

ORIGINAL ARTICLE

직접법에서 환경시료중 육상시료의 방사성 핵종 및 농도 분석

장은성 · 김진섭^{1)*}

부산대학교 핵과학연구소, ¹⁾부산대학교 지질환경과학과

Radionuclides in Environmental Samples and Sample Concentration of Land in the Analysis in the Method of Direct

Eun-Sung Jang, Jin-Seop Kim^{1)*}

Department of Physics Pusan National Univ, Geumjeong-gu, Busan 609-735, Korea

¹⁾Department of Geological Sciences Pusan National Univ, Geumjeong-gu, Busan 609-735, Korea

Abstract

In order to measure the Radionuclides and Concentration, the directly grinded land samples (river soil, pine leaves and mugwort) among the environment samples around the nuclear power plant were filled in a 450 mL Marinelli beaker and weighed to obtain the dry mass ratio of the samples. Then the background and land samples were measured for 80,000 sec. The analysis of the collected land samples showed that most of them contained less radiation nuclide than the detection minimum limit in the 'Ministry of Education, Science and Technology Public Notice No. 2010-32.' In others, the natural radionuclides ⁴⁰K were detected.

Of the products of nuclear reaction discharged by a nuclear reaction, ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs are more easily detected, and their discharge sources can be traced using the relative ratio. Although the radioactive concentration in the vicinity of Kori Nuclear Power Plant, which is more than 1,100km away from Fukushima, the Japanese nuclear accident site, continuous monitoring is needed as the radionuclides can still be accumulated in the soil or animals and plants.

Key words : MDA, Land samples, Radionuclide

1. 서론

방사선에는 태양이나 우주의 천체로부터 지구로 내려오는 우주선도 있고, 땅속에 묻힌 방사성원소인 우라늄이나 토륨으로부터 나오는 지각방사선도 있는가 하면, 우리 몸속의 뼈 속에 들어 있는 방사성원소로부터 나오는 인체 방사선도 있다. 즉, 옛날의 환경에는 자연방사선 밖에 없었으나, 과학이 발전하면서 인공방사선이 우리 환경에 추가 된 셈이다. 그러나 실제 일반 환경 중에서 검

출되고 있는 방사성물질은 측정하기 어려운 정도로 미량이다. 하지만, 이러한 미량의 환경방사선을 측정하므로써 방출 물로 인한 주변주민, 그리고 기타 일반대중의 피폭상황이 어떠한지 자연방사선에 의한 피폭 등에 의한 영향 등을 평가해야 한다. 따라서 환경방사선의 측정법, 피폭평가법을 확립한다는 것은 방사선 방호를 위해서 뿐만 아니라 각종 방사선원에 대한 대응을 위해서도 필요한 일이다. 방사성 세슘(¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs) 및 방사성 스트론튬(⁹⁰Sr)은 공중피폭에 관한 인공방사성 핵종으로서 중

Received 7 November, 2014; Revised 13 February, 2015;

Accepted 26 February, 2014

*Corresponding author : Jin-Seop Kim, Department of Geological Sciences
Pusan National Univ, Geumjeong-gu, Busan 609-735, Korea
Phone: +82-51-510-2253
E-mail: jsekim@pusan.ac.kr

© The Korean Environmental Sciences Society. All rights reserved.
© This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

요하다. 과거에는 핵실험 및 체르노빌 원자력발전소 사고에 의해 대기로 방출되어 지구규모의 오염을 유발하였다¹⁻²⁾. 그러나, 최근에는 일반적으로 비교적 수명이 긴 ^{137}Cs 과 ^{90}Sr 이 대기 및 토양과 농작물에서 아주 미량 검출될 뿐³⁾, 2011년 3월에 후쿠시마 제1원자력발전소 사고가 발생하기 전까지 환경 중의 인공방사성 핵종은 거의 문제가 되지 않았다. 2011년 3월 12일 일본에서는 강진으로 인한 쓰나미로 인해 후쿠시마 원전이 폭발하였다. 이후 핵반응 생성물이 원전주변뿐만 아니라 미국이나 유럽까지 퍼져 나갔다⁴⁾. 우리나라에서도 방사능에 대한 관심이 높아지고 있고, 기존 부지주변 환경방사능 조사와 더불어 일본원전사고로 인한 방사능 검출에 대해서도 조사하고 있다. 본 연구에서는 원전부지 주변 환경 시료에서 육상시료의 여러 가지 시료 중에서 Table 1. 표층(표층토양, 솔잎, 썩)에서 방출 되는 핵종들 중에서 감시핵종 및 검출하한치를 분석하고자 한다.

