석법 연구

김희원¹ · 이용진^{1,2} · 김선하¹ · 이진홍² · 임종명¹ · 김현철¹★

¹한국원자력연구원 원자력환경실, ²충남대학교 환경공학
(2020. 11. 13. 접수, 2020. 12. 14. 수정, 2020. 12. 15. 승인)

Abstract: This study described the analytical method for simultaneous determination of ^{89}Sr and ^{90}Sr in liquid sample using automated separation system. Radiostrontium in 0.5 kg of liquid sample was concentrated as SrCO_3 to reduce the volume of sample, and purified from the sample using Sr-resin 2 mL (BV, Bed volume). The behavior of Sr and interferences such as Ba, Ca and Y were estimated with various flow rate ranging from 1 to 4 mL min^{-1} . The detailed procedure for the purification of Sr on Sr-resin was presented. The purified radiostrontium was measured in Cerenkov mode and then measured in Scintillation mode by mixing scintillation cocktail. The measured value in both modes were used to calculate the activity of ^{89}Sr and ^{90}Sr . The performance tests were carried out the lab-control-sample having various activity ratio of between ^{89}Sr and ^{90}Sr . The recovery of Sr was ranged from 68 to 94 %. The relative bias of ^{89}Sr activity was ranged from -5 to 20 %, and it was ranged from -10 to 10 % for ^{90}Sr .

요 약: 액체시료 중 ^{89}Sr 와 ^{90}Sr 을 자동핵종분리장치를 이용하여 Sr-resin으로 분리-정제하고, 액체섬광계수기(LSC)로 동시 분석하는 방법을 연구하였다. 액체시료 0.5 kg 중 방사성스트론튬을 탄산염 형태로 농축하고, Sr-resin 2 mL (Bed volume)으로 분리하였다. 유량이 최대 1 mL min^{-1} 까지 가능한 중력법과, 유량 2 mL min^{-1} , 4 mL min^{-1} 조건에서, Sr과 방해이온들의 거동을 평가하였다. LSC를 이용해 섬광용액을 혼합하지 않은 Cerenkov mode와, 섬광용액을 혼합한 Scintillation mode에서 측정된 결과를 이용해 정제된 ^{89}Sr 와 ^{90}Sr 의 방사능을 동시에 분석하였다. 표준선원을 이용해 $^{90}\text{Sr}/^{89}\text{Sr}$ 의 방사능 비가 1:1, 1:2, 1:5 되

★ Corresponding author

Phone : +82-(0)42-868-4461 Fax : +82-(0)42-868-1289

E-mail : hckim3@kaeri.re.kr

This is an open access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

도록 탈염수를 이용해 모의시료를 준비하였고, ^{89}Sr 방사능은 $0.5\sim 10\text{ Bq kg}^{-1}$, ^{90}Sr 방사능은 $0.5\sim 50\text{ Bq kg}^{-1}$ 의 범위이다. Sr의 회수율은 68~94%이고, ^{89}Sr 의 상대편의는 -5~20%, ^{90}Sr 방사능의 상대편의는 -10~10%로 나타났다.

Key words: ^{89}Sr , ^{90}Sr , LSC, liquid sample, automated separation

1. 서 론

순수베타핵종인 스트론튬-89(^{89}Sr , 최대 붕괴에너지 E_{\max} 1.492 MeV, 반감기 50.3 일)와 스트론튬-90(^{90}Sr , E_{\max} 0.546 MeV, 반감기 28.8 년)은 인공방사성핵종이자 핵분열생성물이다.¹ 알칼리 토금속인 Sr은 칼슘(Ca), 바륨(Ba)과 탄산염(MCO_3), 황산염(MSO_4), 수산화물($\text{M}(\text{OH})_2$) 등의 형태에서 모두 물에 대한 용해도 값이 낮으며 서로 유사하기 때문에 분리하기 어렵다. 특히, Ca, Ba 방사성동위원소인 ^{41}Ca , ^{133}Ba , ^{140}Ba 이 존재할 경우, 측정과정에서 Sr의 방사능 농도를 과대평가할 수 있기 때문에 반드시 분리해야 한다.^{2,3}

방사성스트론튬을 분석하기 위해서는 시료 전처리, Sr의 화학 분리, 베타선 계측이라는 3단계를 거쳐야 한다.^{4,5} 액체 시료에서의 전처리 목적은 분석 목표물을 제외한 방해물질의 최소화 및 시료 부피의 감소이다. 염분 함량이 높은 해수의 경우, 침전법을 이용해 불필요한 염류를 제거하고 시료 부피를 감소시킬 수 있다.^{6,7} 알칼리 토금속은 수산화염, 탄산염, 황산염, 옥살산염 등으로 침전되며, 산(acid)을 가하면 쉽게 용해된다. 침전물은 여과나 원심분리를 통해 고체-액체 분리가 가능하며, 증발법에 비해 1가 양이온 등을 쉽게 제거할 수 있다. pH와 첨가 물질에 따라 알칼리 토금속 내에서의 선택성도 부과되기 때문에 화학분리 단계에도 침전법을 적용할 수 있다. 최근에는 해수 중 ^{90}Sr 과 방사평형을 이룬 ^{90}Y 를 선택적으로 분리할 수 있는 DGA resin을 활용하여, 해수 중 ^{90}Sr 을 분석하는 방법이 소개되었다.^{8,9}

화학 분리 단계는 Sr을 제외한 모든 방해이온과 ^{90}Y 를 분리하는 단계이다. 주로 시료 전처리 단계에서 제거되지 않은 Ca, Ba, Y이 대상이며, 선택적 침전법,^{7,10,11} 추출크로마토그래피법^{4,12,13} 등이 있다. 선택적 침전의 가장 대표적인 방법은 Ca와 Sr을 분리하는 발연질산법이다. 발연질산(fuming nitric acid)에서 질산스트론튬의 용해도가 낮은 점을 이용하여 Ca를 분리하기 위해 사용된다. Sr과 가장 늦게 분리되는 Ba은 chromate 침전법을 사용해 Sr과 분리할 수 있다. 유효도가 높은

시약을 대량으로 취급해야 하고, 높은 회수율을 위해 여러 번 반복해야 한다는 단점이 존재한다. 용매 추출법은 액체-액체 추출법으로도 불리며, 킬레이트나 유기용매 등을 이용한다.^{14,15} 추출크로마토그래피는 용매추출법과 칼럼크로마토그래피를 결합한 방법으로, 시판되는 제품에는 Eichrom사의 Sr-Resin이 있다. 일반적으로 Sr-resin 컬럼에 시료와 세척 용액을 중력이나 진공펌프를 이용해 통과시켜 사용하는데¹³, 한국원자력연구원 원자력환경실에서 개발한 자동핵종분리장치(이하 KXT-H, Kaeri eXtraction Technology-Hybrid)는 프로그래밍된 최적화(Conditioning)-시료(Load)-세척(Rinsing)-용출(Elution) 단계를 자동으로 수행한다.⁴ Sr Resin을 통과하는 장치 내 용액 및 시료는 펌프에 의해 일정하게 주입되며 분석자의 숙련도 여부와 관계없이 동일한 결과를 빠르게 얻을 수 있다. 또한 한번에 8개까지 동시에 Sr을 분리할 수 있으며 수행시간 동안 작업자가 다른 업무에 집중할 수 있다는 점에서 기존의 중력법, 진공펌프를 이용한 분리의 한계점을 개선하였음을 보여준다.

