

The distribution of ^{137}Cs activities in sediment samples of South-Han River basin

Jiyu Kim, Tae-Woo Kang¹, Jung-Ki Hong, Mijeong An, Chaewon Chang,
Kyunghyun Kim, Young-Un Han¹, and Taegu Kang¹★

Water Quality Assessment Research Division, National Institute of Environmental Research, Incheon 22689, Korea
¹Yeongsan-River Environment Research Center, National Institute of Environmental Research, Gwangju 61011, Korea

(Received September 5, 2016; Revised December 8, 2016; Accepted December 14, 2016)

남한강수계 하천 퇴적물 시료 중 ^{137}Cs 분포

김지유 · 강태우¹ · 홍정기 · 안미정 · 장채원 · 김경현 · 한영운¹ · 강태구¹★

국립환경과학원 물환경평가연구과, ¹국립환경과학원 영산강물환경연구소
(2016. 9. 5. 접수, 2016. 12. 8. 수정, 2016. 12. 14. 승인)

Abstract: ^{137}Cs was investigated in river bottom sediments located in South-Han River basin and it was compared with international case studies to estimate the concentration level of ^{137}Cs in river sediment of Korea. The obtained values of ^{137}Cs which was analyzed by gamma-ray spectrometry were in the range of $<\text{MDA} \sim 3.80 \pm 0.14 \text{ Bq/kg-dry}$ and similar to the ^{137}Cs activities in soil of Korea. According to international case studies, ^{137}Cs activities were between 3.7 to 15,396 Bq/kg-dry, when pollutants such as nuclear power plant accidents and radiation leaks were present near the rivers. The ^{137}Cs activities showed a variety of distribution depending on the country, when pollution occurs and survey time. Also, ^{137}Cs activities of river sediments without pollution sources were mostly less than 10 Bq/kg-dry in other countries. It was comparable with the obtained ^{137}Cs activities in this study. The obtained values provide useful information on the background concentration of ^{137}Cs in river sediment and will be able to use a basis for determining contamination of ^{137}Cs in the river.

요 약: 본 연구는 남한강 수계 하천 퇴적물 중 ^{137}Cs 의 방사능 농도 분포 실태를 조사하고, 국외 연구사례와 비교하여 국내 하천퇴적물 중 ^{137}Cs 의 농도수준을 평가하였다. 감마선분광분석기를 이용하여 퇴적물 중 ^{137}Cs 의 방사능 농도를 분석한 결과, 농도범위는 $<\text{MDA} \sim 3.80 \pm 0.14 \text{ Bq/kg-dry}$ 로 국내 토양 중 ^{137}Cs 농도와 비슷한 수준을 보였다. 국외 연구사례를 조사한 결과, 원전사고나 방사성물질 유출 등에 의한 오염원이 존재할 경우 ^{137}Cs 의 농도범위는 3.7~15,396 Bq/kg-dry로 국가별, 오염원 발생시기, 조사시점 등에 따라 다양한 농도 분포를 보였다. 또한, 오염원이 없는 국외 하천·호소 퇴적물 중 ^{137}Cs 의 농도는 대부분 10 Bq/kg-dry 미만으로 본 연구결과와 유사한 수준으로 나타났다. 본 연구결과는 우리나라 하천퇴적물 중 ^{137}Cs 의 배경농도를 제공하고, 하천의 ^{137}Cs 오염여부를 판단하는 기초자료로 활용할 수 있을 것으로 사료된다.

Key words: ^{137}Cs , Artificial radionuclides, River sediment, Gamma-ray spectrometry

★ Corresponding author

Phone : +82-(0)62-970-3901 Fax : +82-(0)62-970-3999

E-mail : taegu98@korea.kr

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.

