

극 저준위 액체섬광계수기를 이용한 지하수 중 라돈(²²²Rn) 측정법 연구

김용제 · 조수영 · 윤윤열 · 이길용*
한국지질자원연구원 지하수지열연구부

Optimal Method of Radon Analysis in Groundwater using Ultra Low-Level Liquid Scintillation Counter

Yongje Kim · Soo-Young Cho · Yoon-Yeol Yoon · Kil-Yong Lee*
Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources (KIGAM)

ABSTRACT

Optimal method of radon analysis in groundwater was studied using ultra low-level liquid scintillation counter (ULL-LSC) which is well known as an analytical instrument for analyzing the alpha and beta radionuclides in environmental materials. Optimization of pulse shape analyzer (PSA) in operating the LSC was performed with ²⁴¹Am and ⁹⁰Sr/⁹⁰Y as well as ²²⁶Ra. Also, the chemical quenching of scintillation generation and the color quenching of the generated photon to photomultiplier tubes (PMT) were determined their effects not only to decrease the analytical efficiency but also to change the optimal PSA level and background due to high ion contents of groundwaters. The optimal PSA level was shown in the range of 90 to 110 with less than 5% error. The effects of high ion contents in groundwater for the analytical efficiency show within 10% error from the different ion contents. The chloroform as a quenching agent was used to determine the analytical efficiency with the different amount, showing that the efficiency decreases 20% using the 2% of chloroform.

Key words : Quantulus LSC, Radon, Groundwater, PSA, Quenching

요 약 문

환경물질에 함유된 극 저준위 알파, 베타핵종의 측정에 효과적인 것으로 알려진 극 저준위 액체섬광계수기(ultra low-level liquid scintillation counter, ULL-LSC)를 이용하여 지하수 중 라돈(²²²Rn)의 최적 측정방법에 대한 연구를 수행하였다. 액체섬광계수기의 장점임과 동시에 중요한 실험조건인 파형분석(pulse shape analysis, PSA) 준위의 최적화를 위하여 ²⁴¹Am과 ⁹⁰Sr/⁹⁰Y의 두 표준선원을 이용하는 방법과 ²²⁶Ra 하나의 표준선원과 측정효율 및 백그라운드를 이용하는 방법을 비교 검토하였다. 또한, 섬광 생성을 방해(chemical quenching)하거나 생성된 광자의 광전증배관(photo multiplier tubes, PMT) 도달을 방해(color quenching)하여 결과적으로 측정효율을 저하시키고 최적 PSA 준위와 백그라운드를 변화시킬 수 있는 지하수 중 불순물의 영향을 조사하였다. 두 종류 혹은 한 종류의 표준방사선 선원을 사용하여 PSA 준위를 조사한 결과 90에서 110이 최적 이었으며 이 범위에서의 측정효율 차이는 5% 미만이었다. 측정효율에 대한 일반 불순물의 영향은 불순물의 농도차이에 따라서 약 10% 정도의 차이가 발생하였다. 소광시약(quenching agent)으로 클로로포름(chloroform)의 양을 변화시키면서 조사한 결과 측정효율에 대한 영향이 매우 컸으며 클로로포름의 농도가 2% 일 때 측정효율은 약 20%가 낮아졌다.

주제어 : 액체섬광계수기, 라돈, 지하수, 파형분석, 소광효과

*Corresponding author : kylee@kigam.re.kr

원고접수일 : 2006. 9. 8 게재승인일 : 2006. 9. 27

질의 및 토의 : 2006. 12. 31 까지

1. 서 론

자연계에서 연속적인 붕괴계열로 인해 생성되는 천연방사성핵종은 우라늄계열(^{238}U series) 19종, 토륨계열(^{232}Th series) 12종, 악티늄계열(^{235}U series) 17종으로 총 48종이 존재한다. 천연방사성핵종 중 유일한 기체인 라돈은 불활성(inert)이기 때문에 화학반응을 일으키지 않고 대수층 균열이나 공극을 통하여 쉽게 이동할 수 있으며, 붕괴소멸되기 전까지 지하수에 용해되거나 지표면으로 방출된다. 자연붕괴계열에서 생성되는 라돈은 우라늄계열의 ^{222}Rn (반감기: 3.82일), 토륨계열의 ^{220}Rn (반감기: 55.6초), 그리고 악티늄계열의 ^{219}Rn (반감기: 3.96초)의 세 가지 핵종이 있다. 라돈은 토양, 암석, 침전물 속에 널리 분포되어 있는 ^{226}Ra (반감기: 1,600년)의 자연적 방사붕괴로부터 생성되며 지하수나 지표수중에 용존 기체로서 존재한다. 라돈은 독특한 물리화학적 특성(불활성기체)과 모핵종 및 딸핵종의 핵적성질(nuclear properties) 때문에 지구과학분야와 환경분야에서 많은 주목을 받아왔다(Igarashi and Wakita, 1990; Khan, 1993; Low, 1996; Burnett et al., 2003; Zmazeka et al., 2005; Kuo et al., 2006; Mulligan and Charette, 2006; Yasuoka et al., 2006). 특히, 라돈은 음용 및 호흡 시 폐암이나 신장독성, 당뇨 등의 인체 위해성이 있는 물질로 널리 알려져 있으며 지하수의 음용 혹은 실내공기로의 방출과 관련하여 미국환경청(Environmental Protection Agency, EPA), 세계보건기구(World Health Organization, WHO) 및 유럽연합(European union, EU)을 중심으로 라돈에 대한 실태조사와 권고 값이 지속적으로 연구 발표되고 있다. USEPA는 일반 음용수에 대한 환경방사성 동위원소에 대한 최대오염준위(Maximum Contamination Level, MCL)를 음용수규정(National Interim Primary Drinking Water Regulation, NIPDWR)으로 정한 바 있다(USEPA, 1992, 2000). WHO에서는 음용수를 일반인들에게 공급하기 전에 반드시 라돈의 농도를 조사하고, 만일 라돈농도가 100 Bq/L를 넘을 경우 이를 저감할 수 있는 처리를 해야 한다고 규정하고 있다.