마지막 세 번째 단계는 베타선 측정이며, 주로 가스 비례계수기(GPC, Gas Proportional Counter) 또는 액체섬광계수기(LSC, Liquid Scintillation Counter)가 이용된다. ^{89}Sr 와 달리, ^{90}Sr 은 붕괴하는 동안 딸핵종 ^{90}Y 를 생성한다. ^{90}Y 은 베타핵종으로서 반감기가 짧고(64.4 시간), 베타에너지가 크다(E_{\max} 2.2 MeV).¹ 이를 이용해 ^{89}Sr 과 ^{90}Sr 이 혼합된 시료 중 두 핵종을 동시 분석할 수 있다. ^{89}Sr 과 ^{90}Sr 이 혼재된 시료를 측정하는 방법은 Sr 화학분리 후 GPC(또는 LSC)로 측정(1차 측정)한 다음, ^{90}Sr 과 ^{90}Y 이 방사평형을 이루는 20일이 지난 뒤, ^{90}Y 를 추출하고 GPC(또는 LSC)로 측정(2차 측정)하여 ^{90}Sr 의 방사능을 결정한다.¹⁶ 1차 측정값은 $^{89}\text{Sr}+^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ 의 측정 결과이고, 2차 측정값은 ^{90}Y 의 측정 결과이다. Sr 분리 후 ^{90}Y 이 생성되는 정도를 계산할 수 있기 때문에, 2차 측정값을 바탕으로 ^{90}Sr 의 방사능을 계산한다. 이것을 1차 측정값에 적용하여, ^{89}Sr 의 방사능을 계산한다. Kim *et al.* (2009)는 한 번의 LSC 측정으로 ^{89}Sr 과 ^{90}Sr 을 동시분석하는 방

법을 소개하였다.¹⁷ Sr을 화학분리하고, ⁹⁰Sr과 ⁹⁰Y이 방사평형을 이룬 20일이 지난 뒤 LSC로 측정한다. ⁸⁹Sr, ⁹⁰Sr, ⁹⁰Y의 LSC 스펙트럼의 시작 및 끝 지점에 따라 채널(channel)을 구분하여 후 ⁸⁹Sr, ⁹⁰Sr의 방사능을 계산하였다. 앞서 소개한 방법들은 기본적으로 Sr 분리 후, ⁹⁰Sr과 ⁹⁰Y이 방사평형을 이루게 한 다음 ⁹⁰Y을 분리하거나 측정함으로써 ⁸⁹Sr과 ⁹⁰Sr의 방사능을 계산할 수 있다. IAEA 보고서에 따르면, Sr 분리 직후 섬광용액 없이 LSC에서 측정하고(Cerenkov mode), 뒤 이어 동일 시료에 섬광용액을 섞어 LSC로 측정(Scintillation mode)하여 ⁸⁹Sr과 ⁹⁰Sr을 동시분석할 수 있다.¹⁸

일반 환경에서 발견되는 ⁸⁹Sr과 ⁹⁰Sr은 핵실험이나 후쿠시마 원전 사고와 같은 원자력시설 사고와 관련되어 있으며, 가동 중인 원자력발전소의 1차계통수에서 ⁸⁹Sr과 ⁹⁰Sr이 급증하는 경우 핵연료 손상의 지표로서 활용되기도 한다. ⁸⁹Sr의 반감기가 50.3일로 짧기 때문에, 환경 중 ⁸⁹Sr의 검출은 원자력시설 사고 또는 비계획적 방출에 의한 것으로 판단할 수 있다. 이에 따라 국내 원자력발전소에서는 Nureg-1301을 근거로 환경으로 배출되는 액체 및 기체 배출물에 대한 ⁸⁹Sr과 ⁹⁰Sr의 검출하한치(LLD, Lower Limit of Detection)를 제시하고 이를 만족하는지 분기별로 기록하고 있다.¹⁹ 가동 중인 1,000 MWe 가압경수로 기준 1, 2차 계통에서 생성되는 액체폐기물은 일 평균 약 72,000 리터인데,²⁰ 각 계통의 대표 시료만 분석해도 양이 상당하며 추후 고리1호기의 해체가 진행 시 더 많은 방사성스트론튬 분석 수요가 예상되고 있다. 이 외에도 원자력안전위원회 고시 제2017-17호에 따라 원자력시설 주변 환경 감시를 위해 필수적으로 분석되어야 하는 핵종 중 하나이며, 방사성폐기물 처분을 위해 규명되어야 하는 필수 핵종이기 때문에 시료의 처리 단계를 경량화하고 대량 시료를 효율적으로 분석할 수 있는 방법을 고민하였다.

본 연구는 액체배출물 내 ⁸⁹Sr과 ⁹⁰Sr의 동시 분석을 대상으로 하였으며 전처리 방법으로서 탄산염 침전을, 화학분리방법으로서 자동핵종분리장치와 Sr Resin을 이용한 추출 크로마토그래피법을 적용하였다. LSC를 이용해 Cerenkov/Scintillation mode에서 연속 측정함으로써, 분리 후 신속하게 ⁸⁹Sr, ⁹⁰Sr 방사능을 분석하였다. 실제 원자력발전소 액체배출물 시료의 화학적 특성을 평가한 뒤, 본 연구에서 개발된 방법을 적용할 수 있는지 평가하였다. Sr resin 사용 시 유량에 따른 Sr 분리능을 비교하였고, 분석절차를 제시하였다. 표

준선원을 이용하여 ⁸⁹Sr과 ⁹⁰Sr의 혼합 비율에 따른 동시분석 결과를 평가하여, 본 연구에서 제안한 분석법의 유효성을 확인하였다.

2. 재료 및 방법

2.1. 시약, 시료 및 기구

모든 시약은 분석급을 사용하였다. 시약 제조에 사용한 물은 MilliQ-Plus 순수 제조기에서 생산된 탈염수(18.2 MΩ-cm)를 이용하였다. ⁸⁹Sr 및 ⁹⁰Sr 표준선원은 Eckert & Ziegler Analytics, Inc. (Atlanta, GA, USA)에서 구매하여 희석하였다. Sr의 회수율 평가 및 방해이온들의 거동을 평가하기 위해, Sr, Ba, Ca, Y 운반체(Carrier)를 각각 10 mg g⁻¹이 되도록 제조하였다. Sr 분리-정제에 사용한 Sr-resin (50-100 μm, Eichrom technologies, USA)은 2 mL 컬럼과 5 mL 컬럼(Eichrom technologies, USA)에 각각 2 mL (BV, bed volume) 되도록 충전하였다. 2 mL 컬럼은 한국원자력연구원 원자력환경실에서 개발한 KXT-H에 적용하였고, 5 mL 컬럼은 중력법(Gravity method)에 적용하였다. Sr과 양이온 거동을 위해 유도결합플라즈마 분광분석기(ICP-OES, SPECTRO Analytical Instruments GmbH, Germany)를 사용하였다. 정제된 방사성스트론튬을 폴리에틸렌 재질의 20 mL 바이알에 채우고, LSC (Quantulus 1220, Perkin-Elmer, USA)에서 측정하였다. Scintillation mode에서 사용한 섬광용액은 Ultima Gold AB(Perkin Elmer, USA)이다.

본 연구에서 개발된 분석법을 검증하기 위해, 탈염수에 Sr Carrier와 ⁸⁹Sr, ⁹⁰Sr 표준선원을 혼합하였다. 10 M HCl을 이용해 시료의 최초 pH를 2로 조절한다. 분석절차를 따랐다. 국내 원자력발전소에서 발생하는 액체배출물에 적용할 수 있는지 알아보기 위해, 원전 액체배출물 중 이온 조성을 ICP-OES로 분석하였다.

