

저준위 액체섬광계수기와 파형분석법을 이용한 지하수중의 ^{222}Rn 측정 Measurement of ^{222}Rn in ground water with low-level Liquid Scintillation Counter and pulse shape analysis

조수영·윤운열·이길용·김용제

한국지질자원연구원, 지하수지열연구부

요 약 문

파형분석(PSA) 기능과 백그라운드 낮고 계측효율이 높은 장점을 가지고 있는 저준위 액체섬광계수기를 이용하여 지하수중의 ^{222}Rn 측정을 위한 최적 분석조건을 확립하였다. 라돈분석을 위해 섬광용액 HiSafe 3 12 ml를 사용하여 물시료 8 ml 내 ^{222}Rn 을 측정하였다. 라돈은 딸핵종과의 방사평형을 위해 3시간동안 방치한 후 계측하였다. 최적 파형분석(PSA) 준위는 100 이었다. ^{222}Rn 의 계측효율은 ^{226}Ra 표준시료를 동일 조건으로 제조한 후 약 20일 이상 방치한 다음 측정하여 결정하였으며 측정효율은 약 $91.6 \pm 3.6\%$ 이었다. 동일 시료의 라돈 추출실험 재현성은 2 % 이내이었다. 계측시간 10시간을 기준으로 바탕값은 0.035 cpm 이었고 300분 계측시 검출하한값은 0.11 Bq/L 이었다.

1. 서론

지하수중에 존재하는 방사성물질인 라돈과 우라늄은 주로 암반층에서 용출되는 천연 방사성물질로써 음용 시 폐암이나 신장독성, 당뇨 등의 인체 위해성이 있는 물질로 널리 알려져 있으나 우리나라는 아직까지 이러한 방사성 물질에 대한 수질 기준이 마련되어 있지 않고 있다. 국내의 경우 대부분의 정수처리장에서는 지표수를 상수원으로 이용하고 있으나 지리적 여건과 경제적 이유로 상수도가 급수되지 않는 대부분의 농어촌지역에서는 지하수를 생활용수나 음용수로 이용하고 있다. 또한 최근 지표수원의 수질 악화와 수돗물에 대한 불신과 함께 먹는 샘물 산업의 급성장으로 인하여 국내 지하수의 음용율은 급격히 증가하고 있는 추세이다. 이러한 이유로 지하수의 수질 및 안정성에 대한 국민들의 관심이 증가하였고 최근에는 일부 지역의 지하수 중 고농도의 라돈과 우라늄이 검출되어 사회적 문제로 대두되기도 하였다. 본 연구에서는 지하수중 방사능 농도의 기초자료 확보와 이들 핵종에 의한 내부 피폭선량 평가라는 궁극적인 목적을 달성하기 위하여 파형분석 기능을 가진 저준위 액체섬광계수기를 이용하여 많은 물 시료 중 ^{222}Rn 을 간편하고 신속, 정확하게 분석할 수 있는 액체섬광계수법의 최적 분석조건을 조사하였다.

2. 실험

시약 및 장치

수용액중의 라돈의 용매추출을 위한 섬광용액으로 HiSafe3. 형광체(Perkin-Elmer Co.)를 사용하였다. PSA 준위 설정을 위하여 ^{241}Am , ^{90}Sr 표준선원 과 ^{222}Rn 에 대한 계측효율을 측정하기 위하여

^{226}Ra 표준선원을 사용하였다. 측정용기는 테프론 코팅된 vial 로 알루미늄 호일이 내장된 뚜껑을 사용하였다. 계측을 위해서는 알파선과 베타선에 의한 펄스를 분리할 수 있는 파형분석기능을 가진 Perkin-Elmer 사의 Quantulus 1220 저준위 액체섬광계수기를 사용하였다.

시료채취 및 실험

시료의 채취방법은 정확하고 재현성 있는 결과를 얻기 위하여 상당히 중요하다. 지하수의 경우 채수밸브를 몇 분 동안 충분히 틀어 주어 관속의 오래된 물을 제거함으로써 가능한 수질의 대표성을 확보하는 것이 중요하다. 특히 라돈은 자연 상태에서 기체상태로 존재하며 수중에 용존 되어 있는 것을 분석하는 것으로서 라돈 분석용 시료의 채취 시 와류나 기포의 발생, 공기 중 장시간 노출은 라돈의 손실을 초래하여 실험값의 재현성에 심각한 결과를 초래할 수 있으므로 시료채취 시 세심한 주의가 필요하다.

시료채취는 라돈의 손실을 극소화하기 위하여 가능한 한 10분 이상 연속적으로 펌핑 하여 배관에 있는 지하수를 제거한 후 가능한 와류 없이 채수하여 8 ml를 취한 후 미리 준비해간 섬광용액이 담긴 측정용기에 넣어 혼합하였다. 시료준비과정에서의 라돈기체의 손실을 피하기 위해 시료채취 및 섬광용액과의 혼합을 신속하게 이루어 져야 한다. 시료는 약 3시간 동안 방치하여 라돈과 자핵종의 방사평형에 도달하면 계측하였다. 채취 시각부터 측정까지의 라돈 붕괴보정을 위하여 시료 채취시간을 정확히 기입하여야 한다.

