

## 單一集塵法에 의한 라돈 붕괴生成物の 濃度測定\*

張時榮 · 魯聖基 · 洪鍾叔

韓國에너지研究所 大德工學센터

### Measurement of Radon Daughters' Radioactivities by Using Single Filtering Method

Si-Young Chang, Seung Gy Ro and Jong Sook Hong

Daeduk Engineering Center, Korea Advanced Energy Research Institute, Choong-Nam, Korea

#### Abstract

A measurement has been made for the radioactivities (or concentrations) of radon daughters, i.e., RaA, RaB and RaC in airborne dust by means of single filtering method. This is to evaluate the radioactivities in terms of Ci or WL (working level) from gross alpha counts measured in the selected-time intervals after an air sample is taken from a membrane filter paper with a mean pore size of  $0.8\mu\text{m}$ . This work involves determinations of standard deviation in radioactivities, radioactive equilibrium factor and ratio.

It appears that a concentration of total radon daughters is  $0.30\sim 2.36\text{pCi/l}$  or  $0.89\times 10^{-3}\sim 6.57\times 10^{-3}\text{WL}$ , depending on the sampling time. Generally the highest concentration was observed around nine o'clock in a day while the lowest value was obtained around seventeen o'clock. Standard deviations based on counting statistics of RaA's, RaB's and RaC's concentrations are  $\pm 57.75\%$ ,  $\pm 22.32\%$  and  $\pm 31.29\%$ , respectively. It is revealed that the radioactive equilibrium factor is 0.322 while the radioactive equilibrium ratio is of pattern  $C_1 > C_2 > C_3$  in general. Here  $C_1$ ,  $C_2$  and  $C_3$  stand for concentrations of RaA, RaB and RaC, respectively.

#### 1. 序 論

大氣中에는 우라늄 붕괴系列의 라돈과 그 붕괴生成物은 물론 토륨 붕괴系列의 트론과 그 붕괴生成物이 常存하며 이들은 線質因子(人體에 障害을 주는 한 尺度)가 相對的으로 큰 알파 粒子를 放出하고 있다. 이들의 大氣中 濃度(또는 放射能)는 時間的, 季節的 및 位置等的 諸環境要因에 따라 심하게 요동하는 것으로 알려져 있다.<sup>1)</sup> 이것은 곧 우라늄과 같은 알파 粒子 放出體를 取扱하는 施設에서 連續的으로 空氣汚染度를 測定評價할 때 라돈 및 토륨등의 影響을 考慮하지 않음

면 큰 오류를 범할 수 있다는 것을 意味한다. 그러므로 事前에 이들에 對한 特性을 調査하여 事後管理의 基準으로 삼는다면 空氣汚染度의 連續的인 監視精度는 크게 向上될 수 있을 것이다.

本 研究에서는 이미 널리 알려진 單一集塵法<sup>2)</sup>을 導入하여 韓國에너지研究所 大德工學센터에서 空氣浮游塵內 라돈 붕괴生成物の 濃度特性을 豫備調査하는데 그 目的을 두었다. 이때 라돈은 不活性氣體로 호흡할 때 폐에 沈着되지 않고 體外로 排出되어 人體에 거의 障害을 주지 않으므로 考慮對象에서 除外되었으며 토륨 붕괴系列 核種의 大氣中 存在比는 라돈 붕괴系列의 核種보다 相對的으로 낮기 때문에 여기서는 그 影響을

\* 韓國物理學會 第42回 定期總會(1981. 4. 24~25)에서 本論文의 一部 內容을 發表한.

無視하였다.<sup>3)</sup>

單一集塵裝置를 利用하여 0.8 $\mu$ m의 平均孔隔을 갖는 membrane濾紙에 空氣浮遊塵試料를 採取하였다. 採取한 試料의 全 알파放射能을 時差別로 2 $\pi$ -比例計測器에서 測定한 후 그 結果로부터 라돈 붕괴생성물의 濃度を Ci 및 WL(working level)單位로 算出하고 이 兩者間의 差異點을 檢討하였으며 濃度值의 標準偏差 및 라돈 붕괴생성물의 放射平衡狀態를 나타내는 放射平衡因子와 放射平衡比를 求했다.

