

라돈을 제어하는 환경에서 라돈 자핵종의 농도 결정

서경원·이병기*

한국원자력연구소, 강원대학교*

요 약

본 연구에서는 환기장치로 제어하는 환경인 라돈 표준실 및 라돈 발생기로 부터 이론적으로는 Jacobi 모델 이론을 사용하여 라돈 자핵종의 농도를 계산하였으며, 실험적으로는 두 발생 조건으로부터 채취된 시료를 알파스펙트럼 분석법에 의해 측정 분석하여 그 농도를 결정하였다.

이론적인 계산치와 실험적인 측정결과를 비교해 본 결과 매우 잘 일치되는 좋은 결과를 얻게 되었다. 따라서 이러한 연구는 실내 라돈환경에서 라돈 자핵종의 알파방출체에 의한 내부피폭선량을 보다 정확히 평가하고, 라돈 자핵종의 개별 농도를 신속히 결정하는 데 크게 기여할 것이라 사료된다.

Key words : 라돈 자핵종, 결합된 라돈, 비결합된 라돈.

1. 서 론

라돈 자핵종의 농도 결정은 대부분 여과지에 채취된 시료를 측정하여 분석한다. 이 방법을 이용한 것으로는 총알파 계수법과 알파스펙트럼 분석법이 있는데 총알파 계수법은 정확한 자핵종의 개별 측정이 불가능하고 3회에 걸쳐서 측정해야하는 번거러움이 있으므로 본 연구에서는 표면장벽형 검출기를 사용하여 여과지상에 부착된 알파입자의 에너지스펙트럼을 1회 측정 분석하는 알파스펙트럼 분석법으로 그 농도를 결정하였다. 실험적으로는 두 가지 실험 조건인 라돈 표준실과 라돈 발생기로부터 발생된 라돈 자핵종들을 채

집하고 알파스펙트럼 분석법으로 측정해서 그 결과를 얻었으며, 이론적으로는 Jacobi모델을 이용하여 두 실험 조건과 같은 조건의 인자를 대입하여 그 농도를 결정하였다. 그리고 이론적인 계산과 실험적 결과를 비교하여 라돈자핵종에 대한 농도 결정방법의 정확성 여부를 비교하였다.

2. 이론적 배경

1. Jacobi Model의 이론 [1].

Jacobi model은 공기의 흐름이 조정되는 환기 상태에서 라돈 자핵종의 농도를 추론해 낼 수 있다. 그러나 그 상태는 공기의 환기율, 라돈 자핵종과

공기중 입자들과의 결합율, 표면에의 부착율등이 각각의 시간적, 기상적 조건에 따라 변할 수 있으므로 이들 상수를 대표할 수 있는 단순화된 값으로 나타내야 한다. 그러므로 정적상태의 모형은 입력변수의 값들을 수일 또는 수주일의 평균치로 설명하는 것이 더 합리적이다.

(1) 실내 라돈환경에서 입력변수

Jacobi model에서 가정되는 조건들은 라돈과 입자와의 결합조건과 표면에 부착되는 경로로부터 산출해 볼 수 있으며, 실내에서 여러가지 형태의 조건을 가정하여 사용된 Jacobi Model의 수학적 선원형은 표1. 에서와 같은 단위와 상징문자로 설명하고 있다. 본 연구에서 실내라돈 및 그 자핵종의 농도를 평가하기 위해 고려된 변수는 [2]

- 입력조건(Radon Entry) - 토양, 물, 건축재료,

- 공기 - S_r
 - 방사성 붕괴상수(Radioactive Disintegration Constant) - λ_A (Po-218), λ_B (Pb-214), λ_C (Bi-214)
 - 환기율(Ventilation Rate) - λ_v
 - 표면 부착율과 부착속도 (Deposition Rate and Velocity) - λ_d , V_d
 - 공기중 입자와의 결합율 (Attachment Rate) - λ_a
 - 공기중 입자와 결합된 것과 결합되지 않은 라돈 자핵종의 표면 부착율(Deposition Rate of Attached and Unattached Radon Progeny) - λ_{d^a} , λ_{d^u}
 - 반조되어 재발생된 것(Resuspension via Recoil Process) - p_1
- 이다. 이와 같은 변수의 상호관계는 그림 1과 같이

Table 1. Symbols and units used in Jacobi model [1]

Symbol	Units	Meaning
S_r	atoms/h	Radon input rate
C_i^u	atoms/m ³	Concentration of airborne unattached nuclides
C_i^a	atoms/m ³	Concentration of airborne attached nuclides
C_i^s	atoms/m ²	Concentration of surface deposited nuclides
C_i^{s*}	atoms/m ³	Volume-equivalent concentration of surface deposited nuclides
λ_i	1/h	Radioactive decay constants
I_i^u	Bq/m ³	Activity of airborne unattached progeny
I_i^a	Bq/m ³	Activity of airborne attached progeny
I_i^s	Bq/m ²	Activity of surface-deposited progeny
I_i^{s*}	Bq/m ³	Volume-equivalent activity of surface deposited progeny
S	m ²	Surface area available for deposition
V	m ³	Volume of room or space being considered
λ_v	1/h	Ventilation rate constant
λ_a	1/h	Attachment rate constant
V_d^a	m/h	Deposition velocity for attached progeny
V_d^u	m/h	Deposition velocity for unattached progeny
p_1	-	Probability that the decay product will recoil (detach) from the aerosol particle when the attached Po-218 decays
λ_{d^a}	1/h	Rate constant for deposition of attached progeny
λ_{d^u}	1/h	Rate constant for deposition of unattached progeny

