Journal of RADIATION INDUSTRY
Vol. 18, No. 3, pp. 155-166, 2024
https://doi.org/10.23042/radin.2024.18.3.155

Original article

온라인 삼중수소 방사능 연속모니터링 측정시스템 개발 및 분석 최적화 기법 개발

이홍연[1] · 김정훈[2] · 이래현[1,*] · 안영태[1] · 김병우[1] · 최민재[1] · 김보길[1] · 신용주[1]

[1](주)알엠텍, [2]부산가톨릭대학교

Development of Online Tritium Radiation Continuous Monitoring Measurement System and Analysis Optimization Techniques

Hongyeon Lee[1], Junghun Kim[2], Raehyun Lee[1,*], Yeongtae An[1], Byeongu Kim[1], Minjae Choi[1], Bogil Kim[1], and Yongju Shin[1]

[1]RMTEC Co., Ltd., 25, Hanamsandancheonbyeonjwa-ro, Gwangsan-gu, Gwangju-si 62215, Republic of Korea
[2]Catholic University of Pusan, 57, Oryundae-ro, Geumjeong-gu, Busan 46252, Republic of Korea

ABSTRACT In this study, a liquid scintillation spectrometer was developed for online continuous monitoring of tritium nuclides in water. The device consists of two photoelectron multiplier tubes (PMT), a simultaneous counting circuit, and a signal processing unit including a multi-channel analyzer (MCA). As a method to verify the performance of the equipment developed in this study, samples were prepared using a standard source, and the spectrum of tritium was measured to evaluate the detector characteristics such as efficiency, background (BKG), and minimum detectable activity (MDA). To evaluate the effect of pretreatment on tritium radioactivity measurement results, the MDA of water (seawater and groundwater) samples before and after pretreatment was calculated and compared. The results of the evaluation confirmed the satisfaction of the reference values of the Nuclear Safety Commission's "Discharge Control Standard in Drainage Water" and the World Health Organization's (WHO) "Tritium Radioactivity Concentration for Drinking Water Standards". The liquid scintillation spectrometer developed in this study, with or without pretreatment, confirmed detection performance equivalent to 1/100th of the discharge control standard for drainage water (40,000 Bq L^{-1}) and the WHO's drinking water standard for tritium radioactivity (10,000 Bq L^{-1}).

Key words: Tritium, Beta nuclides, Continuous monitoring, Drinking water, Seawater

1. 서 론

일본 후쿠시마 원전사고 이후, 2023년 8월부터 발생한 오염수 방출 문제는 사회적 논란을 빚고 있다. 오염수 내 삼중수소를 제외한 방사성물질은 ALPS (Advanced Liquid Processing System)를 사용하여 처리하고, 삼중수소는 희석시켜 해양환경으로 방출하고 있다. 삼중수소의 경우 총 방사능은 870 TBq, 평균농도가 730,000 Bq L^{-1}로 추정하고 있으며, 목표치인 환경방출기준 대비 삼중수소의 농도 1,500 Bq L^{-1} 이하로 낮추기 위해 해수를 이용한 희석(100배) 방법을 수행하여 30년간 해양으로 방출할 계획을 밝혔다[1].

이러한 문제로 인해 국민의 방사선 안전에 대한 우려가 커지고 있으며, 국내에서는 해안의 해수를 채취하여 측정 및 분석하는 등의 노력이 진행되고 있다. 그러나 기존의 측정 및 분석 방법은 시료 채취, 전처리, 분석 등에 많은 시간이 소요되어 수중 삼중수소 핵종에 대한 방사능의 상시 모니터링(Monitoring) 및 효율적 대응이 어렵다. 따라서, 본 연구는 기존의 측정 및 분석 방법에서의 문제점(sample 채취, 전처리, 분석 등의 장시간 소요)을 보완하여 시간적 제약 사항이 적은 액체 섬광스펙트로미터(Liquid Scintillation Spectrometer; LSS)를 개발하였다. 이 시스템을 표준시료의 삼중수소 스펙트럼을 통해 시스템의 측정 효율, BKG(Background) 및 최소검출 방사능(Minimum De-

ISSN 1976-2402 **http://www.ksri.kr/**

Copyright© 2024 by Korean Society of Radiation Industry

***Corresponding author:** Raehyun Lee
Tel: +82-62-236-6740, E-mail: lhy1030@rmtec.co.kr

Received 5 July 2024 **Revised** 9 August 2024 **Accepted** 12 August 2024

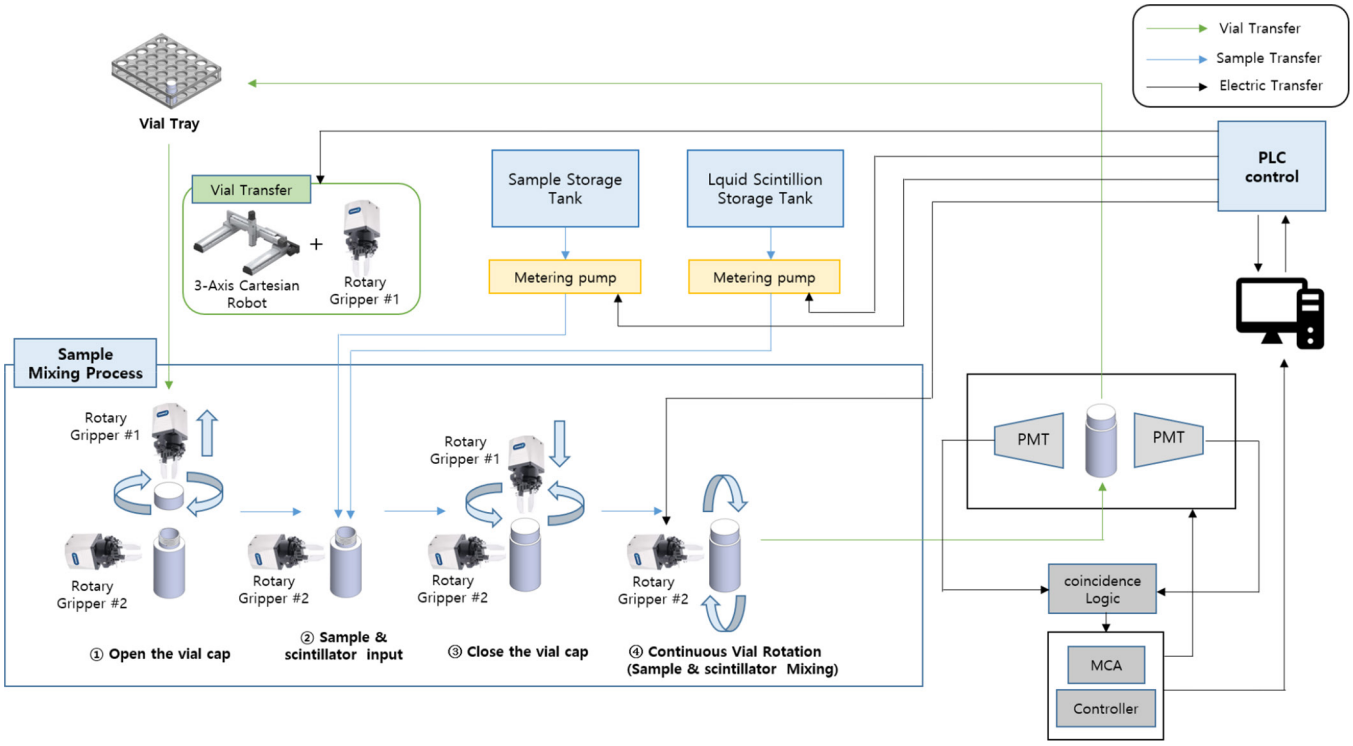

Fig. 1. Block diagram of Fully automated online water tritium scan system

tectable Activity: MDA) 등을 평가하였다. 또한 국내 원자력발전소 배수 중의 배출 관리기준[2]과 세계보건기구(World Health Organization: WHO)의 음용수에 대한 삼중수소 방사능 농도 기준 만족 여부를 확인하여 삼중수소의 환경 배출로 인한 방사선 안전 문제에 대한 사회적, 문화적 우려를 최소화하고 사회적 수용성을 향상시키기 위한 효과적인 해결책을 모색하는 데 기여하고자 한다.

