

공기중 라돈 및 라돈 자핵종의 농도 측정

박영웅·하정우·노성기

한국에너지 연구소

요 약

이중관 형태의 라돈 표준선원을 제작하여 루카스셀의 계수치(cph)를 라돈농도로 나타내기 위한 환산 인자를 측정된 결과 라돈 표준선원을 실온으로 하였을 때는 0.031 ± 0.001 (pCi/l)/(cph/Cell)였다.

사무실 내에서 라돈과 라돈 자핵종의 농도를 측정된 값은 ^{222}Rn , $\rightarrow^{218}\text{Po} \rightarrow^{214}\text{Pb}$, $\rightarrow^{214}\text{Bi}$ 의 평균 농도가 각각 0.87, 0.53, 0.35, 0.26 pCi/l 였다. 이때 전체 방사평형인자와 WL의 평균 값은 각각 0.40, 3.33×10^{-3} 이며 측정 지점에서 연간 피폭되는 방사선량으로 환산하면 약 30 mrem 이다.

루카스셀, 라돈 표준선원, 효율, 방사평형인자, 피폭선량, WL

1. 서 론

라돈은 1900년대 초기에 발견된 원자번호 86의 방사성 가스이며 대기중에는 ^{238}U 붕괴계열의 여섯번째 생성물인 원자량 222의 라돈과 ^{235}U 붕괴계열의 여섯번째 생성물인 원자량 219의 악티논 그리고 ^{232}Th 붕괴계열의 다섯번째 붕괴 생성물인 원자량 220의 토론 등의 동위원소가 있다.

이들은 모두 기체 상태이지만 라돈을 제외하고는 반감기가 짧아 고체 매질에서 대기로 확산되는 확률이 적으므로 관심의 대상이 되는 것은 원자량 222의 라돈이며 흔히 라돈이라 하면 원자량이 222인 것을 가리킨다.

라돈은 토양, 지하수, 건축 자재 등 우라늄 혹은 라돈이 함유된 모든 물체에서 대기중으로 방출하며 폴로늄, 납, 비스무트 등으로 붕괴하며 붕괴시의 반조 에너지에 의하여 이들 자핵종들은 양전하를 띠게되므로[1] 공기중의 먼지등에 흡착하여 에어로졸 상태로 존재한다.

라돈 자핵종에 의한 방사선 피폭 방지의 측면에서 공기중의 라돈 및 자핵종에 대한 방사능의 측정 기술이 개발되었으며 1953년 Tsivoglou는 공

기중의 미립자를 필터에 포집한 후 측정하여 라돈 자핵종 각각의 방사능을 측정하였으며, 1957년 Lucas는 내면에 황하아연 형광물질이 칠하여진 루카스셀을 제작하여 공기중의 라돈 방사능을 측정하였다.

본 연구에서는 이중관 형태의 라돈 표준선원을 제작하여 라돈 농도를 측정하기 위한 루카스셀의 환산인자를 결정한 후 공기중에서 라돈과 라돈 자핵종들의 농도를 동시에 측정하여 전체 방사평형인자(F_2)[2]를 구하였다.

2. 이론적 배경

2-1. 연쇄붕괴 핵종들의 붕괴 시간에 따른 이론적인 원자수

루카스셀이 감지할 수 있는 핵종은 ^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Po 와 같은 알파입자 방출체이지만 ^{214}Po 의 반감기는 $164 \mu\text{sec}$ 로 매우 짧아서 ^{214}Bi 와 항상 방사평형을 유지하므로 ^{214}Po 의 방사능 준위를 ^{214}Bi 의 방사능 준위와 같다고 보았으며, 라돈의 5번째 자핵종인 ^{210}Pb 의 반감기는 21년으로 비교적 길어서 ^{210}Pb 을 포함하여 ^{210}Pb 이후의 자핵종들은 ^{210}Pb 이전의 ^{222}Rn 자핵종들

