

Distribution of Radioactivities of $^{226,228}\text{Ra}$, ^{137}Cs and ^{40}K in Soil in Busan Area

Bum Kyoung Seo, Jung Wook Sung, Hyun Duck Kim, Dae Won Lee

Dept. of Physics, Pusan National University

부산지역 토양의 $^{226,228}\text{Ra}$, ^{137}Cs 및 ^{40}K 방사능 분포

서범경 · 성정욱 · 김현덕 · 이대원

부산대학교 물리학과

(2001년 5월 2일 접수, 2001년 9월 20일 채택)

Abstract - In this work, we investigated distribution of the natural and artificial radioactive nuclides and level of the regional background in soil in Busan. For 45 points, the environmental radioactivity concentration of Busan surface soil is 14.38 ~ 57.03 (mean : 33.95) $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ for ^{226}Ra , 22.41 ~ 86.58 (mean : 51.08) $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ for ^{228}Ra , 223.64 ~ 1332.30 (mean : 668.61) $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ for ^{40}K and $<0.33 \sim 33.37$ (mean : 13.74) $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ for ^{137}Cs . Also, in order to investigate vertical distribution for radioactivity, we examined radioactive concentration with mountain height. But there was no correlation between radioactivity distribution and mountain height. The $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ and $^{226}\text{Ra}/^{40}\text{K}$ concentration ratios were $0.68 \pm 19\%$ and $0.06 \pm 34\%$, respectively.

Key words : environmental radioactivity, Busan region, radium, radon, HPGe detector

요약 - 부산지역 토양에서 천연 및 인공방사성 핵종의 분포 그리고 지역적 백그라운드 준위를 조사하기 위하여 본 연구를 수행하였다. 45개 지점에 대하여 토양을 채취하여 분석한 결과 천연방사성 핵종인 ^{226}Ra 이 14.38 ~ 57.03 (평균 : 33.95) $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$, ^{228}Ra 은 22.41 ~ 86.58 (평균 : 51.08) $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ 그리고 ^{40}K 은 223.64 ~ 1332.30 (평균 : 668.61) $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ 의 농도를 가지며, 인공방사성 핵종인 ^{137}Cs 는 $<0.33 \sim 33.37$ (평균 : 13.74) $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ 의 방사능 농도로 조사되었다. 또한 표고차에 따른 방사능 농도를 조사하기 위하여 시료를 채취하여 분석한 결과 높이별 방사능 농도의 상관관계는 없었다. 천연방사성 핵종에 대한 방사능 농도비는 $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ 과 $^{226}\text{Ra}/^{40}\text{K}$ 에 대해 각각 $0.68 \pm 19\%$ 과 $0.06 \pm 34\%$ 로 나타났다.

중심어 : 환경방사능, 부산지역, 라듐, 라돈, HPGe 검출기

서론

현재 우리나라에서는 전국 규모의 실내 라돈조사가 수행중에 있으나[1], 이러한 조사와 더불어 각지역의 토양 및 지하수 중의 라듐 및 라돈의 농도 조사가 병행되어야 할 것이다. 본 연구의 목적은 부산지역의 토양에서 천연 및 인공방사성 핵종의 분포 그리고 중요한 방사성 동위원소에 대한 지역적 백그라운드 준위를 조사하기 위한 것이다. 부산지역은 현재 4기의 원전이 가동중에

있으며, 앞으로 2기의 원전이 더 건설될 예정이다. 그러므로, 환경방사능 감시의 목적으로도 토양 중에서 방사능 농도의 정상준위를 아는 것 또한 중요할 것으로 생각된다.

천연방사성 핵종으로부터 인간이 받게되는 방사선량의 평가는 인류가 받게되는 선량에 크게 기여하므로 특히 중요하다. 지각기원 천연방사성 핵종 중에서 ^{226}Ra , ^{232}Th 그리고 ^{40}K 은 직접 피폭과 토양층과 건축재료로부터의 라돈방출때문에 선량평가에 있어서 중요한 핵종이다[2].

또한 토양 중의 라듐으로부터 생성된 라돈은 가스상의 방사성 동위원소로서 지구 상에 존재하는 순수 가스중 가장 무거운 것으로 알려져있으며, 대기 중의 라돈은 약 80 %가 지하에서 방출되는 것이고, 나머지는 지하수나 지표수로부터 기인된다. 지하 중에 존재하는 라듐으로부터 라돈이 생성되며 이 라돈은 토양 모세관 또는 입자 기공을 통하여 대기 중으로 방출되어 미세먼지 등에 흡착된 것으로써[3-4], 라돈의 농도가 높은 지역에서 장기간 노출되면 폐암을 유발할 수도 있다고 알려져있다[5-6]. 즉, 토양 중의 라듐농도가 높은 지역은 대기중의 라돈농도도 높기 때문에, 대기 중 라돈농도를 평가하기 위한 기초자료로서 토양 중의 라듐 방사능 농도를 평가하는 것은 반드시 선행되어야 할 연구이다.