2. 재료 및 방법(시스템의 설계 및 제작)

2.1. 온라인 수중 삼중수소 모니터링 시스템의 설계

삼중수소 방사능 농도 기준을 충족하기 위해 sample을 측정하고 모니터링하는 단점(시간, 복잡성)을 해결하기 위해 온라인 수중 삼중수소 연속 모니터링 시스템을 설계 및 개발하였다.

LSS를 개발하여 국내 법적 규제치(배출 관리기준)와 WHO의 음용수 기준에 부합하는 삼중수소 방사능 농도를 온라인 자동 측정하기 위해, 시스템 설계 시 다음과 같은 주요 사항을 고려하였다.

2.1.1. 배경 및 농도 측정 방법

가드 검출기 대신 납 차폐를 사용하여 BKG 수준을 기존의 극저준위 액체섬광계수기보다 100배 정도 높게 유지하고, BKG를 줄이기 위해 2개의 광전자증배관을 활용한 동시 회로를 채택하였다.

2.1.2. 계수 효율 보정

소광보정 곡선법 대신 계수율 보정을 위해 세 가지 시료(해수 및 담수등 sample, Blank sample 및 표준선원 sample)를 계측하여 표준 시료의 계수율을 기준으로 삼중수소 방사능을 계산하는 표준시료 대비 방법을 채택하였고, 이 방법은 FM($F=E^2/B$)이 최대인 좌/우 정점을 관심 영역(Region of interest: ROI)로 설정하여 계수하였다.

2.1.3. 자동화 및 Pump 시스템

Sample 채취 Pump, 교환장치, 제조 및 측정을 자동화하고, 데이터 수집 및 서버 전송, 이상 상황 발생 시 원격 수리 및 유지보수를 위한 공정(시스템 내부 Internet Protocol (IP) camera 장착을 통한 3축 로봇 제어)을 활용하였다.

2.1.4. 시료 처리 및 저장 탱크 설계

저장 탱크에는 시료를 LSS로 이송하기 위한 배출구 및 남은 시료를 제거하는 배수구가 있으며, 4개의 분사 노즐을 통해 sample 저장 탱크를 세척할 수 있도록 설계하였다.

2.1.5. 샘플 제조 및 혼합 과정 설계

해수 및 담수 등 sample 저장탱크에서는 0~400 mL/min의 유량을 조절할 수 있는 스탭 모터(step motor)가 장착된 Peristaltic Pump (Model: Thomas SR-25)[3]를 사용하여 8 mL의 sample

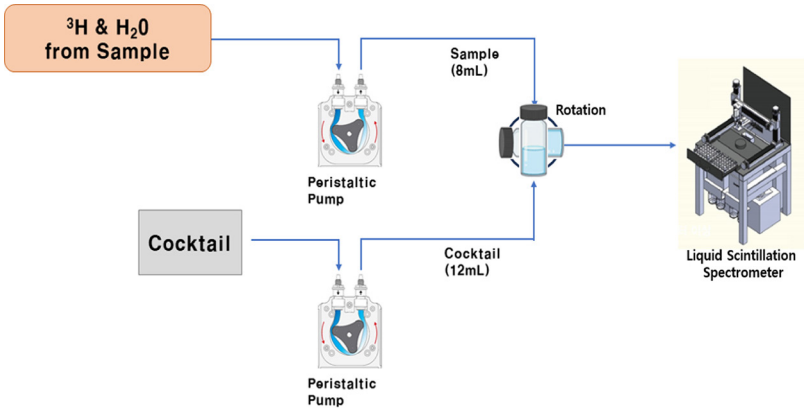

Fig. 2. Liquid Flow Diagram of Fully automated online water tritium scan system

을 플라스틱 용기에 담는다. 이 용기에 같은 Pump를 사용하여 12 mL의 액체 섬광체를 넣은 후, 3축 직교 로봇에 장착된 Rotary Gripper를 이용하여 50회 이상 회전하여 시료를 균일하게 혼합하여 sample을 제조하도록 설계하였다.

상기 1)~5) 과정의 설계는 자동화 모니터링 시스템을 구축하기 위해 고려된 사항들이다. 본 시스템의 개략도(schematic)를 Fig. 2에 나타내었다. 이러한 과정들을 통해 오염수 방출 문제를 신속하고 정확하게 대응할 수 있을 것으로 판단된다.

제조된 측정 sample 시료는 오염에 의한 BKG를 최소화하기 위해 측정시마다 교체되도록 설계하였다. 이를 위해 vial을 정밀하게 이송하는 엔코더(Encoder; 기계적인 위치의 변화나 방향·각도 등을 검출하여 전기적인 신호로 출력하는 센서)가 내장된 모터와 Closed-Loop Feedback System이 내장된 모터 드라이버를 장착한 3축 직교 로봇(3-Axis gantry, i-ROBO smart Actuator+Ezi-SERVO motor)을 활용하여 LSS로 sample을 삽입하게 된다.

검출부는 2개의 광전자증배관을 사용하고, 동시 계수회로를 형성하여 광전자증배관으로부터의 잡음 펄스를 제거하고 BKG에 의한 계수율을 줄이며, 저에너지를 갖는 삼중수소와 같은 베타 선원에 대한 계수 효율을 향상시킨다. 동시계수에서 나오는 출력펄스를 1,024 채널 이상(최대 4,096 채널 사용 가능)의 다중채널분석기(Multi Channel Analyzer: MCA)를 통해 에너지 스펙트럼을 분석하여 삼중수소 핵종과 방사능의 농도를 결정하며, 삼중수소의 계측 효율은 표준선원 대비법에 따라 결정하였다.

각 sample의 측정 소요 시간은 약 3시간으로 설정하였으며 (MDA 50 Bq L^{-1} 이하의 성능 유지 조건), 온라인 자동 무인 측정을 위해 최소 1개월간 이상 무인으로 자동 측정하고 분석할 수 있도록 sample 교환장치를 포함하여 설계하였다.

2.2. 액체섬광 스펙트로미터(Liquid Scintillation Spectrometer: LSS) 설계 및 제작

삼중수소 모니터링 시스템에서 확보된 시료를 분석하기 위해 제작된 LSS는 프로파일 형태의 거치 rack을 제작하여 설치하였으며, 이의 주요 구성은 Fig. 3과 같다.