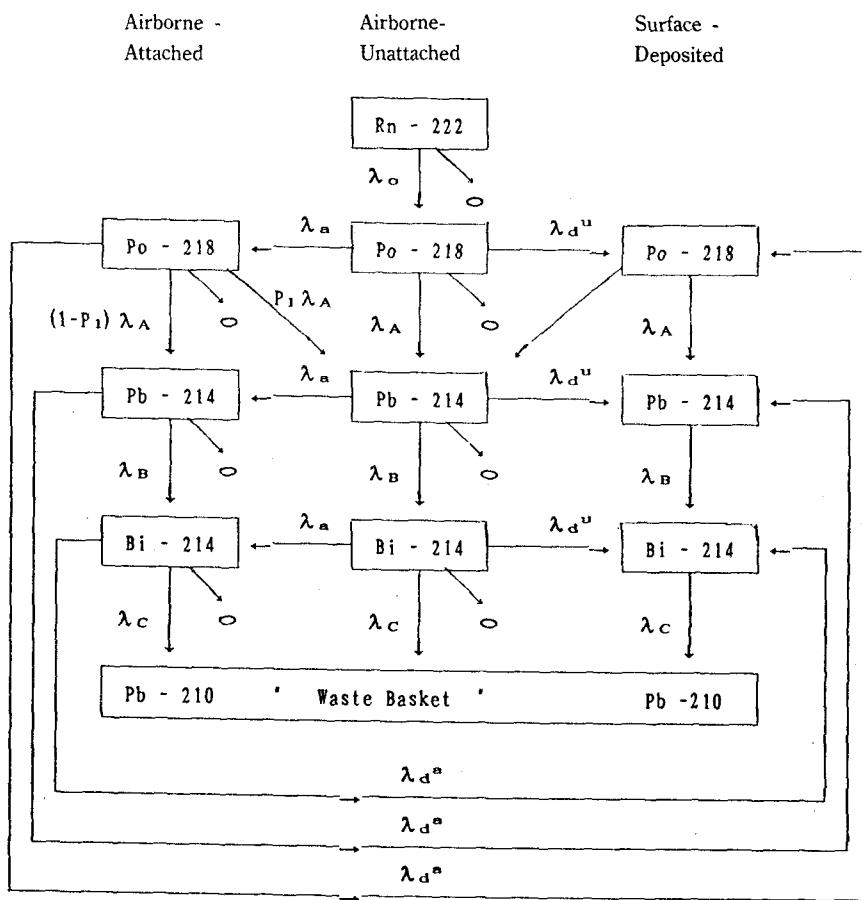


Fig. 1. Cell diagram for indoor radon and radon progeny [1]

나타낼 수 있다.

(2) 라돈의 입출

라돈기체의 입력율은 S_r 이고, 손실율은 실내 전체로 라돈기체가 확산되면서 동시에 자체가 방사성 붕괴하여 손실되는 경우와 환기상태의 변화 등 환기조건에 따라 실 밖으로 배출하여 손실되는 경우의 두 가능한 경로에서 각각 $\lambda_o C_o V$ 와 QC_o 이 된다. 총손실에서 단일체적의 손실을 고려할 때 첫 번째 손실항에는 체적에 대한 것이 필요하다. 입력과 출력이 균형을 이루기 위해

손실항을 선원항과 같은 방정식을 세운 후 단위체적당의 농도로 계산하기 위해 체적 V 로 나눈다. 이때 $\lambda_v = Q/V$ 는 환기상수이며, Q 는 환기장치에 의해 배출 되는 양이다.

$$S_r/V = (\lambda_o + \lambda_v) C_o \quad \dots\dots(1)$$

(3) Po-218의 입출

공기와 결합되지 않은 Po-218에 대한 선원항은 라돈의 붕괴이며, 손실율은 Po-218이 방사성 붕괴, 환기조건에 따른 배출, Po-218이 입자와 결합,

Po-218이 입자와 결합하지 않고 표면에 부착되는 경우의 4가지 손실경로가 있다. 표면부착에 의한 손실에서 모든 표면면적 S에 고려된 총부착율은 $\lambda_d^u S C_A^u$ 이며, 체적 V로 나눈 후의 평형방정식은 다음과 같다.

$$\lambda_o C_o = (\lambda_A + \lambda_v + \lambda_a + \lambda_d^u) C_A^u \quad \dots(2)$$

여기서, $\lambda_d^u = V_d^u S/V$ 이다. 공기와 결합된 Po-218에 대하여 선원항은 $\lambda_a C_A^u$ 이며, 손실율은 Po-218이 방사성 붕괴, 환기조건에 따른 배출, Po-218이 입자와 결합해서 표면에 부착되는 경우의 세 가지 손실 경로가 있다.

$$\lambda_a C_A^u = (\lambda_A + \lambda_v + \lambda_d^u) C_A^u \quad \dots(3)$$

표면에 부착된 Po-218에 대한 선원항은 Po-218이 입자와 결합하지 않고 표면에 부착된 경우와 입자와 결합해서 표면에 부착된 두 가지 경우로 그 각각은 $V_d^u C_A^u$ 와 $\lambda_d^a C_A^a$ 로 나타내며, 이는 표면의 단위면적당 부착율로 주어진다. 손실항은 한가지로 표면부착된 Po-218의 방사성 붕괴인 $\lambda A C_A^s$ 이다. 단위체적당의 기준으로 같게하기 위해 표면의 면적 S를 곱하고 체적 V로 나누면

$$\lambda_d^u C_A^u + \lambda_d^a C_A^a = \lambda_A C_A^{s*} \quad \dots(4)$$

여기서, $C_A^{s*} = C_A^s S/V$ 로 표시된다. 표면의 면적 S는 공기가 입사된 표면이나 가구와 같은 목표물의 면적뿐만 아니라 바닥, 천정, 벽의 면적을 포함하고 있다.

(4) Pb-214의 입출

공기와 결합되지 않은 Pb-214에 대하여 세 가지 선원항이 있다. 이를 열거하면 비결합된 Po-218의 붕괴, 공기중 입자와 결합된 Po-218의 붕괴, 표면에 부착된 Po-218이 붕괴할 때 반조된 것, 이들중 두 번째는 0이 아닌 확률 p_1 으로 반조되어 일어나고, 세 번째는 매우 낮은 확률을 발생하므로 선원항에서 무시된다. 손실항은 비결합 Po-218과 유사

하다. 따라서

$$\lambda_A C_A^u + p_1 \lambda_A C_A^a = (\lambda_B + \lambda_v + \lambda_a + \lambda_d^u) C_B^u \quad \dots(5)$$

이며, 결합된 Po-218에 대해서 두 선원항이 있다.

$$\lambda_a C_B^u + (1 - p_1) \lambda_A C_A^a = (\lambda_B + \lambda_v + \lambda_d^a) C_B^a \quad \dots(6)$$

반조확률 p_1 은 Mercer[3]의 0.83의 값이 참고치로 많이 사용되고 있다. 표면에 부착된 Pb-214에 대해서는 세 선원항이 있으며, 첫 번째는 표면에 부착된 Po-218의 붕괴이다. 이를 체적의 등가형태로 나타내면 다음과 같다.

$$\lambda_A C_A^{s*} + \lambda_d^u C_B^u + \lambda_d^a C_B^a = \lambda_B C_B^{s*} \quad \dots(7)$$

(5) Bi-214의 입출

Bi-214에 대한 모든 것은 다음의 세 방정식으로 표현되며, 반조되는 인자가 없기 때문에 보다 간단하다. 따라서

$$\lambda_B C_B^u = (\lambda_c + \lambda_v + \lambda_a + \lambda_d^u) C_c^u \quad \dots(8)$$

$$\lambda_B C_B^a + \lambda_a C_c^u = (\lambda_c + \lambda_v + \lambda_d^a) C_c^a \quad \dots(9)$$

$$\lambda_B C_B^{s*} + \lambda_d^u C_c^u + \lambda_d^a C_c^a = \lambda_c C_c^{s*} \quad \dots(10)$$

이다. 이 식들은 라돈발생으로부터 라돈 자핵종별 방사능을 예측하는 데 유용하게 사용 될 수 있다.