우리나라의 경우 대부분 지표수를 상수원으로 이용하고 있으며 지리적 여건과 경제적 이유로 상수도가 급수되지 않는 농어촌지역에서는 지하수를 생활용수나 음용수로 이용하고 있다. 그러나 최근 지표수원의 수질 오염과 수돗물에 대한 불신으로 먹는샘물 산업이 급성장 추세에 있으며 지하수의 음용률은 계속 증가하고 있다. 이러한 이유로 지하수의 수질 및 안정성에 대한 국민들의 관심이 증가하고 있으며 최근 일부 지역에서는 지하수 중 고농도의 라돈과

우라늄이 검출되어 사회적 문제로 대두되고 있다.

이 연구는 지하수 중에 함유되어 있는 방사성 핵종인 라돈의 함량을 정확히 측정하기 위하여 극 저준위 액체섬광계수기(wallac 1220 Quantulus™)를 활용하기 위한 최적 실험조건의 도출을 목적으로 수행되었으며, 주요 측정 조건인 PSA 준위 설정과 지하수에 함유되어 있는 불순물이 측정결과에 미치는 영향에 대해 조사하였다.

2. 분석 장치 및 시료

액체 시료내의 베타선과 섬광체간의 상호작용으로 발생한 섬광을 측정하여 시료중의 방사능 농도를 구하는 방법을 액체섬광계수법(Liquid Scintillation Counting Method, LSC)이라 한다. LSC는 일반적인 측정장비인 기체비례계수기(gas proportional counter)나 알파분광기(α -spectrometry)에 비하여 시료의 전처리가 간단하여 처리과정에서의 측정불확도를 낮출 수 있는 장점이 있는 반면에 시료와 섬광액 간의 화학반응 등의 영향으로 백그라운드가 다소 높은 단점이 있다. 이 실험에서 이용한 wallac 1220 Quantulus™(Perkin Elmer Co.)는 일반적인 LSC의 단점을 보완하여, 매우 낮고 안정한 백그라운드와 알파, 베타 핵종을 동시에 측정할 수 있는 PSA기능을 가지고 있다. 또한 PSA기능으로 알파선과 베타선에 의해 생성된 펄스의 형태 차이를 이용하여 이들을 분리할 수 있으므로 한번 측정을 통하여 지하수중의 알파방사능과 베타방사능을 동시에 측정할 수 있다.

실험분석에 사용한 시료용기는 22 mL 용량의 폴리에틸렌 병으로 내부는 테플론으로, 뚜껑은 알루미늄으로 코팅되어 있어서 라돈의 손실을 억제하고 잡음신호를 낮출 수 있다. 섬광용액은 지하수 라돈측정용으로 Optiphase HiSafe3을 사용하였다. PSA 준위 설정은 ^{241}Am , ^{90}Sr 과 ^{90}Y 이 방사화학적으로 평형에 도달해 있는 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 표준선원(Amersham Co.)의 두 종류를 이용하는 방법과 ^{226}Ra 표준선원(NIST 4967) 한 종류만을 이용한 방법을 비교하였다. ^{222}Rn 에 대한 계측효율 측정은 PSA 설정에 사용한 ^{226}Ra 표준선원을 사용하였다. 지하수에 함유된 불순물의 영향을 조사하기 위하여 2차 증류수와 불순물의 농도가 다른 지하수를 채취하여 이용하였다.

3. PSA 준위 설정

3.1. ^{241}Am 과 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 이용법

^{241}Am 과 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 표준선원용액을 2차 증류수에 희석시

킨 후, 12 mL의 Optiphase HiSafe3 섬광액이 들어있는 측정병에 각각 8 mL씩 혼합하여 측정하였다. PSA 준위는 40에서 140까지 변화 시키면서 알파영역에서 ²⁴¹Am의 계수율이 최대가 되고 베타영역에서 ⁹⁰Sr/⁹⁰Y에 대한 계수율이 최대가 되는 동시에 과형겹침(spillover) 현상이 최소가 되는 조건을 최적 PSA 준위로 설정하였다.

