

지하수의 라듐/라돈 동시측정을 위한 백그라운드 감미션 제이

이길용, 윤윤열, 조수영, 김용제

* 한국지질자원연구원 지하수지열연구부

kylee@kigam.re.kr

요 약 문

^{222}Rn and ^{226}Ra in groundwater were determined simultaneously using a gamma-spectroscopy. A nitrogen flushing equipment has been used for elimination and stabilization of high and unstable background activity due to the radon and its progenies in counting shield and room. The aim of present work was to control the background activity for simultaneous measurement of radium(^{226}Ra) and radon(^{222}Rn) in groundwater using a gamma-spectrometry. Background activity was about 1.0dps and the standard deviation was about 50%. The background activity could be minimized using nitrogen flushing equipment in the range of 0.1 to 0.5 and the RSD was about 5% at the experimental condition. The detection limit of ^{222}Rn and ^{226}Ra in groundwater was 0.5dps/L in the background control method. In most groundwater used in the work, radon activity was more than the detection limit. However, radium activity in some groundwater was less than the detection limit. If the low level radium in groundwater must be measured, preconcentration process such as concentration should be performed before measuring the groundwater.

key word : Groundwater, Radon, Radium, Gamma-spectrometry, Low Background, Nitrogen Flushing

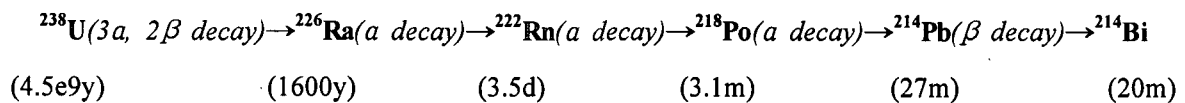
1.서론

자연계에는 약 60종의 천연방사성핵종이 존재하며, 지하수에 함유되어 인체에 해를 끼치는 것은 라듐(^{226}Ra , ^{228}Ra), 라돈(^{222}Rn)과 우라늄이 대표적인 핵종으로 알려져 있다[1]. 실내라돈의 주요 인이 지하수로부터 기인되며 이것은 폐암의 중요한 원인물질로 보고되어 있다[2]. 지하수의 라돈은 암석학, 지구조학, 암석화학에 대한 중요한 정보를 제공해 주며 지진발생을 예측할 수 있는 도구로 사용되기도 한다[3]. 지하수의 라듐, 라돈의 농도비를 이용하여 지하수의 연결성, 주변 지하의 중금속 저지인자 등을 산출하는데 이용되기도 한다. 이와 같이 지하수의 라듐, 라돈은 인체 유해성 측면에서뿐만 아니라 지질 전반에 대한 다양한 정보를 얻을 수 있는 주요 성분이다[4]. 라돈의 경우, 대부분의 지하수에서 알파분광법을 이용하여 측정이 가능한 농도로 함유되어 있고, 세계적으로도 이 방법을 라돈 측정에 주로 이용하고 있다[5]. 그러나 라듐의 경우는 지하수에 대한 용해도가 낮고, 지하수의 산도(acidity)와 같은 특성에 따라서 함유량이 매우 낮기 때문에 다량의 지하수를 농축/분리해야하는 화학적/방사화학적 전처리 과정이 반드시 필요하다. 본 연구에서는 지하수에 함유되

어있는 라듐(²²⁶Ra)과 라돈(²²²Rn)의 측정 정확도와 감도를 향상시키기 위하여 주로 건축재료 및 광물의 라듐, 라돈 측정에 사용하는 감마분광기를 이용하였다[6,7]. 라듐과 라돈의 함량은 ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi의 방사능을 측정하여 산출하였으며, 측정함 내부나, 측정실의 공기 중 라돈에 의한 바탕방사능의 영향을 배제하기 위하여 질소가스를 흘려주어 지하수에 극미량 용해되어 있는 라듐과 라돈을 측정하였다.