2. 理論的인 背景

1) 라돈 붕괴생성물의 濃度

單一集塵法을 써서 라돈 붕괴생성물의 濃度を 算出할 수 있는 關係式의 誘導過程은 Kim等<sup>4)</sup>의 보고서에 仔細히 記述되어 있으므로 여기서는 그 結果式만을 引用하려고 한다.

라돈 붕괴생성물, 즉, RaA, RaB 및 RaC의 濃도를 각각 C<sub>1</sub>, C<sub>2</sub> 및 C<sub>3</sub>라하면 이들은

$$C_1 = \frac{1}{VE} \{0.16890A(2,5) - 0.08200A(6,20) + 0.07753A(21,30) - 0.05647Ag\} \dots\dots(1a)$$

$$C_2 = \frac{1}{VE} \{0.00122A(2,5) - 0.02057A(6,20) + 0.04909A(21,30) - 0.15749Ag\} \dots\dots(1b)$$

$$C_3 = \frac{1}{VE} \{-0.02252A(2,5) + 0.03318A(6,20) - 0.03771A(21,30) - 0.05757Ag\} \dots\dots(1c)$$

로 주어진다. 여기서 V는 集塵裝置의 吸入率(l/min)이고 E는 計測器의 알파放射能 測定效率이며 A(2,5), A(6,20) 및 A(21,30)은 각각 集塵終了後부터 2~5분, 6~20분 및 21~30분 사이의 放射能 測定值를 뜻한다. 그리고 Ag는 測定器의 自然放射能 測定值를 나타낸다.

上記 (1)式에서 空氣浮遊塵의 集塵效率는 100%임을 暗示하고 있는데 本 研究에서 사용한 membrane濾紙(平均孔隔 0.8 $\mu$ m)의 경우, 위 假定의 妥當性은 Holmgren等<sup>5)</sup>의 實驗結果에 依하여 뒷받침된다.

2) 濃度值의 標準偏差

알파放射能을 測定하는 過程에서 생긴 誤差는 濃度算出值에 誤差를 주게 되는데 放射能 測定誤差의 展開法에 依하여 算出된 C<sub>1</sub>, C<sub>2</sub> 및 C<sub>3</sub>의 標準偏差, 즉, S<sub>1</sub>, S<sub>2</sub> 및 S<sub>3</sub>는 各各 다음式과 같이 주어진다.

$$S_1 = \pm \frac{1}{10VE} \left\{ 2.85272A(2,5) + 0.67240A(6,20) + 0.60109A(21,30) + 0.31889 \frac{Ag}{Tg} \right\}^{\frac{1}{2}} \dots\dots (2a)$$

Table 1. Composition of WL at Radon Daughter Equilibrium

Nuclide	Ultimate $\alpha$ energy per atom(MeV)	No. of atoms per 100 pCi	Total $\alpha$ energy (MeV/100pCi)	Fraction of total $\alpha$ energy
RaA	13.68	977	0.135 $\times 10^5$	0.10
RaB	7.68	8,585	0.659 $\times 10^5$	0.52
RaC	7.68	6,311	0.485 $\times 10^5$	0.38
RaC'	7.68	8 $\times 10^{-4}$	0	0.00
			1.279 $\times 10^5$	1.00
			$\approx 1.3 \times 10^5$	

$$S_2 = \pm \frac{1}{10VE} \left\{ 0.00015A(2,5) + 0.04231A(6,20) + 0.24098A(21,30) + 2.48031 \frac{Ag}{Tg} \right\}^{\frac{1}{2}} \dots\dots(2b)$$

$$S_3 = \pm \frac{1}{10VE} \left\{ 0.05072A(2,5) + 0.11009A(6,20) + 0.14220A(21,30) + 0.3314 \frac{Ag}{Tg} \right\}^{\frac{1}{2}} \dots\dots(2c)$$

(2)式에서 Tg는 自然放射能 測定時間을 나타내고 標準偏差값은 pCi/l 單位로 주어진다.