3.2. ²²⁶Ra 표준선원 이용법

이 방법은 표준선원을 이용한 측정효율과, 백그라운드를 측정하여 figure of merit(FOM)을 계산하고 이 FOM 값이 최대가 되는 점 즉, 백그라운드 영향은 가장 낮고 측정효율은 가장 높은 PSA 준위를 최적조건으로 결정하는 방법이다. 증류수 및 지하수는 사용 전에 알콘가스를 흘려주어 용해되어 있는 라돈을 제거시킨 후 사용하였다. 12 mL의 섬광액이 들어 있는 측정용 폴리에틸렌 병에 라돈을 제거한 시료를 8 mL씩 넣고 ²²⁶Ra 표준선원용액을 희석시켜 보관중인 2차 표준용액(11.252 Bq/mL) 0.5 mL를 넣었다. 표준선원 용액을 넣기 전과 후의 무게를 소수점 5자리까지 정확히 칭량하여 피펫으로 취한 표준용액의 양을 정확히 기록하였다. 섬광액, 측정시료, 표준선원이 들어있는 폴리에틸렌 측정 병은 밀봉한 후 약 30일간 방치하여 ²²⁶Ra과 ²²²Rn 및 딸핵종들이 방사화학적 으로 영속평형에 도달하도록 한 후, 앞의 두 표준선원에서와 같은 PSA 준위를 변화시키면서 라돈의 방사능을 측정하였다.

4. 백그라운드 및 계측효율 측정

4.1. 백그라운드 측정

LSC의 백그라운드는 PSA 준위에 따라서 변할 수 있기 때문에 앞의 PSA 설정 실험에서와 같이 PSA 준위를 변화시키면서, 증류수와 불순물 농도가 서로 다른 지하수를 대상으로 조사하였다. 백그라운드 측정에 사용한 수질시료는 충분히 끓여주고, 섬광액은 알콘가스를 흘려주어 용해되어 있는 라돈을 가능한 한 모두 제거 시킨 후 측정하였다.

4.2. 계측효율 측정

계측효율은 PSA 준위와 소광물질에 따라서 매우 크게 변할 수 있으며, 측정결과에 심각한 영향을 준다. 증류수와 지하수를 대상으로 PSA 준위를 변화시키면서 측정하였다. 표준선원은 ²²⁶Ra을 이용하였으며 앞의 PSA 준위 설정에서와 동일한 실험조건으로 수행하였다.

5. 결과 및 토의

5.1. ²⁴¹Am과 ⁹⁰Sr/⁹⁰Y을 이용한 PSA 준위 설정

지하수내 라돈함량 측정을 위해 LSC 사용에서 PSA는 매우 중요한 인자이다. PSA의 설정방법에는 알파핵종과 베타핵종의 두 핵종을 사용하는 방법과, 한 가지 핵종을 이용한 계측효율과 백그라운드의 비를 이용하여 산출하는 두 방법이 있다. 먼저, ²⁴¹Am과 ⁹⁰Sr/⁹⁰Y를 이용하여 최적의 PSA 준위를 설정하는 방법에서는 과형겹침(spillover) 인자 τ 를 이용하며 과형겹침 인자가 최소가 되는 PSA 준위를 최적의 조건으로 결정하였다. 이를 수식으로 표기하면 아래의 식 (1)-(3)과 같다(Rusconi et al., 2006).

$$\tau_{\alpha} = \frac{C_{\beta}}{C_T} \tag{1}$$

$$\tau_{\beta} = \frac{C_{\alpha}}{C_T} \tag{2}$$

여기에서, C_{β} , C_{α} 및 C_T 는 각각 알파핵종의 베타영역에서의 계수율, 베타핵종의 알파영역에서의 계수율 그리고 알파와 베타영역의 총 계수율이다. τ_{α} 는 순수한 알파핵종을 측정할 때 베타영역에서 나타나는 펄스의 기여분이며, τ_{β} 는 순수한 베타핵종의 알파영역에서의 기여분이다. 이들 두 인자의 합인 총 과형 겹침인자(τ)가 최소가 되는 PSA 준위가 바로 최적 실험조건이다.

$$\tau = \tau_{\alpha} + \tau_{\beta} \tag{3}$$

PSA 준위 변화에 따른 과형겹침인자의 관계는 Fig. 1에 나타나 있으며, PSA 준위가 높아질수록 알파영역의 계수율은 감소하며 베타영역의 계수율이 높아짐을 알 수 있다. 총 과형겹침 인자가 최소가 되는 PSA 준위는 90-100임을 알 수 있다. Rusconi et al. (2006)은 알파핵종으로는 천연 우라늄을 그리고 베타핵종으로는 ⁴⁰K를 사용하였으며 핵종의 종류 즉, 방출하는 방사선의 에너지에 따라서 최적 PSA 준위가 변화하는 것을 알 수 있다. 또한, ²⁴¹Am과 ⁹⁰Sr/⁹⁰Y의 실험결과에서도 이 연구에서 얻은 결과와는 달리 최적 PSA준위가 약 120정도를 보여주는데, 이와 같이 최적의 PSA 준위는 장비특성과 핵종특성에 따라서 변화한다.