2.2. 시료 전처리

액체시료 0.5 kg 중 방사성스트론튬을 분석하기 위한 시료 전처리 방법은 Sr-resin에 적합한 형태로 농축해야 한다. Sr을 탄산염 형태로 침전한 다음 고/액 분리와, 침전물을 8 M HNO₃ 매질이 되도록 진한 질산에 용해시킨다. 전처리 효율을 평가하기 위해 탈염수 0.5 kg에 Sr이 2 mg과 4 mg이 되도록 Sr Carrier를 첨가해 모의시료를 준비하였다. 4 M NaOH를 이용해 pH가 10 이 되도록 조절한다. 2 M Na₂CO₃, 10 mL

를 넣은 후, 90 °C 조건에서 30 분 동안 혼합한다. 유리섬유 필터(GF/F)를 이용해 침전물을 거른다. 시료가 들어있던 용기를 0.01 M NaOH 용액으로 세척 후, GF/F 필터에 여과한다. 필터 위 침전물은 14 M HNO₃ 5 mL와 8 M HNO₃ 5 mL로 순차적으로 용해시킨다.

2.3. Sr-resin에서 Sr과 방해이온의 거동

Sr-resin에서 Sr과 방해이온의 거동을 유량별로 살펴 보기 위해, 중력법과 유량 2 mL min⁻¹, 4 mL min⁻¹ 조건에서 시험하였다. 중력법의 경우 5 mL 컬럼을 사용하고, 자동핵중분리장치에 2 mL 컬럼을 사용하였다. Sr, Ba, Ca, Y 안정동위원소가 4 mg씩 포함된 용액에 14 M HNO₃을 첨가하여, 최종 8 M HNO₃ 10 mL가 되도록 시료를 준비하였다. Sr-resin 2 mL (BV)에 8 M HNO₃ 20 mL를 통과시켜 최적화하였다. Sr과 방해이온이 포함된 시료를 Sr-resin 컬럼에 통과시키면서 2 mL(중력법) 또는 5 mL (2 mL min⁻¹, 4 mL min⁻¹) 씩 수집한 다음 ICP-OES로 분석하였다. 시료 주입이 끝난 후 8 M HNO₃을 Sr-resin 컬럼에 통과시키고, 컬럼을 빠져 나온 용액을 회석하여 ICP-OES로 분석하였다.

2.4. LSC 계측 효율 결정

LSC를 이용해 ⁸⁹Sr, ⁹⁰Sr 동시 분석을 위해, Cerenkov mode와 Scintillation mode에서 측정하였다. 이를 위해, Cerenkov mode와 Scintillation mode에서의 ⁸⁹Sr, ⁹⁰Sr, ⁹⁰Y 계측효율이 필요하다.

약 5 Bq의 ⁸⁹Sr을 20 mL vial에 담고, 최종 10 mL가 되도록 0.05 M HNO₃을 혼합한다. Table 1의 LSC 측정 조건에서 측정하여 Cerenkov mode 일 때 ⁸⁹Sr의 계측효율을 결정한다. Ultima Gold AB 10 mL를 혼합한 다음, Scintillation mode 일 때 ⁹⁰Sr의 계측효율을 결정한다.

⁹⁰Sr과 ⁹⁰Y의 계측효율을 구하기 위해 Fig. 1의 절차를 수행한다. 약 5 Bq의 ⁹⁰Sr과 Sr 및 Y Carrier 4 mg을 50 mL tube에 옮기고, 최종 10 mL가 되도록 탈염수를 혼합한다. 1 M NaOH 용액을 이용해, 시료의 pH를 10으로 조절한다. 이 때, Y은 Y(OH)₃로 침전하

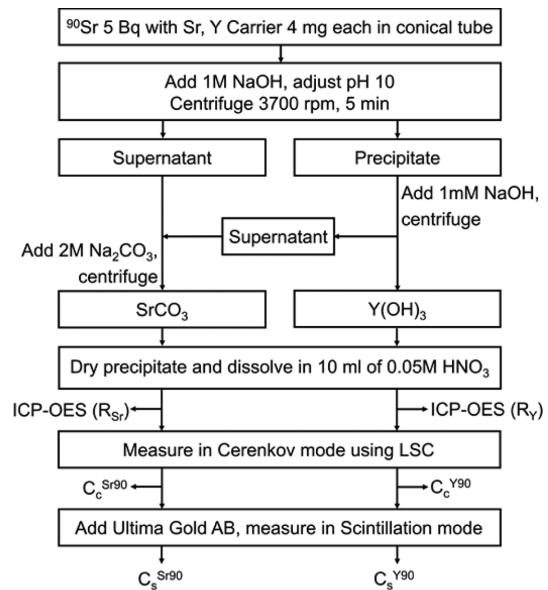


Fig. 1. Procedure for determination of counting efficiency of ⁹⁰Sr and ⁹⁰Y in Cerenkov/Scintillation mode.

고, Sr은 Sr²⁺로 상등액에 존재한다. 30 분 동안 90 °C에서 중탕한 다음, 원심분리하여 상등액과 침전물을 분리한다. 분리한 침전물에 0.01 M NaOH 20 mL를 첨가하고 강하게 혼합한다. 원심분리한 다음, 상등액은 앞서 분리한 상등액과 혼합한다. 분리한 시간을 기록한다(t₀). Sr²⁺이 포함된 상등액에 2 M Na₂CO₃ 5 mL를 첨가하고 30 분 동안 90 °C에서 중탕한다. 원심분리하여 침전물을 분리한 다음, 오븐에서 건조시키고 0.05 M HNO₃ 10 mL로 용해한다. 약 0.02 mL를 분취해 회석하고, ICP-OES로 Sr의 회수율을 평가한다. 앞서 Y(OH)₃이 포함된 침전물을 건조한 후, 0.05 M HNO₃ 10 mL로 용해한다. 약 0.02 mL를 분취한 다음 회석하여, ICP-OES로 Y의 회수율을 평가한다.

⁹⁰Sr과 ⁹⁰Y가 각각 용해된 시료를 Table 1의 Cerenkov mode에서 측정한 다음, 섬광용액(Ultima Gold AB) 10 mL를 혼합하고 Scintillation mode에서 측정한다. 앞서 기록한 ⁹⁰Sr과 ⁹⁰Y의 분리시간(t₀)을 기준으로, ⁹⁰Sr과 ⁹⁰Y의 Cerenkov mode, Scintillation mode에서의 계측효율을 계산한다.

2.5. ⁸⁹Sr, ⁹⁰Sr 방사능 동시 분석

⁹⁰Sr과 ⁸⁹Sr이 각각 존재하거나 혼합된 모의시료 0.5 kg을 준비하였다. ⁹⁰Sr 0.2 Bq kg⁻¹, 50 Bq kg⁻¹를 준비하고, ⁸⁹Sr 0.2 Bq kg⁻¹, 10 Bq kg⁻¹를 준비하였다.

Table 1. Operating conditions of LSC

| Cerenkov Mode | Scintillation Mode |
|----------------------------------|------------------------------------|
| C-14, low biased window : 20-400 | C-14, high biased window : 120-950 |

모의시료는 ^{89}Sr 과 ^{90}Sr 의 방사능 농도비 1:1, 1:2, 1:5를 기준으로 준비하였다. 앞선 실험을 바탕으로 개발된 분석절차에 따라, Sr-resin 2 mL (BV)를 이용하고 유량 2 mL min^{-1} 에서 분리하였다. Sr-resin에서 추출한 용액의 pH를 10으로 조절하고, 2 M Na_2CO_3 10 mL를 넣고 90°C 에서 30 분간 증탕하였다. 원심분리기를 사용하여, 상등액과 침전물을 분리하였다. 건조시간을 단축하기 위해 침전물에 에탄올 20 mL를 넣고 강하게 혼합한 다음 90°C 에서 30분간 건조하였다. 0.05 M HNO_3 10 mL를 이용해 침전물을 용해하고, 0.02 mL를 분취하여 희석한 다음 ICP-OES로 Sr의 회수율을 평가하였다. 분리 후 바로 Cerenkov mode에서 60 분간 측정 한 다음, 섬광용액 혼합 후 Scintillation mode에서 60 분 동안 계측하였다.