2. 시료 및 측정 장치

2.1. 시료채취지점의 위치

환경방사능 측정을 위한 시료 채취지점의 위치와 시료채취는 “원자력발전소주변 환경방사능조사계획”에 의거하여 선정된 부지주변과 비교지점에서 방사능분석용 시료를 채취하였다. 채취 장소는 개방된 미경작지로 항상 흙면이 노출돼 있으며, 지표수 등의 유동에 의한 침식, 붕괴 및 인위적 변동이 없는 경사가 완만한 장소를 선정하였다. 채취지점은 대표성을 유지하기 위해 반경 5m 내

에서 4개 지점을 선정하여 각 지점에서 500g 이상을 토양채취기로 채취·혼합하여 그 지점의 시료로 사용하였다. 반기1회로 울산, 임랑, 일광, 관측소에서 채취하였다. 또한, 지표생물로서 솔잎은 4개 지점과 비교지점인 울산에서, 그리고 썩은 월내와 비교지점으로 울산에서 채취하였다. 이들 지점들의 위치는 Fig.1에 나타내었다.

2.2. 환경방사능 분석항목 및 검출목표치(하한치)

항목별 분석핵종은 원자력발전소에서 방출되는 것으로서 인간의 피폭에 주요하고 비교적 장반감기핵종을 위주로 하되 육상시료는 기체방출물 중에 포함될 가능성이 높은 핵종을 선정하였다. 선정된 핵종은 “교육과학기술부고시에 규정된 검출하한치를 만족할 수 있는 분석방법을 채택하여 분석한다⁵⁾. 분석핵종으로 선정된 핵종 외에 시료 중에 포함되어 있는 자연핵종 ^{40}K 도 분석한다 (Table.1).

Table 1. The land soil of the radioactivity analysis

separation	investigating items	nuclide analysis
	soil	^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{60}Co
soil sample	biological indicator (pine needles, mugwort)	^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{60}Co , ^{131}I , ^{90}Sr

환경방사능 분석을 위한 검출목표치는 다음과 같으며 시료량, 계측시간조정, 검출 효율 향상 등을 통하여 이 값을 만족하도록 측정하여야 한다(Table2).



Fig. 1. Sampling locations near Kori Nuclear Power Plants

Table 2 . Land samples of MDA

separation	soil (Bq/kg-dry)	biological indicator (pine needles , mugwort) (Bq/kg-dry)
¹³¹ I	3	0.2
¹³⁴ Cs	5	0.2
¹³⁷ Cs	5	0.2

지표생물에 대한 검출하한치는 식품류에 준한다.

2.3. 에너지 감 교정

방사성 핵종의 정확한 분석을 위해서는 정확한 교정은 매우 필수적인 절차이다.

그중에서 검출효율은 측정시료와 동일한 물리적, 화학적 형태를 가진 표준선원을 이용하여 교정한다. 표준 혼합선원 (450 CRM)을 이용하여 측정한 에너지 감 · 교정하였다(Fig.2).

2.4. 시료의 분석방법 및 측정

시료의 전처리 방법 중에서 일반적인 직접법에 의해 고리원전 부지 주변에서 토양시료를 채취하였다. 각 지점에서 채취한 토양은 스텐 바트에 펼쳐 그늘진 곳에서 풍건한다. 풍건하면서 나무뿌리나 불순물 등과 같은 이물질을 제거한다. 채취한 토양시료를 토양에 함유되어 있는 수분을 제거하기 위하여 건조용기에 담아 약 105 °C

에서 하루 이상 건조한 후 건조 질량을 기록 한다. 건조한 토양을 분쇄하여 2 mm 체로 걸렀다. 솔잎은 시료채취지점 반경 10m 원 안의 소나무에서 가지둘레가 10cm 정도 되는 소나무를 대상으로 하여 채취하였으며, 썩도 반경 10m 이내의 지점에서 채취 하였다. 직접법에 의한 토양 전처리시 수분을 제거하는 이유는 질량비 방사능에 대한 단위로 kg-dry를 사용하기 때문이다. 분쇄한 시료를 450 mL 마리넬리 비커에 채운다음 무게를 재고 측정 시료의 건조 질량비를 구한 시료가 없는 상태에서 백그라운드를 측정하고 토양 및 지표생물(썩,솔잎)을 80000 sec로 측정하였다. Gammav-Vision 5.0 프로그램을 통한 분석 과정을 나타낸다(Fig.3).



Fig. 3. Procedure of the gamma-ray spectrometry analysis.