(6) 라돈 자핵종의 농도 계산식

전항과 같은 식을 이용하면 각각의 라돈 자핵종 농도를 구할 수 있으나, 본 연구에서는 알파 핵종만을 취급하므로 Po-218과 Po-214 핵종에 관한 부분만을 계산하는 데 적용될 것이다. 먼저 라돈의 입출에서 라돈 자핵종인 Po-218의 농도 계산식은 각식에서 농도 대신 방사능농도로 하기위해 C_i^x 는 I_i^x / λ_i^x ($i=A, B, C, x=u, d, s*$)로 대입하고 식(2)에서부터 식(4)까지를 정리하면 다음과 같이 되며,

$$I_{A^u} = \frac{\lambda_A \times I_o}{\lambda_A + \lambda_v + \lambda_a + \lambda_d^u} \quad \dots\dots(11)$$

$$I_{A^a} = \frac{\lambda_a \times I_{A^u}}{\lambda_A + \lambda_v + \lambda_d^a} \quad \dots\dots(12)$$

$$I_{A^{s*}} = \frac{\lambda_d^u \times I_{A^u} + \lambda_d^a \times I_{A^a}}{\lambda_A} \quad \dots\dots(13)$$

Po-214의 농도계산식은 Bi-214의 입출에서 Po-214의 반감기(1.6×10^{-4} 초)가 짧기 때문에 연속 평형(Secular Equilibrium)을 이룬다. 따라서 Po-214의 방사능은 Bi-214로 계산할 수 있으므로 식 (8)에서 식(10)까지를 정리하면 다음과 같다.

$$I_{c^u} = \frac{\lambda_c \times I_{B^u}}{\lambda_c + \lambda_v + \lambda_a + \lambda_d^u} \quad \dots\dots(14)$$

$$I_{c^a} = \frac{\lambda_c \times I_{B^a} + \lambda_a \times I_{c^u}}{\lambda_c + \lambda_v + \lambda_d^a} \quad \dots\dots(15)$$

$$I_{c^{s*}} = \frac{\lambda_c \times I_{B^{s*}} + \lambda_d^u \times I_{c^u} + \lambda_d^a \times I_{c^a}}{\lambda_c} \quad \dots\dots(16)$$

2. 알파스펙트럼 분석법의 측정이론

대기중에서 라돈 자핵종 농도를 측정하는 대부분의 방법들은 시료채집후 시간의 함수로서 알파 방사능량을 측정하여 분석한다. 또한 시료채집시의 유량율과 시료 채집시간에 따른 변화를 고려해야 한다.

공기중 라돈 자핵종의 농도를 결정하기 위하여 시료채집중 방사능의 증배인자와 종료후 방사성 붕괴에 의한 인자를 고려하여야 한다. 또한 유량율 U로 시료채집을 하는 동안 Po-218, Po-214의 공기중 I_A, I_c 가 일정하게 유지되어야 하며, 대응되는 방사성 붕괴상수는 λ_A, λ_c 이고 시료채집 효율은

각각 모두 단일한 것으로 취해진다.

시료채집중 방사능의 증배인자는 시료채집시간 T분후 유량율 U와 시간 t의 함수로서 여과지로부터 각각 Po-218, Po-214의 알파 방사능 수집율 [4]은

$$\int_0^T U \text{Exp}(-\lambda_i t) dt = \frac{U}{\lambda_i} (1 - \text{Exp}(-\lambda_i T)) \quad \dots\dots(17)$$

$i = A, C$

이며, 시료채집후 방사성 붕괴에 의한 인자로 알파스펙트럼 분석법에서 제안된 I_A, I_c 는 측정시간 t_1 에서 t_2 까지 측정시간 간격 동안 여과지에 집적된 Po-218, Po-214의 방사능이다. 즉, 측정시작 시간 t_1 에서 측정완료 시간인 t_2 까지의 수집율은

$$\int_{t_1}^{t_2} \text{Exp}(-\lambda_i t) dt = \frac{1}{\lambda_i} (\text{Exp}(-\lambda_i t_1) - \text{Exp}(-\lambda_i t_2)) \quad \dots\dots(18)$$

$i = A, C$

이다. 이러한 양과 측정기 효율인 Y를 고려하여 알파스펙트럼 측정기로 측정된 값인 C_i 로부터 농도 I_i (pCi/L)를 계산하면 다음과 같다.

$$I_i = \frac{1 / 2.22 \times C_i}{U \times 1/\lambda_i (1 - \text{Exp}(-\lambda_i T)) \times (1/\lambda_i (\text{Exp}(-\lambda_i t_1) - \text{Exp}(-\lambda_i t_2))) \times Y}$$

$$= \frac{0.45 \times C_i \times \lambda_i^2}{U \times Y \times (1 - \text{Exp}(-\lambda_i T)) \times (\text{Exp}(-\lambda_i t_1) - \text{Exp}(-\lambda_i t_2)))} \quad \dots\dots(19)$$

$i = A, C$

여기서, C_i 는 시간간격 t_1 과 t_2 동안 계측된 여과지상의 Po-218, Po-214 개수치이며, 2.22는 dpm 을 pCi 단위로 환산한 값이다. 그러므로 집적된 시료의 알파스펙트럼의 분석법은 시료채집시간 T와 측정시간 t_1, t_2 의 함수로 정의하여 분석된다. 체적은 유량율 U와 실험적 조건에서 결정된다. 두 알파에너지를 측정하는 계측효율은 검출기와 시료의 기하학적 특성으로 결정된다.

이상의 변수로 주어진 유량을 U , 측정기 효율 Y , 농도 I_A, I_c 의 결정에서 표준편차는 과도하게 긴 절차로 측정하지 않는 한 작은 값으로 선택된다. I_i 의 표준편차에서 시간 t_1 과 t_2 , 수집시간 T 의 영향 분석은 유량을 U 와 측정기 효율 Y 가 영의 표준편차를 갖는 것으로 가정하여 수행한다. 시간 T, t_1, t_2 는 정확하게 측정될 수 있으므로 이들의 표준편차는 무시되지만 C_i 의 표준편차인 $S(C_i)$ 는 C_i 의 제곱근으로 가정되었다.