2.본론

²²⁶Ra와 ²²²Rn은 모두 ²³⁸U의 자핵종으로 건축재료, 원료광물에서는 이 두 핵종이 이미 방사화학적으로 평형에 도달해 있으므로, 반감기가 짧은 이들의 자핵종인 ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi를 이용하므로 약 3주간 밀봉 방치하여 방사평형에 도달시키고 측정함으로서 라듐과 라돈을 동시에 측정할 수 있다. 라듐, 라돈과 이들의 자핵종인 ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi의 붕괴, 생성은 아래의 붕괴형식을 보면 명확히 알 수 있다.



여기에서, 핵종 뒤의 가로는 각 핵종의 붕괴형식(decay mode)을 나타낸 것이고, 핵종 아래의 가로는 각 핵종의 반감기(half life)로서 y는 년, d는 일, m은 분의 시간단위이다. 아래의 식에서 볼 수 있듯이 동일 붕괴계열에 있는 반감기가 긴 모핵종(parent nuclide)과 모핵종에 비하여 반감기가 짧은 자핵종(daughter nuclide)의 경우 ($T_p \gg T_d$) 방사평형(영속평형)이 이루어지면 이들 계열 핵종의 방사능은 같아진다.

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = \lambda_3 N_3 = \dots \dots \dots \lambda_n N_n$$

여기에서, λ 는 방사성핵종의 붕괴상수(decay constant, $\ln 2/T_{1/2}$)이다. 앞의 붕괴형식과 뒤의 방사평형식에서 보아 알 수 있듯이 지하수에 용해된 라돈의 방사능 혹은 함량을 ²¹⁴Pb와 ²¹⁴Bi 측정값을 이용하여 산출하기 위해서는 지하수시료 채취 후 약 2시간을 밀봉 방치하여 라돈과 이들 자핵종의 방사평형을 도달 시킨 후 감마선분광기를 이용하여 측정해야 함을 알 수 있다. 지하수에 용해되어 있는 라듐의 경우는 방출하는 186keV 감마선을 직접 측정할 수도 있으나, 대부분의 지하수에는 라듐뿐만 아니라 우라늄역시 미량 용해되어 있고, ²³⁵U에서도 인접한 감마선을 방출하여 직접 측정은 곤란하다. 따라서 지하수중의 라듐을 측정하기 위해서는 용해되어 있는 라돈이 붕괴, 소멸되기를 기다린 후 라듐과 생성된 라돈이 방사평형에 도달한 후(약 3주) 라돈의 자핵종을 이용하여 측정한다.

지하수 혹은 원료광물등과 같이 우라늄의 함량이 그리 높지 않은 시료에 함유된 라듐 및 라돈을 측정하는데 가장 큰 어려움은 측정장비, 측정함의 미량 방사성핵종, 주변공기의 라돈, 그리고 우주선과

같은 바탕방사능 보다 측정하고자 하는 물질의 방사능 사이에 큰 차이가 없어 바탕방사능의 영향을 무시할 수 없다는 것이다. 특히, 라돈과 이의 자핵종들을 측정에 이용할 경우는 측정함이나 측정실 공기중의 라돈과 자핵종에 의한 바탕방사능이 온도, 습도 혹은 환기 등 환경조건에 따라서 큰 차이가 있으므로 바탕방사능의 편차가 매우 심하다. 이와 같은 공기중 라돈과 자핵종의 바탕방사능에 의한 영향을 최소화하기 위해서 측정함 내부공기를 라돈이 존재하지 않는 질소가스로 치환시켜줌으로써 바탕방사능을 소멸 혹은 최소화 하였다. 지하수 시료는 알루미늄 소재로 자체 제작한 450mL Marinelli Beaker에 채우고 현장에서 밀봉하고 측정함에 넣은 다음 질소가스를 약 2시간 흘려주어 측정함 내부에 존재하는 라돈의 자핵종을 붕괴, 소멸시킨 후 측정을 시작하였다. 바탕방사능과 지하수의 측정은 모두 50,000초 동안 수행하였다. Fig. 1은 라듐과 라돈의 측정에 이용하는 ^{214}Pb 와 ^{214}Bi 에 대한 측정함의 바탕방사능 값을 나타내었다. 질소가스를 흘리지 않고 10회 측정된 바탕방사능은