1. 서 론

환경 중에는 지각이 형성된 시기부터 존재하는 자연방사성물질과 핵실험 및 원자력 발전소 사고 등으로 인하여 방출된 인공방사성물질이 있다.^{1,2} 핵분열 시 방출되는 인공방사성물질 중 ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Am 등은 비교적 긴 반감기와 방사선 위해성이 커 방사능 오염, 거동 및 분포 특성을 파악하는 연구가 다양하게 진행되고 있다.^{3,4}

특히, ^{137}Cs (반감기 30.07년)은 핵분열 시 다량으로 생성되는 핵종으로 1945년 히로시마 원자폭탄 폭발로 처음 환경 중에 방출되었고, 1952년 수소폭탄 실험으로 성층권을 통해 전 세계에 확산되었으며, 1986년 체르노빌과 2011년 후쿠시마의 원자력 발전소 사고로부터 다량의 방사능 낙진 형태로 환경 중에 존재하게 되었다.⁵⁻⁷ 환경 중 ^{137}Cs 은 호흡, 물과 음식물 섭취, 피부접촉 등을 통해 인체에 노출되고, 미량 피폭 시 배설물로 배출되지만 고농도로 노출될 경우, 세포손상과 급성방사선증후군 등을 초래할 수 있다.^{8,9}

인공방사성물질은 수계로 직접 배출되거나 낙진 형태로 침적될 수 있으며, 표토에 흡착된 일부가 강우에 의해 간접적으로 유입되어 존재하는 것으로 알려져 있다.^{10,11} 그 중 ^{137}Cs 은 토양입자에 대해 강한 흡착력을 지니기 때문에 표토에 흡착된 이후 지표 아래로 멀리 이동하지 못하고 침식과 토사유출 등으로 인해 수계로 유입된다. 담수 환경에서 대부분의 ^{137}Cs 은 운모와 점토 광물에 비가역적으로 결합되고, 일반적인

환경에서 잘 제거되지 않으며 침전되거나 물의 흐름에 따라 이동한다.^{6,7,9,12}

하천퇴적물은 주로 광물입자로 구성되며, 방사성물질이 퇴적물 입자에 흡착되어 부유퇴적물형태로 이동하거나 하상퇴적물 내에 축적되기 때문에 장반감기 방사성물질에 대한 지표가 될 수 있다.¹⁰ 또한 하상퇴적물은 방사성핵종이 흡착된 입자성물질을 퇴적(sedimentation)/재부유(resuspension), 침전(precipitation)/용해(dissolution)의 과정을 거치면서 하천에서 이동이나 소멸시키는 작용을 하기 때문에 하천 내 방사성물질을 평가하는데 있어 필수적인 매체이다.¹³

우리나라의 하천은 크게 한강, 금강, 낙동강, 영산강·섬진강 수계로 구분되며 그 중 한강수계는 수도권 시민의 주요 상수원수로 쓰이는 팔당호가 위치하고 있다. 또한 한강수계의 지류 중 하나인 남한강수계는 팔당호로 유입되는 유입량의 54%를 차지하고 있는 중요한 하천으로 오염관리가 중요하다.^{14,15} 따라서 본 연구에서는 남한강수계의 퇴적물을 중심으로 인공방사성물질 중 장반감기 핵종인 ^{137}Cs 의 방사능 농도 분포 실태를 조사하였고, 국의 수준과 비교하여 우리나라 하천 퇴적물 중 ^{137}Cs 의 방사능 농도수준을 평가하였다.

2. 시료채취 및 분석방법

2.1. 조사지점

조사지점은 남한강수계의 충주댐하류에서 남한강수계로 합류되는 원주를 기점으로 팔당댐 유입부인

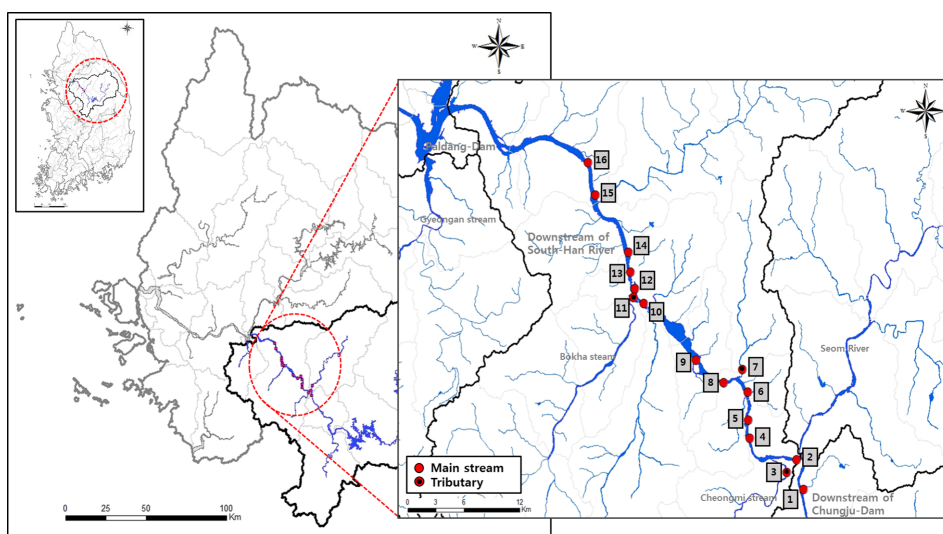


Fig. 1. Sampling points for ^{137}Cs measurement in sediment of South-Han River basin.