I_i 의 표준편차 $S(I_i)$ 는 다음과 같다.

$$S(I_i) = \frac{0.45 \times \lambda_i^2 \times C_i^{1/2}}{U \times Y \times (1 - \text{Exp}(-\lambda_i T)) \times (\text{Exp}(-\lambda_i t_1) - \text{Exp}(-\lambda_i t_2))} \quad \dots \dots (20)$$

결합율과 시간에 따른 감소율에서 거의 평형에 도달하는 시간과 시료채집중 라돈 자핵종의 농도가 일정하다면 이때 수집시간은 가능한 한 짧아야 한다.

그러므로 I_i 의 농도결정에서 5분의 시료채집 시간을 취하였다.

I_i 의 라돈 자핵종 농도가 결정될 수 있는 정확성은 측정간격인 t_1 과 t_2 의 선택에 따라 큰 영향을 준다. T 의 고정된 값에 대하여 I_i 상의 표준편차는 $t_1=0$ 이고 $t_2=\infty$ 일 때 최소값을 갖는다. 그러나 실제로 실험에서 t_1 은 시료채집의 끝과 측정시작시간 사이는 2분 정도시간을 허용해야 될 것이다.

3. 라돈 자핵종의 측정 및 농도 계산

1. 실험적 방법

(1) 여과지와 검출기의 특성

여과지를 이용한 공기 시료채집에서 첫 번째로 고려하여야 할 것은 여과지의 선택이다. 여과지의 종류에 따라 그 특성은 매우 다양하나 현재까지

가장 대표적인 것은 Millipore AA Type의 여과지이다. 본 실험에서는 이외에도 다수의 여과지 [5]를 선택하여 실험하였다.

본 연구에서 사용된 검출기는 표면장벽형 검출기 (Surface Barrier Detector)로 사용목적에 따라 알파선용, 베타선용이 있으며, 결정체의 구조인 실리콘의 두께와 감응면적 등에 따라 다양한 규격이

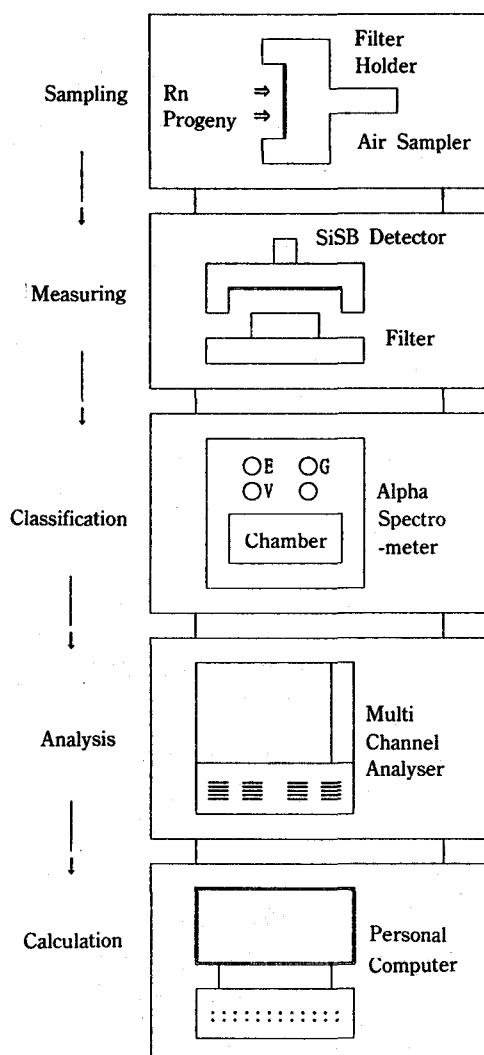


Fig. 2-1. Block diagram of experiment for measuring radon progeny

있다. 이 검출기의 우수한 점은 안정성이 크고, 크기가 작으며 입사창의 흡수가 적고 넓은 영역에 걸쳐 퍼포먼스를 갖고 있는 것이다.

또한 이 검출기는 분해능이 Am-241의 5.486 MeV 기준으로 FWHM이 39 keV이고, 시료의 감응면적이 1000mm^2 (최대직경이 1.75 인치)이며, 최소 감응두께(Minimum Depletion Depth)가 $100\mu\text{m}$ 인 실리콘 표면장벽형 검출기(SiB Detector, PD-1000-100-39, Tennelec)가 내장되었다.

(2) 측정장치의 특성 및 구성

측정장치의 구성은 그림 2-1과 같이 시료채집기, 표면장벽형 검출기, 알파스펙트럼 분석기, 다중파고 분석기, 자료분석용 컴퓨터 순으로 연결되었고 실제로 사용된 장치는 그림 2-2와 같으며, 각 구성별 특성은 다음과 같다.

공기중에서 라돈 자핵종의 시료를 채집(sampling)하기 위해서 여과지를 시료채집기(Air Sampling) 하기 위해서 여과지를 시료채집기(Air Sampling)

pler)의 여과지집(Filter Holder)에 넣고 흡입펌프로 일정한 유량율(5-25L/min)을 유지하면서 실험 조건에서 정해진 시간만큼 기기를 가동한다. 이때 그 포집효율은 사용된 여과지의 특성이나 유량율 등에 따라 변화된다.

여과지상에 포집된 라돈 자핵종중에서 알파입자를 구분하여 측정(measuring)하기 위해 실리콘 표면장벽형 검출기로 시료를 측정한다. 이 검출기의 효율은 검출기의 종류나 여과지와 검출기 사이의 간격등 위치와 측정하려는 에너지 구간에 따라 결정되어야 한다. 그러나, 본 연구에서 라돈 자핵종의 측정구간에 대한 교정은 다중파고 분석기에 연결하여 사용되며 본 연구에서 사용된 검출기의 계측효율은 Am-241 선원을 이용하여 결정한 결과 17.63% 였다.