3. 결과 및 토의

3.1. 액체시료 중 전처리 공정의 Sr 회수율

액체시료가 0.5 kg 일 때, 탄산염 침전으로 Sr을 농

축할 때 필요한 적정 Sr carrier 양을 시험하였다. Sr 안정동위원소 2, 4 mg을 포함한 탈염수 0.5 kg의 pH를 10으로 조절한 다음, Na_2CO_3 용액을 이용해 Sr^{2+} 을 SrCO_3 로 침전하였다. 필터(GF/F)를 사용하여 걸러진 침전물 중에 포함된 Sr을 분석한 결과, Sr carrier 양에 관계 없이 89.0~97.0% ($n=12$)의 회수율을 보였다. SrCO_3 의 용해도곱상수($K_{sp}=5.6 \times 10^{-10}$)를 고려하면, 2 M Na_2CO_3 5 mL는 SrCO_3 침전을 위해 충분한 조건이다.

SrCO_3 침전은 액체시료 전처리 외에, Sr-resin으로 정제된 Sr을 LSC 측정용 시편으로 만들 때도 적용된다. 이때는 분석자 편의 측면에서 필터를 이용한 여과보다 원심분리기를 이용하여 침전물을 용액에서 분리한다. Sr carrier 2 mg, 4 mg이 포함된 탈염수 20 mL의 pH를 조절한 다음 Na_2CO_3 를 넣고 SrCO_3 로 침전하였다. Sr carrier 2 mg의 경우 회수율은 82-83% ($n=2$), 4 mg의 경우 회수율은 92-94% ($n=2$)로 나타났다. Sr carrier 2 mg 일 때, 침전된 SrCO_3 의 무게가 상대적으로 가벼워 원심분리가 충분히 되지 않은 것으로 보인

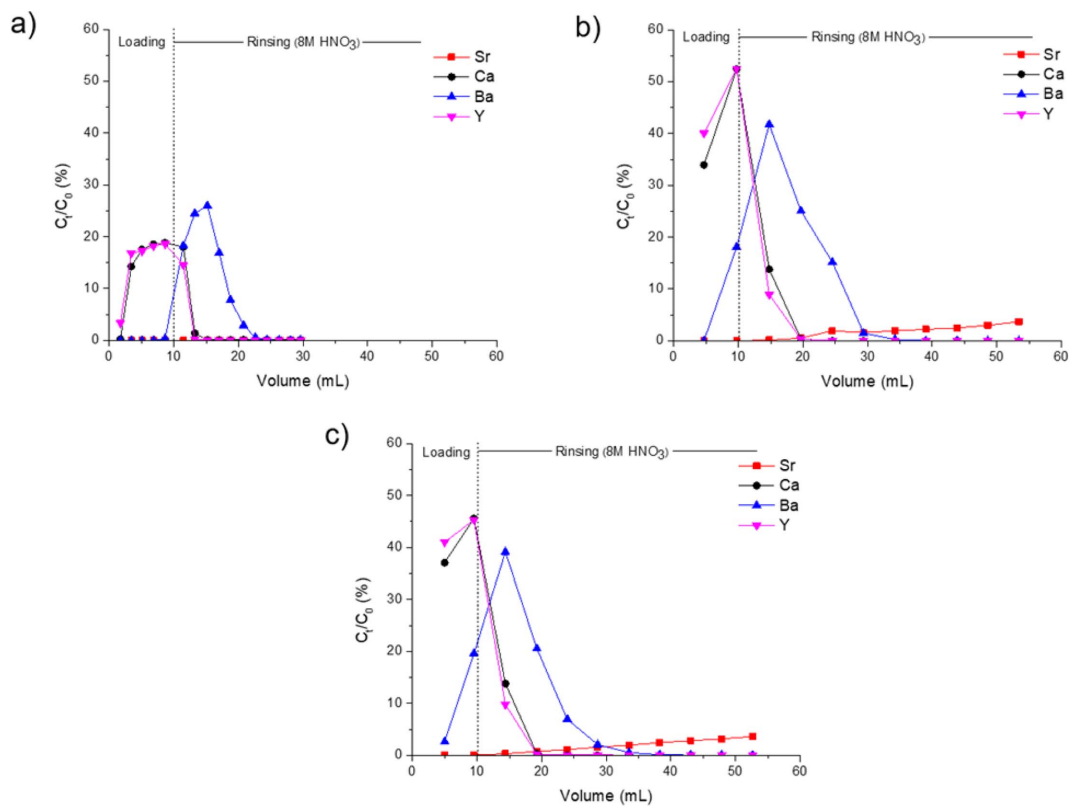


Fig. 2. Behavior of Sr, Ca, Ba and Y in Sr-resin (2 mL, BV) at gravity method (a), 2 mL min^{-1} (b), and 4 mL min^{-1} (c).

다. 0.5 kg의 액체시료 중 Sr을 농축하고 Sr-resin 2 mL (BV) 정제 공정을 거친 다음 LSC 시편 제조할 때의 회수율을 고려하면 Sr carrier 4 mg이 최적으로 보인다.

3.2. Sr Resin 통과 유량의 결정

Fig. 2는 Sr Resin에서 Sr, Ca, Ba, Y의 거동을 보여 주고 있다. Sr, Ca, Ba, Y를 각 4 mg 포함한 8 M HNO₃ 10 mL의 시료를 Sr-resin 2 mL (BV)에 통과시키고, 8 M HNO₃을 계속 흘려보내면서 Sr-resin 컬럼을 빠져나온 이온의 농도를 분석하였다. 중력법(Gravity method)과 유량 2 mL min⁻¹, 4 mL min⁻¹의 조건에서 실험하였다.

중력법의 경우 5 mL 컬럼에 Sr-resin 2 mL (BV)를 충전하였기 때문에, 컬럼 내에 약 10 mL 정도의 액체를 넣을 수 있다. 한편, 5 mL 컬럼에 남아있는 시료의 부피에 따라 유량이 달라졌다. 10 mL를 채웠을 때 유량은 약 1 mL min⁻¹, 남은 용액이 2 mL 일 때, 0.2-0.3 mL min⁻¹를 보였다. 종합해보면, 5 mL 컬럼에 채운 용액 10 mL가 Sr-resin 2 mL(BV) 컬럼을 빠져나올 때까지 걸린 시간은 총 30-40 분이다. 중력법에서, Ca과 Y은 유량과 관계없이 시료 주입>Loading) 단계에서 40% 이상 Sr-resin 컬럼을 빠져나온다. 10 mL (5 BV)이상의 8 M HNO₃을 세척(Rinsing) 용액으로 사용하면, 모든 Ca과 Y은 Sr-resin에서 제거된다.

중력법일 때, Ba이 모두 제거된 시점은 시료 주입 후 8 M HNO₃ 22 mL(약 10 BV)이고, 8 M HNO₃ 30 mL를 흘려보내도 Sr은 검출되지 않았다. 반면, 유량이 2 mL min⁻¹에서 4 mL min⁻¹로 커질수록 Sr이 8 M HNO₃ 15 mL로 세척할 때 Sr-resin 컬럼에서 빠져나오기 시작한다. Ba이 완전히 제거되는 시점은 중력법보다 다소 긴 8 M HNO₃ 30 mL, 35 mL로 나타났다. Ba을 Sr-resin에서 완전히 제거하는 동안 2 mL min⁻¹에서 8.3%, 4 mL min⁻¹에서 10.8%의 Sr이 Ba

과 함께 Sr-resin을 빠져나갔다.

기존 연구에 따르면,⁵ Sr-resin 2 mL (BV) 컬럼에서 유량에 관계없이 탈염수 12 mL (6 BV)를 흘려보내면 모든 Sr을 추출하였다. 중력법이나 유량 2 mL min⁻¹, 4 mL min⁻¹ 조건에서 Sr-resin 2 mL (BV)를 이용해 Sr을 분리-정제하기 위한 분석절차는 Table 2와 같다.