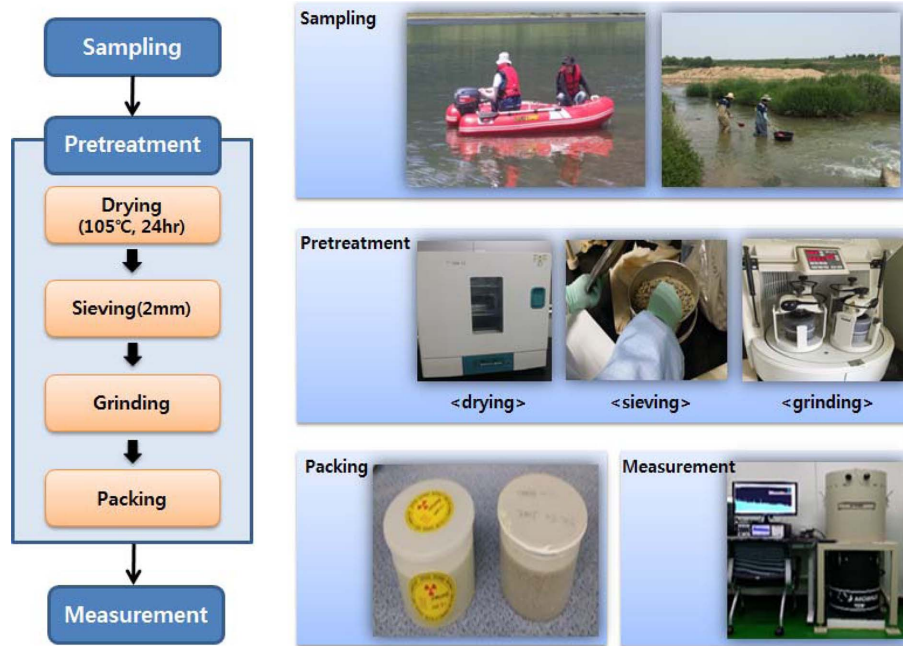


Fig. 2. Analysis procedure for ^{137}Cs measurement by gamma-ray spectrometry.

강상까지 선정하였으며, 본류 13 개 지점과 남한강수계와 합류되는 지류 3 개 지점을 포함하여 총 16 개 지점으로 Fig. 1에 나타내었다.

2.2. 시료 채취 및 전처리

퇴적물 시료는 수질오염공정시험기준에 준하여 표층을 채취하였으며, 비닐 백에 담아 분석 전까지 냉장 보관 하였다. 채취된 시료는 105 °C에서 24시간 동안 건조하여 2 mm 체로 자갈, 이물질 등을 제거한 후, 분쇄기(Pulverisette 5, Fritsch, Germany)로 분쇄하였다. 분쇄된 시료는 450 mL 마리넬리 비커에 충전하여 분석하였다(Fig. 2).

2.3. 측정시간에 따른 최소검출가능농도(Minimum detectable activity, MDA) 변화

환경시료 중 미량의 방사능이 존재할 경우, 배경농도의 영향으로 측정값에 대한 오차가 발생할 수 있다. 따라서 저준위 환경방사능을 분석하는데 있어 방사능 존재여부의 판단 기준이 되는 MDA는 매우 중요하다. MDA는 검출기특성, 배경방사능, 시료량, 측정시간 등에 영향을 받는 값으로 시료량이나 측정시간을 증가시키면 감소시킬 수 있다.^{8,16,17} 따라서, 본 연구에서는 측정 불확도 요인을 최소화 할 수 있는 측정시간을

설정하고자 동일 매질인 퇴적물시료를 450 mL 마리넬리 비커에 충전한 후, 측정시간 변화에 따른 MDA 값을 확인하였다.

