

Analysis of Minimum Detectable Activity Concentration of Water Samples and Evaluation of Effective Dose

Eun-sung Jang,¹ Yang-su Kim,² Sun-young Lee,² Jung-Soo Kim^{2,*}

¹Department of Radiation Oncology, Kosin University gospel Hospital

²Department of Radiation Oncology, Chonbuk National University Hospital

Received: December 02, 2020. Revised: December 30, 2020. Accepted: December 31, 2020.

ABSTRACT

In March 2011, a tsunami off Japan caused radioactive material that had seeped into the sea from the Fukushima nuclear accident to flow to the Pacific Ocean, causing pollution to sea life. For a comparative evaluation with the area surrounding the site of a nuclear power plant by the release of radioactive materials, an area 20 to 30 km away from the emergency protection plan area was selected as a comparative point considering weather conditions, population distribution, etc. In addition, the government intends to analyze the minimum detection radiation received by residents around the nuclear power plant and evaluate the effective dose. Analysis of tritium radiation from water samples showed that most of the samples were not detected and that 0.0014 % to 0.777 % of the annual legal standard of 1 mSv for the general public had little effect on the human body. Therefore, the measurement and analysis of water samples around the nuclear power plant site is expected to help relieve anxiety, such as exposure to the general public and neighboring residents due to radiation release.

Keywords: Water samples, Minimum Detectable Activity :MDA, Effective Dose, Radioactive nuclides

I. INTRODUCTION

2011년 3월 일본 앞바다의 쓰나미 피해로 인하여 후쿠시마 원전 사고로 바다에 스며든 방사능 물질은 태평양까지 흘러 바다 생물에 오염을 일으켰다^[1,3]. 후쿠시마 원전의 사고로 방사능이 유출되어 오염된 실태 규모는 체르노빌 원전사고보다 11배 이상 더 큰 방사능 누출사고이다^[1,2].

방사능 누출 오염으로 인해 육상과 토양 및 대기와 해양생태계까지 미치는 영향은 매우 크고 오래 지속된다. 태평양이란 거대한 바다로 번지고 있는데 심각성이 있다^[3]. 또한, 태평양에 끼치는 해양생태오염은 매우 심각한데 향후 2023년 까지 태평양에 방사능 오염이 확대되는 것을 분석한 자료를 발표하였다^[3,4].

후쿠시마 사고로 발생한 냉각수는 핵연료와 직접 접촉해 물속에 포함된 방사성 원소의 종류와 양이 훨씬 다양하고 많은 상태라고 보고서를 발표하였다^[5]. 삼중수소는 자연 상태에서도 발생하는 방사성원소이다. 삼중수소는 인체 조직을 투과하는 능력이 약해 외부 피폭 우려는 적지만 호흡, 섭취 등을 통해 신체에 유입됐을 때 유기결합삼중수소라는 물질로 전환 하여 내부 피폭을 일으킬 가능성이 있다^[6]. 이외에도 지표수의 경우, 암석과의 반응으로 지하수의 유입, 대기 낙진 등으로 방사성 물질이 분포할 수 있으나, 평상시에는 방사성 핵종이 유입되지 않는 한 방사성 농도는 아주 미약한 편이다. 하지만 체르노빌과 일본 후쿠시마의 원전 사고나 자연재해 사례로 볼 때 비상시 방사성 물질에 의해 지표수가 오염될 가능성이 전혀 없다고 단언하기 어렵다^[7].

* Corresponding Author: Jung-Soo Kim

E-mail: jskim@jbnuc.ac.kr

Tel: +82-10-8646-119

따라서 우리나라에서도 오래전부터 기존 원전부지 주변 환경방사능 조사와 함께 후쿠시마 원전사고로 인한 방사능 검출에 대해서도 지속적으로 조사하고 있다^[8].

환경방사능 시료중 물 시료 (식수, 지하수, 지표수, 빗물)를 채취하여, 방사성 물질의 방출에 의한 원전부지 주변 지역과의 비교평가를 위해 긴급보호 조치계획구역(20 ~ 30 km) 떨어진 지역으로 기상상태, 인구분포 등을 고려하여 비교지점으로 선정하였다. 또한 원전주변 주민들이 받게 되는 최소검출 방사능을 분석하고 유효선량을 평가하고자 한다.