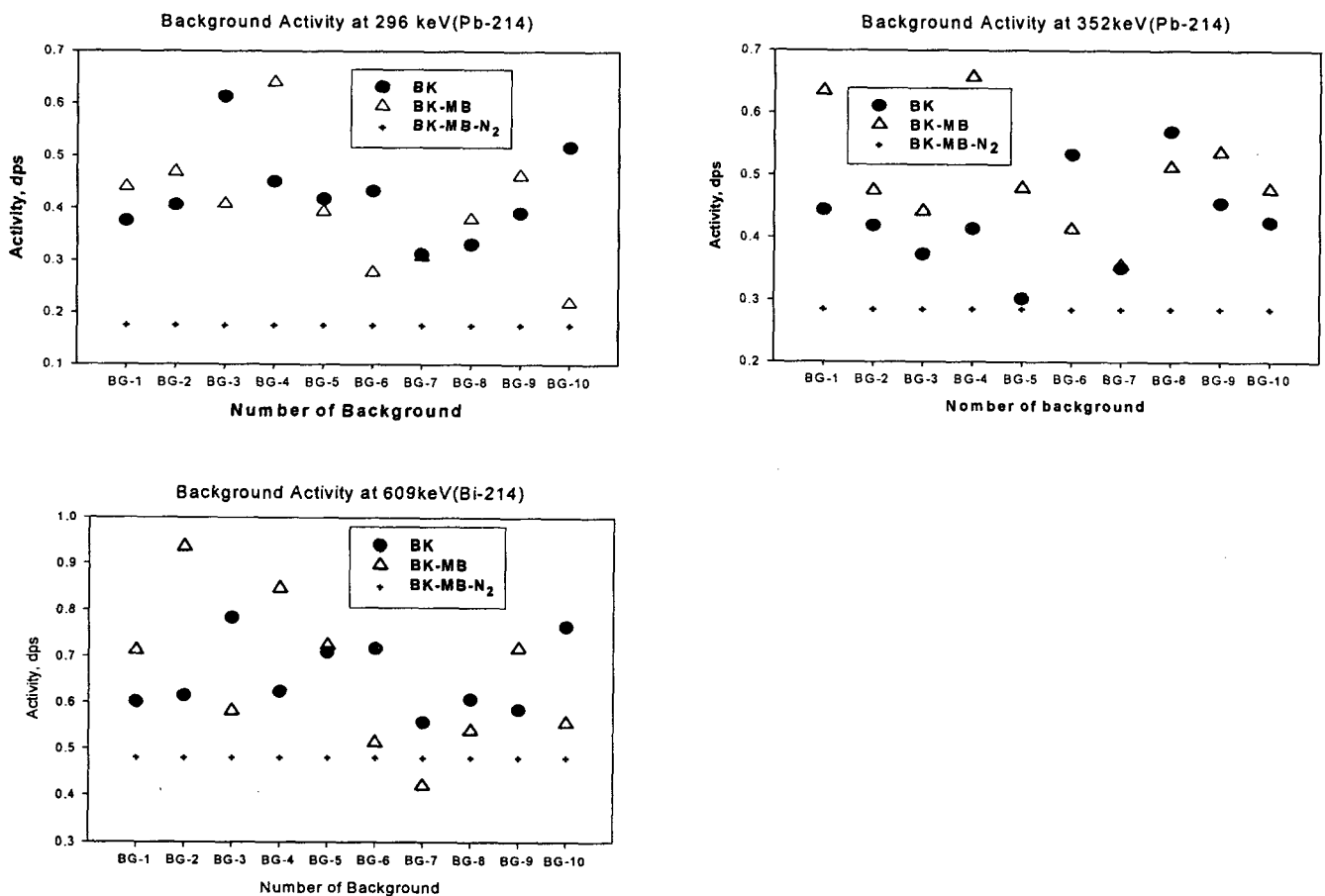


Fig. 1. Background activity in a gamma-ray counting shield with and without nitrogen flushing.