2.4. ^{137}Cs 방사능 분석

퇴적물 시료 중 ^{137}Cs 은 감마선분광분석기(Gamma-ray spectrometer, AMETEK ORTEC)를 이용하여 분석하였고, 감마선분광분석기는 고순도 게르마늄 검출기(High Purity Germanium Detector, GEM-MX7080P4-RB-SMP-S), 다중과고분석기(Digital Spectrometer, DSPEC 50), 차폐체, 전기냉각기(Mobius), 컴퓨터 및 분석시스템(Gamma Vision)으로 구성되었다. 검출기의 상대효율은 66 %, 에너지 분해능(FWHM)은 ^{60}Co (1332.5 keV)에서 1.9 keV 및 ^{57}Co (122 keV)에서 0.95 keV, 피크대 컴프턴(Peak to Compton)비는 75:1이었다. 에너지 및 검출효율 교정은 10개 방사성 핵종이 혼합된 한국표준과학연구원(Korea Research Institute of Standards and Science, KRISS)의 표준선원을 가지고 수행하였고, 핵종 분석 프로그램인 Gamma vision을 이용하여 ^{137}Cs (661.66 keV)의 방사능 농도를 평가하였다. ^{137}Cs 방사능 농도 분석결과에 대한 신뢰도 평가는 NIST(National Institute of Standards and Technology)의 표준인증물질(standard reference material, SRM 4350B)

을 측정하여 확인하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 측정시간에 따른 MDA의 변화

연구대상 시료에 대한 측정시간을 선정하기 위하여 퇴적물 시료를 10,000초 간격으로 80,000초까지 측정하여 ^{137}Cs 의 MDA 값을 확인하였다. MDA는 10,000초 측정에서 0.5 Bq/kg-dry이하로 나타났으며, 시간이 증가할수록 낮아지는 경향을 보였고, 50,000초 측정에서부터 0.1 Bq/kg-dry 수준으로 일정하게 평가되었다 (Fig. 3). 따라서 저준위 환경방사능 분석을 고려하였

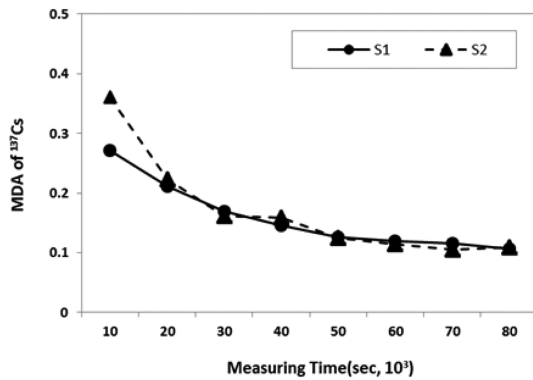


Fig. 3. The change of MDA values with measuring time using sediment samples (S1, S2).

을 때, 퇴적물 시료에 대한 ^{137}Cs 분석은 50,000초 이상 측정하는 것이 바람직하다고 판단된다.

3.2. 퇴적물 SRM을 이용한 신뢰도 평가

분석한 데이터에 대한 신뢰도 평가를 위하여 같은 매질인 하천퇴적물에 대한 표준인증물질(NIST SRM 4350B)를 이용하여 ^{137}Cs 을 분석하였다. 표준인증물질의 ^{137}Cs 측정값은 인증값에 대해 10% 오차 범위 내 유효한 수준으로 평가됨으로써 본 연구의 분석 결과에 대한 신뢰도를 확인하였다(Table 1).

3.3. 남한강수계 퇴적물 중 ^{137}Cs 방사능 농도 분포

남한강수계 퇴적물 중 ^{137}Cs 방사능 농도를 조사한 결과, 분류에서는 두 지점(강천D, 흑천합류부)을 제외한 모든 지점에서 검출되었고, 분류와 합류되는 지류 지점(청미천, 금당천, 북하천)에서는 모두 불검출으로 나타났으며, 농도는 $<\text{MDA} \sim 3.80 \pm 0.14$ Bq/kg-dry 범위로 나타났다(Table 2). 일반적으로 하천 내 오염물질은 물의 흐름에 따라 확산되며 하류로 갈수록 농도가