3) WL (working level)

ICRP-2<sup>6)</sup>에 依하면 라돈 붕괴생성물에 對한 最大許容濃度を Ci單位로 表示하고 있다. 그러나 라돈 붕괴생성物間의 放射平衡狀態를 고려함이 없이 Ci單位를 쓰게 되면 人體被曝線量은 實際보다 過大評價된다고 한다.<sup>7)</sup> 이런 理由로 美國 Public Health Service<sup>8)</sup>는 Ci單位代身 WL이라는 單位를 導入하였다. 參考文獻 7 및 8에 依하면 1WL은 母核種인 라돈 100pCi/l이 그 子核種(또는 崩壞生成物)과 放射平衡狀態에 있을 때 子核種이 放出하는 알파粒子 에너지의 和, 즉, 1.3 $\times 10^5$ MeV/l로 定義된다(表 1 參照).

예컨대 라돈 붕괴생성물에 對한 最大許容濃度<sup>6)</sup> 30 pCi/l는 放射平衡狀態에 있을 때만 0.3WL에 該當한다.

N<sub>A</sub>를 單位體積(l)內에 들어있는 RaA核種의 數라 하고,  $\lambda_A$ 를 RaA의 崩壞常數라 하면 C<sub>1</sub>=N<sub>A</sub> $\lambda_A$ 로 주어질 수 있으므로

$$N_A = \frac{C_1}{\lambda_A} \dots\dots(3)$$

의 關係式이 成立한다. 이 때 C<sub>1</sub>은 pCi單位로 주어진다. 表 1에서 알 수 있는 바와 같이 RaA의 原子當의 알파에너지는 13.16MeV이고 1WL은 1.3 $\times 10^5$ MeV/l, 므로 RaA를 WL單位로 나타내면

$$WL_A = 2.336 \times 10^{-4} \frac{C_1}{\lambda_A} \dots\dots\dots(4)$$

이 된다.  $\lambda_A$ 은  $0.2273 \text{min}^{-1}$ 이므로 (4)식은 다음과 같이 주어진다.

$$WL_A = 1.028 \times 10^{-3} C_1 \dots\dots\dots(5)$$

마찬가지로 RaB 및 RaC에 대해서 풀면

$$WL_B = 5.072 \times 10^{-3} C_2 \dots\dots\dots(6a)$$

$$WL_C = 3.728 \times 10^{-3} C_3 \dots\dots\dots(6b)$$

로 된다. (RaA+RaB+RaC)의 WL을  $WL_T$ 라고 하면

$$WL_T = (1.028C_1 + 5.072C_2 + 3.728C_3) \times 10^{-3} \dots\dots(7)$$

과 같은關係式을 얻는다. (7)식에 (1)식을代入하면

$$WL_T = \frac{10^{-3}}{VE} \{0.0959A(2,5) - 0.0649A(6,20) + 0.1881A(21,30) - 1.0714Ag\} \dots\dots\dots(8)$$

와 같이 된다. 따라서 時差別로 試料의 알파放射能測定資料만을 가지고 WL單位の 濃度算出이 可能해진다.

4) 放射平衡因子 및 放射平衡比

放射平衡因子, F, 는 放射平衡狀態에 있다고 假定하여 全 알파放射能測定值로부터 算出된 WL에 對한  $WL_T$ 의 比로서 定義된다.<sup>8)</sup>

$$F = \frac{WL_T}{\text{全 알파放射能測定值로부터 算出된 WL}}$$

만일 崩壞生成物間에 放射平衡이 이루어져 있다면 F 는 1이 된다.