부산지역 45개 지점에서 채취한 표층토에 대한 천연방사성 핵종(^{226}Ra , ^{228}Ra 그리고 ^{40}K)과 인공방사성 핵종(^{137}Cs)의 수평적 방사능 분포를 조사하였고, 높이에 따른 분포를 조사하기 위하여 금정산의 표고차에 따른 방사능 농도를 조사하였다. 또한 $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ 과 $^{226}\text{Ra}/^{40}\text{K}$ 에 대한 방사능 농도 비도 조사하였다.

재료 및 방법

부산광역시에는 한반도의 동남단에 위치한 항구 도시로서, 면적은 758.21 km^2 이며, 인구는 383만 명으로서 우리나라 전체 인구의 8 %를 차지하고 있다.

방사능의 수평적인 분포를 조사하기 위하여 부산광역시에 소재한 12개 산의 가장 자리를 기준으로 45개소의 시료채취 지점을 선정하였다. 시료채취 지점간은 가로 $1.5 \times 1.5 \text{ km}^2$ 를 1 방안으로 하여 1 방안당 1개의 시료를 채취하였다. 또한 높이에 따른 방사능 농도를 조사하기 위하여 부산광역시에 소재한 금정산(해발 801 m)에서 표고 70 m 간격으로 10개 지점을 선정하여 시료를 채취하였다.

시료채취 지점은 미경작지로서 지표수 등의 유동에 의한 침식·붕괴 및 인위적 변동이 없는 평탄한 개활지를 선택하였다. 채취방법은 선정된 지점에서 반경 5 m 이내의 일정한 방위와 간격으로 5개 이상의 곳에서 채취한 표층토(깊이 5 cm 이내)를 혼합하여 하나의 시료로 만들었다.

채취한 토양은 전기로에서 105°C 로 24시간 동안 건조시켰다. 건조시킨 토양은 분쇄기로 분쇄하여, 100 mesh 채로 걸러낸 후, 용기에 충전하였

다. ^{226}Ra 은 방출률이 3.3 %인 186.2 keV 감마선을 방출하지만, ^{235}U 에 의하여 방출되는 185.7 keV 감마선의 간섭으로 인하여 정량하기가 쉽지가 않다[7-8]. 이러한 이유로 본 연구에서는 방사평형된 딸핵종을 분석에 이용하기 위하여 450 ml Marinelli 비커에 시료를 충전하여 용기를 완전히 밀봉한 뒤 라듐과 그 딸핵종간의 방사평형이 성립하도록 3주 이상 보관한 후에 측정하였다. 플라스틱 재질의 용기에 대해서도 완전히 밀봉할 경우 라듐과 그 딸핵종간의 방사평형이 이루어진다고 보고되었다[9].

천연방사성 핵종중 ^{226}Ra 과 ^{228}Ra 방사능은 방사평형된 딸핵종을 이용하여 간접적으로 측정하였는데, ^{226}Ra 은 ^{214}Pb (351.9 keV) 및 ^{214}Bi (609.3 keV) 감마선 그리고 ^{228}Ra 은 ^{228}Ac (911.1 keV) 및 ^{208}Tl (583.1 keV) 감마선을 이용하여 결정하였다. 또한 천연방사성 핵종 ^{40}K 과 인공방사성 핵종인 ^{137}Cs 은 각각 1460.7 keV 그리고 661.7 keV 감마선을 이용하여 직접 측정하였다.

결과 및 논의

그림 1은 토양시료에 대한 전형적인 감마선 스펙트럼을 나타낸 것이다. 우라늄 계열의 ^{226}Ra , ^{214}Pb 및 ^{214}Bi , 토륨 계열의 ^{228}Ac , ^{212}Pb 및 ^{208}Tl , 악티늄 계열의 ^{235}U , 계열을 이루지 않는 방사성 핵종인 ^{40}K , 소멸 감마선 피크 그리고 인공방사성 핵종인 ^{137}Cs 등에 의한 감마선 피크를 볼 수 있다.