Table 1. Analysis results of ^{137}Cs with standard reference material (NIST 4350B)

| Certified Activity (Bq/kg-dry) | Measured Activity (Bq/kg-dry) |
|--------------------------------|-------------------------------|
| 29.0±1.8 | 30.4±1.3 |

Table 2. The activities of ^{137}Cs in sediment samples of South-Han River basin

| Sampling point | Location | Sampling date | ^{137}Cs (Bq/kg-dry) | |
|----------------|-----------------|---------------|-------------------------------|-----------|
| 1 | WonJu | main stream | 2015-04-28 | 0.55±0.08 |
| 2 | Seom River | main stream | 2015-05-28 | 0.96±0.13 |
| 3 | Cheongmi Stream | tributary | 2015-05-29 | <0.07 |
| 4 | Gangcheon U | main stream | 2015-05-19 | 3.80±0.14 |
| 5 | Gangcheon | main stream | 2015-05-19 | 1.36±0.13 |
| 6 | Gangcheon D | main stream | 2015-05-20 | <0.09 |
| 7 | Geumdang Stream | tributary | 2015-05-29 | <0.13 |
| 8 | Daeshin U | main stream | 2015-05-20 | 0.49±0.10 |
| 9 | Daeshin | main stream | 2015-05-20 | 0.83±0.14 |
| 10 | Daeshin D | main stream | 2015-05-21 | 1.02±0.14 |
| 11 | Bokha Stream | tributary | 2015-05-29 | <0.09 |
| 12 | Ipo U | main stream | 2015-05-21 | 1.97±0.11 |
| 13 | Ipo | main stream | 2015-05-21 | 1.93±0.16 |
| 14 | Ipo D | main stream | 2015-05-19 | 0.70±0.12 |
| 15 | Heuck Stream | main stream | 2015-05-28 | <0.07 |
| 16 | Gang-sang | main stream | 2015-05-12 | 1.57±0.18 |

※<MDA(Minimum detectable activity), less than MDA, which value is indicated in each case.

낮아지는 경향을 보이지만, 퇴적물 중 ^{137}Cs 방사능 농도는 물의 흐름에 관계없이 지점에 따라 다양한 농도 분포를 보이는 것으로 조사되었다. 하천퇴적물 내 존재하는 ^{137}Cs 은 주로 토양에 흡착된 후 강우 시 토사유출 등으로 하천으로 유입되거나 낙진으로 직접 유입된 물질이 하천의 광물입자에 흡착되어 퇴적된

Table 3. Comparison of ^{137}Cs concentrations (Bq/kg·dry) in river sediment with other areas of the world