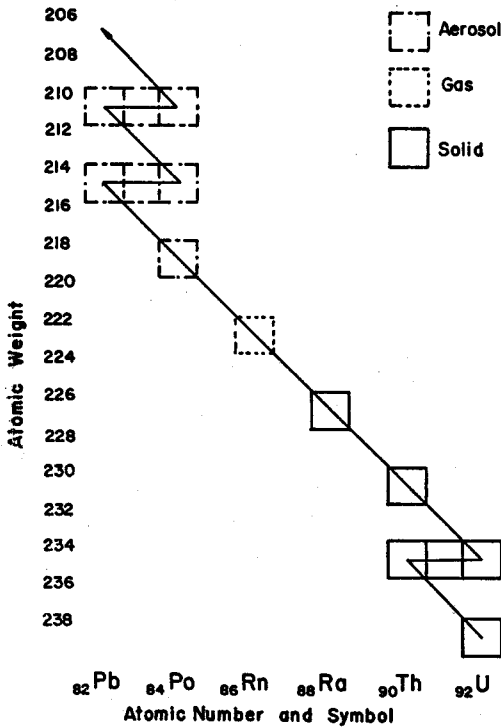
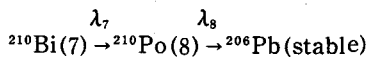
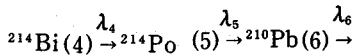
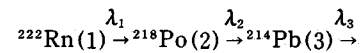


Fig.1. Decay series of U-238 and schematic view of radon and its daughters in air.

에 비하여 라돈 농도 측정시 영향을 주지 않으므로 본 연구에서는 ²¹⁴Bi 까지의 핵종에 대한 물질수지식을 고려하였다.

²³⁸U 의 붕괴 계열을 그림 1 에 나타내었으며 ²²²Rn 초기 핵종으로 가정하면 그 계보는 다음과 같이 나타난다.



루카스셀을 이용하여 공기 시료를 채취한 후 방치 시간에 따른 ²²²Rn 의 원자수와 폴로늄, 납, 비스무트등의 라돈 자핵종들의 원자수 (N_i) 변화는 다음과 같이 표시하며

이 식을 이용하여 시료 채취후 방치 시간에 따른 각 핵종들의 원자수를 나타내면 다음과 같다.

$$\frac{dN_i}{dt} = N_{i-1} \lambda_{i-1} - N_i \lambda_i \dots \dots \dots (1)$$

$$N_1 = N_{10} e^{-\lambda_1 t} \dots \dots \dots (2)$$

$$N_2 = N_{10} \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \dots \dots \dots (3)$$

$$N_3 = N_{10} \lambda_1 \lambda_2 \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)} \right] \dots \dots \dots (4)$$

$$N_4 = N_{10} \lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_4 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)\lambda_2 - \lambda_1} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)\lambda_1 - \lambda_2} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)\lambda_1 - \lambda_3} + \frac{e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_1 - \lambda_4)(\lambda_2 - \lambda_4)\lambda_3 - \lambda_4} \right] \dots \dots \dots (5)$$

2-2. 개선된 치보글로우 방법[3]의 이론적 배경
공기중의 라돈 자핵종들의 농도를 Q_i(atoms/l) 또는 Ci(pCi/l)로 표시하고, V(l/min)의 유속으로 공기 시료를 포집할 때 필터에서의 각 라돈 자핵종들의 원자수 변화는 다음 식과 같이 표시하며 [4]

$$\frac{dN_i}{dt} = N_{i-1} \lambda_{i-1} - N_i \lambda_i + Q_i V \dots \dots \dots (6)$$

이식을 풀고 시료 채취 시간을 5분으로 하면 시료채취 직후 필터에서의 라돈 자핵종들의 원자수는 다음과 같은 관계가 있다.

$$N_2^0 = 29.1784 C_2 V \dots\dots\dots (7)$$

$$N_3^0 = 18.7653 C_2 V + 402.6401 C_3 V \dots\dots\dots (8)$$

$$N_4^0 = 0.8504 C_2 V + 25.0828 C_3 V + 289.2389 C_4 V \dots\dots\dots (9)$$

집진 필터에서의 알파 방사능은 ^{218}Po 과 ^{214}Po 의 방사능에 비례하며 ^{214}Po 의 방사능은 ^{214}Bi 의 방사능과 같다고 보므로 시료 채취 완료 후 시간 θ_1 에서 θ_2 동안의 알파 방사능은 다음과 같이 표시된다[4].

$$I(\theta_1, \theta_2) = E \int_{\theta_1}^{\theta_2} (N_2 \lambda_2 + N_4 \lambda_4) d\theta \dots\dots\dots (10)$$

이 식을 적분한 후 시간 θ_1, θ_2 에 각각 (2-5 분), (7-15 분), (25-30 분)을 대입하면 측정 시간 구간에 따른 라돈 핵종들의 총 알파 방사능을 나타내는 식들이 얻어진다.