중력법은 분석자가 수시로 시료의 상태를 확인해야 하고 용액을 단계별로 바꿔주어야 한다는 점과 여러 시료를 동시에 처리한다고 해도 4 단계 수행에 3시간 이상 소요된다는 점은 발전소 액체 배출물과 같이 동시에 수십 - 수백 개의 시료를 다룸에 있어 공간 및 시간 기준 비효율적이라고 판단하였다. 반면에 KXT-H는 동시에 8개까지 분리가 가능하며 2 mL min⁻¹ 운영 시 40분, 4 mL min⁻¹인 경우 20분 내외로 소요될 뿐만 아니라 분리과정에서 분석자가 단계 중간을 확인하지 않고 다른 업무에 집중할 수 있는 장점이 있었다. 또한 장비 사용 전 시약을 보충하는 단계 외에는 분석 과정에서 고농도의 질산이 완전히 차단된 상태에서 분석이 이루어진다는 점에서 분석자 및 실험실 안전에 기여하는 부분이 컸다.

3.3. LSC 계측효율 결정

⁸⁹Sr와 ⁹⁰Sr 표준선원을 이용해, Cerenkov mode와 Scintillation mode에서 ⁸⁹Sr, ⁹⁰Sr 그리고 ⁹⁰Y의 계측효율을 각각 평가했다. 식 (1), (4)와 같이, ⁸⁹Sr의 계측효율은 표준선원을 LSC 시편에 적합하게 준비한 후 LSC로 측정하여 계산된다. ⁹⁰Sr과 ⁹⁰Y 계측효율의 경우, 이미 ⁹⁰Y와 방사평형된 ⁹⁰Sr 표준선원에서 ⁹⁰Y를 분리한 후, Sr과 Y의 회수율을 고려해야 한다. 특히 ⁹⁰Y의 계측효율을 결정할 때, ⁹⁰Y의 붕괴율을 보정해야 한다. ⁹⁰Sr 표준선원에서 분리한 ⁹⁰Y는 분리된 시간(t₀)부터 붕괴된다. 분리과정의 Y 회수율과 Cerenkov mode/Scintillation mode의 각 측정시간까지의 붕괴율을 고려하여 ⁹⁰Y의 계측효율을 계산한다 (식 (2), (5)). 정제된 ⁹⁰Sr은 정제순간부터 ⁹⁰Y가 생성되기 때문에, LSC 측정 계수율에서 ⁹⁰Y에 의한 계수율을 보정한 다음 ⁹⁰Sr의 계측효율을 계산한다 (식 (3), (6)). 따라서, ⁹⁰Y의 계측효율을 먼저 결정한 다음, ⁹⁰Sr의 계측효율을 계산한다.

$$\epsilon_c^{Sr89} = \frac{C_c^{Sr89} - C_c^{bkg}}{A_{Sr89}} \quad (1)$$

$$\epsilon_c^{Y90} = \frac{C_c^{Y90} - C_c^{bkg}}{A_{Sr90} \cdot \exp(-\lambda_{Y90} \cdot (t_1 - t_0)) \cdot R_Y} \quad (2)$$

Table 2. Protocol for separation of Sr using Sr-resin (2 mL, BV)

| Process | Reagent | Volume (mL) | | |
|--------------|----------------------|-------------|------------------------|------------------------|
| | | Gravity | 2 mL min ⁻¹ | 4 mL min ⁻¹ |
| Conditioning | 8 M HNO ₃ | | 20 mL | |
| Loading | Sample | | 10 mL | |
| Rinsing | 8 M HNO ₃ | 22 mL | 30 mL | 36 mL |
| Elution | DIW* | | 20 mL | |

*DIW: de-ionized water

$$\varepsilon_c^{Sr90} = \frac{C_c^{Sr90} - C_c^{bkg}}{A_{Sr90} \cdot R_{Sr}} - \varepsilon_c^{Y90} \cdot f_2 \quad (3)$$

$$\varepsilon_s^{Sr90} = \frac{C_s^{Sr89} - C_s^{bkg}}{A_{Sr89}} \quad (4)$$

$$\varepsilon_s^{Y90} = \frac{C_s^{Y90} - C_s^{bkg}}{A_{Sr90} \cdot \exp(-\lambda_{Y90} \cdot (t_2 - t_0)) \cdot R_Y} \quad (5)$$

$$\varepsilon_s^{Sr90} = \frac{C_s^{Sr90} - C_s^{bkg}}{A_{Sr90} \cdot R_{Sr}} - \varepsilon_s^{Y90} \cdot f_2 \quad (6)$$

$$f_1 = 1 - \exp(-\lambda_{Y90} \cdot (t_1 - t_0)) \quad (7)$$

$$f_2 = 1 - \exp(-\lambda_{Y90} \cdot (t_2 - t_0)) \quad (8)$$

$\varepsilon_c^{Sr89} / \varepsilon_c^{Sr90} / \varepsilon_c^{Y90}$: Cerenkov counting efficiency of $^{89}\text{Sr}/^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$

$\varepsilon_s^{Sr89} / \varepsilon_s^{Sr90} / \varepsilon_s^{Y90}$: Scintillation counting efficiency of $^{89}\text{Sr}/^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$

C_c^{bkg} : Cerenkov counting rate of background sample

$C_c^{Sr89} / C_c^{Sr90} / C_c^{Y90}$: Cerenkov counting rate of ^{89}Sr / $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ standard sample

C_s^{bkg} : Scintillation counting rate of background sample [cps]

$C_s^{Sr89} / C_s^{Sr90} / C_s^{Y90}$: Scintillation counting rate of ^{89}Sr / $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ standard sample [cps]

A_{Sr89} / A_{Sr90} : Activity of $^{89}\text{Sr}/^{90}\text{Sr}$ standard sample at measurement time [Bq]

f_1/f_2 : Correction factor for ^{90}Y ingrowth for the time interval between the separation time and the measurement time in Cerenkov/Scintillation counting mode

t_0 : Separation time

t_1/t_2 : Time of measurement of sample in Cerenkov/Scintillation counting mode.

R_{Sr}/R_Y : Recovery of Sr/Y

^{90}Sr 과 ^{90}Y 의 계측효율을 구하기 위해, Fig. 1에 따라 ^{90}Sr 표준선원을 침전법을 이용해 ^{90}Sr 과 ^{90}Y 으로 각각 분리하였다. ^{90}Sr 을 분리한 시료 중 Sr 회수율은 76.2%이고, Y은 검출되지 않았다. ^{90}Y 을 분리한 시료 중 Y의 회수율은 98.5%이고, Sr은 검출되지 않았다. ^{90}Sr 을 분리한 시료는 딸핵종 ^{90}Y 의 생성율이 최소화되도록 가급적 분리 직후 바로 LSC로 측정하였다. ^{90}Y 을 분리한 시료를 이용해 ^{90}Y 의 Cerenkov 계측효율 64.6 ± 2.8%, Scintillation 계측효율 100.9 ± 2.6%로 결정하였다. ^{90}Sr 을 분리한 시료에서 딸핵종 ^{90}Y 의 생

Table 3. Counting efficiency of ^{89}Sr , ^{90}Sr , and ^{90}Y in Cerenkov and Scintillation mode

| Radionuclide | Cerenkov mode (%) | | Scintillation mode (%) | |
|------------------|-------------------|-------|------------------------|------|
| | Efficiency | s.d.* | Efficiency | s.d. |
| ^{89}Sr | 45.1 | 2.6 | 101.3 | 3.0 |
| ^{90}Sr | 2.5 | 0.4 | 98.9 | 0.6 |
| ^{90}Y | 64.6 | 2.8 | 100.9 | 2.6 |