| Sampling location, date | Sample type | ^{137}Cs (Bq/kg·dry) | Reference |
|--|--------------|-------------------------------|-------------------------------|
| Po river delta, Italy, 1987-1989 | sediment | 3.7-285(range) | M. Frignani et al. (2004) |
| Dudvah river, Slovak republic, 2005 | sediment | 2182±111(mean) | F. Durec et al. (2008) |
| Mill creek tributary, Australia, 2014 | sediment | 1.2-3.3(range) | B. S. Smith et al. (2016) |
| Houay pano and Houay xon streams, Laos, 2012 | stream bank | 0.4±0.3(mean) | E. Gourdin et al. (2014) |
| | gullies | 0.4±0.3(mean) | |
| | surface soil | 2.2±0.9(mean) | |
| Tejo river, Portugal, 2001-2009 | sediment | 0.3-12.9(range) | M. J. Madruga et al. (2014) |
| Tom and Ob river, Russia, 2008 | sediment | 5.8-62(range) | A. I. Nikitin et al. (2012) |
| Lake Nasser, Egypt, 2000 | sediment | 2.3±0.3(mean) | A. E. Khater et al. (2005) |
| Karnaphuli river, Bangladesh, 1997 | sediment | 2.2±0.45(mean) | M. I. Chowdhury et al. (1999) |
| Shango river, Bangladesh, 1997 | sediment | 2.1±0.5(mean) | |
| Rhone, France, 1991 | sediment | 74±1(mean) | S. Charmasson et al. (1998) |
| Ohta, Japan, 2011 | bottom sand | 76-15396(range) | T. Kajimoto et al. (2013) |
| Niida, Japan, 2011 | bottom sand | 145-7547(range) | |
| Mizunashi, Japan, 2011 | bottom sand | 1532-6654(range) | G. Mackevičienė et al. (2002) |
| Mano, Japan, 2011 | bottom sand | 105-1165(range) | |
| Urugai, Japan, 2011 | bottom sand | 2573-3714(range) | |
| Kami-mano, Japan, 2011 | bottom sand | 1232-1255(range) | |
| Dainichi, Japan, 2011 | bottom sand | 606-800(range) | |
| Vermis stream, Lithuania, 1998 | sediment | 12.2±1.3 | |
| Duburiai stream, Lithuania, 1998 | sediment | 40.3±2.0 | |
| Juodupis stream, Lithuania, 1998 | sediment | 115±10.4 | |
| Greisupis stream, Lithuania, 1998 | sediment | 3.9±0.7 | T. Sawidis et al. (2011) |
| Fotada, Greece, 1998 | sediment | 91.2±3.0 | |
| Keramidi, Greece, 1998 | sediment | 99.1±3.3 | |
| Larissa, Greece, 1998 | sediment | 75.2±2.6 | |
| Sugar dam, Greece, 1998 | sediment | 64.6±2.3 | |
| Itea, Greece, 1998 | sediment | 49.1±1.8 | |
| Pyrgetos, Greece, 1998 | sediment | 30.3±1.2 | |
| Titarisios, Greece, 1998 | sediment | 27.2±1.0 | |
| Kalentzis, Greece, 1998 | sediment | 79.1±2.7 | |
| Enipeas, Greece, 1998 | sediment | 89.3±3.0 | |
| Fotada, Greece, 2000 | sediment | 38.2±1.4 | |
| Keramidi, Greece, 2000 | sediment | 33.7±1.2 | |
| Larissa, Greece, 2000 | sediment | 35.1±1.3 | |
| Sugar dam, Greece, 2000 | sediment | 23.5±0.9 | |
| Itea, Greece, 2000 | sediment | 18.7±0.8 | |
| Pyrgetos, Greece, 2000 | sediment | 14.4±0.6 | |
| Titarisios, Greece, 2000 | sediment | 10.1±0.6 | |
| Kalentzis, Greece, 2000 | sediment | 35.3±1.3 | |
| Enipeas, Greece, 2000 | sediment | 37.4±1.3 | |
| This study, Korea, 2015 | sediment | < MDA-3.80±0.14 | This study |

※<MDA(Minimum detectable activity), less than MDA, which value is indicated in each case.

것으로 알려져 있다. 따라서 하천으로 유입되는 주변 토양 및 하천 내 광물입자의 크기 등 특성에 따른 흡착력과 침전을 차이로 인해 ^{137}Cs 은 물의 흐름에 관계 없이 지점에 따라 다양한 분포를 보이는 것으로 사료된다. 우리나라의 하천퇴적물 중 ^{137}Cs 을 조사한 사례는 없으나 전국 토양 중 ^{137}Cs 방사능 농도는 $<\text{MDA}\sim 16.4 \text{ Bq/kg-dry}$ 로 조사되었으며, 본 연구의 대상지점과 상대적으로 인접한 서울, 춘천 토양의 ^{137}Cs 방사능 농도는 $1.43\sim 4.77 \text{ Bq/kg-dry}$ 로 하천퇴적물의 농도와 유사한 수준으로 나타났다.¹⁸