5.2. 백그라운드 측정

지하수 중 라돈 측정을 위해 LSC를 사용할 경우 포함되는 백그라운드는 우주선에 의한 외부백그라운드, 장비구성물질에 함유된 극미량방사성핵종에 의한 장비백그라

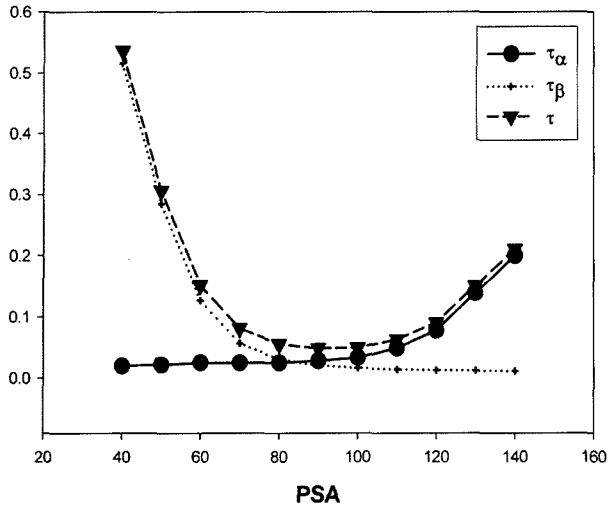


Fig. 1. Alpha and beta spillover vs. PSA (alpha: ²⁴¹Am, beta: ⁹⁰Sr/⁹⁰Y, Cocktail solution : Optiphase HiSafe3).

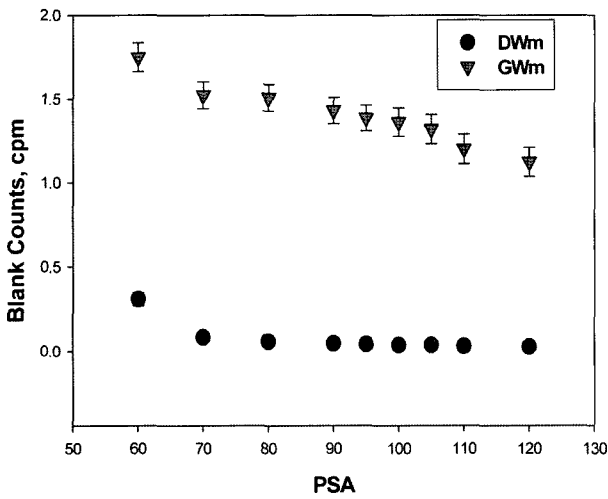


Fig. 2. Blank counts of mean distilled water and groundwater vs. PSA level.

운드, 그리고 측정용기나 섬광액에 의한 내부백그라운드로 구별 될 수 있다. 이 연구에서 측정된 백그라운드는 이들 세 종류의 백그라운드 이외에 지하수중의 백그라운드 즉, 용해되어 있는 라돈이외의 방사성핵종과 제거되지 않은 라돈에 의한 백그라운드를 포함한다.

Fig. 2는 PSA 준위에 따른 증류수와 지하수의 백그라운드 계수율을 도시화 한 것으로 증류수와 지하수의 평균 계수율을 이용하였다. 지하수의 백그라운드가 PSA준위에 따라서 증류수 보다 크게는 10배 정도 높으며, PSA 100 부근에서는 약 5배가 높게 나타났다. 이것은 측정 전에 라돈을 제거시켜주어도 미량의 라돈이나 혹은 라듐, 우라늄과 같은 알파방출 핵종이 남아 있기 때문일 것으로 추측된다. PSA가 증가함에 따라서 계수율이 낮아지는 현상

은 전형적인 알파핵종(Fig. 1)의 측정효율 특성과 동일한 것을 볼 때 지하수에서의 백그라운드는 미량의 알파방출 불순물의 영향임을 알 수 있다.

5.3. 계측효율 측정

지하수내 방사능 측정의 정확도에 가장 큰 영향을 줄 수 있는 요인은 백그라운드와 측정효율이다. 측정효율을 구하기 위해서는 방사능을 정확히 아는 표준선원(standard source)을 이용하며, 측정하고자하는 해당 핵종을 사용해야 한다. 라돈(²²²Rn)의 경우, 반감기가 3.82일로 짧기 때문에 표준선원으로 사용하는 것이 불가능하다. 따라서, 반감기가 1,600년인 라듐(²²⁶Ra) 용액을 라돈의 표준선원으로 사용한다. ²²⁶Ra 표준선원 용액을 섬광액이 들어있는 측정병에 넣고 완전 밀봉하여 약 30일 간 방치하면 라듐과 라돈이 방사화학적으로 평형에 도달한다. 방사화학적 평형에 대하여 간단히 수식으로 설명하면 아래의 식 (5a)-(6b)와 같다.