*s.d: standard deviation

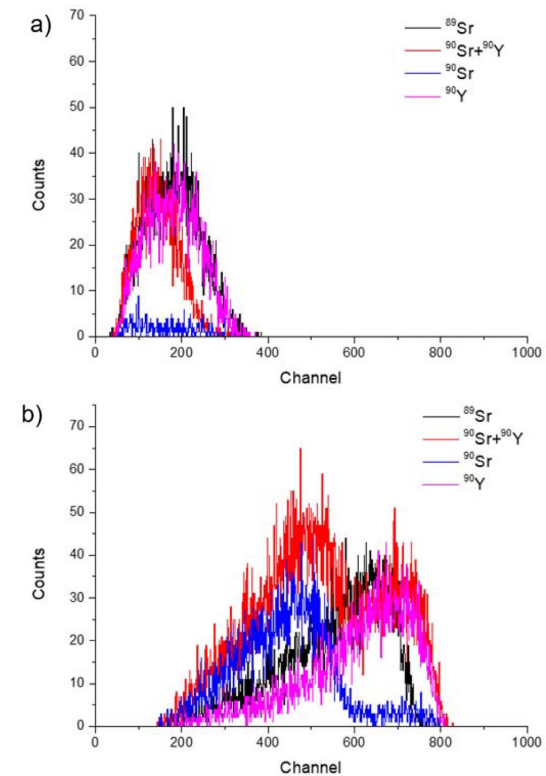


Fig. 3. LSC spectrum of ^{89}Sr , ^{90}Sr , ^{90}Y and $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ in Cerenkov mode (a) and Scintillation mode (b).

성율과 앞서 결정한 계측효율을 고려하여, ^{90}Sr 의 Cerenkov 계측효율 2.5 ± 0.4%, Scintillation 계측효율 98.9 ± 0.6%를 결정하였다. ^{89}Sr 의 계측효율은 화학분리 없이 ^{89}Sr 표준선원을 LSC로 측정하였고, Cerenkov 계측효율 45.1 ± 2.6%, Scintillation 계측효율 101.3 ± 3.0%로 나타났다(Table 3). LSC로 측정된 각 시료의 계측효율은 3회 측정된 결과의 평균값과 표준편차로 나타났다. Fig. 3은 화학분리 직후의 ^{90}Sr 과 ^{90}Y 의 LSC 스펙트럼과 ^{89}Sr 그리고 방사평형을 이룬 $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ 의 LSC 스펙트럼을 나타낸 것이다. 각 핵종별 베타에너

Table 4. Performance of the method in lab-control-samples with different ratios of ⁹⁰Sr:⁸⁹Sr activity-0.5 kg liquid

| Sample ID | A _{90Sr} :A _{89Sr} | Recovery of Sr (%) | Assigned activity (Bq/kg) | | Measured activity (Bq/kg) | | Relative bias (%) | |
|-----------|--------------------------------------|--------------------|---------------------------|------------------|---------------------------|------------------|-------------------|------------------|
| | | | ⁹⁰ Sr | ⁸⁹ Sr | ⁹⁰ Sr | ⁸⁹ Sr | ⁹⁰ Sr | ⁸⁹ Sr |
| 1 | | 67.7 | 0 | 9.82 | 0.00 | 10.03 | - | -2.1 |
| 2 | 0:1 | 76.1 | 0 | 2.53 | 0.23 | 2.45 | - | -3.3 |
| 3 | | 92.6 | 0 | 0.49 | 0.01 | 0.51 | - | 2.2 |
| 4 | | 78.5 | 10.05 | 0.00 | 10.00 | 0 | -0.5 | - |
| 5 | 1:0 | 89.7 | 2.54 | 0.00 | 2.49 | 0 | -2.1 | - |
| 6 | | 93.8 | 0.59 | 0.00 | 0.55 | 0 | -6.5 | - |
| 7 | | 77.0 | 10.02 | 9.91 | 10.24 | 9.70 | 2.2 | -2.0 |
| 8 | | 88.1 | 10.12 | 9.80 | 9.34 | 9.59 | 8.4 | 2.2 |
| 9 | 1:1 | 92.2 | 0.56 | 0.49 | 0.53 | 0.57 | -5.9 | 14.3 |
| 10 | | 87.5 | 0.20 | 0.19 | 0.19 | 0.20 | 1.2 | -4.9 |
| 11 | | 84.6 | 1.07 | 0.50 | 1.06 | 0.51 | -1.7 | 3.2 |
| 12 | 2:1 | 88.8 | 0.98 | 0.50 | 0.88 | 0.56 | -9.8 | 13.7 |
| 13 | | 88.0 | 52.92 | 9.77 | 48.43 | 8.17 | 9.3 | 19.6 |
| 14 | 5:1 | 91.1 | 2.49 | 0.50 | 2.42 | 0.51 | -3.0 | 1.7 |

지에 따라 스펙트럼의 모양이 다르다.

3.4. ⁸⁹Sr, ⁹⁰Sr 혼합시료 중 방사능 결정

⁸⁹Sr과 ⁹⁰Sr이 혼합된 모의시료에서 각 핵종의 방사능은 Cerenkov/Scintillation mode 측정결과와 Sr 회수율을 통해 계산할 수 있다. t₀, t₁, t₂간의 시간차가 ⁹⁰Sr의 반감기인 28.8년보다 무시할 수 있을 정도로 짧아 t₀≅t₁≅t₂로 가정할 수 있을 경우 ⁸⁹Sr의 총 방사능(A_{t1}^{Sr89}, Bq)과 ⁹⁰Sr의 총 방사능(A_{t1}^{Sr90}, Bq)은 식 (9), (10)과 같이 표현할 수 있다.¹⁸

$$N_{t1}^c = \epsilon_c^{Sr89} \cdot A_{t1}^{Sr89} + \epsilon_c^{Sr90} \cdot A_{t1}^{Sr90} + \epsilon_c^{Y90} \cdot A_{t1}^{Sr90} \cdot f_1 \quad (9)$$

$$N_{t2}^s = \epsilon_s^{Sr89} \cdot A_{t1}^{Sr89} \cdot f_3 + \epsilon_s^{Sr90} \cdot A_{t1}^{Sr90} + \epsilon_s^{Y90} \cdot A_{t1}^{Sr90} \cdot f_2 \quad (10)$$

$$f_3 = \exp(-\lambda_{Sr89} \cdot (t_2 - t_1)) \quad (11)$$

N_{t1}^c: Cerenkov Counting rates subtracted target sample from background sample

N_{t2}^s: Scintillation Counting rates subtracted target sample from background sample

f₃: decay correction factor for ⁸⁹Sr for the time interval between the measurement time and the measurement time in Scintillation counting mode

식 (9), (10)을 A_{t1}^{Sr89}, A_{t1}^{Sr90}에 관하여 다시 정리하면 식 (11), (12)와 같다.

$$A_{t1}^{Sr89} = \frac{N_{t1}^c - A_{t1}^{Sr90} \cdot (\epsilon_c^{Sr90} + \epsilon_c^{Y90} \cdot f_1)}{\epsilon_c^{Sr89} \cdot R_{Sr}} \quad (12)$$

$$A_{t1}^{Sr90} = \frac{N_{t2}^s \cdot \epsilon_c^{Sr89} - N_{t1}^c \cdot \epsilon_s^{Sr89} \cdot f_3}{y \cdot R_{Sr}} \quad (13)$$

$$y = \epsilon_c^{Sr89} \cdot (\epsilon_s^{Sr90} + \epsilon_s^{Y90} \cdot f_2) - \epsilon_s^{Sr89} \cdot f_3 \cdot (\epsilon_c^{Sr90} + \epsilon_c^{Y90} \cdot f_1) \quad (14)$$

⁹⁰Sr과 ⁸⁹Sr의 방사능 비율을 1:1, 1:2, 1:5인 혼합시료와 ⁹⁰Sr, ⁸⁹Sr만 존재하는 모의시료를 이용하여, 위의 소개한 계산식으로 각 핵종의 방사능을 평가하였다 (Table 4). 상대편의(Relative bias, %)는 알고 있는 값(Assigned Activity) 기준, 측정값(Measured Activity)과의 차이로 나타났다. ⁸⁹Sr 또는 ⁹⁰Sr만 존재하는 경우, 상대편의는 각각 -2.1~2.2%, -0.5~-6.5%로 나타났다. ⁹⁰Sr와 ⁸⁹Sr의 방사능비가 1:1, 1:2, 1:5에서 ⁹⁰Sr의 상대편의는 -10~10%로 나타난 반면, ⁸⁹Sr 방사능의 상대편의는 -5~20%로 나타났다. 계산식 (12)를 보면, A_{Sr89}는 A_{Sr90} 값을 이용해 계산된다. 즉, A_{Sr89}는 Cerenkov 계수율(N_{t1}^c)외에도 A_{Sr90}의 불확도가 반영되기 때문에, A_{Sr90}의 상대편의보다 상대적으로 큰 상대편의를 보였다고 생각한다.