표 1은 부산지역의 45개 지점에 채취한 토양의 분석결과를 나타낸 것이다. 천연방사성 핵종인 ^{226}Ra 이 14.38 ~ 57.03 (평균 : 33.95) $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ 의 범위를 가지며, ^{228}Ra 은 22.41 ~ 86.58 (평균 : 51.08) $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$, ^{40}K 은 223.64 ~ 1332.30 (평균 : 668.61) $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ 의 농도를 나타내고 있으며, 인공방사성 핵종인 ^{137}Cs 는 $<0.33 \sim 33.37$ (평균 : 13.74) $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ 의 방사능 농도로 조사되었다. 이 결과는 타 연구자들의 결과와 비슷한 수준이며, 전세계적으로 분포되어 있는 범위의 값들을 가진다[10-12].

또한, 부산지역 산에서 환경방사능의 높이에 따른 분포를 조사하기 위하여, 부산의 대표적인 산인 금정산(해발 801 m)을 선정하였다. 표고차 약 70 m 간격으로 10개 지점에서 시료를 채취하여 분석한 결과는 표 2와 같다. 분석 결과 높이에 따른 방사성 핵종의 농도와 상관계수는 찾을 수 없었다.

천연방사성 핵종의 수평적 분포에 대한 $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$

Table 1. Environmental radioactive concentration in soils in Busan ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$)

Nuclides	Range	Mean \pm S.D.	Worldwide range[2]
^{40}K	223.64 ~ 1332.30	668.61 \pm 275.92	10 ~ 1600
^{226}Ra	14.38 ~ 57.03	33.95 \pm 10.40	1 ~ 43000
^{228}Ra	22.41 ~ 86.58	51.08 \pm 16.08	1 ~ 900
^{137}Cs	<0.33 ~ 33.37	13.74 \pm 9.76	-

Table 2. Environmental radioactive concentrations with height in Mt. Kum-jung ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$)

Height(m)	^{226}Ra	^{228}Ra	^{40}K	^{137}Cs
120	38.05 \pm 2.45	43.21 \pm 1.23	1027.50 \pm 44.92	61.65 \pm 2.70
190	41.16 \pm 2.87	47.12 \pm 0.96	732.26 \pm 32.65	21.09 \pm 0.29
260	37.84 \pm 2.45	49.68 \pm 1.65	861.54 \pm 37.83	52.91 \pm 2.34
330	26.76 \pm 1.93	51.35 \pm 1.05	778.12 \pm 34.73	48.15 \pm 2.20
400	43.93 \pm 2.75	50.75 \pm 1.67	893.65 \pm 39.12	1.15 \pm 0.19
470	27.99 \pm 2.03	36.21 \pm 0.84	562.66 \pm 25.47	63.57 \pm 2.85
540	39.94 \pm 2.52	48.65 \pm 1.22	946.78 \pm 41.49	46.37 \pm 2.06
610	35.28 \pm 2.39	38.16 \pm 0.99	593.99 \pm 26.81	26.92 \pm 1.32
680	36.49 \pm 2.32	41.25 \pm 1.13	885.27 \pm 38.83	39.57 \pm 1.75
750	37.76 \pm 2.60	42.14 \pm 0.63	740.03 \pm 32.94	53.87 \pm 2.39

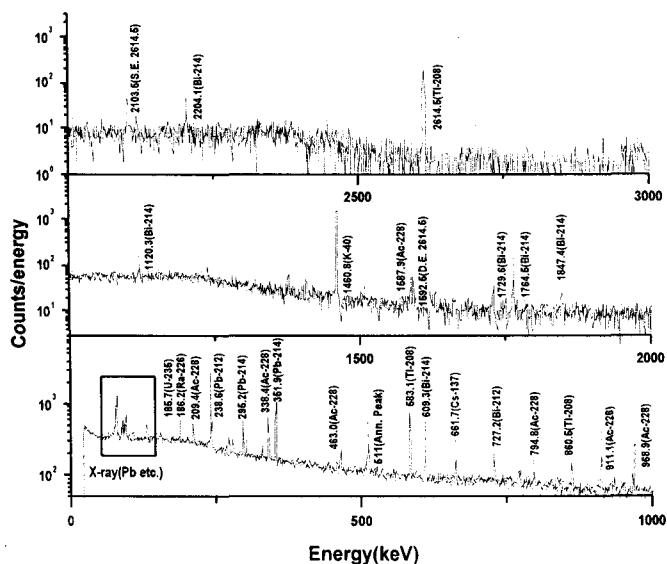


Fig. 1. Typical gamma-ray spectrum for soil.