식 (4)와 같이 연속적인 붕괴를 일으킬 때, 임의의 시간 t에서 이들 붕괴계열(decay series)에 속한 핵종들의 수는 N₁, N₂ 및 N₃이고, 붕괴상수(decay constant: ln2/T_{1/2})가 λ₁, λ₂ 그리고 λ₃면, 다음의 식(5a-6b)이 성립한다 (Choppin and Rydberg, 1980).

$$X_1 \xrightarrow{\lambda_1} X_2 \xrightarrow{\lambda_2} X_3 \xrightarrow{\lambda_3} X_4 \dots X_n \tag{4}$$

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \tag{5a}$$

$$\frac{dN_2}{dt} = -\lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \tag{5b}$$

$$\frac{dN_3}{dt} = -\lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3 \tag{5c}$$

이들 식을 정리하면 다음과 같은 해를 얻을 수 있다.

$$N_1(t) = N_1^0 e^{-\lambda_1 t} \tag{6a}$$

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_2^0 e^{-\lambda_2 t} \tag{6b}$$

²²⁶Ra(X₁)과 ²²²Rn(X₂)에서와 같이 모핵종의 반감기가 딸핵종에 비해 매우 길고(λ₁ << λ₂), 초기(t=0)에 라돈을 완전히 제거해주었기 때문에 식 (6b)는 다음의 식 (7)로 단순화 시킬 수 있다.

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} N_1^0 (1 - e^{-\lambda_2 t}) \tag{7}$$

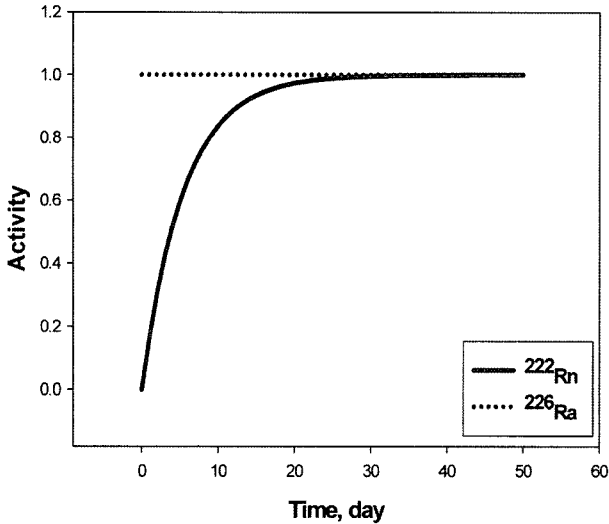


Fig. 3. ²²²Rn growth and ²²⁶Ra decay curves as function of equilibrium time.

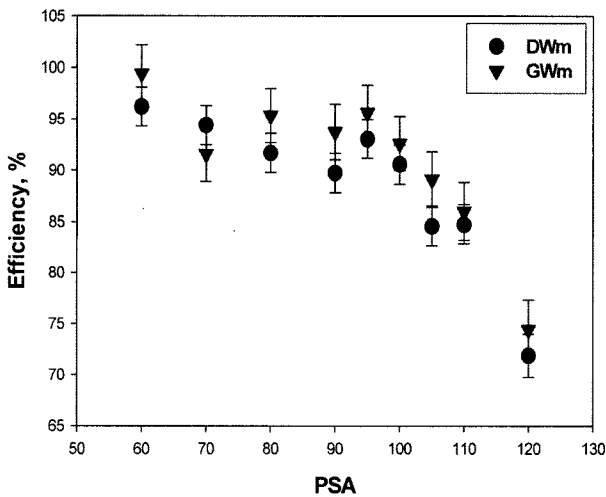


Fig. 4. Efficiency curves of ²²²Rn in distilled water and groundwater at various PSA levels.

모핵종의 반감기가 딸핵종의 반감기보다 매우 긴 경우 ($\lambda_1 \ll \lambda_2, \lambda_3$), 일정한 시간이 흐른 뒤 다음의 조건을 만족한다.

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = \dots = \lambda_n N_n$$

즉, 계열 내의 모든 핵종의 방사능은 같아지는데, 이를 방사평형 중 영속평형(secular equilibrium)이라 한다. 식 (7)을 이용하여 라듐으로부터 라돈의 생성율은 4일후에 약 52%, 13일 후에 약 91%, 그리고 30일 후에 99.7%에 도달했다. 측정효율 산출을 위한 실험에서는 30일의 평형 도달기간을 주었는데 이 경우, 실제보다 약 0.3% 낮은 측정효율을 얻었다. 만일 0.1% 정도의 정확한 측정효율을

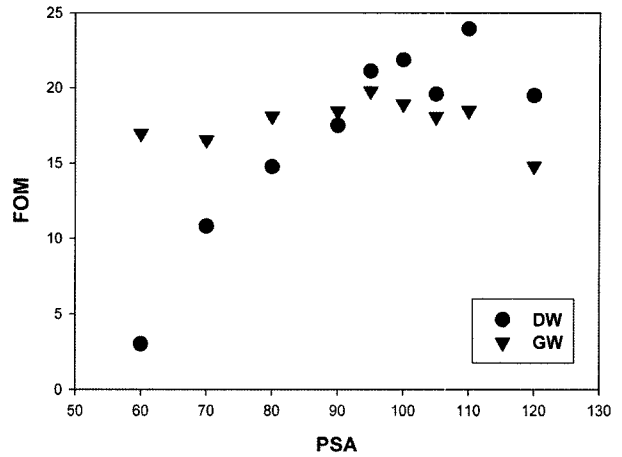


Fig. 5. FOM (figure of merit) calculated by background counts and count efficiency vs. PSA level.