국내 원전 액체배출물의 양이온 조성을 Table 5에 나타냈다. Sr 분리와 관계되어 있는 Ca, Ba의 최대 농도는 각각 176 mg L⁻¹, 0.11 mg L⁻¹로 분석되었다. Sr-resin은 Ca 농도가 높을수록 Sr-resin의 Sr 분리 성

Table 5. Composition of waste water generated from Domestic Nuclear Power Plant (unit: mg L⁻¹)

| Sample | Na | K | Fe | Cu | Sr | Ca | Ba | Mg |
|--------|---------|--------|------|------|------|--------|------|--------|
| # 1 | 0.06 | ND* | ND | ND | ND | ND | ND | ND |
| # 2 | ND | 0.19 | ND | ND | ND | ND | ND | ND |
| # 3 | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND |
| # 4 | ND | 0.16 | ND | 0.04 | ND | 0.14 | 0.11 | ND |
| # 5 | ND | ND | ND | 0.01 | ND | 0.07 | 0.11 | ND |
| # 6 | 11.16 | 3.88 | ND | ND | 0.08 | 11.36 | 0.01 | 3.57 |
| # 7 | ND | ND | ND | ND | ND | 0.04 | ND | ND |
| # 8 | 334.37 | 0.51 | 0.71 | 0.01 | ND | 0.05 | ND | ND |
| # 9 | 0.41 | 0.21 | ND | 0.02 | 0.01 | 0.14 | 0.01 | ND |
| # 10 | 12.29 | 1.01 | 0.06 | 0.03 | 0.01 | 1.48 | ND | 2.66 |
| # 11 | 26.03 | 2.48 | 0.07 | ND | 0.09 | 30.31 | ND | 7.83 |
| # 12 | 4.88 | 0.70 | 0.01 | 0.01 | 0.00 | 2.44 | 0.01 | 0.58 |
| # 13 | 0.16 | 0.21 | ND | 0.01 | ND | 0.02 | ND | ND |
| # 14 | 0.13 | 0.22 | ND | 0.01 | ND | ND | ND | ND |
| # 15 | 0.98 | 0.18 | 0.01 | 0.01 | ND | 1.19 | ND | ND |
| # 16 | 0.05 | 0.19 | 0.16 | 0.01 | ND | ND | ND | ND |
| # 17 | 0.05 | 0.21 | ND | 0.01 | ND | 0.01 | ND | ND |
| # 18 | 19.41 | 4.75 | 0.02 | 0.01 | 0.10 | 55.77 | ND | 6.90 |
| # 19 | 4.28 | 3.83 | ND | 0.01 | 0.01 | 10.70 | 0.00 | 0.86 |
| # 20 | ND | 0.20 | 0.00 | 0.01 | ND | ND | ND | ND |
| # 21 | 1.82 | 1.13 | 0.26 | 0.02 | ND | 0.24 | 0.01 | 0.06 |
| # 22 | 71.30 | 0.25 | 0.08 | 0.01 | ND | 0.06 | ND | ND |
| # 23 | 4.62 | 0.20 | ND | 0.01 | ND | 0.00 | ND | ND |
| # 24 | 997.23 | 1.11 | 1.60 | 0.02 | ND | 0.34 | ND | 0.06 |
| # 25 | 37.01 | 0.57 | 0.16 | 0.04 | ND | 0.14 | ND | 0.08 |
| # 26 | 0.94 | 0.46 | ND | 0.01 | ND | 0.01 | ND | ND |
| # 27 | 1.06 | 0.45 | ND | 0.05 | ND | 0.08 | ND | ND |
| # 28 | 0.90 | 0.49 | ND | 0.01 | ND | 0.01 | ND | ND |
| # 29 | 27.37 | 7.55 | 0.05 | 0.02 | 0.07 | 26.89 | 0.03 | 8.93 |
| # 30 | 125.99 | 20.45 | 0.60 | 0.03 | 0.24 | 29.87 | 0.03 | 9.22 |
| # 31 | 0.44 | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND |
| # 32 | 0.16 | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND |
| # 33 | 0.21 | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND |
| # 34 | 46.66 | 5.29 | 0.08 | ND | 0.04 | 10.21 | 0.01 | 1.91 |
| # 35 | 0.37 | ND | ND | 0.01 | ND | 0.02 | ND | ND |
| # 36 | 0.37 | ND | ND | 0.01 | ND | 0.00 | ND | ND |
| # 37 | 12.96 | 8.92 | ND | ND | 0.01 | 13.17 | 0.01 | 3.12 |
| # 38 | 10.50 | 3.21 | ND | ND | 0.01 | 1.57 | ND | 2.51 |
| # 39 | 0.36 | ND | ND | ND | ND | 0.03 | ND | ND |
| # 40 | 0.41 | 0.13 | ND | ND | ND | 0.03 | ND | ND |
| # 41 | 4525.72 | 388.84 | 4.04 | 0.01 | 2.90 | 176.75 | 0.01 | 855.45 |
| # 42 | 1871.91 | 212.33 | 6.01 | 0.01 | ND | 1.99 | ND | 1.61 |
| # 43 | 1698.71 | 190.08 | 3.00 | 0.01 | ND | 1.89 | ND | 0.28 |
| # 44 | 805.03 | 29.97 | 2.20 | 0.27 | ND | 0.03 | ND | 0.00 |
| # 45 | 8.70 | 1.33 | 0.01 | 0.01 | ND | 0.02 | ND | ND |
| # 46 | 6.23 | 2.31 | ND | 0.01 | ND | 0.05 | ND | 0.08 |
| # 47 | 13.09 | 5.49 | ND | 0.03 | 0.01 | 8.75 | 0.02 | 2.02 |

ND: Not Detected

Table 5. Continued

| Sample | Na | K | Fe | Cu | Sr | Ca | Ba | Mg |
|--------|--------|--------|------|------|------|------|------|------|
| # 48 | 476.70 | 180.92 | 2.03 | 0.02 | ND | 0.03 | ND | ND |
| # 49 | 10.35 | 2.63 | ND | 0.01 | ND | ND | ND | ND |
| # 50 | 6.08 | 1.59 | 0.00 | 0.01 | ND | 0.02 | ND | ND |
| # 51 | 5.61 | 2.63 | ND | 0.01 | ND | ND | ND | ND |
| # 52 | 5.05 | 0.96 | ND | 0.01 | ND | ND | ND | ND |
| # 53 | 4.47 | 2.81 | ND | 0.01 | ND | ND | ND | ND |
| # 54 | 5.31 | 3.32 | ND | 0.07 | ND | 0.50 | ND | 0.21 |
| # 55 | 4.98 | 2.00 | ND | 0.03 | ND | 0.49 | 0.00 | 0.18 |
| # 56 | 3.61 | 0.79 | 0.01 | 0.02 | ND | ND | ND | ND |
| # 57 | 7.95 | 4.26 | ND | 0.01 | 0.00 | 2.08 | 0.01 | 1.22 |
| # 58 | 4.00 | 0.65 | ND | 0.01 | ND | 0.00 | ND | ND |
| # 59 | 10.18 | 3.78 | ND | 0.02 | 0.01 | 3.33 | 0.02 | 2.09 |
| # 60 | 199.35 | 2.68 | ND | ND | 0.03 | 5.65 | ND | 3.79 |