$$I(2, 5) = \varepsilon (0.31658 N_2^0 + 0.00855 N_3^0 + 0.09338 N_4^0) \dots\dots\dots (11)$$

$$I(7, 15) = \varepsilon (0.20935 N_2^0 + 0.05663 N_3^0 + 0.19179 N_4^0) \dots\dots\dots (12)$$

$$I(25, 30) = \varepsilon (0.05327 N_2^0 + 0.05419 N_3^0 + 0.06694 N_4^0) \dots\dots\dots (13)$$

윗식에 식 7, 8, 9를 대입한 후 C_2, C_3, C_4 를 연립방정식으로 계산하면 측정기의 효율이 ε 일 때, 시료 채취 완료 후 2-5 분, 7-15 분, 25-30 분 측정된 알파 방사능으로 라돈 자핵종의 농도를 나타내는 다음 식들을 얻는다.

$$C_2 = \frac{1}{\varepsilon V} [0.16817 I(2, 5) - 0.11421 I(7, 15) + 0.09133 I(25, 30)] \dots\dots\dots (14)$$

$$C_3 = \frac{1}{\varepsilon V} [-0.00084 I(2, 5) - 0.02461 I(7, 15) + 0.07167 I(25, 30)] \dots\dots\dots (15)$$

$$C_4 = \frac{1}{\varepsilon V} [-0.02181 I(2, 5) + 0.04537 I(7, 15) - 0.047731 I(25, 30)] \dots\dots\dots (16)$$

3. 실험 및 방법

3-1. 시료 채취 후 측정시간 결정

라돈이 자핵종으로 붕괴할 때 최초 자핵종인 ^{218}Po 과 네번째 자핵종인 ^{214}Po 는 라돈과 같이 알파입자를 방출하며 루카스셀에서 이들이 방출하는 방사능은 그림 2에서와 같이 라돈 시료 채취 후 약 3시간에서 4시간 사이에 총 알파 방사능이 약 2.9배로 증가된 최대값을 나타내며 라돈과 자핵종들 간에 방사평형 상태가 된다는 것을 알 수 있다.

또한 시료 채취시 라돈의 동위원스인 토론과 악티논이 루카스셀에 들어 왔을 때 시료 채취 후 약 10분 경과 하면 토론 및 그 알파입자 방출 자핵종들은 토론의 초기 방사능에 대하여 약 천분의 1로 감소하고 악티논 및 그 알파입자 방출 자핵종들은 악티논의 초기 방사능에 대하여 약 만분의 1로 감소됨을 그림 3을 통하여 알 수 있으며, 모핵종에 비하여 자핵종들의 반감기가 상대적으로 긴 토론 및 악티논의 붕괴 계열에서는 라돈의 붕괴 계열과는 달리 변곡점이 나타남을 알 수 있다.

그리고 기공이 작은 밀리포어 필터를 통과시킨 공기를 사용하여 라돈의 농도 측정에 이용하지만 먼지등에 부착되지 않은 상태의 자핵종들은 필터 매질을 투과할 수 있는데 라돈 농도 측정시 이들의 영향을 알아보기 위하여 루카스셀에 라돈을 제

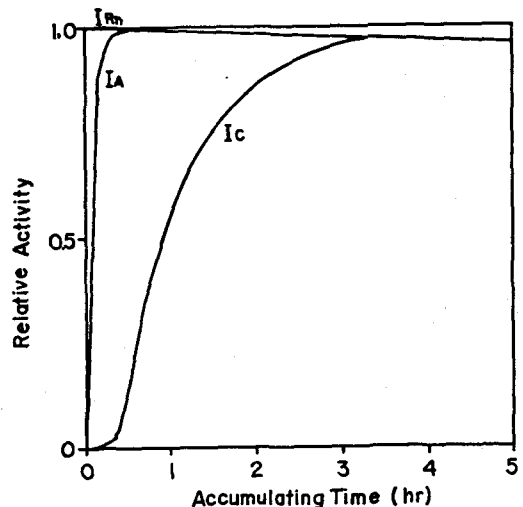


Fig.2. Activity of radon and its α -particle emitting daughters with accumulating time in Lucas-cell.