얻기 위해서는 약 36일간의 평형도달시간이 필요하다. Fig. 3은 ²²⁶Ra이 붕괴 되면서 ²²²Rn이 생성되어 이들 두 핵종이 평형에 도달하는 평형곡선을 나타낸다.

Fig. 4는 증류수와 지하수에 ²²⁶Ra 표준선원 용액을 넣은 후 30일간 방치하여 ²²²Rn과 방사화학적으로 평형에 이르게 한 후 PSA 준위에 따라서 측정하여 산출한 측정 효율곡선이다. 오염이 심각하지 않은 지하수에서 라돈의 측정효율은 증류수에서와 큰 차이가 없음을 알 수 있다.

5.4. ²²⁶Ra을 이용한 PSA 준위 설정

앞에서 설명한 것과 같이, 핵종의 종류와 장비의 특성에 따라서 최적의 PSA 준위가 영향을 받는다. 따라서 최선의 PSA 준위 설정을 위해서는 동일한 장비를 이용하고, 측정하려는 시료와 물리화학적 특성(함유하는 방사성불순물의 양까지도)이 가능한 유사한 물질을 이용하여 실험해야 한다. 따라서 증류수와 오염이 비교적 적은 청정 지하수를 실험에 이용하였다. 한 종류의 핵종을 이용하여 최적의 PSA 준위를 설정하기 위해서는 백그라운드와 측정효율을 알아야 하며, 아래의 식을 이용하여 figure of merit(FOM) 이 최대가 되는 PSA 준위를 최적의 조건으로 설정하였다.

$$FOM = \varepsilon^2/B$$

여기에서, ε 는 측정효율, B는 백그라운드 계수율이다. 앞에서 측정하여 얻은 백그라운드 계수율과 측정효율을 이용하여 PSA 준위에 따른 FOM을 Fig. 5에 나타내었다. PSA 준위에 따른 FOM값의 변화형태는 지하수와 증류수에서 매우 다르게 나타났으나, 최대의 FOM값을 얻는 PSA 준위는 90에서 100범위로 크게 차이를 보이지 않는다.

Table 1. Chemical analyses of groundwater samples (mg/L)

Element \ Sample	L	M	H
K	0.43	12.8	17.2
Na	53.3	1,470	2,440
Ca	12.3	101.0	3,430
Mg	0.01	13.3	171
SiO ₂	19.0	11.4	12.2
Cl	33.9	1,880	9,340
SO ₄	51.9	878	915
F	5.76	1.67	< 0.5
Li	0.08	2.07	4.2
Sr	0.18	3.62	56.3
Fe	0.07	0.11	0.49
Mn	< 0.01	0.09	2.43
Cu	< 0.02	< 0.02	0.08
Pb	< 0.03	0.05	0.74
Zn	0.47	0.02	1.35
TDS	210	4,570	20,300

Table 2. Variation of efficiency with impurities and PSA level

Experimental Condition	Variables	ϵ
GW		
PSA 100 GW L, M, H	L	0.962
	M	0.959
	H	0.882
CHCl₃		
PSA 100, CHCl ₃ , μ L	0	0.961
	10	0.9
	50	0.879
	100	0.786
PSA		
5 PSA level GW L and H	L	0.943
	H	0.918
	100	0.882
	105	0.841
	110	0.793

5.5. 지하수 불순물의 영향

지하수에 존재하는 다양한 불순물들은 섬광의 생성을 방해하거나 생성된 섬광의 PMT 도달을 방해하여 결과적으로는 측정효율을 떨어뜨릴 수 있다. 또한 알파스펙트럼의 분해능을 저하시키게 되어 측정의 정확도를 떨어뜨린다. 실험에 사용한 세 종류의 지하수는 화학분석결과 불순물의 농도가 매우 다르며, 이들의 화학분석결과는 Table

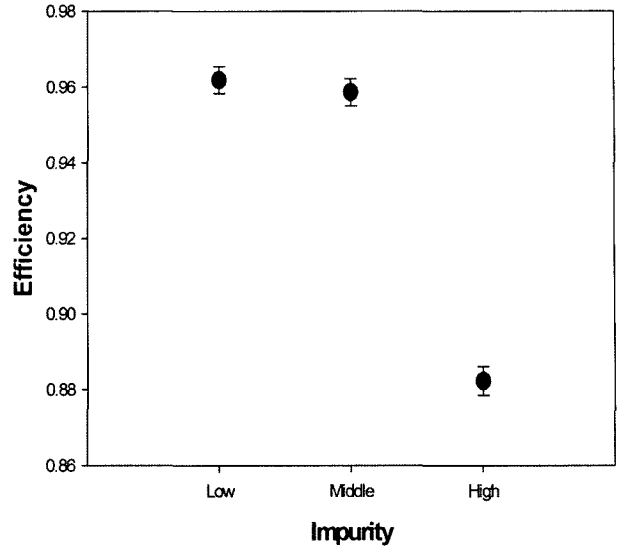


Fig. 6. Change of the efficiency with the chemical impurity of groundwater.