한편 RaA를 母核種이라 하고 RaB 및 RaC를 子核種으로 假定하면 放射平衡比<sup>2)</sup>는

$$\frac{N_A}{N_A^\infty} : \frac{N_B}{N_B^\infty} : \frac{N_C}{N_C^\infty} = 1 : \frac{C_2}{C_1} : \frac{C_3}{C_1} \dots\dots\dots(10)$$

로 주어진다. 여기서  $N_A, N_B$  및  $N_C$ 는 각각 RaA, RaB 및 RaC의 單位體積當의 原子數(atoms/l)를 나타내고  $N_A^\infty, N_B^\infty$  및  $N_C^\infty$ 는 각각 放射平衡狀態에 있을 때 RaA, RaB 및 RaC의 單位體積當 原子數를 뜻한다.

3. 實驗方法

미국 Bendix社製 小體積空氣浮游塵集塵裝置를 써서 1980年 10月 27일부터 同年 10月 31일까지 5日間 07時에서 22時까지 每時間 韓國에너지研究所 大德工學센터의 한 實驗室(콘크리트 바닥과 벽체로 된 것으로 후드 시설은 없음)內 地上 150cm 높이에서 直徑이 25mm이고 平均孔隔이  $0.8\mu\text{m}$ 인 membrane濾紙(Millipore社製)로 5분동안 空氣浮游塵試料를 採取하였다. 集塵된 試料를  $2\pi$ -比例計測器에 挿入하여 集塵終了時刻부터 2~5分, 6~20分 및 21~30分の 時間間격으로 3회에 걸쳐서 試料의 全 알파放射能을 測定하였다. 이때 試

料의 放射能을 測定하기 前에 30~40秒동안 많은 量의 P-10氣體(알곤 90%와 메탄 10%의 混合氣體)를 흘려 보내고 放射能을 測定할 때는 秒當 1~2방울로 氣體를 充塡시켰다.

4. 結果 및 檢討

放射能測定值를 (1), (2), (8), (9) 및 (10)식에 代入하여 各 崩壞生成物의  $C_i$  및 WL單位濃度, 濃度值의 標準偏差, 放射平衡因子 및 放射平衡比를 算出하였다. 이때 測定資料는 卓上用電算機(Hewlett Packard, Model 9845A desktop computer)로 處理되었다.

1980年 10月 27일부터 同年 10月 31일까지 5日間 每時間別 測定濃度의 平均值를 表 2에 提示하고 그림 1 및 그림 2에는 各  $C_i$ 單位濃度와 WL單位濃度變化를 圖示하였다. 表 2 및 그림 1과 2에서 알 수 있는 바와 같이 라돈 崩壞生成物의 濃度는 1日中 09時頃에 가장 높고 17時頃에 가장 낮은 것 같다. 이것은 空氣中 라돈 崩壞生成物의 濃度가 大氣의 密度와 密接한 關係를 갖고 있음을 말해준다. 이와 비슷한 現象은 1977年 Kim<sup>9)</sup>等에 依해서도 報告된 바 있다.

本 實驗期間中 라돈 崩壞生成物의 濃度는 最低 0.30 pCi/l(1980.10.31. 13:00)로 부터 最大 2.36pCi/l(1980.10.30. 07:00)까지의 사이에서 심한 요동을 보였는데 이것은 他研究者의 結果와 大差없음을 알 수 있다.<sup>9)</sup> 물론 여러가지 環境要因에 따라 다를 수 있기 때문에 本 研究結果를 他研究者들의 研究結果와 直接比較 할 수는 없는 것이다. 그러나 本 實驗의 妥當性을 評價할 수 있는 比較資料는 될 수 있을 것이다. 같은 期間中에 算出된 WL濃度는 最低  $0.89 \times 10^{-3} \text{WL}$ (1980.