외한 라돈 자핵종들이 평형 상태로 유지되었다고 가정하고 시간의 증가에 따라 감소하는 총 알파 방사능을 계산해 본 결과 그림 4 와 같이 3 시간에서 4 시간 사이에 약 오천분의 1로 감소하였다.

따라서 본 연구에서는 루카스셀의 효율 측정 및 공기중의 라돈 농도 측정시 공기시료 채취 후 3 시간 경과 시킨 다음 1 시간 동안 계측하였다.

3-2. 루카스셀의 효율측정

5 pCi/ml의 라듐 수용액 1 ml를 마이크로피펫으로 취하여 그림 5의 이중관 용기의 내벽에 묻혀 건조시킨 후 38 일 이상 밀봉, 방치시켜 방사평형이 이루어지게 한 다음 라돈 표준선원으로 이용하였다.

라돈 표준선원의 각 부분에 대한 용적은 다음과 같으며 순환 용적은 903 cm³이다.

- 내부 용기 : 708 cm³
- 연결 호스 및 펌프의 내부 공간 : 35 cm³
- 신틸레이터셀 : 160 cm³

백그라운드를 알고 있는 루카스셀을 라돈 표준선원에 연결한 후 이중관 용기의 외관에 50°C의 온

수가 흐르게 하면서 1.6l/min의 유속으로 내부 공기를 5분 동안 순환시킨 후 루카스셀을 분리하여 3 시간 방치시킨 다음 1 시간 동안 계측하여 백그라운드를 뺀 진계수 값으로 루카스셀의 환산인자를 계산하였으며 실온에서 측정된 값과 비교하였다. 측정에 사용한 계측기는 캐나다 EDA 회사 제품의 라돈 및 라돈 자핵종 농도 측정기 (Model-RD-200)이다.

3-3. 라돈 및 자핵종의 농도 측정

라돈 농도를 측정 하기 위한 루카스셀과 라돈 자핵종을 측정하기 위한 Millipore filter (pore size 0.8 μm)를 연결하여 사무실 바닥으로 부터 1 m 높이의 공간에서 17 l/min의 유속으로 5분 동안 공기시료를 채취 한 후 집진 필터는 신틸레이터 트레이에 옮겨 시료 채취가 끝난 시점을 기준으로 2-5분, 7-15분, 25-30분에 계측하여 라돈 자핵종들의 농도를 계산하였으며 필터를 통과하여 루카스셀에 포집된 공기는 시료 채취가 끝난 후 3 시간 방치시킨 다음 1 시간 동안 계측하여 라돈의 농도를 계산하였다.

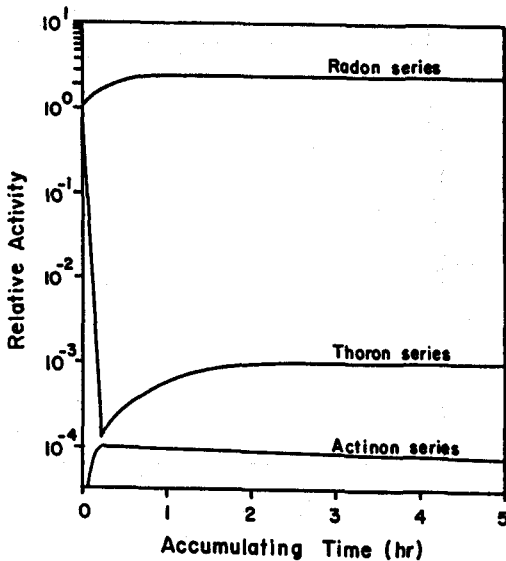


Fig.3. Activity of radon, thoron and actinon with accumulating time in Lucas-cell.

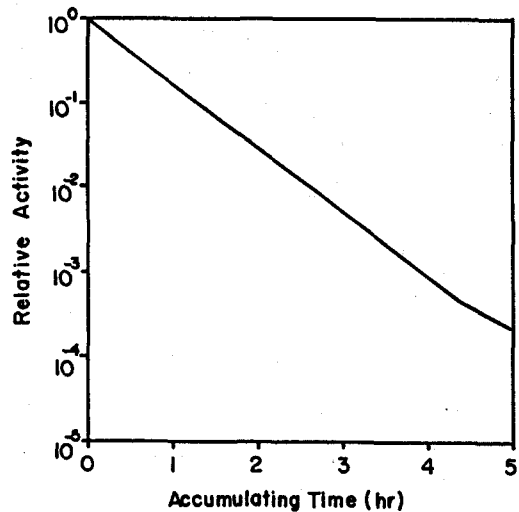


Fig.4. Total α-activity of radon daughters started at equilibrium with Po-218 and its daughters without radon in Lucas cell.