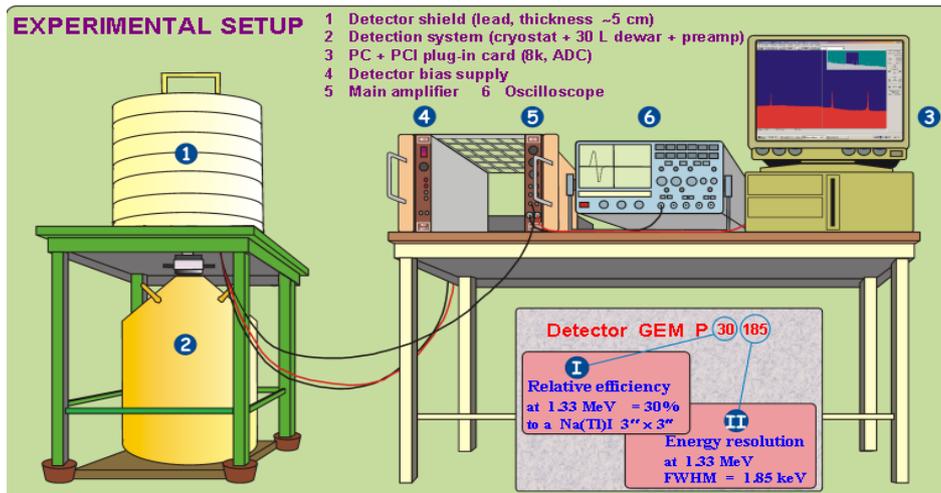


Fig. 2. High Purity Germanium(HPGe) gamma-ray spectrometry system.

2.5. MDA(Minimum Detectable Activity: MDA)

최소검출방사능(Minimum Detectable Activity: MDA)는 시료의 양과 효율 및 측정시간에 의존하는 양이다^[6]. Currei 논문의 통계적 고찰을 통한 검출한계를 이용하여 유도하였고, 95 %의 신뢰수준에서 식(1)을 통해 MDA를 구했다.

$$MDA = \frac{\frac{2.71}{t_s} + 4.65 \frac{\sqrt{BGC}}{t_B}}{E \cdot Y \cdot S} \quad (1)$$

여기서 BGC 백그라운드 계수치, t_s 는 시료 계측시간, t_B 는 백그라운드 계측시간, E는 백그라운드 계수율, Y는 화학수율, S는 보정인자로 시료량과 측정중 반감기를 보정하는 인자이다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 방사능 핵종 및 농도 분석

하천토양시료는 고리원전부지주변 4개지점과 비교지점에서 채취한 분석결과 인공방사성 핵종으로서 전 세계

토양시료에서 공통적으로 측정되고 있는 ¹³⁷Cs이검출 되었다. 또한, 일반자연 중에 널리 존재하는 자연방사성 핵종 ⁴⁰k이 검출되었으며, 그 외 인공방사선 핵종은 검출되지 않았다(Fig.4).

하천토양 중에서 검출된 ¹³⁷Cs의 농도는 부지주변에서 평상변동범위(최소 ~ 최대) < 0.506 ~ 1.49 Bq/kg-dry의 농도로 검출되었으며, 비교지점인 울산에서는 최대값 < 1.10 Bq/kg-dry 로 검출되었다. ¹³⁴Cs이 < MDA ~ 1.02 Bq/kg-dry 로 검출되었다. 이는 평상변동범위 수준으로 측정되었다(Table 3). 과거 대기권 핵실험의 결과이며, 전 세계적으로 일반토양에서 측정되고 있는 수준이다^[8].

지표생물로서 솔잎은 4개 지점, 비교지점에서(Fig.4), 썩은 경우는 1개 지점과 비교지점에서 분석결과 ¹³⁷Cs의 농도는 < 0.69 ~ 1.27 Bq/kg-dry 로 검출되었으며 비교지점인 울산에서는 최대값 < 1.43 Bq/kg-dry 로 검출되었다. ¹³⁴Cs이 < MDA ~ 0.97 Bq/kg-dry 로 검출되었다. 썩은 경우 ¹³⁷Cs의 농도는 < 1.60 Bq/kg-dry, 비교지점 울산에서는 1.17 Bq/kg-dry 로 검출되었다. 또한

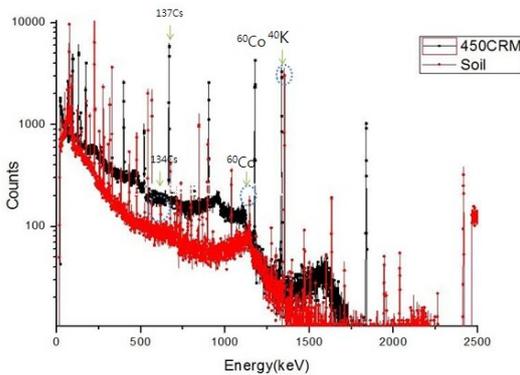


Fig. 4. Comparison of 450 CRM spectra with soil.