검출기에 의해 측정된 라돈 자핵종의 알파입자를 분류(classification)하기 위해서 알파스펙트럼 분

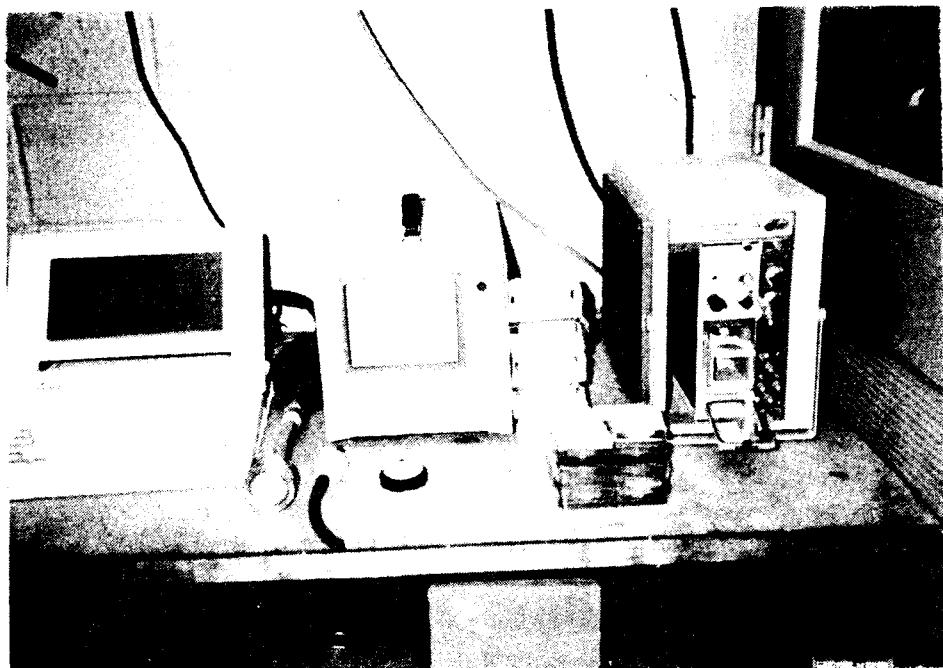


Fig. 2-2. Equipments used in the Test

석기(Alpha Spectrometer, T256, Tennelec)로 에너지별 계수치로 구분하여 나타낸다. 이 분석기의 에너지 선택 범위에 따라 실험에서 요구되는 범위의 스펙트럼으로 조정할 수 있다. 또 측정시 계수효율을 높이기 위해 검출기의 내장부분은 전공상태로 만든다.

본 연구에서 사용된 알파스펙트럼 분석기에 연결한 검출기의 동작전압은 150V이며, 측정할 수 있는 에너지의 선택 범위는 3~8 MeV, 4~7 MeV, 3~5 MeV, 4~6 MeV, 5~7 MeV, 5~8 MeV이다. 또한 측정시 채널과 에너지와의 관계를 쉽게 확인할 수 있는 교정용 가변형 주파수발진기(Variable Test Pulser)가 연결되어 있어 간편하게 교정할 수 있다.

분류되어 측정된 알파스펙트럼은 다중파고 분석기 (Multichannel Analyzer, MCA, 2081, Canberra)를 이용하여 분석(analysis)한다. 이 장치는 에너지별로 세분하여 계수치를 나타낼 수 있기 때문에 실험에서 정해진 에너지 구간으로 (라돈 자핵종별 에너지 선택이 가능) 정확한 양을 분석할 수 있다. 이 분석기의 에너지분해능, 채널수 등에 따라 정확도는 다르나 대부분의 경우 수십 keV 이내 이므로 라돈 자핵종에서 취급되는 수 MeV와 비교하면 큰 오차없이 사용할 수 있다.

에너지 구간별로 선택된 에너지대의 계수치는 직접 계산(calculation)할 수 있으나, 계산의 편리성 등을 위해 개인용 컴퓨터(personal computer)를 이용하면 자료가 집적되어 저장되므로, 쉽게 계산할 수 있다.

(3) 알파스펙트럼 분석

표면장벽형 검출기에 의해 검출된 것을 알파스펙트럼 분석기에 의해 각 에너지별로 분석하면 라돈 자핵종인 Po-218(6.00MeV)과 Po-214 (7.60 MeV)를 직접 구분하여 확인할 수 있다. 즉 에너지별 계수치인 스펙트럼에서 해당핵종의 에너

지를 구분하고 그에 대한 면적을 계산하여 핵종별 총계수치를 구한다. 스펙트럼을 분석하는 방법 [6]은 직접 계산하는 방법과 컴퓨터의 프로그램을 이용하여 계산하는 방법이 있다.

또한, Po-218과 Po-214의 두 핵종에 대한 피크의 면적과 높이를 계수치로 계산하여 (높이/면적)×1000한 값을 피크의 성능지수(Performance Index, PI)라 하여 피크의 날카로움이나 분석의 정확성을 나타내는 인자로 사용된다. 그러므로 시료 채집시 공기중 입자와 결합된 라돈 자핵종과 비결합된 라돈 자핵종에 대한 각 스펙트럼의 성능지수를 계산하면 여과지의 특성을 비교해 볼 수 있다.

실험에서 각각의 여과지별로 얻어진 알파스펙트럼을 라돈 자핵종별로 구분하여 위와 같은 방법으로 피크의 면적을 계산하고, 전장에서 표시된 알파스펙트럼 분석 이론식에 대입하여 라돈 자핵종별로 그 농도를 결정할 수 있다.

그러나 이 이론식에서 나타낸 것과 같이 측정시 고려되는 여러가지 측정조건인 측정시간, 측정기의 계수효율, 시료채집양, 시료채집시간 등에 의해 그 농도가 결정된다. 따라서 알파스펙트럼 분석에서는 측정된 결과로부터 스펙트럼의 피크와 면적을 계산하는 이외에 측정시 측정조건이 결정되어야 한다.

(4) 실험에 의한 라돈 자핵종의 농도 결정

라돈 자핵종의 농도 결정은 알파스펙트럼 분석법으로 측정된 측정치를 전장에서 논의된 측정이론의 계산식에다 실험조건이나 장치의 특성을 고려한 인자들에 의해 결정되었다.

공기중에서 라돈 자핵종은 공기중 입자(Aerosol)와 결합된 상태와 (Attached Radon Daughter)과 결합되지 않은 상태(Unattached Radon Daughter)로 구별된다. 이는 공기중 입자농도의 분포에 따라 크게 좌우 된다. 공기중 농도를 입자의 크기별로 측정한 결과(Electrical Aerosol Analyzer,

Table 2. Conditions for sampling and measuring

Parameter	Radon Standard Chamber		Radon Generator
	5 L/min	25 L/min	5 L/min
Flow rate, U	5 L/min	25 L/min	5 L/min
Collection time, T	5 min	5 min	2 min
Starting time for count, t_1	2 min	2 min	2 min
Finishing time for count, t_2	4.49 min 33.33 min (2000 sec)	4.49 min 33.33 min (2000 sec)	4.49 min 33.33 min (2000 sec)
Efficiency, Y	17.63%		
Decay constant of Po-218, λ_A	0.225 / min		
Decay constant of Bi-214(Po-214), λ_c	0.03477 / min		