II. MEASUREMENT METHODS

1. 시료채취지점 및 조사방법

조사지역은 부산 인근 원전 주변 지역 중에서 식수는 부지 주변 3개소 (North East: NE 4.2, North West: NW 0.9, North: N 24.0), 지하수(NW 1.3), 지표수는 부지 주변 2개소(N 2.5, NW 2.4), 빗물(NSW 22)에서 채취를 하였다. 감시핵종(³H, ¹³¹I), 참고핵종(¹³⁷Cs, ⁶⁰Co)으로 나뉘었다. 빗물 2개소(NNE 0.7, NNW 2.5)에서 전량 채집하여 분석하였다. 감시핵종으로 선정된 핵종이외에 환경방사능감시에 비교적 중요한 몇 가지 핵종은 참고 핵종으로 분류하여 Table 1과 같이 나타내었다.

Table 1. Environment radioactivity analysis nuclides

Division	Items	Analysis nuclide	Purpose
Land Sample	Drinking water	³ H, ¹³¹ I, ¹³⁷ Cs, ⁶⁰ Co,	섭취에 의한 내부피폭 평가
	Underground water		
Land Sample	Surface water	¹³⁷ Cs, ⁶⁰ Co, ³ H, ¹³¹ I	방사능 수준 파악
	Rainwater	³ H, ¹³¹ I, 전 β, ¹³⁷ Cs, ⁶⁰ Co	

2. 시료 전처리

2.1 감마선 동위원소 전처리

(식수, 지하수, 지표수 및 빗물)

전처리 실시하는 목적은 채취한 시료에 포함된 방사성핵종손실 없이, 농축하여 채취한 시료의 부피를 줄이는 것이다.

감마방사능인 경우, AMP-MnO로 전 처리된 지표수는 원통형 바이알에, 식수, 지하수 및 빗물 같은 물시료는 채취한 시료를 원형 테프론 코팅용기 (60 L)에 담아서 2 L까지 증발 농축한 후 표준 측정 용기인 마리넬리 비이커 (2 L)에 담았다..

2.2 삼중수소 방사능(물 시료)

물 시료 500 mL를 증류기에 넣고 Na₂O₂ 5 g과 KMnO₄ 0.5 g을 첨가한다. 최초의 증류수 약 10 mL는 버린다. 정제된 증류 시료수 8 mL와 액체섬광체 (HiSafe III) 12 mL혼합하여 액체섬광계수기로 측정하였다.

3. 에너지 교정 및 시료측정

교정 작업을 마친 후 아무런 시료가 없는 상태에서 백그라운드를 측정하고, 분석하고자 하는 시료를 측정하게 된다. Fig. 1은 표준혼합 시료와 빗물 시료에 대한 측정된 스펙트럼을 나타낸 것이다. 또한 Fig. 2는 물 시료를 각각 측정하여 비교하였다.

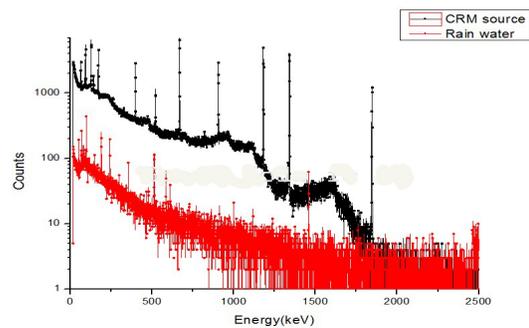


Fig. 1. Comparison of Energy Spectrum CRM Source Measurements and Rainwater.