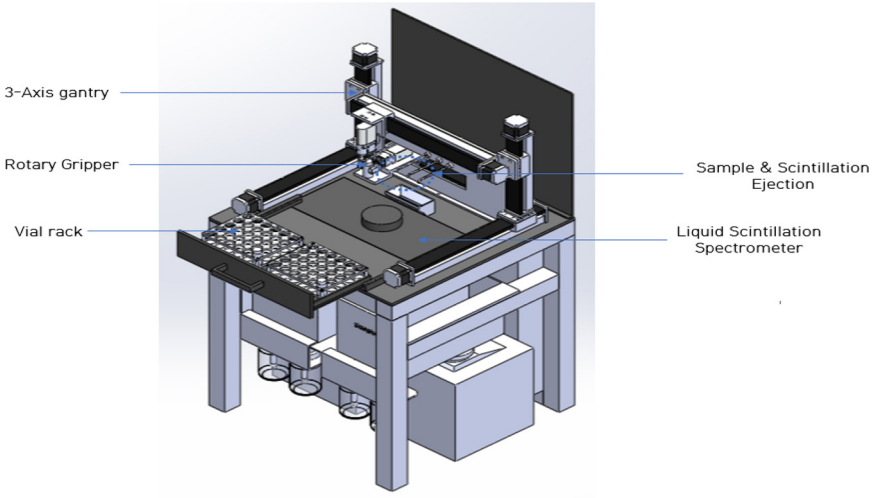

Fig. 3. Key components for the LSS

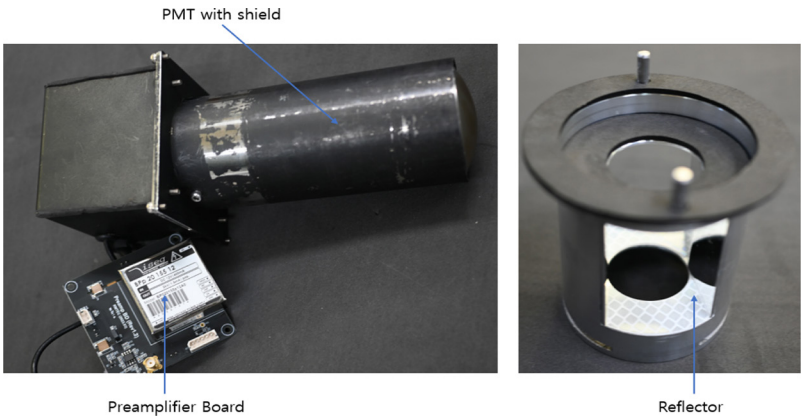

Fig. 4. Detector Chamber Design for the LSS

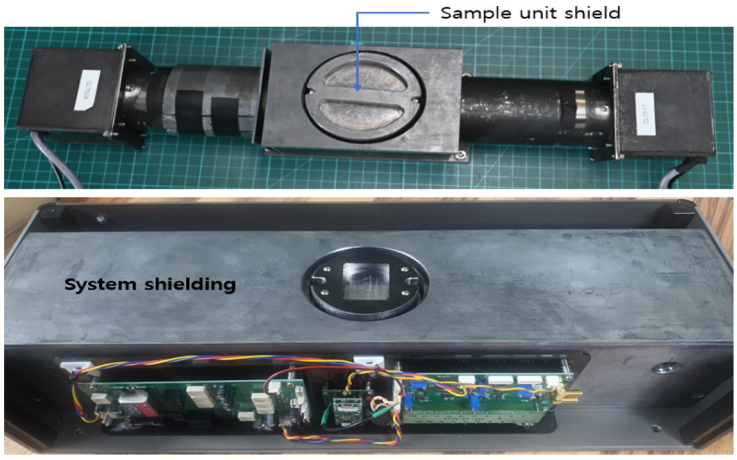

Fig. 5. Shield design for the LSS

2.2.1. 검출기 챔버

광전자증배관을 외부 자연방사선 및 광원으로부터 차폐하고, sample에서 방출되는 섬광을 광전자증배관으로 전달하여 광의 반사를 최대화하는 부분이다(Fig. 4). 이 챔버는 동시 계수를 위한 2개의 광전자증배관과 전치증폭기를 수납할 수 있도록 광차폐형으로 설계 및 제작하였다. 사용된 광전자증배관은 일본 Hamamatsu 사의 Head-on type인 Model R331-05를 사용하였으며, 파장 반응대가 300-650 nm이고, peak 파장대는 420 nm에 위치하고 있다[4]. 이를 통해 광전자증배관은 sample로부터 방출되는 섬광을 효과적으로 감지하여 계수에 반영하는 역할을 수행한다.

2.2.2. BKG 저감을 위한 납 차폐

BKG 저감을 위해 납(Pb, Z = 82, ρ = 11.34 g/cm^3)과 구리(Cu, Z = 29, ρ = 8.940 g/cm^3)를 사용한 차폐체를 구성하였다. LSS의 경우 1 MeV의 감마선을 99.9% 차단하기 위해서는 납의 두께가 약 8.74 cm가 필요하지만, 시스템의 현장 측정의 용이성과 이동성을 고려하여 1 MeV 감마선 차단을 80% 수준인 약 1.5 cm로 제한하여 LSS의 무게를 약 30 kg으로 설계 및 제작하였으며, 성능 목표인 삼중수소 MDA (50 Bq L^{-1}, 3시간 측정시)를 만족하여 주변 방사선 차폐에 대해서는 문제가 없는 것으로 판단된다. 또한, 납과 방사선 반응하여 방출하는 특성 X-선을 차단하기 위해 구리를 사용하였으며, 납과 반응하여 발생하는 80 keV 이하의 에너지를 갖는 납의 특성 X-선을 99.9% 차단하기 위한 구리의 두께는 약 1.03 cm가 필요하나, 이동성과 성능 목표를 고려하여 0.2 cm (약 80% 차단)으로 설계 및 제작하였다(Fig. 5).

2.2.3. 신호처리를 위한 회로 설계

검출부 구성은 sample을 중심에 두고 광전자증배관을 양쪽에 설치하여 동시에 검출된 신호에 대해서만 신호처리를 하는 회로로 구성하였다(Fig. 6). 고속 동시 회로를 구성하는 일반적인 접근은 광전자증배관의 출력부터 고속 로직 신호를 필요로 하므로 본 연구에서는 광전자증배관의 양극 출력단자에서 나오는 신호를 먼저 전치증폭기와 신호 정형 회로를 통해 증폭 및 정형화 후, 얻은 타이밍 신호를 delay 신호로 일정 시간 동안 지연시킨 후 동시 계수 회로를 통해 신호를 분석함으로써 고속 동시 회로의 복잡성과 난이도를 해소하였다. 그럼으로써 sample 신호에 대한 처리를 효과적으로 수행하도록 하여 시스템의 성능을 향상시켰다.

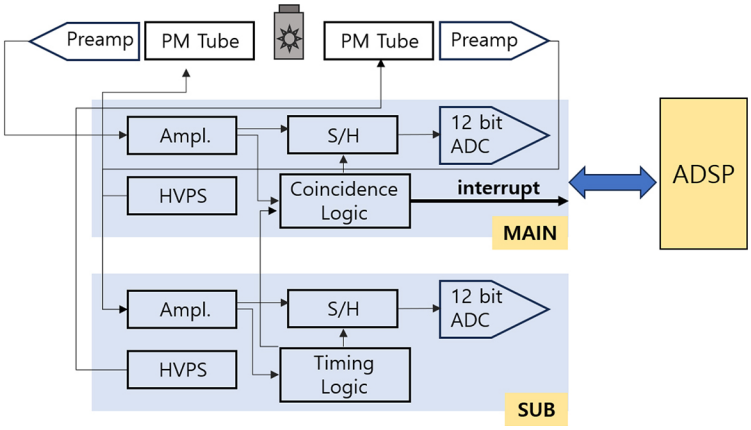

Fig. 6. Blockdiagram of Improved Coincidence Circuits for the LSS

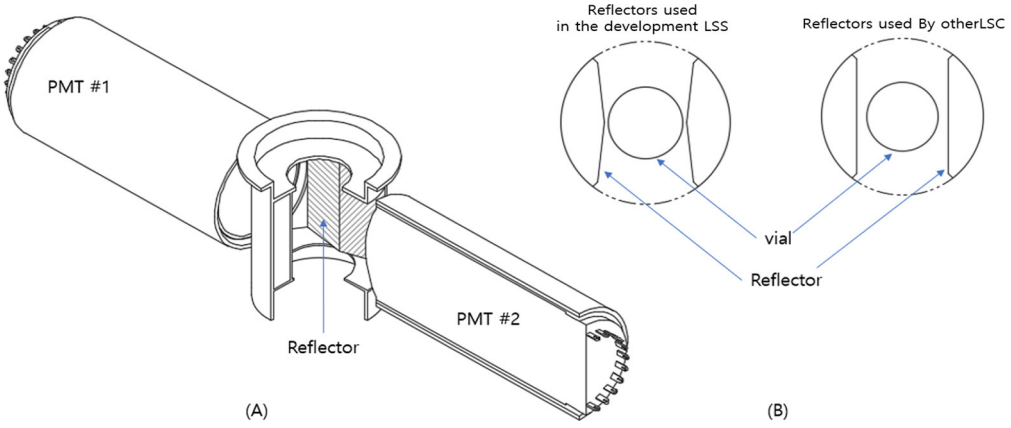

Fig. 7. Structure of the detector unit using a wide-area reflector

Table 1. Countrate of LSS based on reflector materials (unit: cps)