한편, 국외에서는 원자력발전소 인근 하천퇴적물이나 사고 주변국 등에서 하천·호소 퇴적물 내 방사성물질의 배경농도 조사를 위한 연구가 진행되고 있으며, 오염원의 존재 여부에 따라 다양한 농도분포를 보였다(Table 3). 이탈리아, 프랑스, 리투아니아, 그리스에서는 인접지역에서 발생한 체르노빌사고의 영향을 조사하기 위하여 주요 강에 대한 ^{137}Cs 모니터링을 진행하였고, ^{137}Cs 방사능 농도 각각 $3.7\sim 285 \text{ Bq/kg}$, $74\pm 1 \text{ Bq/kg}$, $3.9\sim 115 \text{ Bq/kg}$, $10.1\sim 99.7 \text{ Bq/kg}$ 으로 우리나라 퇴적물과 비교하여 상대적으로 높은 수준이었다.^{19,26,28,29} 러시아는 화학단지가 있는 하천 퇴적물 중 ^{137}Cs 을 조사하였고, ^{137}Cs 방사능 농도는 $5.8\sim 62 \text{ Bq/kg}$ 으로 나타났다.²³ 또한 슬로바키아의 하천퇴적물 중 ^{137}Cs 방사능 농도는 $2,182 \text{ Bq/kg}$, 일본의 경우 $76\sim 15,396 \text{ Bq/kg}$ 으로 높게 조사되었으며, 이는 원자력발전소 사고로 방사성물질이 직접적으로 유입된 하천의 퇴적물을 대상으로 하였기 때문인 것으로 나타났다.^{20,27} 반면에 오스트레일리아의 하천퇴적물 중 ^{137}Cs 의 방사능 농도는 $1.2\sim 3.3 \text{ Bq/kg}$ 이었고, 포르투갈의 Tejo river 퇴적물에서는 $0.3\sim 12.9 \text{ Bq/kg}$, 이집트의 호소퇴적물에서는 $2.3\pm 0.3 \text{ Bq/kg}$, 방글라데시의 Karnaphuli river에서는 $2.2\pm 0.45 \text{ Bq/kg}$, Shango river에서는 $2.1\pm 0.5 \text{ Bq/kg}$ 으로 우리나라 하천퇴적물의 ^{137}Cs 방사능 농도와 유사한 수준으로 나타났다.^{10,21,24,25} 국내·외 하천퇴적물 중 ^{137}Cs 방사능 농도는 대체적으로 10 Bq/kg 미만으로 나타났고, 원전사고나 방사성물질 유출 등의 사고로 인한 오염원이 존재할 경우, 그 농도가 매우 높았으며 시간이 지남에 따라 농도가 감소하는 경향을 보였다.

4. 결 론

본 연구는 남한강수계의 하천퇴적물 내 ^{137}Cs 의 방사능 농도 분포 실태를 파악하기 위해 진행되었다. 하

천퇴적물 중 ^{137}Cs 방사능 농도는 강의 흐름방향과 관계없이 $<\text{MDA}\sim 3.80\pm 0.14 \text{ Bq/kg-dry}$ 의 범위에서 다양하게 존재하였다. 또한 국외 하천퇴적물 수준과 비교하였을 때 특정한 오염원이 없는 일반적인 조건에서 유사한 수준으로 나타났다. 본 연구 결과는 하천 내 ^{137}Cs 의 유입 등 오염여부를 판단할 수 있는 기초자료로 활용 할 수 있을 것으로 사료된다. 하지만 이는 일부하천에 국한된 결과로 우리나라 전역에 걸친 배경농도 자료로 활용하기에는 어려움이 있으며 향후 전국 수계에 대한 조사를 수행하여야 할 것이다. 또한 하천으로 유입되는 ^{137}Cs 의 경우, 직접적으로 유입되기도 하지만 ^{137}Cs 이 흡착된 토양이 강우 등에 의해 강으로 유입되어 존재하는 경우가 많기 때문에 주변 토양에 대한 조사도 함께 진행된다면 하천퇴적물에서의 ^{137}Cs 의 농도가 높아졌을 때, 원인 규명에 있어 다양한 접근이 가능할 것으로 사료된다.

References

1. USEPA, 'Ionizing Radiation Fact Book', EPA-402-F-06-061, USA, 2007.
2. UNSCEAR, 'SOURCES AND EFFECTS OF IONIZING RADIATION', UNSCEAR 2000 REPORT Vol.?, New York: United Nations, 2000.
3. J. A. Corcho-Alvarado, B. Balsiger, H. Sahli, M. Astner, F. Byrde, S. Röllin, R. Holzer, N. Mosimann, S. Wüthrich, A. Jakob and M. Burger, *J. Environ. Radioactiv.*, **160**, 54-63 (2016).
4. J. Lehto and X. Hou, Radionuclides and their radiometric measurement. in: Lehto J, Hou X, ed. Chemistry and analysis of radionuclides., p1-24 Weinheim: Wiley-VCH; 2011.
5. D. Huang, J. Du, B. Deng and J. Zhang, *Cont. Shelf Res.*, **57**, 10-17 (2013).
6. K. Mori, K. Tada, Y. Tawara, K. Ohno, M. Asami, K. Kosaka and H. Tosaka, *Environ. Model. Softw.*, **72**, 126-146 (2015).
7. J. C. Ritchie and J. R. McHenry, *J. Environ. Qual.*, **19**, 215-233 (1990).
8. J. Y. Kim, H. J. Jung, M. J. An, J. K. Hong, T. G. Kang, T. W. Kang, Y. H. Cho, Y. U. Han, B. N. Seol, W. S. Kim and K. H. Kim, *Anal. Sci. Technol.*, **28**(6), 377-384 (2015).
9. ATSDR, 'Toxicological Profile For Cesium', PB2004-