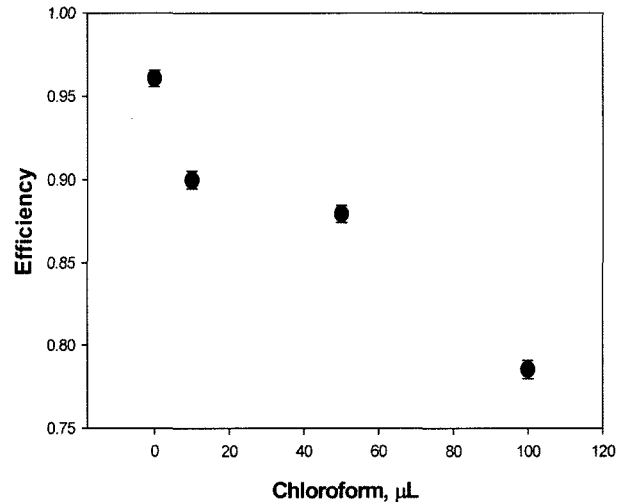


Fig. 7. Effect of chloroform for LSC efficiency.

1과 같다. SiO₂, F, Zn을 제외하고 모든 불순물들의 농도가 L, M, H 순으로 높다. 앞에서와 같은 방법으로 세 종류의 지하수에 용해되어 있는 라돈을 제거하고, 12 mL의 섬광용액이 들어 있는 세 개의 다른 측정병에 8 mL를 넣고 ²²⁶Ra 표준용액 0.5 mL를 각각 넣은 후, 30일간 방치한 다음 측정하였다. Table 2는 세 종류의 지하수에서 라돈의 측정효율을 나타낸 결과이다.

Fig. 6은 세 종류 지하수(L, M, H)에서 라돈의 측정효율을 나타낸 것으로, 이때의 PSA 준위는 100으로 설정하고 측정한 것으로서 불순물이 높은 지하수 H에서 측정효율은 약 10% 낮아지는 것을 볼 수 있다. Fig. 7은 지하수(L)에 클로로포름의 첨가 양을 10 μ L부터 100 μ L까지

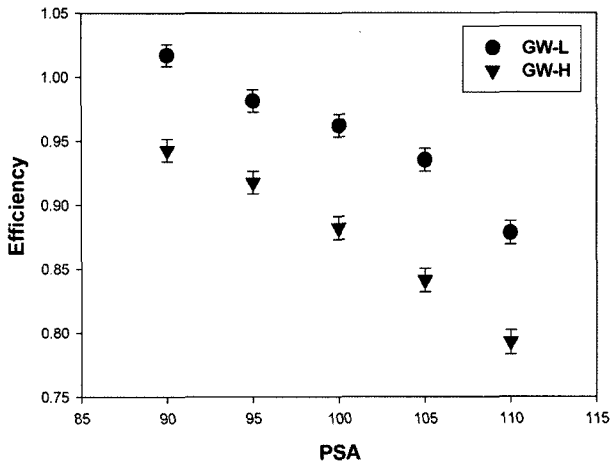


Fig. 8. Efficiency with PSA level and groundwater properties.

변화시키면서 측정하여 산출한 효율곡선이다. 클로로포름의 양에 따라서 측정효율이 거의 직선으로 낮아지는 것을 볼 수 있다. 100 μL의 클로로포름을 넣을 경우 클로로포름을 넣지 않은 경우 보다 측정효율이 약 20% 낮아졌다. Fig. 8은 두 종류의 지하수(L, H)를 PSA 준위를 변화시키면서 측정한 측정효율 결과이다. PSA 준위에 따른 측정효율변화율이 앞에서 증류수를 가지고 실험한 결과와 같은 경향을 보이는 것을 볼 때, 지하수 불순물이 PSA 준위에 주는 영향은 그리 크지 않음을 알 수 있다. 결국 지하수의 불순물 농도가 증가할수록 라돈의 측정효율을 낮추는 영향은 있으나 PSA 준위 설정에는 영향을 미치지 않는 것을 알 수 있다. 특히, 클로로포름의 단계적 첨가실험에서는 클로로포름과 측정효율사이에 역의 관계가 성립하였다.

6. 결론 및 제언

6.1. PSA 준위

LSC(wallac 1220 Quantulus™, Perkin Elmer Co.)를 이용하여 지하수중 라돈(²²²Rn)을 측정하기 위하여 측정의 주요 조건인 최적 PSA 준위를 조사한 결과 지하수중 라돈의 측정에는 PSA 100이 최적조건으로 나타났다. 두 가지 핵종(²⁴¹Am, ⁹⁰Sr/⁹⁰Y)을 이용하는 방법과 한 가지 핵종(²²⁶Ra)만을 이용하는 PSA 준위 설정 방법을 비교하고, 불순물의 농도가 다른 지하수질에 따라서 조사해 본 결과 증류수와 지하수에서 약간의 차이를 보였으나 측정 오차 범위 내에서 큰 차이는 나타나지 않았다. 또한, 지하수의 라돈분석에 동일한 장비를 사용하는 국내의 다른 기관들이 90에서 110으로 다소 차이는 있으나 역시 이 범위 내에서 PSA준위를 설정하는데 문제가 없는 것으로 확인되었다.