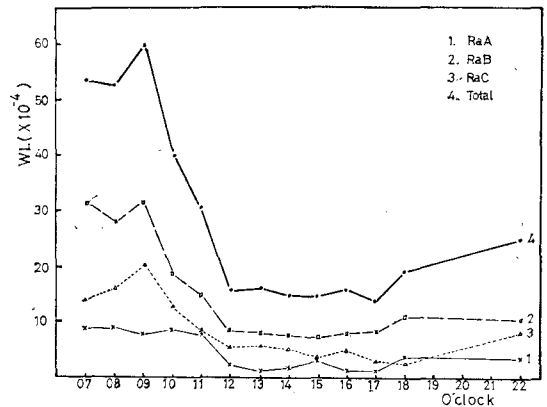


Fig. 1. Hourly variation of radon daughters' concentrations in pCi/l averaged from Oct. 27 to Oct. 31, 1980

Table 2. Hourly Variations of Radon Daughters' Concentrations Averaged from Oct. 27 to Oct. 31, 1980

O'clock	Radon Daughters' Concentration							
	pCi/l( $\times 10^{-2}$ )				WL( $\times 10^{-4}$ )			
	RaA	RaB	RaC	Total	RaA	RaB	RaC	Total
07:00	82.90	61.90	37.40	182.20	8.49	31.40	13.90	53.80
08:00	82.90	56.50	41.83	182.33	8.51	28.63	15.56	52.70
09:00	74.20	63.65	55.25	191.30	7.62	32.25	20.60	60.47
10:00	41.76	37.10	34.50	113.36	8.37	18.83	12.86	40.06
11:00	28.88	29.17	16.31	74.47	7.56	14.83	8.36	30.75
12:00	23.80	16.22	15.18	55.20	2.56	8.23	5.67	16.55
13:00	14.15	15.76	16.47	46.38	1.45	8.00	6.14	15.59
14:00	21.36	17.26	14.84	53.46	2.19	7.78	5.67	15.64
15:00	18.12	14.70	10.58	44.40	3.41	7.45	3.95	14.81
16:00	14.05	16.97	15.13	46.15	1.44	8.60	5.64	15.68
17:00	13.41	17.90	8.48	39.70	1.38	9.06	3.16	13.60
18:00	35.00	24.10	11.68	70.78	3.59	12.22	2.94	18.75
22:00	33.20	22.33	23.60	79.13	3.41	11.32	8.80	25.53
Average	37.21	30.28	23.17	90.60	4.61	15.27	8.71	28.76

10.31. 15:00) 및 最大  $6.57 \times 10^{-3}$  WL(1980. 10.30. 09:00)였다. 이것을 放射平衡狀態라는 前提條件下에서 Ci單位로 換算하면 각각 0.089pCi/l 및 0.657pCi/l 가 된다. 이 값은 前述한 Ci單位의 最低值 및 最大値 보다 낮다. 이것은 곧 우리나라와 같은 알파放出體를 取

扱하는 施設에서 空氣汚染管理目的으로 Ci單位보다는 WL單位를 採擇하는 것이 보다 現實的임을 말해준다. 물론 放射線安全이라는 觀點에서 Ci單位를 高수할 수도 있겠으나 安全과 經費라는 側面에서는 WL單位를 採用하는 것이 바람직하다.