과 $^{226}\text{Ra}/^{40}\text{K}$ 의 농도비(평균값 \pm % 표준편차)는 각각 $0.68 \pm 19\%$ 그리고 $0.06 \pm 34\%$ 였다. Anagnostakis et al.[2]에 의하면 위의 비는 각각 $1.10 \pm 44\%$ 그리고 $0.06 \pm 56\%$, Miller et al.[13]은 각각 0.77과 0.07, 그리고 UNSCEAR[14]은 미국에 대해 1.15와 0.11 그리고 중국에 대해 0.76와 0.06인 것으로 보고하였다. $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ 의 농도비는 지역에 따라 그 차이가 나타나는 것을 알 수 있으며, 부산지역은 Miller et al.[13]과 UNSCEAR[14]의 중국의 결과와 비슷하였고, $^{226}\text{Ra}/^{40}\text{K}$ 농도비는 타연구자들의 결과와 전체적으로 유사한 것을 알 수 있다. Murray et al.[15]에 의하면 풍화되지 않은 화강암의 경우에 $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ 의 방사능 비는 0.55 ± 0.05 인 것으로 보고하였는데, 부산지역 토양의 경우에 그 비가 0.68로서 매우 유사하고, 또한 이 비는 시간과 공간에 대해 거의 변하지 않고 방사성 선원의 표지(label)로서 사용되어질 수 있다고 보고하였다.

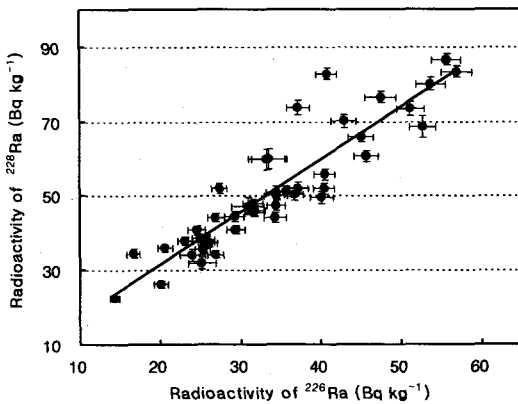


Fig. 2. Radioactivity of ^{226}Ra and ^{228}Ra

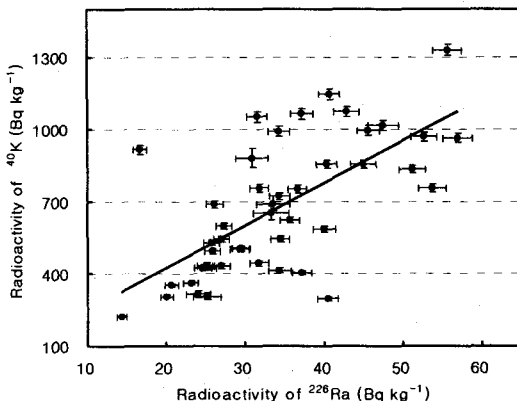


Fig. 3. Radioactivity of ^{226}Ra and ^{40}K

토양에 대한 천연방사성 핵종의 농도를 조사한 결과, 그림 2에서와 같이 대체적으로 ^{226}Ra 의 농도가 증가할수록 ^{228}Ra 방사능 농도도 같이 증가하는 것을 볼 수 있다. 그림에서 x-축 오차는 ^{226}Ra 의 오차를 나타낸 것이고, y-축 오차는 ^{228}Ra 의 오차를 나타낸 것이다. $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ 방사능 비는 아주 좋은 상관관계를 나타내고 있다는 것을 알 수 있다. 이는 동일한 종류의 토양에 대해서는 방사능 비가 일정하기 때문이다[15]. 참고로 그림 3은 ^{226}Ra 에 대한 ^{40}K 의 방사능 농도를 나타낸 것인데, ^{226}Ra 의 농도가 증가할수록 ^{40}K 의 방사능 농도가 대체적으로 증가하는 경향을 보이고 있다는 것을 알 수 있다. 이는 토양 입자의 직경과 관련된 것으로서, 일반적으로 방사능 농도는 입자의 직경이 작아질수록 즉, 유효 표면적이 증가할수록 증가하기 때문이다[15-16].

결론

본 연구는 HPGe 검출기를 이용하여 부산지역 토양에서 천연 및 인공방사성 핵종의 분포 그리고 지역적 백그라운드 준위를 조사하기 위하여 수행하였다. 시료채취 지점은 가로 $1.5 \times 1.5 \text{ km}^2$ 를 1 방안으로 하여 1 방안당 1개의 시료를 채취하였으며, 높이에 따른 분포 조사를 위하여 금정산(해발 801 m)에서 표고 70 m 간격으로 10개 지점을 선정하여 시료를 채취하였다.