능이 저하되기 때문에, Sr-resin 1.5 mL(BV)당 Ca 300 mg 이상일 경우, Sr의 회수율이 다소 감소한다.⁵ Sr-resin 1.5 mL (BV)에서 Ca이 200 mg 이하 일 때, 세척(rinsing) 과정에서 Ba를 완전히 분리할 수 있지만, Ca이 300 mg 이 넘으면, Ba과 Sr의 분리가 어렵다. 본 분석방법은 시료 0.5 kg을 대상으로 제안된 것으로, 액체배출물 0.5 kg에 포함된 최대 Ca 양은 약 90 mg 이다. 이는 Sr-resin 2 mL (BV) 컬럼이 충분히 감당할 수 있는 Ca 농도이다. Sr-resin 제조사(Eichrom)는 Sr-resin 2 mL (BV) 컬럼에 최대 Ca 농도가 320 mg 보다 많거나, Na의 농도가 0.1 M 이상일 경우엔 Sr의 회수율이 다소 감소할 수 있다고 제시하였다²¹, 전처리 방법으로 사용한 침전과정에서 1 g 양이온은 거의 제거되기 때문에, Na의 농도는 Sr 회수율에 영향을 미치지 않는다.

4. 결 론

액체시료 중 ^{89}Sr 와 ^{90}Sr 동시 분석을 위해 ^{89}Sr 와 ^{90}Sr 표준선원으로 모의시료를 만들었다. 침전법으로 모의시료를 농축하고, Sr-resin과 자동핵종분리장치(KXT-H)로 Sr을 정제한 다음, LSC를 이용해 Cerenkov/Scintillation mode에서 측정하였다.

국내 원전 액체배출물의 이온 조성을 분석한 결과, 본 연구에서 제안한 Sr 분석절차에 방해가 될만한 Ca의 농도는 관찰되지 않았다. 그러나 실제 액체배출물에 본 연구의 Sr 분석절차를 적용하기 위해서는 반드시 초기 Ca 농도를 측정하여야 한다. Sr-resin 2 mL (BV) 기준, Ca 농도는 300 mg 이하가 적당하다.

시료 0.5 kg에 Sr Carrier 4 mg, Sr-resin 2 mL (BV), 그리고 자동핵종분리장치를 사용하면, 8 개의 시료를 2 시간 안에 분리하고 LSC 시편으로 제조할 수 있다. Sr-resin으로 Sr을 정제하는 분석공정은 증력법을 사용하거나 유량에 따라 Sr 회수율의 큰 차이는 나타나지 않았다. 유량이 커질수록 Ba이 제거되는 시점과 Sr이 Sr-resin에서 빠져나가는 시점이 겹치기 때문에, 4 mL min^{-1} 기준 약 5-8 %의 Sr 회수율이 감소할 수 있다. 그러나 이것이 ^{89}Sr , ^{90}Sr 의 방사능 결정에 영향을 주지는 않는다. 유량 2 mL min^{-1} 기준, 0.5 kg의 모의시료 중 Sr 회수율은 68-94 %로 나타났다.

LSC에서 측정된 ^{89}Sr , ^{90}Sr , ^{90}Y 의 Cerenkov mode 및 Scintillation mode의 계측효율을 이용하여, 모의시료 내 ^{89}Sr 와 ^{90}Sr 의 방사능을 계산하였다. ^{90}Sr 을 분리한 직후부터 ^{90}Y 가 생성되고, LSC 측정 결과에 반영되기 때문에, ^{90}Sr 과 ^{90}Y 의 계측효율을 각각 결정하는 것이 중요하다. ^{90}Sr 에 비해 반감기가 짧은 ^{89}Sr 의 특성을 고려하여, ^{90}Sr 과 ^{89}Sr 의 방사능 비를 1:1, 1:2, 1:5로 준비하여 본 연구에서 개발한 분석법을 검증하였다. 방사능 비에 관계없이, ^{90}Sr 방사능 결과의 상대편의는 -10 ~ 10 %이고, ^{89}Sr 방사능 결과의 상대편의는 -5 ~ 20 %로 나타났다.

References

1. KAERI, Nuclear Data Center at KAERI, <http://atom.kaeri.re.kr>, Accessed Dec 12, 2020.
2. N. Vajda and C. K. Kim, *Appl Radiat Isotopes*, **68**(12), 2306-2326 (2010).

3. Y. Shao, G. Yang, H. Tazoe, L. Ma, M. Yamada and D. Xu, *J Environ Radioactiv*, **192**, 321-333 (2018).
4. H. Kim, J. M. Lim, K. H. Chung and W. Lee, *J Radioanal Nucl Chem*, **312**(3), 523-529 (2017).
5. Y. Jung, H. Kim, K. S. Suh, M. J. Kang and K. H. Chung, *Journal of Nuclear Fuel Cycle and Waste Technology*, **13**(2), 123-130 (2015).
6. KINS, 'Marine Environmental Radioactivity Survey', Korea Institute of Nuclear Safety, KINS/ER-092, (2018), Daejeon.
7. Q. Chen, X. Hou, Y. Yu, H. Dahlgard and S. P. Nielsen, *Anal Chim Acta*, **466**(1), 109-116 (2002).
8. S. L. Maxwell, B. K. Culligan, J. B. Hutchison, R. C. Utsey and D. R. McAlister, *J. Radioanal Nucl. Chem.*, **303**(1), 709-717 (2015).
9. H. Kim, Y. G. Kang, Y.-J. Lee, S.-D. Choi, J.-M. Lim and J.-H. Lee, *Talanta*, **217**, 121055 (2020).
10. HASL-300, Sr-01-RC, Sr-02-RC, In: 28th edition In: Chieco, N.A. (Ed.), *The Procedures Manual of the Environmental Measurements Laboratory*, New York, (1997).
11. C. S. Kim, M. H. Lee, C. K. Kim and K. H. Kim, *J. Environ. Radioactiv.*, **40**(1), 75-88 (1998).
12. E. P. Horwitz, M. L. Dietz and R. Chiarizia, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **161**(2), 575-583 (1992).
13. S. L. Maxwell, B. K. Culligan and P. J. Shaw, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **295**(2), 965-971 (2013).
14. S. B. Clark, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **194**(2), 297-302 (1995).
15. C. W. Lee, K. H. Hong, M. H. Lee, Y. H. Cho, G. S. Choi, Y. W. Choi and S. H. Moon, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **243**(3), 767-773 (2000).
16. ISO, 'Water quality-Strontium 90 and strontium 89-Test methods using liquid scintillation counting or proportional counting', ISO 13160 (2012).
17. C. K. Kim, A. Al-Hamwi, A. Törvényi, G. Kis-Benedek and U. Sansone, *Appl. Radiat. Isotopes*, **67**(5), 786-793 (2009).
18. IAEA, 'Rapid simultaneous determination of ⁸⁹Sr and ⁹⁰Sr in milk: a procedure using cerenkov and scintillation counting', International Atomic Energy Agency, (2013), Vienna, Austria.
19. O. D. C. M. Guidance, *USNRC, NUREG*, **1301** (1991).
20. A. A. Moghissi, H. W. Godbee and S. A. Hobart, *Radioactive waste technology*, American Society of Mechanical Engineers (1986).
21. E. Philip Horwitz, R. Chiarizia and M. L. Dietz, *Solvent Extraction and Ion Exchange.*, **10**(2), 313-336 (1992).