	Aluminum tape	Ultra-bright reflections (1)	Aluminum deposition Plates (<500 nm) (2)	(1) + (2)
1	6,502	7,023	7,408	7,618
2	6,432	6,957	7,502	7,604
3	6,485	7,109	7,536	7,598
4	6,513	6,948	7,489	7,538
5	6,537	6,899	7,534	7,582
6	6,489	6,956	7,468	7,612
7	6,428	7,074	7,499	7,631
8	6,532	7,103	7,511	7,599
9	6,540	7,068	7,507	7,635
10	6,483	6,943	7,480	7,584
Average	6,494	7,008	7,493	7,600

삼중수소 방사능을 측정을 위한 분석용 MCA 회로는 ADSP (Analog Devices Digital Signal Processors & Controllers, AD-SP-BF527)회로를 사용하여 동시계수 방식을 구현하였다. 신호처리 회로는 upgrade 및 유지보수를 고려하여 전치증폭 회로, ADC (Analog to Digital Converter: ADC) 회로, ADSP 회로로 분리하여 설계 및 제작하였다. ADC 회로는 광전자증배관을 처리하기 위한 고전압 모듈, 자체 증폭기, 피크 홀드 및 Analog to Digital 변환에 필요한 타이밍 펄스를 생성하는 기능을 갖추도록

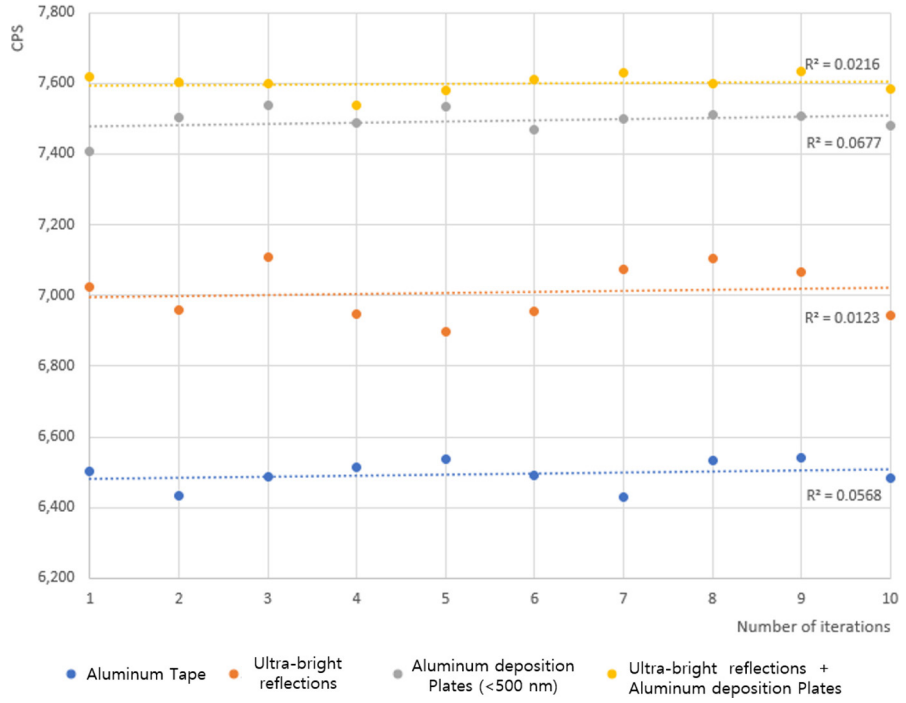

Fig. 8. Data trend lines and coefficients of determination (R^2)

설계하였다. 보조 ADC 회로에서 발생하는 동시신호 계수 분석을 위한 타이밍 펄스는 주 ADC로 전달되고, 주 ADC 회로에서 동시신호 계수 분석을 수행하도록 하였다. 동시계수 신호가 인식되면 ADSP로 인터럽트(interrupt) 신호가 전송되어 각 회로로부터 ADC 값을 읽어 파고분석 스펙트럼을 생성하도록 설계하였다[5].

이러한 설계를 통해 좌우 2개의 광전자증배관에서 독립적인 스펙트럼 분석이 가능하도록 하였다. 핵종에 따른 에너지 분석을 위해 12비트 ADC를 사용하여 4,096 채널의 다중 채널을 형성하였고, 변환 시간을 3 μs로 설계하여 데이터 취득을 빠르게 수행함으로써 데이터 관리의 효율성을 극대화하였다.

2.2.4. 검출부 반사체(Reflector) 설계

LSS 검출부는 반사체, 신틸레이터 용액과 광전자증배관으로 구성된다. Sample 내 삼중수소 방사선 에너지는 신틸레이터 용액에서 형광으로 변환되고, 발생된 형광은 2개의 광전자 증배관으로 전기적인 펄스로 변환된다[6]. 이러한 과정에서 발생된 형광이 광전자 증배관으로 최대한 입사할 수 있도록 반사체를 sample 주변의 집광 형태 구조로 설계하였다.

검출부의 효율적인 작동을 위해 액체 신틸레이터 효율이 뛰어난 광역 반사체(알루미늄 증착 + 초 고휘도 반사지)를 광전면 주변에 부착하여 형광을 광전면에 직접 반사시키는 형태로 제작하였다. 이러한 광전자 증배관과 반사체 결합 구조를 Fig. 8에 나타내었다[7-9].

LSS의 효율성을 높이기 위해 형광을 광전자 증배관으로 유도하기 위한 반사면의 형태 및 재질에 대한 실험으로 3가지 서로 다른 재질을 사용하고 반사체를 제작하였다. 이러한 실험 결과와 도출된 데이터를 Table 1에 나타내었다. 실험 결과를 기반으로 500 nm 미만의 알루미늄 증착 및 초 고휘도 반사지를 사용하여 검출부 주변 반사체의 경사면을 조정하여 반사체의 구조를 설계 및 제작하였다.

이중 초 고휘도 반사지는 곡면에 부착하고, 알루미늄 증착의 경우는 sample의 전면 반사면에 부착하였다. 이러한 2가지 재질의 혼용 형태로 제작한 결과 일반 알루미늄 테이프와 비교하여 약 15% 이상의 계수율이 향상되었고, 초 고휘도 반사지에 비해 약 9% 정도의 계수율 향상이 있음을 실험 결과 확인하였다. 이는 타 제작사의 반사체보다 약 15% 이상 계수율이 향상된 결과이다(Fig. 8). 또한, 실제 반사체 제작은 제작의 용이성과 티끌(티와 먼지 등) 등에 의한 오염으로 광역 반사체 면이 영향을 받아 형광의 투과성이 감소하게 된다. 따라서, 계수 효율이 저하되거나 광역 반사체 면의 방사능 오염으로 인해 BKG가 증가할 수 있음을 고려하여 광역 반사체를 제작하였다. 두 재료를 혼용하여 사용한 경우 계수율이 평균 7,600 cps로 가장 좋은 결과를 보였으며, 전체적인 counts 수와 결정계수(R^2) 값도 0.0216 (Fig. 9)으로 주어진 데이터에 대한 회귀모형의 적합도가 만족스러운 결과로 나타났다. 본 연구에서는 이러한 설계를 통해 sample에서 발생하는 섬광이 최대한 광전자 증배관으로의 유도 및 반사 효율성을 극대화하여 검출부의 성능을 향상시켰다.