- 104397, USA, 2004.
10. M. J. Madruga, L. Silva, A. R. Gomes, A. Libânio and M. Reis, *J. Environ. Radioactiv.*, **132**, 65-72 (2014).
 11. I. R. Ajayi, *Res. J. Appl. Sci.*, **3**(3), 183-188 (2008).
 12. USEPA, 'Multi-Agency Radiological Laboratory Analytical Protocols Manual (MARLAP)', Vol. 2, EPA 402-B-04-001B, USA, 2004.
 13. Y. Sanada, T. Matsunaga, N. Yanase, S. Nagao, H. Amano, H. Takada and Y. Tkachenko, *Appl. Radiat. Isot.*, **56**, 751-760 (2002).
 14. Water Information System, <http://water.nier.go.kr/front/waterEasy/information02.jsp>.
 15. J. E. Lee, J. W. Choi and K. G. An, *J. the Environ. Sci.*, **21**(9), 1115-1129 (2012).
 16. M. H. Lee, H. S. Shin, K. H. Hong, Y. H. Cho and C. W. Lee, Determination of Minimum Detectable Activity in Environmental Samples, *J. Radiat. Prot.*, **24**(3), 171-184 (1999).
 17. E. S. Jang, A Study on Minimum Detection Limit of Environmental Radioactivity in HPGe Detector, *Korean Soc. Radiol.*, **5**(1), 5-10 (2011).
 18. KINS, 'Environmental Radioactivity Survey Data in Korea', KINS/ER-028, 2014.
 19. M. Frignani, D. Sorgente, L. Langone, S. Albertazzi and M. Ravaoli, *J. Environ. Radioactiv.*, **71**, 299-312 (2004).
 20. F. Durec, M. Betti and A. Durecova, *Appl. Radiat. Isot.*, **66**, 1706-1710 (2008).
 21. B. S. Smith, D. P. Child, D. Fierro, J. J. Harrison, H. Heijnis, M. A. C. Hotchkis, M. P. Johansen, S. Marx, T. E. Payne and A. Zawadzki, *J. Environ. Radioactiv.*, **151**, 579-586 (2016).
 22. E. Gourdin, O. Evrard, S. Huon, I. Lefèvre, O. Ribolzi, J. L. Reyss, O. Sengtaheuanghoung and S. Ayrault, *J. Hydrol.*, **519**, 1811-1823 (2014).
 23. A. I. Nikitin, I. I. Kryshev, N. I. Bashkirov, N. K. Valtova, G. E. Dunaev, A. I. Kabanov, I. Y. Katrich, A. O. Krutovsky, V. A. Nikitin, G. I. Petrenko, A. M. Polukhina, G. V. Selivanova and V. N. Shkuro, *J. Environ. Radioactiv.*, **108**, 15-23 (2012).
 24. A. E. Khater, Y. Y. Ebaid and S. A. El-Mongy, *Int. Congr. Ser.*, **1276**, 405-406 (2005).
 25. M. I. Chowdhury, M. N. Alam and S. K. S. Hazari, *Appl. Radiat. Isot.*, **51**, 747-755 (1999).
 26. S. Charmasson, O. Radakovitch, M. Arnaud, P. Bouisset and A. S. Pruchon, *Estuaries*, **21**(3), 367-378 (1998).
 27. T. Kajimoto, S. Endo, T. Naganuma and K. Shizuma, Proceedings of International Symposium on Environmental monitoring and dose estimation of residents after accident of TEPCO'S Fukushima Daiichi Nuclear Power Stations, KURRI, Osaka, Japan, 2013.
 28. G. Mackevičienė, N. Štriupkuvienė and G. Berlinkas, *Ekologija*, **2**, 69-74 (2002).
 29. T. Sawidis, D. Bellos and L. Tsikritzis, *Water Air Soil Pollut.*, **221**, 215-222 (2011).