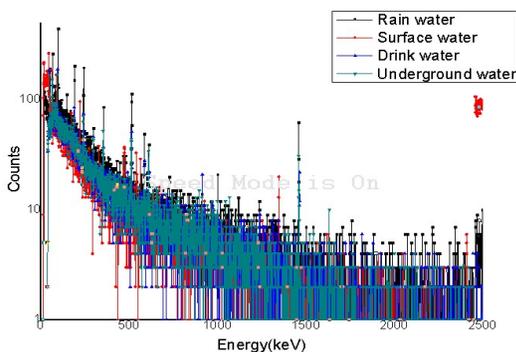


Fig. 2. Comparison of measurement of the energy spectrum of water samples.

3.1 최소검출가능(MDA) 농도 및 유효선량 계산

시료 중 환경방사능 농도 측정 시 방사능 존재유무를 평가하는 자료로 사용되는 최소검출가능 농도(Minimum Detectable Activity: MDA)는 시료의 양과 효율 및 측정시간에 의존하는 양이다^[9]. 신뢰도를 95%로 설정하여 최소 검출 방사능 농도를 계산한다. 환경시료 중 최소검출가능 농도의 의미인 MDA는 LLD에서 사용된 background 수치뿐만 아니라 계수시간, 계수효율, 화학수율 및 시료 양에 의존한다. 다음 Eq. (1)과 같다.

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

여기서 BGC는 백그라운드 계수치, t_B 는 백그라운드 계측시간, E는 계측효율, Y는 분석핵종의 방출률, S는 보정인자로 시료량과 측정 중 반감기를 보정하는 인자이다. 삼중수소 유효선량은 다음 Eq. (2), (3)과 같다.

$$D \frac{\in g}{i} = \sum_{p=1}^n C_{ip} \cdot DF \frac{\in g}{i} \cdot U_p \quad (2)$$

- $DF \frac{\in g}{i}$: 핵종 i의 섭취 선량환산계수(성인)
- $D \frac{\in g}{i}$: 핵종 i 함유 음식물 섭취에 따르는 유효선량(mSv/yr)
 $= 1.8 \times 10^{-8}$
 : 음식물 p중 핵종 i의 농도 = 1.496 Bq/L (빗물시료)
 $= 29.0$ Bq/L (지표수 시료)
 $= 22.0$ Bq/L(식수 시료)
 $= 21.0$ Bq/L(지하수 시료)
- C_{ip} : 음식물 p의 섭취량(성인) = 196.3 L/yr

$$\text{선량(mSv/yr)} = \text{방사능 농도(Bq/L)} \times \text{연간 섭취량(L/yr)} \times \text{선량 환산계수(mSv/Bq)} \quad (3)$$

III. RESULT & DISCUSSION

1. 에너지 교정 및 시료측정

Fig. 2에서 교정용 표준선원을 사용하여 에너지 및 효율을 측정한 결과 불확도는 2.1 %이므로 전반적으로 잘 일치하였음을 확인하였다. 또한 여기서 구한 교정 값들을 물 시료의 에너지 스펙트럼에 적용한 결과 각각 3 % 이내에서 잘 일치하였다.

2. 육상 물시료

2.1 식수 및 지하수

1) 삼중수소 방사능

식수의 삼중수소 분석 결과 부지 주변에서 7.31 ~ 22.0 Bq/L로 국내연구현황에서 최근 5년 동안의 정상변동범위인 < 0.990 ~ 30.4 Bq/L 이내의 농도로 나타났으며, 최대치 22.0 Bq/L농도로 나타났다. 따라서, 식수 섭취로 주민이 받는 연간선량이 7.77×10^{-5} mSv/yr으로 일반인에 대한 선량한도 1 mSv/yr 의 0.777 %로 인체에 미치는 영향은 아주 미약한 것으로 평가되었다. 비교지점에서는 최소검출가능 농도 미만으로 나타났다.

2) 감마선 동위원소

감마선 동위원소 분석결과 전 지점에서 모두 인공방사성 핵종은 최소검출가능농도 미만으로 Table 2, 3과 같다.

2.2 지표수

1) 삼중수소 방사능

지표수의 삼중수소 방사능 분석 결과 부지주변에서 4.19 ~ 29.0 Bq/L 로 정상변동범위 이내였고, 최대치 29.0 Bq/L로 이를 섭취함으로써 인한 선량은 1.02×10^{-4} mSv/yr 으로 일반인에 대한 선량한도 1 mSv/yr 의 0.0102 %에 해당하는 낮은 수준으로 평가되었다. 비교지점 모두 최소검출가능농도 미만이었다.