6.2. 불순물 영향

불순물의 농도가 다른 지하수와 증류수의 실험결과, 두 가지 측면에서 영향을 준다. 첫째는 백그라운드의 상승효과이고 둘째는 측정효율의 저하이다. 두 종류 지하수의 백그라운드 측정값이 PSA 100에서 1.1-1.6 cpm인데, 이 정도의 계수율은 환경학적 측면에서 보면 일반적인 지하수의 라돈농도(10 cpm)에 비하여 낮은 수준이지만 지하수 혹은 수리지구화학적 측면에서 미세한 라돈농도의 변화를 관찰할 경우와 같이 조정밀 측정이 필요한 경우에는 결코 무시할 수 없는 값이 될 수 있다. 잔류라돈인 경우 일정기간동안 주기적으로 측정하여 붕괴곡선을 그려보면 바로 알 수 있고, 만일 라듐(²²⁶Ra)이 존재한다면 백그라운드 측정 후 약 30일 후에 2차 측정하여 라듐 혹은 라돈에 의한 영향을 보정해 주어야 한다. 측정효율은 지하수의 일반 화학성분의 농도에 따라서 약 10% 정도 차이가 있고, 특히 인위적으로 클로로포름을 첨가하여 약 2% 정도 농도가 되었을 때 측정효율이 20% 정도 낮아짐을 확인하였다.

6.3. 제언

지하수에 함유되어 있는 라돈측정을 위해서는 측정할 시료의 전처리가 불가능하므로 불순물이 함유된 상태로 라돈방사능을 측정하게 된다. 먼저, 불순물의 함량정도는 화학성분 분석결과를 보는 것이 제일 정확하지만 간접적으로 채취 시 현장에서 측정하는 수질특성(EC)을 검토하거나, 알파스펙트럼의 형태(불순물 함량이 높을 경우 최고점의 폭이 넓어지거나, 저 에너지 영역으로 최고점의 이동이 발생)를 보고 판단 할 수 있다. 또한, 지하수내 불순물의 함량이 높다고 판단되는 시료는 라돈만을 유기용매로 추출하여 재 실험하거나, 만일 라듐의 방해가 의심되면 측정 후 보관중인 시료를 약 1개월 후에 다시 측정하고 식 (7)이나 Fig. 4의 라돈 생성곡선을 이용하여 용해되어 있는 라듐의 영향을 보정해 주면 지하수중 라돈의 측정실험에서 불순물의 영향을 피할 수 있다.

사 사

이 연구는 한국지질자원연구원 기본연구사업인 ‘지하수 시스템 통합 해석 기술 개발(I)’ 연구(OAA204016-2006(3))의 일환으로 수행되었습니다.

참 고 문 헌

Burnett, W.C., Bokuniewicz, H., Huettel, M., Moore, W.S., and

- Taniguchi, M., 2003, Groundwater and pore water inputs to the coastal zone, *Biogeochem.*, **66**, 3-33.
- Choppin, G.R. and Rydberg, J., 1980, Nuclear Chemistry; Theory and Applications, 1st ed., Pergamon press, New York, 70-71.
- Igarashi, G. and Wakita, H., 1990, Groundwater radon anomalies associated with earthquakes, *Tectonophysics*, **180**, 237-254.
- Khan, H.A., 1993, Usefulness of radon measurements in earth sciences, *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, **22**, 355-364.
- Kuo, T., Fana, K., Kuo, H., Hana, Y., Chuc, H., and Leed, Y., 2006, Anomalous decrease in groundwater radon before the Taiwan M6.8 Chengkung earthquake, *Journal of Environmental Radioactivity*, **88**(1), 101-106.
- Low, R., 1996, The Natural Radiation Environment VI; Radon as a natural groundwater tracer in the chalk aquifer, UK, *Environment International*, **22**(1), 333-338.
- Mulligan, A.E. and Charette, M.A., 2006, Intercomparison of submarine groundwater discharge estimates from a sandy unconfined aquifer, *J. Hydrol.*, **327**, 411-425.
- Rusconi, R., Forte, M., Caresana, M., Bellizzone, S., Casaniga, M.T., and Sgorbati, G., 2006, The evaluation of uncertainty in low-level LSC measurements of water samples, *Applied Radiation and Isotopes*, in press.
- USEPA, 1992, National Primary Drinking Water Regulations, EPA-5709-91-700.
- USEPA, 2000, National Primary Drinking Water Regulations, Radionuclides(Final Rule), 40 CFR Parts 9(141), EPA.
- Yasuoka, A., Igarashi, G., Ishikawa, T., Tokonami, S., and Shinogai, M., 2006, Evidence of precursor phenomena in the Kobe earthquake obtained from atmospheric radon concentration, *Appl. Geochem.*, **21**(6), 1064-1072.
- Zmazeka, B., Todorovska, L., Džeroski, S., Vaupotič, L., and Kobala, I., 2005, Radon in soil gas: How to identify anomalies caused by earthquakes, *Appl. Geochem.*, **20**(6), 1106-1119.