EAA3030) 라돈 표준실(Radon Standard Chamber)의 경우 약 20,000 #/cm³ 정도(평균치로는 약 16,000 #/cm³임)이고, 라돈 발생기(Radon Generator)는 최소입자로 라돈을 발생시키기 위해 질소가스를 공급하였기 때문에 1,000 #/cm³ 이하의 입자가 발생하였다. 두 경우에서 각각의 입자수와 공기중 입자와의 결합하는 정도를 비교해 보면 상대적으로 크게 차이가 남을 알 수 있다. 두 라돈 발생의 조건을 고려하여 라돈 표준실은 결합형으로, 라돈 발생기는 비결합형으로 분류하였다. 본 연구에서 비결합 라돈 자핵종의 경우 라돈이 발생하는 라듐선원인 Ra-226 1 mCi를 0.2 m³ 용량의 드럼에 넣고 신선한 공기(Fresh Air 또는 N₂가스)를 5 L/min의 유량율로 유입시켜서 20m³의 용적으로 라돈기체를 평균 250 pCi/L 농도로 발생시켰다[5]. 이 라돈기체의 발생량은 고농도 이므로 라돈 발생기로부터 5 L/min의 유량율로 2분간 시료를 채집하여 측정하였다.

결합형 라돈 자핵종의 경우 크기가 2.8 m × 2.8 m × 2.4m로 약 20m³의 체적이고, 라돈의 표준농

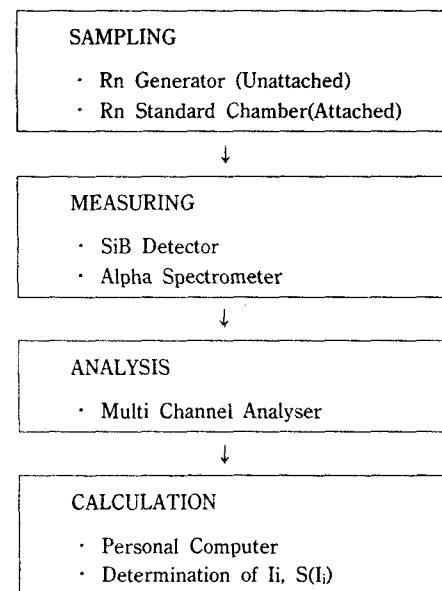


Fig. 3. Procedure for experimental determination of radon progeny concentrations

도를 10~120 pCi/L 범위로 라돈을 발생시킬 수 있는 라돈 표준실로부터 5 L/min, 25 L/min의

유량율로 5분간씩 시료를 채집하여 측정 분석하였다.[7].

이상과 같이 채집된 시료는 표면장벽형 검출기가 내장된 알파스펙트럼 분석기로 측정되었으며, 이 때 측정시간은 라돈자핵종의 반감기를 고려하여 라돈과 자핵종이 평형상태에 이르게 되는 2000 초(33.33 분)이었다. 실험장치의 측정 및 시료채집조건은 표 2와 같으며, 시료채집후 측정된 자료를 식(19)와 식(20)에 대입하여 그림 3의 순서로 라돈 자핵종의 농도와 표준편차를 구하였다.

2. Jacobi Model에 의한 이론적 계산

Jacobi Model에 의한 라돈 자핵종의 농도 계산은 식(11)로부터 식(16)까지를 이용하여 Po-218과 Po-214 핵종에 대한 농도를 결정할 수 있다. 그러나 계산시 사용되는 각각의 인자는 표 3과 같이 λ_A , λ_B , λ_C 는 Po-218, Pb-214, Bi-214의 붕괴상수로서 각각 13.37/h, 1.552/h, 2.111/h이고, λ_v 는 환기율로 라돈 표준설이나 라돈 발생기 모두 같은 조건으로 가동되는 0.6/h[8]이다.

λ_a 는 공기중 입자와의 결합율로 공기중 입자의 농도에 따라 변하는 것으로 다음과 같은 식으로 구할 수 있다[9].

Table 3. Parameters in Jacobi model for calculation

Parameter	Radon standard Chamber	Radon Generator
λ_A	13.37 /h	13.37 /h
λ_B	1.552 /h	1.552 /h
λ_C	2.111 /h	2.111 /h
λ_v	0.6 /h	0.6 /h
λ_a	80 /h	5 /h
λ_{d^u}	72 /h	20 /h
λ_{d^a}	0.72 /h	0.2 /h
P_1	0.83	0.83
Io	50 pCi/L	250 pCi/L

공기중 입자 결합율(/h) = 공기중 입자농도 (/cm³) × 결합계수 (cm³/h) 여기서, 결합계수는 입자의 크기에 따라 그 값이 다르나, 평균으로 $5 \times 10^{-3} \text{ cm}^3/\text{h}$ [1]을 사용한다. 따라서, 라돈 표준설의 경우 공기중 입자농도가 16,000/cm³이므로 공기중 입자 결합율은 80/h이고, 라돈 발생기의 경우에는 공기중 입자농도가 1,000/cm³이므로 5/h로 된다.

λ_{d^u} 는 공기중 입자와 비결합된 라돈 자핵종의 표면부착율로 다음의 식으로 구할 수 있다[1].

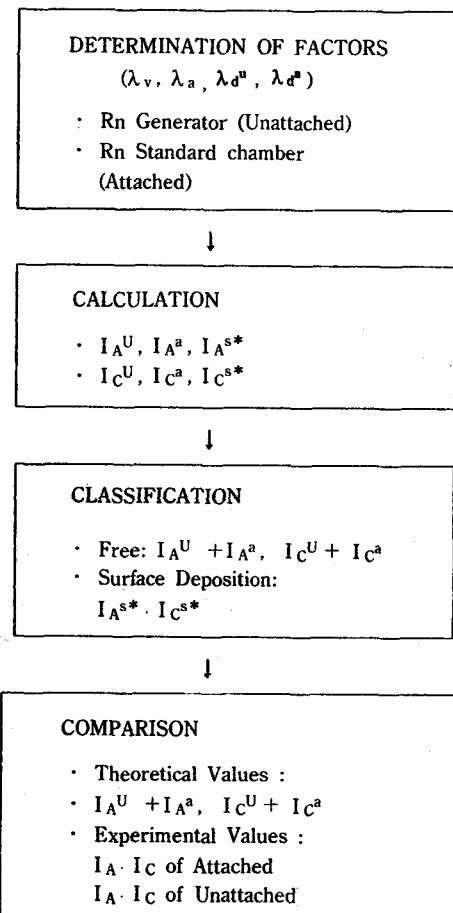


Fig. 4. Procedure for theoretical calculation of radon progeny concentrations

비결합된 입자의 표면 부착율($/h$) = 표면 부착속도 (m/h) \times 표면적/체적($/m$) 여기서, 표면적과 체적의 비는 $2/m$ [10]이며, 표면 부착속도는 라돈 표준실의 경우 입자의 농도와 환기율을 비교할 때 $36m/h(1cm/sec)$ 이므로 [10] 비결합된 입자의 표면 부착율은 $72/h$ 이고, 라돈 발생기의 경우 표면 부착속도는 $10m/h(0.28cm/sec)$ 이므로 $20/h$ 로 된다.