Table 2. Experimental results of quantitative discharge of a peristaltic pump

	Cocktail (12 mL)	Sample (8 mL)
1	11.98	7.93
2	11.94	7.96
3	11.99	7.87
4	12.01	8.06
5	11.92	7.97
6	12.11	7.98
7	11.92	8.02
8	12.09	7.89
9	11.94	8.07
10	12.04	8.01
Average	11.99	7.98

3. 결 과

3.1. Peristaltic pump 성능 시험

삼중수소 분석을 위한 sample과 액체 섬광체의 정량 채취 및 주입을 위해 Peristaltic pump의 성능과 정확도를 평가하기 위한 실험을 수행하였다.

8 mL의 sample과 12 mL의 액체 섬광체는 정량이 토출되어야 한다. 10회 반복 시험한 결과, 평균 각각 7.98, 11.99 mL로 토출되었으며, 이는 각각 0.25, 0.08%의 오차를 보였다. 이러한 결과로 보아 Peristaltic pump의 성능과 정확도에는 문제가 없는 것으로 판단되며, Peristaltic pump의 정량 토출 실험 결과는 Table 2에 나타내었다.

또한, 3-Axis gantry와 Peristaltic pump의해 제작된 측정 vial은 sample과 액체 섬광체(Cocktail)를 균질하게 혼합시키기 위해 Rotary Gripper를 활용하여 정방향 및 역방향으로 각각 720도씩 30번씩 반복적으로 회전시켜 측정 vial 1개 제작 시 총 120번의 회전을 통해 혼합이 이루어지도록 하였다. 실험 결과, sample과 액체 섬광체가 균질하게 혼합되어 백탁 현상이 발생하지 않았음을 확인하였다. Fig. 9은 Rotary Gripper를 사용하여 측정 vial의 혼합이 이루어지도록 회전하는 모습을 나타내었다.

Table 3. Sample vial analysis results

Type of vial	Total count	ROI (Channel)	Counts in ROI
Glass vial	49,398	49-162	10,247
Plastic vial	2,965	51-150	285
Teflon vial	3,126	50-148	302

3.2. Sample 측정 용기(vial) 선정

Sample 측정 용기는 측정 결과에 영향을 미칠 수 있으므로 Glass vial, Plastic vial, 그리고 Teflon vial에 대한 BKG를 측정하여 장비에 적합한 재질을 선택할 필요성이 있다. 각 vial에 실제 sample 측정과 동일한 비율인 8:12의 증류수와 액체 섬광체를 혼합하여 BKG sample을 조제한 후 spectrum을 측정하였으며, Total count와 표준시료 대비법을 사용하여 ROI 내의 counts 값을 분석 및 평가하였다. 각 vial 종류별 측정과 분석의 결과를 Table 3에 나타내었다.

실험 결과, Glass vial의 경우 다른 재질에 비해 BKG가 높게 나타났다. 이는 천연 방사성물질인 ^{40}K가 함유되어 있어 삼중수소의 스펙트럼 분석에 있어 감마선과 상호작용에 의해 나타날 수 있는 ^{40}K의 컴프턴 산란선에 의한 영향으로 확인하였다. Plastic vial은 BKG가 다른 재질에 비해 낮았으나, 측정 효율은 좋지 않았고, 특히 plastic의 비균질성으로 인해 데이터의 불안정성을 나타냈다. 마지막으로 Teflon vial은 다른 재질에 비해 BKG가 낮고 측정 효율이 높아 삼중수소 농도를 측정하는 데 우수한 성능을 보였다[10]. 이와 관련하여 Fig. 10에서 샘플 측정 용기의 재질에 따른 BKG 스펙트럼을 시각적으로 나타내었다.

이러한 분석을 바탕으로 BKG와 측정 효율 측면만을 고려한다면 Teflon vial을 사용하는 것이 우수한 성능을 확보할 수 있겠지만, 연속 모니터링으로 인한 다량의 vial 사용, BKG 및 경제적 측면을 고려하여 개발 장비에 최적화할 수 있는 sample 측정 용기로 Plastic vial을 선택하였다.