2) 감마선 동위원소

지표수의 감마선 동위원소 분석결과 전 지점에서 인공 방사성핵종은 감시핵종과 참고핵종으로 나뉘며 (^3H , ^{131}I , ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{137}Cs), Table 4와 같이 나타내었다. 비교지점 ^{60}Co 은 < 0.00823 , ^{134}Cs < 0.00571 , ^{137}Cs 은 < 0.00614 Bq/L로 최소검출농도 미만으로 결과는 Table 4와 같다.

2.3 빗물

1) 삼중수소 방사능

최대치로 나타난 39.6 Bq/L를 음용수처럼 일반인이 연간 섭취한 것으로 가정하여 선량을 Eq. (2)와 (3)을 통해 계산해 보면 “원자력법 시행령 제 2조 제 5호”에서 일반인에 대한 연간 선량 한도인 1.0 mSv 대비 0.00139 %에 불과하여 인체에 미치는 영

향은 거의 없는 것을 확인하였다.

2) 감마선 동위원소

분석결과 전 지점에서 인공 방사성핵종은 최소 검출농도 미만으로 나타났다.

IV. CONCLUSION

물 시료의 감마선 동위원소 분석결과 대부분 시료에서 불검출로 나타났으며, 삼중수소는 $< 4 \sim 29$ Bq/L 로 정상변동범위 이내였다.

빗물시료에서 일반인에 대한 연간 법적 기준치 1 mSv의 0.0014 % 수준으로 평가되었다. 이러한 미량의 방사능 방출은 주변주민, 기타 일반대중의 피폭 상황 등 불안감 해소에 도움 줄 것으로 사료된다.

Table 2. Environment radiolactivity analysis nuclides of drinking water

		Radioactivity (Bq/L)				
		Monitored nuclides			Reference nuclides	
		^3H	^{131}I	^{60}Co	^{134}Cs	^{137}Cs
Drinking water	Gilchon	< 2.03	< 0.0217	< 0.0162	< 0.0249	< 0.0289
	Sinam	< 2.36	< 0.0656	< 0.0591	< 0.0517	< 0.0575
	Ballyong	< 2.29	< 0.0328	< 0.0340	< 0.0401	< 0.0464
	Ulsan	< 2.35	< 0.0402	< 0.0533	< 0.0389	< 0.0534

Table 3. Environment radiolactivity analysis nuclides of underground water

		Radioactivity (Bq/L)				
		Monitored nuclides			Reference nuclides	
		^3H	^{131}I	^{60}Co	^{134}Cs	^{137}Cs
Surface water	Hyoam	< 2.18	< 0.0167	< 0.0138	< 0.0160	< 0.0204
	Wollae	< 2.17	< 0.0395	< 0.0431	< 0.0363	< 0.0393
	Ulsan	< 2.12	< 0.0325	< 0.0235	< 0.0252	< 0.0310

Table 4. Environment radiolactivity analysis nuclides of surface water

		Radioactivity (Bq/L)				
		Monitored nuclides			Reference nuclides	
		^3H	^{131}I	^{60}Co	^{134}Cs	^{137}Cs
Surface water	Hyoam	< 2.18	< 0.0167	< 0.0138	< 0.0160	< 0.0204
	Wollae	< 2.17	< 0.0395	< 0.0431	< 0.0363	< 0.0393
	Ulsan	< 2.12	< 0.0325	< 0.0235	< 0.0252	< 0.0310