λ_{d^a} 는 공기중 입자와 결합된 라돈 자핵종의 표면 부착율로 λ_{d^u} 의 0.01배이다. 따라서 라돈 표준실은 $0.72/h$ 와 라돈 발생기는 $0.2/h$ 를 취하여 계산하였다.

표3은 Jacobi Model에 이용되는 각종 인자에 대한 값이다. 이 인자들은 실험에서와 동일조건인 라돈 표준실과 라돈 발생기로부터 이론적으로 계산된 값이며, 이 값을 이론식에 대입해서 그림 4의 순서로 계산하여 이론적인 라돈 자핵종의 농도를 결정하고 이를 실험결과와 비교하였다.

4. 결과 및 고찰

1. 실험적 결과

본 연구에서 장치된 실험조건으로 여과지로 라돈 자핵종을 측정하여 나타낸 결과는 식(19), (20)을 계산하여 라돈자핵종의 농도 I_i ($i=A$ 와 C)와 표준편차 $S(I_i)$ 를 결정하였다. 그 결과 전체의 평균치는 라돈 표준실에서 Po-218의 경우 27.13 pCi/L 이고, Po-214의 경우 5.46 pCi/L 이며, 라돈 발생기에서 Po-218의 경우 114.93 pCi/L 이고, Po-214의 경우 7.06 pCi/L 이다. Po-218/Rn의 비는 54.25% 이고, Po-214/Rn의 비는 10.93% 이며, 전체 Rn: Po-218: Po-214의 $100: 54.25: 10.93$ 이었다. 또한 라돈 발생기에서 Po-218/Rn의 비는 45.97% 이고, Po-214/Rn의 비는 2.82% 이며, 전체적으로 Rn: Po-218: Po-214의 비는 $100: 45.97: 2.82$ 이었다.

각각의 측정에서 얻어진 표준편차는 라돈 표준실의 경우, Po-218은 7.13% 이고, Po-214는 3.39% 이며, 라돈 발생기의 경우, Po-218은 4.74% 이고, Po-214는 4.60% 로 비교적 일정한 값을 유지하고 있다.

2. 이론적 계산결과

이론적인 계산 방법은 Jacobi Model을 이용하여 표 3과 같이 실제의 실험적 조건으로 각각의 인자인 λ_v , λ_a , λ_{d^u} , λ_{d^a} , I_0 , p_1 값을 정하여 계산하였으며, 라돈 표준실과 라돈 발생기에 존재하는 각종조건에 따라 정해진 각각의 인자들을 사용하여 I_i^u , I_i^a , I_i^{s*} 값을 구하였다.

실험적 결과와 비교하기 위하여 표면부착부분을 제외하고 계산하면, 라돈 표준실에서 Po-218의 농도는 25.96 pCi/L 이고, Po-214는 5.07 pCi/L 이며, 라돈 발생기에서 Po-218의 농도는 116.04 pCi/L 이고, Po-214는 13.55 pCi/L 이다.

라돈 표준실의 농도는 실험조건과 같이 50 pCi/L 를 기준으로 계산되었으며, Po-218/Rn의 비는 51.92% 이고, Po-214/Rn의 비는 10.14% 이며, 전체적으로 Rn : Po-218 : Po-214의 비는 $100 : 51.92 : 10.14$ 이었다. 또한 라돈 발생기의 경우, 250 pCi/L 를 기준으로 계산할 때 Po-218/Rn의 비는 46.42% 이고, Po-214/Rn의 비는 5.42% 이며, 전체적으로 Rn : Po-218 : Po-214의 비는 $100 : 46.42 : 5.42$ 이었다.

3. 고찰

이론적인 계산에서는 초기에 주어지는 라돈의 농도에 따른 자핵종의 존재비, 공기중 입자와의 결합정도, 농도 결정에 따른 인자 λ_v , λ_a , λ_{d^u} , λ_{d^a} , p_1 에 대한 이론적 가정의 타당성과 적합성에 따른 오차등이 고려 되어야 한다.

실험적인 결정에서는 라돈 표준실이나 라돈 발

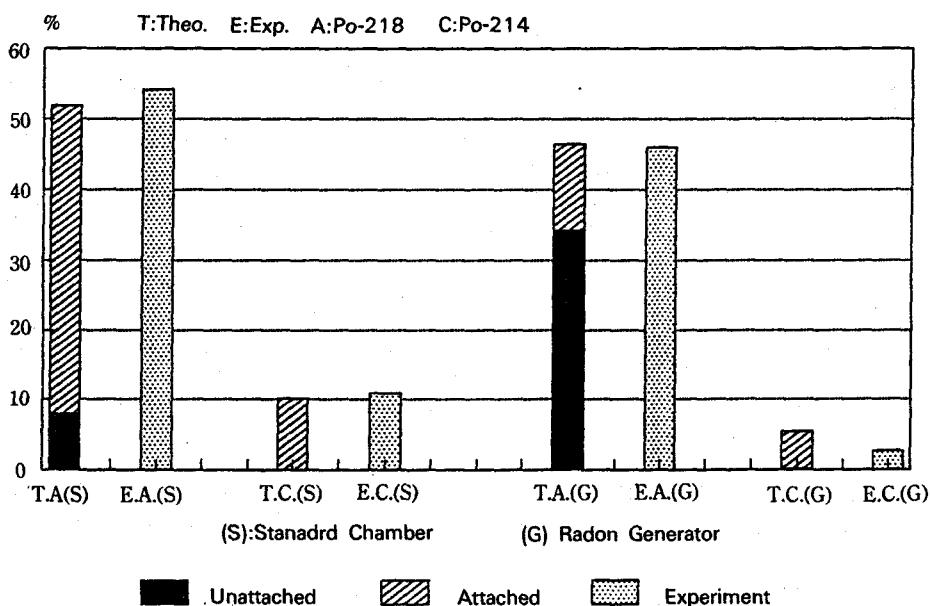


Fig. 5. Comparison of experimental and theoretical values

생기에서 발생하는 농도의 정확성 정도와 시료 채집시 시료채집기에 부착된 유량을 계의 교정상태 정도 및 알파스펙트럼 분석시 해당 핵종에 대한 피크면적 계산의 정확도 등 실험장치나 분석 특성에 의한 오차가 존재할 수도 있다. 또한, 실험적으로 결정할 때 공기중 입자수의 변화요인은 고려할 수 없었지만 이론적인 계산에서는 이 인자 (λ_a)가 고려될 수 있기 때문에 보다 정확성을 기할 수 있었다.