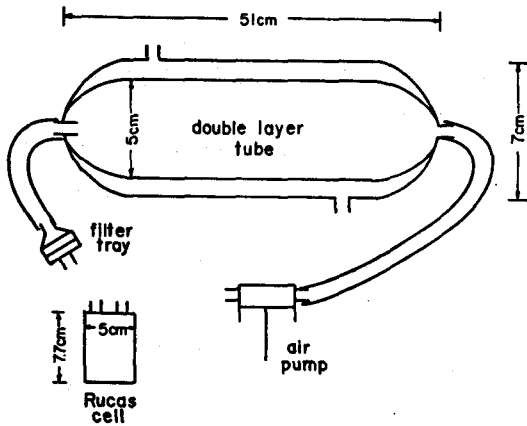


Fig. 5. Schematic diagram of standard radon source.

측정 결과는 공기중의 방사성물질 농도 표시 단위인 pCi/l로 나타내었으며 다음식에 대입하여 전체 방사평형인자(F_t)를 계산하였다.

4. 결과 및 고찰

4-1. 루카스셀의 효율 측정

본 연구에 사용한 루카스셀은 백그라운드를 10회 측정한 결과 22.9±1.5 cph였다. 이 셀을 실온 및 50°C로 유지된 그림 5의 라돈 표준선원에 연결하여 5분간 내부 공기를 순환시킨 후 3시간 방치시킨 다음 1시간 동안 계측하여 루카스셀의 계수치에 대한 라돈 농도 환산계수를 측정한 결과는 표 1과 같았으며, 라돈 표준선원에서 라돈의 발생률은 온도와 함수관계가 있음을 알 수 있었다. 평균치는 실온에서 0.031±0.002 (pCi/l)/(cph/Cell)였고, 50°C에서는 0.029±0.001(pCi/l)/(cph/Cell)였다.

본 연구에서는 라돈 표준선원을 실온으로하여 얻은 측정값에 비하여 오차범위가 작은 50°C로 유지하여 얻은 측정값을 이용하여 환산인자를 계산하였으며 다음과 같은 환산식을 만들어서 루카스셀에 의하여 공기 중의 라돈 농도(C_{Rn})를 편리하게 측정할 수 있도록 하였다.

$$C_{Rn} = K \times CPH \dots\dots\dots(18)$$

이때 K는 환산인자 [0.029(pCi/l)/(cph/Cell)]이며, CPH는 측정하고자 하는 공기 시료를 루카

Table 1. Gross counts of rucas cell sampled at room temperature and 50°C from standard radon source.

unit : cph		
No.	Room Temp.	50 °C
1	202	214
2	235	205
3	195	213
4	181	212
5	204	190
6	201	219
7	209	221
8	219	207
9	176	213
10	200	210
Ave.	202.2±17.0	210.4±8.6

Conversion Factor or Calibration Factor at 50 °C
 K = 0.029±0.001 (pCi/l)/(cph/Cell)

스셀에 채취한 후 3 시간 방치시킨 다음 1 시간 동안 측정된 진계수 값(cph/Cell)이다.

4-2. 실내 공기중 라돈 및 라돈 자핵종의 농도 측정 및 방사선 피폭량 예측

루카스셀과 필터를 연결하여 라돈 농도 측정에 필요한 시료와 라돈 자핵종의 농도 측정에 필요한 집진 시료를 동일한 시간과 장소에서 채취한 후 측정된 결과 ^{222}Rn , \rightarrow ^{218}Po \rightarrow ^{214}Pb , \rightarrow ^{214}Bi 의 평균 농도가 각각 0.87 ± 0.34 , 0.53 ± 0.38 , 0.35 ± 0.16 , 0.26 ± 0.13 pCi/l 였다. 이때 전체 방사평형 인자의 평균값은 0.40 ± 0.11 이며 측정치들을 WL 단위[5,6]와 함께 표 2에 나타내었다.

1년 동안의 평균 라돈 농도와 전체 방사평형 인자의 평균값이 측정값과 일치 한다고 가정하고, 연 2000 시간 근무한다고 하면 이 사무실에서 피폭되는 방사선량은 연간 약 30 mrem에 해당한다.