Table 3. Hourly Variations of Radon Daughters' Concentrations Averaged from Oct. 27 to Oct. 31, 1980

O'clock	Concentration, pCi/l( $\times 10^{-2}$ )				Standard Deviation(pCi/l)			Equilibrium Ratio			Equilibrium Factor (F)
	RaA	RaB	RaC	Total	RaA	RaB	RaC	RaA	RaB	RaC	
07:00	82.90	61.90	37.40	182.20	0.3144	0.0991	0.1056	1	0.74	0.45	0.295
08:00	82.90	56.50	41.83	182.33	0.3054	0.0957	0.1018	1	0.68	0.50	0.290
09:00	74.20	63.65	55.25	191.30	0.2911	0.0912	0.0983	1	0.85	0.74	0.316
10:00	41.76	37.10	34.50	113.36	0.2662	0.0830	0.0893	1	0.88	0.82	0.353
11:00	28.88	29.17	16.31	74.47	0.2017	0.0667	0.0704	1	1.01	0.56	0.412
12:00	23.80	16.22	15.18	55.20	0.1821	0.0560	0.0604	1	0.68	0.63	0.299
13:00	14.15	15.76	16.47	46.38	0.1737	0.0549	0.0604	1	1.11	1.16	0.336
14:00	21.36	17.26	14.84	53.46	0.1809	0.0563	0.0605	1	0.80	0.69	0.292
15:00	18.12	14.70	10.58	44.40	0.1607	0.0504	0.0539	1	0.81	0.55	0.333
16:00	14.05	16.97	15.13	46.15	0.1758	0.0557	0.0596	1	1.20	1.07	0.339
17:00	13.41	17.90	8.48	39.70	0.1458	0.0462	0.0501	1	1.33	0.63	0.342
18:00	35.00	24.10	11.68	70.78	0.1772	0.0568	0.0599	1	0.68	0.33	0.264
22:00	33.20	22.33	23.60	79.13	0.2195	0.0672	0.0728	1	0.67	0.71	0.322
Average	37.21	30.28	23.17	90.60	0.2149	0.0676	0.0725	1	0.88	0.68	0.322

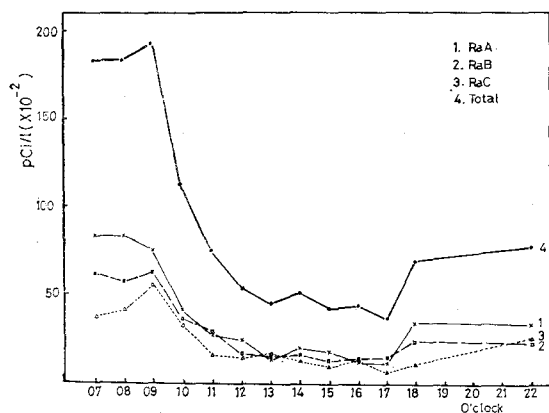


Fig. 2. Hourly variation of radon daughters' concentrations in WL averaged from Oct. 27 to Oct. 31, 1980

한편 농도(Ci單位)值의 標準偏差, 放射平衡因子 및 放射平衡比의 算出結果는 表 3에 정리·수록되었다. 平均標準偏差는 RaA, RaB 및 RaC에 對해서 각각  $\pm 57.75\%$ ,  $\pm 22.32\%$  및  $\pm 31.29\%$ 였다. 이것은 放射能測定上의 誤差에 기인된 것이다. 앞으로 이를 改善키 위한 研究가 계속되어야 할 것이다. 平均放射平衡因子는 0.322였으며 RaA를 母核種으로 假定하였을 때 崩壊生成物의 放射平衡比는 대개  $C_1 > C_2 > C_3$ 로 나타났으나 그렇지 않은 경우도 있었는데 이것은 實驗上의 誤差<sup>10)</sup> 또는 토륨 및 그 崩壊生成物의 影響<sup>11)</sup>을 無視하는데서 오는 것으로 믿어진다. 토륨 및 그 崩壊生成物을 考慮한 濃度測定에 對해서는 앞으로의 研究課題로 남기고자 한다.

## 5. 結 論

單一集塵法을 導入하여 라돈 崩壊生成物의 濃度, 濃度值의 標準偏差, 放射平衡因子 및 放射平衡比를 測定하였는데 그 結果를 綜合하면 다음과 같다.

1) 라돈 崩壊生成物의 濃度は 同一場所에서도 時間

的變化가 甚하다.