최적 PSA 준위 설정을 위해서 α -선 표준선원 (^{241}Am) 과 β -선 표준선원 (^{90}Sr)을 추적자로 사용하여 실제 측정시료와 같은 조건을 준비하였다. PSA 준위를 변화시키면서 각 영역에서의 계수율을 측정하여 최적의 PSA 설정값을 결정하였다.

라돈의 계측효율을 알기 위하여 방사능 농도를 알고 있는 ^{226}Ra 표준선원을 8ml 초순수가 담긴 용액에 넣고 아르곤가스로 버블링 시켜 시료에 남아있는 잔류 라돈 가스를 완전히 제거한 후 섬광용액 12 ml를 첨가하여 제조하였다. 표준시료들 간의 재현성을 보기 위하여 3개의 시료를 제조하였다.

시스템의 백그라운드를 알기 위하여 알곤가스로 세정한 섬광용액을 사용하여 라돈이 없는 blank 시료를 준비하여 계측하여 최적조건을 설정하는데 필요한 백그라운드를 계측하였다. PSA 값을 변화시키면서 라돈 영역에서 스펙트럼을 모은 후 각 준위에 따른 백그라운드 값을 얻어 시스템의 검출한도 및 FOM 를 계산하였다.

실험의 재현성을 알기위하여 라돈 농도가 높다고 알려진 지하수를 채취하여 상온에서 5회 반복 실험하였다.

3. 결과 및 고찰

최적 측정 조건

1) PSA 준위 설정

라돈 및 그 딸핵종의 계측을 위한 최적 PSA 준위를 결정하기 위해 α , β -선 표준선원을 이용하여 α -선 및 β -선 영역에서의 계수율이 최대가 되는 점을 최적 PSA로 설정 하는 방법과 PSA 준위에 따른 알파선 피크영역에서의 FOM 값을 조사하는 두 가지 방법을 사용하였다. 그 결과는 표 1와 2에 나타내었다. 그림 1 과 2에서 알 수 있듯이 표준시료 및 최대 FOM 값을 근거로 하여 최적의 PSA 값은 100으로 나타났으며, 이는 표준선원을 이용한 최적 PSA 값과 일치함을 알 수 있었다. 이로서 본 실험에서의 최적 PSA 값은 100으로 설정하여 실제 시료 계측에 이용하였다.

Table 1. Percentage alphas in ^{241}Am and ^{90}Sr standard samples observed in the alpha window as a function of PSA level setting in a Quantulus 1220

PSA level	$^{241}\text{Am}(\alpha$ percentage)*	$^{90}\text{Sr}(\alpha$ percentage)*
40	98.00	51.62
50	97.83	28.49
60	97.49	12.67
70	97.55	8
80	97.51	5.6
90	97.20	4.3
100	96.70	3
110	95.10	1.8
120	92.23	1.4
130	86.12	1.19
140	78.30	1.12

*(cpm in α window/total cpm in α β windows) x 100

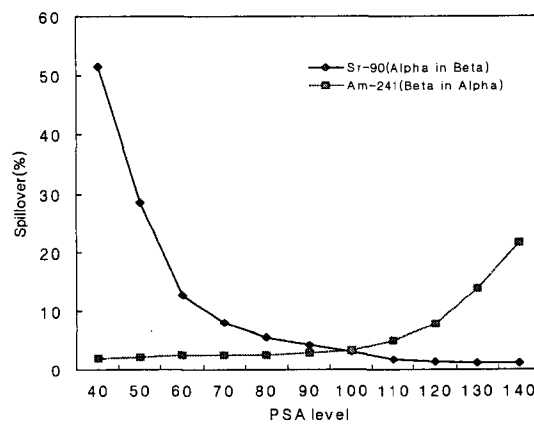


Fig. 1. Alpha/Beta crossover plot for Am-241 and Sr-90 in HiSafe3 Cocktail.

Table 2. FOM(Figure of Merit(ϵ^2/B) with PSA setting values

PSA level	B(blnak)	$\epsilon(\%)$	FOM($\times 10^4$)
60	0.278	99.35	3.55
70	0.06	93.85	14.68
80	0.044	94.32	20.22
90	0.045	92.33	18.94
95	0.041	91.10	20.24
100	0.035	88.06	22.16
105	0.036	84.34	19.76
110	0.032	82.77	21.41
120	0.022	69.33	21.85