현재 미국 환경보호청에서는 공기중의 라돈 농도를 4 pCi/l 이하, 혹은 전체 방사평형인자를 0.5로 가정하여 0.02 WL(약 800 mrem/yr) 이하로 할 것을 권고하고 있다 [6].

5. 결 론

1. 라돈 농도 측정을 위하여 루카스셀의 환산인자를 측정된 결과 라돈 표준선원을 실온으로 하였을 때는 0.031 ± 0.002 (pCi/l)/(cph/Cell)였고, 50°C로 가열하였을 때는 0.029 ± 0.001 (pCi/l)/(cph/Cell)였다.

2. 실내 공기에서 라돈과 라돈 자핵종들의 농도를 동시에 측정된 결과 ^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Bi 의 평균 농도가 각각 0.87 ± 0.34 , 0.53 ± 0.38 , 0.35 ± 0.16 , 0.26 ± 0.13 pCi/l 였으며 전체 방사평형인자는 0.40 ± 0.11 였다.

3. 1년간 평균 라돈 농도가 측정값과 일치하고 또한 전체 방사평형인자의 평균값도 0.40 이라고 가정하면 이 사무실에서 피폭되는 방사선량은 연간 약 30 mrem 이다.

참 고 문 헌

1. R.M.Fry, "Radon and its hazards", in : *Personal Dosimetry and Area Monitoring Suitable for Radon and Daughter Product*,

Table 2. Concentration of radon and its daughter product in room-air.

Sampling No.	Rn Conc. (pCi/l)	Rn-daughter Conc. (pCi/l)			F_t	WL($\times 10^{-3}$)
		Po-218	Pb-214	Bi-214		
1	1.24	0.50	0.33	0.31	0.27	3.39
2	0.58	0.05	0.14	0.18	0.25	1.46
3	0.98	0.74	0.39	0.24	0.38	3.68
4	0.81	0.59	0.28	0.38	0.43	3.49
5	1.45	0.66	0.65	0.45	0.40	5.75
6	1.10	1.42	0.61	0.08	0.44	4.90
7	1.04	0.26	0.29	0.38	0.31	3.21
8	0.38	0.30	0.24	0.22	0.63	2.38
9	0.52	0.60	0.26	0.08	0.43	2.26
10	0.64	0.20	0.28	0.30	0.44	2.80
Ave.	0.87 ± 0.34	0.53 ± 0.38	0.35 ± 0.16	0.26 ± 0.13	0.40 ± 0.11	3.33 ± 1.26

- p.17, OECD, Canada (1976).
2. G.Keller, K.H.Folerts, "Radon-222 concentration and decay product equilibrium in dwelling and in the open air", *Health Physics*, 47, 392(1984).
 3. A. Khan, C.R.Phillips, "Dependence of electrostatic diffusion of radon progeny on environmental parameters", *Health Physics*, 49, 446(1985).
 4. P.S.Kim, D.K.Min, S.G.Ro, "Measurement of radon daughters in airborne dust", 대한 방사선방어학회지, 14(1), 10-11(1977).
 5. R.D.Evans, "Engineers guide to the elementary behavior of radon daughters", *Health Physics*, 17, 238(1969).
 6. D.Bodansky, "Overview of indoor radon problem", in : *Indoor Radon and its Hazards*, pp.9-23, University of Washington Press, Seattle and London (1989).

Measurement of Radon and its Daughters Concentration in Air

Y. W. Park, C. W. Ha and S. G. Ro

Korea Advanced Energy Research Institute

ABSTRACT

A Lucas cell was established and calibrated by using the double layer tube standard radon source.

The calibration factors were 0.031 ± 0.002 (pCi/l)/(cph/Cell) at room temperature, and 0.029 ± 0.001 (pCi/l)/(cph/Cell) at 50°C.

Radon and its daughters concentrations were measured in a room air for the demonstrating purpose. The concentrations of ^{222}Rn , ^{218}Po , ^{224}Pb , and ^{214}Bi were 0.87, 0.53, 0.35 and 0.26 pCi/l.

The total equilibrium factor was around 0.40 and the WL is 3.33×10^{-3} , resulting in 30 mrem/yr at this place.

Lucas-Cell, Standard-Radon-Efficiency, Equilibrium-Factor, Working-Level, Dose-Rate