2) 라돈 崩壊生成物의 濃度は 1日中 대개의 경우 09時頃 가장 높고 17時頃 가장 낮다.

3) (RaA+RaB+RaC)의 濃度は 0.30~2.36 pCi/l 또는  $0.89 \times 10^{-3} \sim 6.57 \times 10^{-3}$  WL이었다. 放射線安全이라는 觀點에서 Ci單位를 고수할 수도 있겠으나 安全과 經費라는 側面에서는 WL單位를 採用하는 것이 現實的이다.

4) RaA, RaB 및 RaC의 濃度測定에 따른 標準偏差는 각각  $\pm 57.75\%$ ,  $\pm 22.32\%$  및  $\pm 31.29\%$ 이다.

5) 放射平衡因子, F의 값은 0.322이고 放射平衡比는 대개  $C_1 > C_2 > C_3$ 로 나타난다.

## 參 考 文 獻

- 1) N. Jonassen and E.I. Hayes, *Health Phys.* **26**, 104 (1974).
- 2) E.C. Tsivoglou, H.E. Ayer and D.A. Holaday, *Nucleonics*, **11**(9), 40 (1953).
- 3) O.G. Raabe and M.E. Wrenn, *Health Phys.* **17**, 593 (1969).
- 4) P.S. Kim, D.K. Min and S.G. Ro, *J. Rad. Prot.* **2**(1), 9 (1977).
- 5) R.M. Holmgren, W.W. Wagner, R.D. Lloyd and R.C. Pendleton, *Health Phys.* **32**, 297 (1977).
- 6) ICRP-2, *Health Phys.* **3**, 1 (1960).
- 7) IAEA Safety Ser. No. 43, IAEA, Vienna(1976).
- 8) ICRP-24, *Annals of the ICRP*(1), Pergamon Press, Oxford (1977).
- 9) E.M. Krisiuk, *Health Phys.* **38**, 199 (1980).
- 10) C.W. Ha, J.K. Lee, P.S. Moon and C.C. Yook, *J. Rad. Prot.* **4**(1), 5(1979).
- 11) C.S. Rho, Private Communication.

## 抄 錄

單一集塵法을 써서 空氣浮遊塵中에 存在하는 라돈 붕괴生成物, 즉, RaA, RaB 및 RaC의 放射能 (또는 濃度)을 測定하였다. 이것은 單一集塵裝置를 이용하여 平均孔隔(mean pore size)이  $0.8\mu\text{m}$ 인 membrane 濾紙에 採取한 試料의 全 알파放射能을 時差別로 測定한 후 그 結果로부터 라돈 붕괴生成物の 濃도를 Ci 또는 WL(working level)單位로 算出하는 方法이다. 여기서 濃度外에도 濃度值의 標準偏差 및 라돈 붕괴生成物の 放射平衡狀態를 나타내는 放射平衡因子와 放射平衡比를 求하였다.

Ci 및 WL單位로 주어진 라돈 붕괴生成物の 濃도는 實驗期間中 각각  $0.30\sim 2.36\text{pCi/l}$  및  $0.89\times 10^{-3}\sim 6.57\times 10^{-3}\text{WL}$ 로서 時間的 요동이 심하였는데 대개 하루中 午前에 높고 午後에 낮은 현상을 보여 주었다. RaA, RaB 및 RaC의 濃度算出에 따른 標準偏差는 각각  $\pm 57.75\%$ ,  $\pm 22.32\%$  및  $\pm 31.29\%$ 였으며 放射平衡因子는 平均 0.322였다. 그리고 RaA를 母核種으로 假定했을 때 各核種間의 放射平衡比는 대개  $C_1 > C_2 > C_3$ 인 것으로 나타났다. 여기서  $C_1$ ,  $C_2$  및  $C_3$ 는 각각 RaA, RaB 및 RaC의 濃도를 나타낸다.