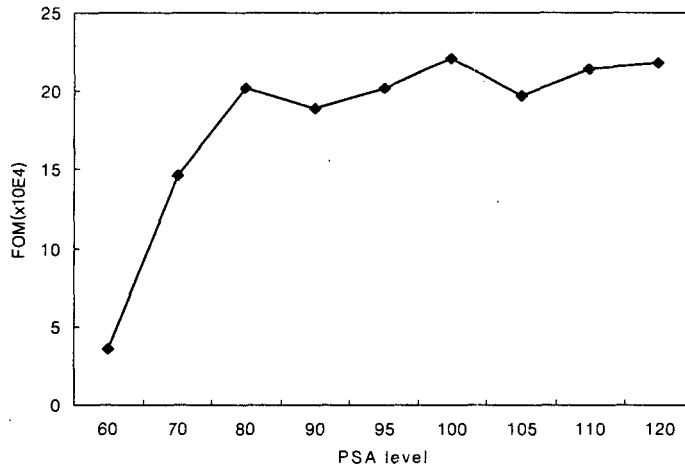


Fig. 2. Variation of FOM with PSA level for HiSafe 3 cocktails.

2) 계측효율

라돈에 대한 계측효율을 구하기 위하여 ^{226}Ra 표준용액 8ml를 취하여 섬광용액 Hisafe 3 12 ml 과 잘 혼합한 후 PSA 준위 100에서 시간 경과별(초기, 5, 10, 15, 20 25일)로 알파선의 총 피크영역 (500-750 ch)에서 측정하여 25일이 경과 후에는 99 % 이상 수용액 층에 존재하는 ^{226}Ra 과 방사평형에 도달했음을 알 수 있었다. 표준시료의 측정효율 값을 결정하는데 있어서 이들 표준시료의 재현성을 보기 위하여 같은 시료를 3개 제조하여 각각의 측정효율 값을 얻은 후 측정효율의 평균값 (91.6 ± 3.6 %)을 실제시료 측정효율 값으로 적용하였다

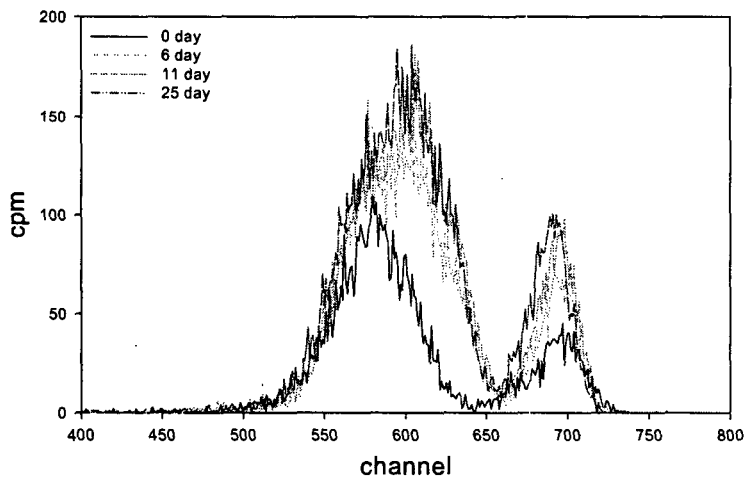


Fig. 3. The alpha spectra of ^{226}Ra standard build up sample at different date

3) 재현성

동일조건의 시료 5개를 만들어서 계측해 본 결과 재현성은 2 %정도 이었다.

4) 주변 지하수의 라돈 농도조사

지하수 중의 라돈농도는 섬광용액이 담긴 바이알에 현장에서 시료를 취한 후 방사평형이 이루어지는 3시간 후 측정하였다. 확립된 조건에 의하여 측정된 지하수중 ^{222}Rn 농도는 100 ~ 500 Bq/L

까지 의 범위를 보였다.

4. 결론

저준위 액체섬광계수기를 이용하여 수중의 최적의 ^{222}Rn 측정을 위하여 최적 조건을 계측조건을 확립하였다. 이를 토대로 실제 지하수중의 ^{222}Rn 의 분석에 적용하였다. 최적 PSA값을 얻기 위하여 PSA 준위에 따른 검출효율, 검출한계 및 FOM을 측정하여 최적값을 설정하였으며 Hisafe 3 사용 시 최적 PSA 준위는 100 이었다. 라돈의 측정효율을 알기 위하여 ^{226}Ra 표준시료를 20일 이상 방치한 후 측정하였으며 이때의 측정효율은 약 $91.6\pm 3.6\%$ 이었다. 동일조건에서 라돈추출효율의 재현성은 약 2%이내 이었다. PSA 100 에서의 라돈과 딸핵종의 바탕값은 0.035 cpm 이었고, 300분 계측 시 검출하한이 0.11 Bq/L 이었다. 이렇게 확립된 측정조건을 실제 지하수중의 ^{222}Rn 농도를 측정에 적용하였다.

5. 참고문헌

1) L. Salonen, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. Vol. 226, Nos 1-2(1997)

67

2) L. Salonen, *Sci. Total Environ.*, 130/131, 23(1993)

3) H. S. Shin, *Analytical Science & Technology* Vol. 12 No. 5,(1999)

4) C. K. Kim, C. S. Kim *J. of Korean Asso. Radiat. Prot* Vol. 20. 2 103 (1995)