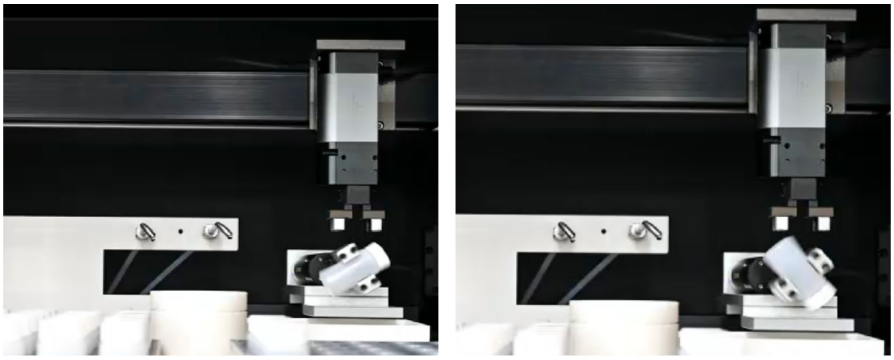

Fig. 9. Rotate the sample vial using the Rotary Gripper

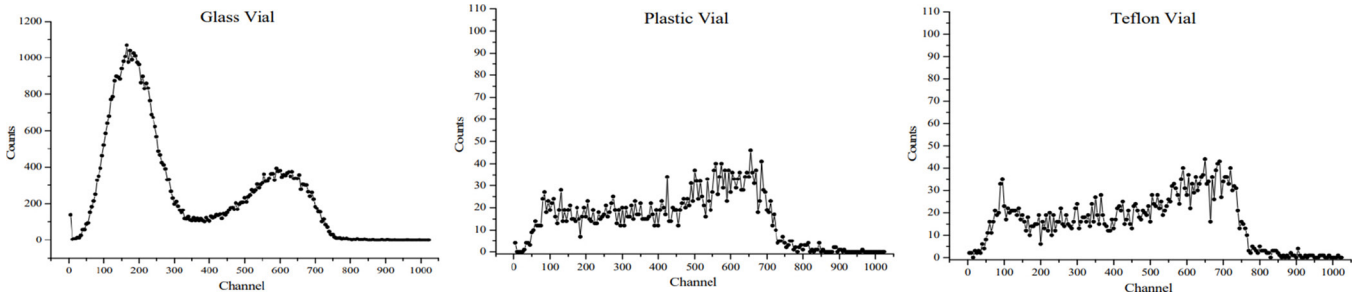

Fig. 10. Background measurement spectra based on vial material

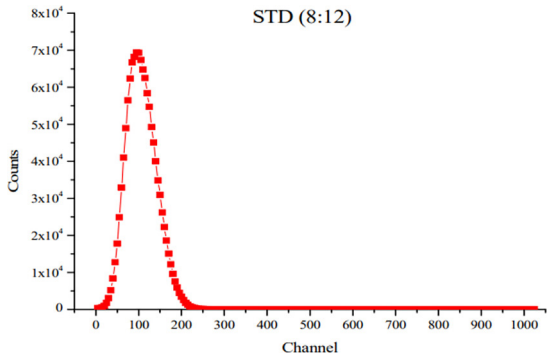

Fig. 11. Tritium Standard Source Spectrum

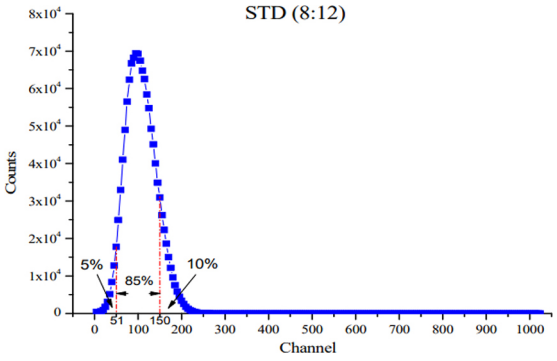

Fig. 13. Setting up a region of interest (ROI) for a tritium standard

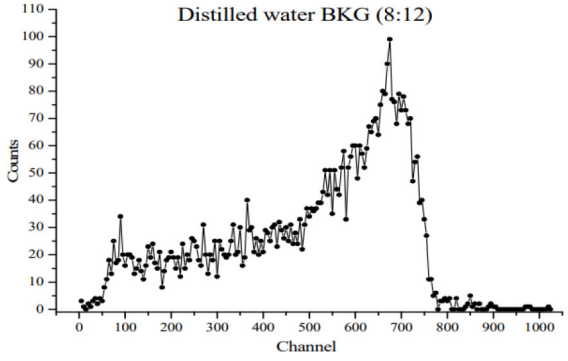

Fig. 12. Background spectrum of a distilled water sample

3.3. 관심 영역(Region of Interest: ROI) 설정

삼중수소의 최대 에너지가 18.6 keV로 매우 낮기 때문에 저에너지 영역에서의 계측이 이루어진다(Fig. 11). 삼중수소 방사능 농도가 낮은 BKG sample (Fig. 12) 스펙트럼에서 보듯이 ROI를 설정하지 않은 상태에서는 삼중수소 이외의 다른 베타 핵종의 기여에 의한 고 에너지 영역에서도 계수가 발생함을 확인할 수 있다.

따라서, 삼중수소의 MDA를 보장하고 타 핵종에 의한 기여도를 낮출 수 있는 영역 설정이 매우 중요하다. 따라서, 방사능 농도가 200,000 dpm인 삼중수소 표준선원을 이용하여 스펙트럼을 측정한 후, 스펙트럼 좌측과 우측에 대해 FM ($F = E^2/B$) (Figure of Merit: FM)이 최대가 되는 ROI를 설정해야 한다. 즉, 삼중수소 counts가 높고 BKG가 낮은 영역을 설정하였고, 나머지 채널에 대한 count는 참고 영역으로 설정하였다. 1~1,024 채널에 대한 counts, efficiency (%), 그리고 MDA 값(Bq L^{-1})을 계산하여 삼중수소의 counts가 높고 MDA 값이 낮은 51~150 채널을 ROI로 설정하여 삼중수소 농도를 평가하였다. 그리고 201~1,024 채널을 참고 영역으로 설정하여 전처리 및 측정 장비의 건전성을 평가하였다. ROI 설정 방법을 활용하여 삼중수소를 분석한 결과를 Table 4에 나타내었다. 본 실험을 통해 정확한 삼중수소 농도 평가와 장비 상태의 건전성 상태 확인이 가능하였다.

Table 4. MDA (Bq L^{-1}) by channel for tritium standard sources

Channel	Measurement time (min)	Efficiency (%)	Counts	MDA (Bq L^{-1})
1-1,024	180	18.75	2187	87.44
1-200	180	18.24	387	41.24
51-150	180	15.27	261	35.08
61-160	180	15.07	271	37028

Table 5. Standardized source analysis results with and without chemical pretreatment

H-3 Activity	Directly measurement	Measurement after distillation	Measurement after pretreatment
50 Bq L^{-1}	51.02	48.98	50.36
100 Bq L^{-1}	102.30	100.21	102.74
200 Bq L^{-1}	205.07	103.71	103.58

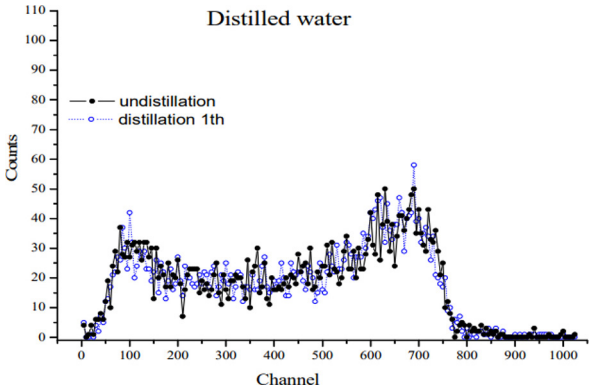

Fig. 14. Distillation impact spectrum of a distilled water sample

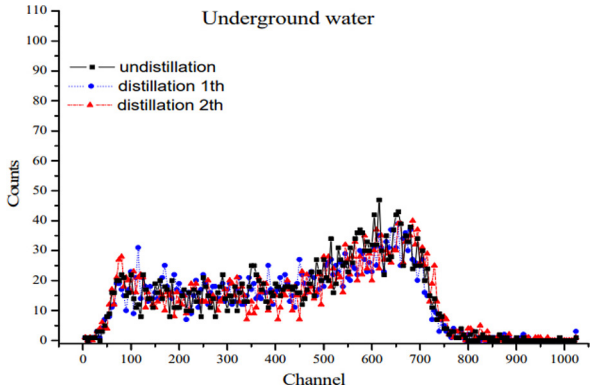

Fig. 15. Distillation impact spectrum of a groundwater sample

3.4. 삼중수소 방사능 전처리 영향 평가

일반적으로 액체섬광계수기는 화학 전처리 및 증류 과정을 통해 유기물과 염분을 제거한 후 삼중수소를 분석한다. 그러나, 본 연구에서 개발한 LSS 장비는 수중에 존재하는 삼중수소 핵종을 온라인 연속 모니터링하고, 해수 및 담수를 직접 채취하여 간단한 filtering 후 삼중수소를 분석하게 된다. 이에 따라 전처리 유무에 따른 영향을 검토하기 위해 직접 분석, 증류 후 분석(화학 전처리 없이), 그리고 전처리 후 분석(화학 전처리 및 증류) 등 3가지 전처리 방법을 적용하여 실험을 진행하였다. 삼중수소 방사능 농도는 50, 100, 700 Bq L^{-1} 등 3가지로 제작하였으며, 각각 10개의 샘플을 제작하여 실험한 결과를 Table 5에 나타내었다. 또한, 증류에 따른 영향을 평가하기 위해 증류를 하지 않은 sample과 1차, 2차 증류한 sample에 대한 실험을 수행하였다. 그 결과, 증류수와 지하수의 경우 증류 횟수와 관계없이 거의 동일한 결과를 나타냈으나, 해수의 경우 증류 여부에 따른 차이를 확인할 수 있었다. 이러한 실험 결과를 Fig. 14와 Fig. 15에 도식하여 나타내었다.

해수 sample 전처리 시 증류를 하지 않은 상태의 시료는 1차 증류를 했을 때 보다 BKG가 높아져 삼중수소 방사능 계측 결과에 영향을 줄 수 있으며, 1차 증류와 2차 증류의 차이는 거의 없는 것으로 나타났다(Fig. 15). 이러한 영향은 해수에 존재하는 ^{40}K에 의한 영향으로 판단된다. 또한, 본 연구에서 개발한 LSS 장비의 경우는 표준시료 대비법을 통해 ROI를 설정하여 Total count와 Efficiency 및 MDA를 계산하게 된다. 약 51~150 채널 사이의 영역 설정은 증류를 하지 않은 sample과 증류를 했을 때 sample의 스펙트럼을 비교한 결과 실질적으로 삼중수소 방사능 계측 결과에 영향을 주지 않을 것으로 판단된다.