Reference

- 3, pp. 586-593, 2002.
<https://doi.org/10.1021/ac60259a007>
- [1] Tagami, K., Uchihori, Y., Ishii, N., Kitamura, H, Shirakawa, Y., "Specific activity and activity ratios of radionuclides in soil collected about 20 km from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant: Radionuclide release to the south and southwest", *Science of the Total Environment*, Vol. 409, No. 22, pp. 4885-4888, 2011.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.scitotenv.2011.07.067>
- [2] Bolsunovsky A, Dementyev D, "Evidence of the radioactive fallout in the center of Asia (Russia) following the Fukushima Nuclear Accident", *Journal of Environmental Radioactivity*, Vol. 102, No. 11, pp. 1062-1064, 2011.
- [3] Pittauerova, D., Hettwig, B., Fischer, H.W., "Fukushima fallout in Northwest German environmental media" *Journal of Environmental Radioactivity*, Vol. 102, No. 9, pp. 887-880. 2011.
<https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2011.06.003>
- [4] H. Kim, J. N. Park, "Concentrations of ^{133}Cs , ^{137}Cs , ^{131}I in Rainwater", *The Korean Physical Society*, Vol. 61, pp. 734-738. 2011.
- [5] International environmental group Gpinpeace reports Fukushima Radioactive Water Crisis Reality Report.2020
- [6] K. Bunzl, W. Kracke, "Cumulative deposition of ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am from global fallout in soil from forest, grassland and arable land in Bacaria(FRG)", *Journal of Environmental Radioactivity*, Vol. 28, pp. 17-34. 1995.
[https://doi.org/10.1016/0265-931X\(95\)2888%2990010-0](https://doi.org/10.1016/0265-931X(95)2888%2990010-0)
- [7] Y. Ishikawa, H. Murakami, T. Sekine, K. Yoshihara, "Precipitation scavenging studies of radionuclides in air using cosmogenic ^7Be ", *Journal of Environmental Radioactivity*, Vol. 26, No. 1, pp. 19-36, 1995.
[https://doi.org/10.1016/0265-931X\(95\)91630-M](https://doi.org/10.1016/0265-931X(95)91630-M)
- [8] M. H. Lee, Y. H. Choi, H. S. Shin, S. B. Kim, C. W. Lee, "Cumulative deposition of ^{137}Cs in the soil of korea", *Journal of Radiation Protection and Research*, Vol. 23, No. 2, pp. 97-102, 1998.
- [9] L. A. Currie, "Limits for qualitative detection and quantitative determination. Application to radiochemistry", *Analytical Chemistry*, Vol. 40, No.
- [10] Korea Nuclear Safety Technology Institute, "National Environmental Radiation Survey", 2001-2019

물 시료의 최소검출가능 농도 분석과 유효선량 평가

장은성,¹ 김양수,² 이선영,² 김정수^{2,*}

¹고신대학교복음병원 방사선종양학과

²전북대학교 방사선종양학과

요 약

2011년 3월 일본 앞바다의 쓰나미 피해로 인하여 후쿠시마 원전 사고로 바다에 스며든 방사능 물질은 태평양까지 흘러 바다 생물에 오염을 일으켰다. 물 시료를 채취하여 전처리하였다. 방사성 물질의 방출에 의한 원전부지 주변 지역과의 비교평가를 위해 긴급보호 조치계획구역(20 ~ 30 km) 떨어진 지역으로 기상상태, 인구분포 등을 고려하여 비교지점으로 선정하였다. 또한 원전주변 주민들이 받게 되는 최소검출방사능을 분석하고 유효선량을 평가하고자 한다. 물 시료의 삼중수소 방사능 분석결과 대부분 시료에서 불검출로 나타났으며, 일반인에 대한 연간 법적 기준치 1 mSv의 0.0014 % ~ 0.777 % 로 인체에 미치는 영향은 거의 없는 것을 알 수 있다. 따라서 원전부지 주변의 물 시료 측정과 분석을 통해 방사능 방출로 인한 주변주민, 그리고 일반대중의 피폭상황 등 불안감해소에 도움이 될 것으로 사료된다.

중심단어: 물 시료, 최소검출가능농도, 유효선량, 방사능 핵종

연구자 정보 이력

	성명	소속	직위
(제1저자)	장은성	고신대복음병원 방사선종양학과	주임/연구원
(공동저자)	김양수	전북대학교병원 방사선종양학과	실장
	이선영	전북대학교병원 방사선종양학과	교수
(교신저자)	김정수	전북대학교병원 방사선종양학과	교수