이론적 계산결과와 실험적 측정결과는 표 4에 서와 같이 Po-214는 라돈 발생기의 경우, 이론치/실험치의 비가 192.20%로 큰 차이를 나타내고 있는데, 이는 라돈 발생기가 고농도의 라돈을 발생시키므로 시료채집시간이 2분으로 하였는데 최적 채집시간[10]인 5분 보다는 너무 짧아 Po-214의 채집양이 상대적으로 적기 때문에 오차가 큰 것으로 생각되나 Po-218의 경우 라돈 표준실은 95.71%이고, 라돈 발생기는 100.98%로 그림 5와

Table 4. Comparison of experimental and theoretical results

Comparison	Radon Standard Chamber		Radon Generator	
	Po-218/Rn	Po-214/Rn	Po-218/Rn	Po-214/Rn
Experimental Results	54.25	10.93	45.97	2.82
Theoretical Results	51.92	10.14	46.42	5.42
Theo./Experi.	95.71	92.77	100.98	192.20

같이 거의 일치되는 값을 얻을 수 있다.

또한, 이론치는 라돈 자핵종이 표면에 부착 (Deposition) 된 부분을 제외한 공기중 입자와 결합된 부분(Attached Radon Progeny)과 결합 되지 않은 부분(Unattached Radon Progeny)을 합한 값으로 실험치와 비교 되어 있다. 그러나, 표면에

부착된 부분은 본 연구에서는 취급되지 않았지만 외국에서는 이 분야도 상당히 진전되어 있으므로 앞으로 해결 해야 할 연구과제로 남아 있다.

5. 결 론

공기중 라돈 자핵종의 농도는 여러가지 측정 방법을 이용하여 측정할 수 있다. 그러나 본 연구에서는 라돈 농도를 일정하게 유지시키는 라돈 표준실과 라돈 발생기에서 발생하는 라돈 자핵종을 표면장벽형 검출기를 이용하여 알파 스펙트럼 분석법에 의해 실험적으로 측정 분석하고, Jacobi Model을 써서 이론적으로 계산하여 보다 정확한 라돈 자핵종의 농도를 결정하였다.

이론적인 계산 결과와 실험 결과를 비교해 보면 이론치/실험치의 비가 라돈 발생기에서 Po-214의 경우 192.20%로 큰 차이가 나는데, 고농도의 라돈 발생기를 사용하여 최적 시료채집시간인 [10] 5분보다 짧은 2분간 시료채집을 한데 기인된다. 그러나, Po-218의 경우는 라돈 표준실이나 라돈 발생기에서 각각 95.71%와 100.98%로 거의 일치되는 값을 얻을 수 있었다.

라돈 자핵종의 농도 측정에서는 항상 주변 환경변화, 예를 들면 실내에서의 공기중 입자수, 입자의 크기, 환기율 등의 영향을 고려 해야 한다. 본 연구에서는 이러한 변수의 조건인자를 결정한 후 Jacobi Model로 계산한 결과와 실험치를 비교한 결과 매우 유사한 값을 얻었다. 따라서 표준 실험실을 만들어 실험실내의 조건인자를 정확하게 결정한다면 보다 정확한 라돈 자핵종의 농도를 계산할 수 있을 것으로 사료된다.

본 연구와 동시에 라돈 자핵종의 농도 측정시 취급된 여러가지 여과지 종류에 따라 그 농도가 변화함을 볼 수 있으며, 이와 관련하여 라돈 자핵종 농도 측정시 최적 여과지 선택을 위한 평가도 동

시에 수행 하였다. 그 결과는 “라돈 및 토론의 자핵종 측정용으로 선택된 최근 여과지 매질의 평가”란 제목으로 미국 에어로졸 학회(American Association for Aerosol Research)에 보고된 바 있으며, 이 평가법은 앞으로 여과지 매질의 개발시 유용하게 이용되리라 생각한다.

참 고 문 현

1. William W. Nazaroff and Anthony V. Nero, "Radon and Its Decay Products in Indoor Air", John Wiley and Sons, New York (1988).
2. P. Scofield, "Radon Decay Product Indoor Behaviour-Parameter, Measurement, Method and Model Review", SSI-Rapport 88-07, Statens stralskyddsinstutut, Stockholm (1988).
3. T. T. Mercer, "The Effect of Particle Size on the Escape of recoiling RaB atoms from Particulate Surfaces", *Health Phys.* **31**, 173 (1976).
4. Dowell E. Martz et al, "Analysis of Atmospheric Concentrations of RaA, RaB, RaC By Alpha Spectroscopy", *Health Phys.* **17**, 131 (1969).
5. 서경원, E. O. Knutson, "라돈자핵종의 알파 측정용 여과지 매질의 평가", 대한방사선방어학회, **17**(1) (1992).
6. International Atomic Energy Agency, "Measurement of Radionuclides in Food and Environment", Technical Report No. 295 (1989).
7. Isabel M. Fisenens, Anderas, George and Helen W. Keller, "The July 1985 and March 1986 Radon Intercomparisom at EML", Environmental Measurements Laboratory, EML-479 (1986).

8. A.C. George, E. O. Knutson and K. W. Tu, "Radon Daughter Plateout - I: Measurements", *Health Phys.* **45**, 439 (1983).
9. National Council on Radiation Protection Measurements, "Measurement of Radon Daughter in Air", NCRP Report No. 97 (1988).
10. W. Jacobi, "Activity and Potential Alpha Energy of Radon-220 and Radon-Daughter in different Air Atmospheres", *Health Phys.* **22**, 441(1972).

The Determination of Radon Progeny Concentration in Controlled Radon Environment

Kyung-Won Seo · Byung-Kee Lee*

*Korea Atomic Energy Research Institute
Kangwon National University**

Summary

A standard radon chamber and a radon generator adjusted by ventilation system which had used in this research were assumed to calculate theoretically the concentration of radon progeny using Jacobi model theory. On the one hand, the filter sampled from the radon standard chamber and the radon generator was measured and analysed by the alpha spectrometry method. It is clear that measured result shows a good agreement with theoretical result.

Therefore, it is observed that this research can made a great contribution to more accurate internal dose assessment by alpha emission of radon progeny in indoor radon environment, and fast individual measurement and determination of concentration for radon progeny.

Key words : Radon Progeny, Attached radon, Unattached radon.