본 연구에서 개발한 LSS는 해수 및 담수 등 수중 삼중수소 핵종 측정결과와 전처리 과정에서 사용되는 시약 등에 의한 Quenching 영향과 전처리 시간들을 고려하였다. 또한, 온라인 자동 모니터링을 위한 방법으로 증류를 하지 않고 직접 측정하는 방법을 사용하여도 데이터 신뢰성에 문제가 없을 것으로 확인되었다.

Table 6. Results of the COUNT analysis of the region of interest as a function of idle time

Delay time (hr)	Count of ROI	cps
0	1280.3	0.356
1	675.6	0.188
2	471.4	0.131
3	462.5	0.128
4	412	0.114
5	514.1	0.143
6	590.3	0.164
7	501.4	0.139
8	550.4	0.153
9	532.1	0.148
.	.	.
.	.	.
43	462.8	0.129
44	441.3	0.123
45	491.5	0.137
46	395.2	0.110
47	491.9	0.137
48	480.2	0.133

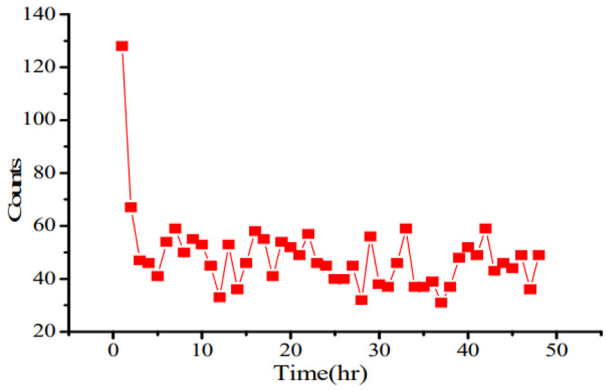

Fig 16. Results of the COUNT analysis of the region of interest as a function of idle time

3.5. Sample 제작 후 방치 효과 분석 및 분석 신뢰도 향상

삼중수소 분석을 위해 sample 제작 후, 분석 전 안정화 및 온도 평형을 위해 약 수 시간 정도 방치하는 과정이 필요하다. 이러한 전처리 과정 이후 방치 과정에서 화학 발광(Chemiluminescence) 현상이 발생하여, 삼중수소 스펙트럼과 겹치는 발광 스펙트럼이 6 keV의 최대 펄스 높이에서 관찰되었다. 이 현상은 유화제형 섬광 칵테일에 알칼리성 조직 용해제를 첨가하거나, sample에 산화제가 존재할 때 주로 나타난다. 이러한 화학 발광 현상은 삼중수소 방사능 측정 시 counts로 측정되어 방사능 농도 결정 시 오류를 초래하게 된다. 따라서, 삼중수소 분석을 위한 sample 제작 후 방치 과정에서 발생하는 화학 발광 현상에 주목하여, 방치 시간이 분석 결과에 미치는 영향을 평가하였고, 실험을 통해 화학 발광 현상의 방치 효과에 따른 분석 신뢰도에 대해 분석하였다.

실험 결과, Table 6에 나타낸 것처럼 sample 제작 후 냉암소에서 최소 1시간 이상 방치함으로써 화학 발광 현상이 감소됨을 알 수 있었으며, ROI에서의 count 변화가 줄어들었다. 이를 통해 삼중수소 분석 시 발생하는 오류를 최소화할 수 있음을 확인하였다(Fig. 16). 이와 같이 화학 발광 현상의 감소를 위해 방치 과정이 중요하며, 이러한 접근 방식은 분석 과정에서 발생할 수 있는 오류를 최소화하고, 삼중수소 분석의 결과에 대한 정확성과 신뢰성을 향상시키는데 기여할 것으로 기대된다.

3.6. 표준선원을 이용한 개발 장비 검증

본 연구에서 개발한 LSS 장비를 활용하여 해양수산부에서 제시하는 삼중수소 방사능의 MDA를 만족시키기 위한 실험을 수행하였다. 또한, WHO가 제시하고 있는 음용수에 대한 삼중수소의 방사능 농도 기준인 10,000 Bq L^{-1}의 1/100을 만족시키기 위한 실험도 진행하였다. 안전 등급에 해당한다는 해양수산부의 기준으로 100 Bq L^{-1} 이하의 방사능을 검출할 수 있는지를 확인하기 위해 표준선원을 사용하여 50, 100 및 700 Bq L^{-1}의 방사능 농도를 가진 검증용 sample을 제작하여 측정하였다. 측정 결과값의 비교를 위해 국가별 수중 삼중수소 농도(Bq L^{-1})를 조사하여 Table 7에 나타내었다.

표준선원을 사용하여 본 연구에서 개발한 온라인 삼중수소 방사능 연속 모니터링 측정시스템으로로 측정한 결과 201~1,024 채널의 참고 영역에서는 표준선원의 방사능 농도와 무관하게 일정한 카운트가 나타났다. 따라서, 전처리를 하지 않고 직접 측정하는 방법에 문제가 없다고 판단된다. 또한, 삼중수소 표준선원을 대상으로 측정한 결과값과 본 연구에서 개발한 장비로 계산한 결과값이 표준 농도값의 5% 오차 이내인 것을 확인하였다

Table 7. Domestic and international water tritium standards

State	H-3 activity in Water (Bq L^{-1})	Target of criteria
KOREA (NSSC)	40,000	Drainage hole/Site boundary
USA (NRC)	40,000	Drainage hole
USA (DOE-EPA)	40	Drinking Water
Australia (ARPANSA)	9,000	Raw water of purification plant
Canada (CNSC)	7,000	Drinking Water
Japan	60,000	Drainage hole
WHO	10,000	Drinking Water

Table 8. Experimental results on a validation sample

H-3 Activity	Theoretical value (Bq L^{-1})	Measurement value (Bq L^{-1})		Standard deviation from theoretical value of this development (%)
		A. Company LSC	This development LSS	
50 Bq L^{-1}	50.33	49.24	50.96	2.47
100 Bq L^{-1}	100.41	100.87	101.02	4.02
200 Bq L^{-1}	208.32	206.42	213.24	2.98