45개 지점에 대하여 토양을 채취하여 분석한 결과는 천연방사성 핵종인 ^{226}Ra 이 $14.38 \sim 57.03$ (평균 : 33.95) $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$, ^{228}Ra 은 $22.41 \sim 86.58$ (평균 : 51.08) $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ 그리고 ^{40}K 은 $223.64 \sim 1332.30$ (평균 : 668.61) $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ 의 농도를 가지며, 인공방사성 핵종인 ^{137}Cs 는 $<0.33 \sim 33.37$ (평균 : 13.74) $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ 의 방사능 농도로 조사되었으며, 전세계적인 농도범위 이내의 값이었다. 또한 높이에 따른 방사능 농도를 조사한 결과 표고차에 따른 방사능 변화량에 대한 상관관계는 찾을 수 없었다. 천연방사성 핵종에 대한 방사능 농도비를 조사하였는데, $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ 과 $^{226}\text{Ra}/^{40}\text{K}$ 은 각각 $0.68 \pm 19\%$ 과 $0.06 \pm 34\%$ 였고, 이는 Miller et al.과 UNSCEAR의 중국의 결과와 비슷한 값이다.

감사의 글

이 논문은 부산대학교 학술연구조성비를 지원받아 수행된 연구이며 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. 김창규, 김용재, 김철수, 노병환, 박홍모, 이동명, 윤주용, 생활환경중 라돈조사를 위한 효율적 방법론에 관한 연구, 한국원자력안전기술원, KINS/GR-190 (1999).
2. M.J. Anagnostakis, E.P. Hinis, S.E. Simopoulos and M.G. Angelopoulos, "Natural radioactivity mapping of Greek surface soils", *Environment International*, 22(Suppl. 1), S3-S8 (1996).
3. J. Porstendörfer and A. Reineking, "Indoor behaviour and characteristics of radon progeny", *Radiat. Prot. Dosim.*, 45(1/4), 303-311 (1992).
4. 전재식, 채하석, 이철영, 조혁, 하정우, "실내 ^{222}Rn 과 ^{222}Rn 딸핵종에 의한 피폭선량 해석연구", 방사선방어학회지, 20(1), 16-24 (1995).
5. 문희정, 신현상, 환경화학, pp. 325-333, 한국경제신문사 (1996).
6. W. Jacobi, "Lung cancer risk from environmental exposure to radon daughters. ICRP publication 50", *Radiat. Prot. Dosim.*, 24(1-4), 19-23 (1988).
7. J. Michel, W.S. Moore and P.T. King, " γ -Ray spectrometry for determination of radium-228 and radium-226 in natural waters", *Anal. Chem.*, 53, 1885-1889 (1981).
8. K.M. Kim and W.C. Burnett, " γ -Ray spectrometric determination of uranium-series nuclides in marine phosphorites", *Anal. Chem.*, 55 (11), 1796-1800 (1983).
9. 이길용, 윤윤열, 서범경, "라듐 및 라돈의 감마선 분광분석을 위한 알루미늄 용기의 제작 및 특성 연구", 분석과학, 13(6), 743-750 (2000).
10. A. Baeza, M. del Río, C. Miró and J.M. Paniagua, "Natural radioactivity in soils of the province of Cáceres (Spain)", *Radiat. Prot. Dosim.*, 45(1/4), 261-263 (1992).
11. P.S. Weng, "Distribution of naturally occurring radionuclides in the mountainous areas in Taiwan", *Environmental International*, 22(Suppl. 1), S49-S54 (1996).
12. T.E. Myrick, B.A. Berven and F.F. Haywood, "Determination of concentrations of selected radionuclides in surface soil in the U.S.", *Health Phys.*, 45(3), 631-642 (1983).
13. M.L. Miller, J.J. Fix and P.E. Bramson, "Lognormal analysis of naturally occurring radionuclides in soil and vegetation of the Hanford area", in: *Proc. Natural Radiation Environmental III*, T.F. Gesell, W.M. Lowder, eds., Vol. 1, pp. 826-831, U.S. Department of Energy, Washington, D.C. (1980).
14. UNSCEAR, *Ionizing Radiation : Sources and Biological Effects*, 1993 report, pp. 33-90, United Nations, New York (1993).
15. A.S. Murray, J.M. Olley and P.J. Wallbrink, "Natural radionuclide behaviour in the fluvial environment", *Radiat. Prot. Dosim.*, 45(1/4), 285-288 (1992).
16. K. Megumi, T. Oka, K. Yaskawa and M. Sakanoue, "Contents of natural radioactive nuclides in soil in relation to their surface area", *J. Geophys. Res.*, 87, 10857-10860 (1982).