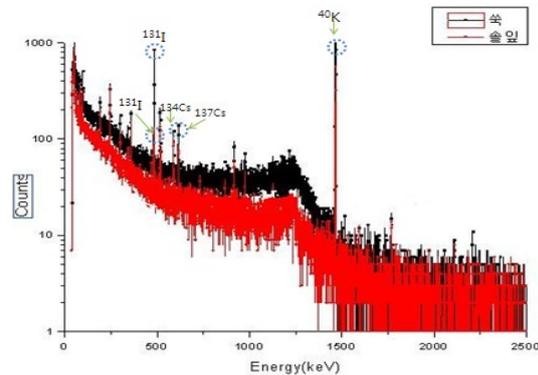


Fig. 5. Concentration of Radionuclides in Biological Indicator for the energy spectrum.

Table 3. Concentration of Radionuclides in River soil

separation gamma nuclide	radioactive concentration (Bq /kr-dry)			
	imrang	ilgwang	wollae	ulsan
⁴⁰ k	663± 14	465± 10	793± 16	902±1 9
¹³⁴ Cs	< MDA	< MDA	<1.02± 0.07	<MDA
¹³⁷ Cs	0.506± 0.124	0.622± 0.078	1.49± 0.08	1.10± 0.12
⁶⁰ Co	<0.115	< 0.80	<0.226	<0.261

Table 4. Concentration of Radionuclides in Biological Indicator

separation	방사능 농도 (Bq /kr-dry)						
	⁴⁰ k	⁶⁰ Co	¹³¹ I	⁹⁰ Sr	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	
pine needles	imrang	104± 9	< 0.113	<0.100	0.97± 0.04	0.63± 0.057	0.69± 0.10
	ilgwang	81.5± 3.1	< 0.0998	< 0.0924		0.8± 0.08	1.03± 0.08
	observatory	89.5± 2.6	< 0.0373	< 0.0530		0.781± 0.08	1.27± 0.10
	ulsan	102± 3	< 0.0991	< 0.0734	< 0.0291	0.97± 0.09	1.43± 0.11
mugwort	wollae	205± 4	< 0.0639	<0.0434		0.53± 0.10	1.60± 0.11
	ulsan	254± 5	< 0.0896	< 0.0902		0.20± 0.12	1.17± 0.12



Fig. 6. The directly grinded land samples (river soil, pine leaves and mugwort) around the Gori nuclear power plant.

¹³⁴Cs이 < MDA ~0.20 Bq/kg-dry 로 검출되었다. 그 외 자연방사성핵종인 ⁴⁰K 이 검출되었다(Table4).

아래그림은 토양, 쭉, 솔잎의 각 지점들의 방사능 농도 분포를 나타낸다(Fig.5).

그러므로 토양 및 지표생물 시료를 기준으로 인체에 영향을 주는 국내의 식품 중 방사능 허용기준치 ¹³¹I 우유 및 유가공 품에 대해 150(Bq/kg, L), 기타 식품에 대해 300 (Bq/kg, L)이다. ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs 모든 식품에 대해 370(Bq/kg, L)이다.

4. 결론

고리원전부지 주변 4지점에서의 하천토양과 지표생물(솔잎, 쭉)을 대상으로 하여 방사성핵종 및 농도를 조사했다. 고리원전 부지주변에서는 방사능 농도가 낮게 검출되었지만 토양이나 농식물에 축적되어 꾸준히 모니터링 할 필요가 있다^[9].

또한, 결과에서 나타난 방사성핵종 및 농도는 국내 원자력시설 및 인접국 연, 근해에서 발생한 방사능 사고에 의한 우리나라 원전주변의 영향을 확인하기 위한 비교, 판단 자료로서 활용될 것으로 사료된다.

REFERENCE

- Institut de Protection et de surete Nucleaire, The Chernobyl, Accident Rapport ISPN 2/86 1986.
- I. Shigematsu, PERSSON, C., RODHE, H., and DE GEER, L.-E. The Chernobyl Accident - a meteorological analysis of how radionuclides reached and were deposited in Sweden. *Ambio* 16:20-31. 1987.
- Pelletier, et al., Influence of clinoptilolite on ^{90}Sr and ^{137}Cs uptakes by plants, *Soil Sci*, 114(2), 1971.
- A. Bolsunovsky, D. dementyev, "Evidence of the radioactive fallout in the center of Asia(Russia) following the Fukushima Nuclear Accident" *J. Environ. Radioact* 102, 1062-1064 2011).
- The International Chernobyl Project, ISBN 92-0-129291-4, IAEA, Vienna 1991.
- L. A. Currie, "Limits for qualitative detection and quantitative determination", *Anal. Chem.* 40(3), 586-593, 1968.
- P. W. Perkins, C. W. Thomas, "World wide fallout", in : *Transuranic element in the environment*. W. C. Hanson. Ed DOE/TIC-22800, National Technical information service, Springfield 1980.
- (C. W. Lee, *Environmental Radiation Monitoring around the nuclear facilities*, KAERI/RR-1872/98 1999)