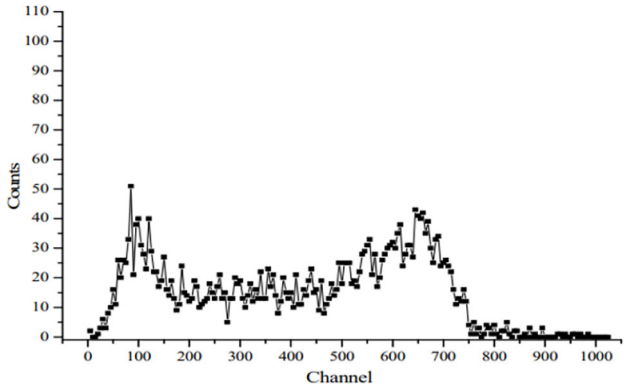

Fig. 17. Spectrum of a validation sample 50 Bq L^{-1}

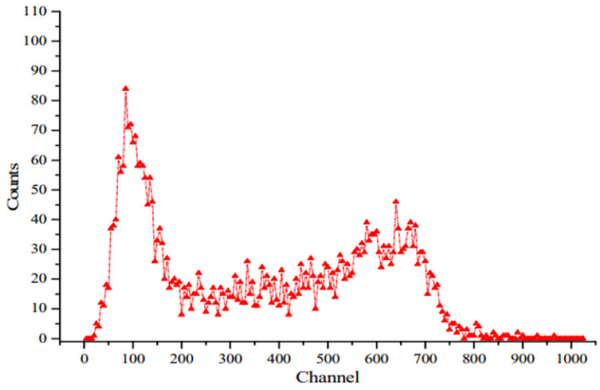

Fig. 19. Spectrum of a validation sample 200 Bq L^{-1}

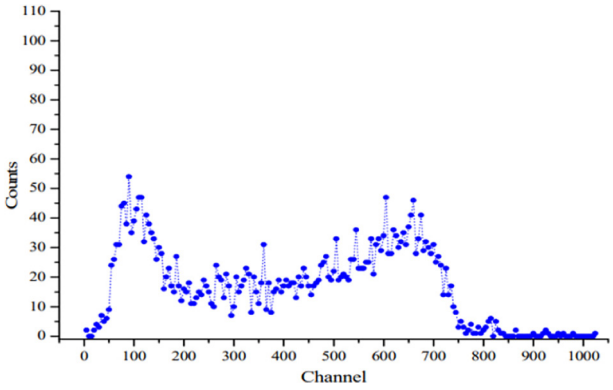

Fig. 18. Spectrum of a validation sample 100 Bq L^{-1}

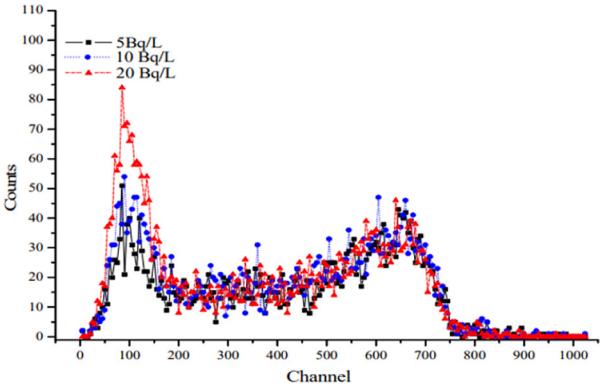

Fig. 20. MERGE spectrum for the result

(Table 8). 타사의 장비(PerkinElmer, Quantulus 1220)와의 비교 결과값 또한 5% 이내의 오차를 나타냈다. 따라서, 본 연구에서 개발한 장비를 통해 삼중수소 방사능 측정 및 분석의 신뢰성에 문제가 없는 것으로 판단하였다. 미국 환경부의 음용수 기준인 40 Bq L^{-1}는 시간과 복잡한 전처리 과정을 거쳐 보다 정밀한 분석을 통해 가능할 것으로 보이지만, 그 외 국내외 법적 규제치와 계산된 MDA와 비교하여 법적 규제치 미만(1/100 이하)으로 충분히 검출 가능함을 확인하였다.

이와 관련하여 타사의 제품과 본 개발품의 sample 측정 결과를 Table 8에 나타내었고, Fig. 17부터 Fig. 19에 각 방사능 농도별 스펙트럼 자료와 Fig. 20에 이를 병합하여 시각화하였다.

4. 결 론

본 연구에서는 삼중수소 모니터링에 소요되는 시간과 복잡성을 해결하기 위해 국내 법적 규제치(배출 관리기준) 및 WHO 음용수 기준 등을 충족하면서도 자동화된 온라인 수질 삼중수소 방사능 연속 모니터링 측정 시스템인 LSS를 설계 및 개발하였다.

본 연구는 시스템 설계 시 측정방법, 자동화 시스템, 전처리 및 제작 과정 등을 고려하였고, LSS에 대한 설계 시 검출기 챔버, BKG 저감을 위한 납 차폐체, 신호처리를 위한 회로와 검출부 반사체 설계 등 각 파트를 구분하여 설계 및 제작하였다. 개발한 검출기에 대해 Peristaltic pump의 성능, Sample 측정용기(vial) 적정성, ROI 설정, 전처리 유무, Sample 제작 후 방치 효과 및 분석 신뢰도, 표준선원을 이용한 개발 장비 검증 등에 대한 성능 시험을 통해 평가하였다.

평가 결과 Peristaltic pump의 성능은 8 mL sample과 12 mL 액체 섬광체의 대비 각각 0.25, 0.08%의 오차를 보였고, Rotary Gripper를 사용하여 측정 vial의 혼합한 결과 백탁 현상이 발생하지 않았다. Sample 측정 용기는 특성 평가를 통해 다량의 vial 사용, BKG 및 경제적 측면을 고려하여 본 장비에 최적화할 수 있는 Plastic vial을 선택하였다. ROI는 채널별 MDA 결과를 통해 정확한 삼중수소 농도 평가와 장비 상태의 측정이 가능한 것으로 평가되었다. 전처리를 통해 sample을 제작한 후 방치했을 때의 영향을 평가한 결과, 본 연구에서 개발한 LSS은 증류를 하지 않고 직접 측정하는 방법을 사용하여도 데이터의 신뢰성에 문제가 없는 것으로 평가되었다. 또한, sample 제작 후 냉암소에서 최소 1시간 이상 방치함으로써 화학 발광 현상을 감소시켜, ROI의 count 변화가 감소하는 것을 확인하였다. 따라서, 분석 결과의 정확성과 신뢰도를 향상시키고, 삼중수소 분석 시 발생

할 수 있는 오류를 최소화할 수 있을 것으로 평가되었다. 표준선원을 이용하여 개발 장비를 검증한 결과 표준선원 대비 상호 5% 이내의 오차를 나타내어 개발된 장비를 통한 삼중수소 방사능 측정의 신뢰성에 문제가 없는 것으로 판단된다.

본 연구는 LSS의 이동성을 중점으로 삼아 시스템을 개발하였다. 그러나, 다른 제조사의 삼중수소 측정 장비와 비교했을 때 BKG와 측정 효율 등이 낮아 성능 측면에서 기술적 한계를 보였다. 본 문제를 해결하기 위해서는 sample vial과 PMT 사이의 간격을 최소화하여 효율을 향상시킬 수 있는 연구와 BKG를 최소화하는 방안이 요구된다. 또한, 해양수산부의 삼중수소 방사능 신속 분석 방법에서 요구하는 10 Bq L^{-1} 이하의 MDA값을 달성하기 위해, 섬광 및 외부 방사선으로부터의 차폐를 강화하는 연구가 필요하다. 이를 통해 더욱 신속하고 정확도 높은 장비의 개발이 요구될 것으로 사료된다.

본 연구에서 개발한 LSS의 삼중수소 검출 성능은 국내외 수중 삼중수소 방사능의 법적 규제치인 100 Bq L^{-1} 이하를 만족하였다. 따라서, 본 연구를 통해 삼중수소의 환경배출로부터 방사선 안전 문제에 대한 사회적, 문화적 우려를 최소화하고, 사회적 수용성을 향상시키기 위한 효과적인 해결책을 모색하는 데 기여할 수 있을 것으로 판단된다.

사 사

본 논문은 해양수산부의 재원으로, 해양수산과학기술진흥원-해양수산 내수시장 활성화 지원사업의 지원을 받아 수행된 연구임(RS-2023-00240201).

참고문헌

1. Japanese Foreign Ministry and IAEA reports, BBC Tokyo correspondent
2. Nuclear Safety Notice 2019-10 Standards for Radiation Protection, Nuclear Safety Commission
3. Gardner Denver Thomas Pneumatic Systems (Wuxi) Co., Ltd. Peristaltic Pump SR25 series datasheet
4. Hamamatsu Photonics K.K. PMT model R331-05 datasheet
5. GBS_elektronik MCA527 micro datasheet
6. How PMTs work (an introduction to PMTs and photodiodes that convert light into electrical signals), Wikipedia
7. LSC Handbook of Environmental Liquid Scintillation Spectrometry, Packard 12/1994, PMC0387
8. 1220 Quantulus Liquid Scintillation Counter, Instrument Manual, Wallac company, September, 1995
9. Parkard InstrumentCompany, Laborotory manual for Liquid Scintillation counting, 1988
10. Painter, K, 1974, Choice of counting vials for liquid scintillation: a review, in Stanley, P E and. Scoggins, B A, eds, Liquid scintillation counting system. [Radiocarbon, Vol 29, No. 1. 1987, 1-11]