BK ; background without Marinelli beaker and nitrogen flushing,
 BK-MB ; background with Marinelli beaker but without nitrogen flushing,
 BK-MB-N₂ ; background with Marinelli beaker and nitrogen flushing.

알루미늄 Marinelli beaker의 유무와 관계없이 변화 폭이 매우 큼을 알 수 있다. 반 면, 질소가스를 흘려주면서 측정된 바탕방사능의 값은 상대적으로 매우 낮고 안정된 것을 볼 수 있다. 바탕방사능의 값이 한 핵종인 ^{214}Pb 에서 296keV 에서는 0.18dps , 352keV 에서는 0.29dps 로 차이가 나며, ^{214}Bi 의 600keV 에서는 0.48dps 로 차이가 발생하는 것은 측정실(차폐함 외부)의 공기에 있는 이들 핵종의 감마선이 납(lead)으로 된 차폐함 벽을 투과해 들어오고 감마선의 에너지가 높을수록 투과율이 크기 때문인 것으로 판단된다. 실제 여러 종류의 지하수를 채운 Marinelli Beaker를 질소가스를 유입시키면서 측정된 결과 296keV , 352keV 와 609keV 에서 라돈의 경우는 $1\sim 10\text{dps}$ 로 나타났으며, 라듐은 $0.2\sim 1.0\text{dps}$ 범위로 나타났다.

3. 결론

지하수에 용해되어 있는 ^{226}Ra 과 ^{222}Rn 의 측정에 감마선분광법을 이용하였다. 감마선 분광법에서 측정편차요인으로 작용하는 가장 큰 요인은 측정함과 측정실 공기중의 라돈의 바탕방사능으로 알려져 있다. 바탕방사능과 지하수를 측정하는 동안 측정함 내부로 질소가스를 지속적으로 흘려줌으로써 바탕방사능의 편차에 의한 측정편차를 효과적으로 줄일 수 있음이 본 실험을 통하여 확인하였다. 라돈의 자핵종인 ^{214}Pb 의 296keV 감마선을 이용하여 지하수 중의 ^{226}Ra 과 ^{222}Rn 을 측정할 경우 측정 감도는 약 0.5dps/L 이었다. ^{222}Rn 의 경우 실험에 적용한 5종류의 지하수에서 1dps/L 이상 함유되어 있었으므로 개발된 측정법의 적용에 아무런 문제가 없었으나, ^{226}Ra 의 경우는 $0.2\sim 1.0\text{dps}$ 범위로 일부 지하수시료의 경우는 농축이 필요함이 확인되었다.

결론적으로 지하수에 함유된 라듐과 라돈을 감마분광법으로 측정함에 있어서, 질소가스를 측정함 내부로 흘려주어 공기중 라돈에 의한 바탕방사능을 소멸, 안정화 시켜주어야 하며 이때의 측정 감도는 약 0.5dps/L 정도이다. 그 이하의 극미량 라듐을 측정해야할 경우에는 지하수의 농축실험이 병행되어야 할 것이다.

4. 참고문헌

1. W. Zhuo, T. Iidab and X. Yanga, Journal of Environmental Radioactivity, 53(2001).
2. R. M. R. Almeida D. C. Lauria, C. Ferreira and O. Sracek, Journal of Environmental Radioactivity, 73(2004).
3. C. Papastefano, Journal of Environmental Radioactivity, 63(2002).
4. W. C. Burnett, and H. Dulaiova, Journal of Environmental Radioactivity, 69(2003).
5. K. G. Vohr, K. C. Pillai, U. C. Mishra, S. Sadasivan, "Natural Radiation Environment", Proceedings for 2nd Special Symposium on Natural Radiation Environment, John Wiley & Sons, 1982.
6. K. Shizuma, S. Hamanaka, X. Wen, K. Iwatan, and H. Hasai, Nuclear Inst. methods in physic A 41(1988).
7. K. Y. Lee, Y. Y. Yoon, B. K. Seo, Anal. Sci. & Tech., 13(2000).