2004 춘계학술발표회 논문집 한국원자력학회

¹³⁷Cs 농도분석을 통한 제주도 토양의 인공방사성핵종 오염도 평가

Assessment of Artificial Radioactive Contamination of Jeju Soil through ¹³⁷Cs Concentration Measurements

문덕원, 정범진 제주대학교 에너지공학과 제주도 제주시 제주대학로 66

요 약

1950년대와 60년대 각종 핵실험과 원전사고로 인하여 다양한 인공방사성핵종이 지구대기 권으로 방출되었다. 이러한 인공방사성핵종은 원자력시설과 무관해 보이는 지역에서도 검출된다. 본 연구에서는 반감기가 30.2년으로 길어서 상당기간 잔존할 것으로 여겨지는 ¹³⁷Cs을 선택하여 제주지역에서 농도분석을 수행하였다. 제주지역의 토양에 대한 문헌조사를 통하여 지역별, 토색별로 8개 지점을 선정하고 표준화된 시료채취방법에 의거하여 토양시료를 채취하였다. HPGe 검출기와 MCA(Multi-Channel Analyser)를 사용하여 감마선 Spectrum Analysis를 수행하였고 이를 통하여 ¹³⁷Cs 농도를 산출하였다. 동시에 ¹³⁷Cs 농도에 영향을 줄 것으로 고려되는 토양의 pH 와 유기물함량 분석도 수행하였다. 측정결과 ¹³⁷Cs 농도는 2.333 - 9.402 Bq/kg으로 다양한 분포를 나타내었으며 측정오차는 1.36%로 나타났다. 이러한 결과는 우리나라 전역에서 검출되는 ¹³⁷Cs 농도와 큰 차이를 나타내지는 않는 것으로 보이며, 원자력법 시행령 규정에 의한 과학기술부장관이 정하는 핵종별 규제 면제 관련 수량에 비해 약 2000분의 1 수준에 해당하는 값으로, 인체나 환경에 미치는 영향은 거의 무시할 수 있는 수준이었다. 동 결과를 시료의 유기물 함량 분석결과와 비교한 결과 일정한 비례관계가 성립함을 알 수 있었다. 즉 유기물함량이 높은 토양에서 ¹³⁷Cs이 토양의 유기물 입자에 흡착되어 이동성이 제한되므로 높은 ¹³⁷Cs 농도가 나타났음을 알 수 있었다. 또한 본 연구의 결과를 한국원자력안전기술원에서 원자력 이용시설 주변토양에 대해 수행한 결과와 비교한 결과 다소 높은 경향을 보임을 알 수 있었는데 이 역시 화산활동에 기인하여 생성된 화산질 토양인 제주토양의 유기물 제거 능력 부족으로 인한 높은 유기물 함량으로 설명된다.

Abstract

Various artificial radioactive isotopes were distributed to the earth atmosphere due to

the nuclear weapon tests in 1950's and 1960's and the NPP accident. Thus these radioactive isotopes are detected even in regions, which are away from nuclear facilities. In order to estimate these effects, this study measured the ¹³⁷Cs concentrations in Jeju island. ¹³⁷Cs was chosen as its relatively long half-life of 30.2 years makes the element last longer. Through the literature survey, the characteristics of the soil in Jeju were reviewed and eight sampling sites were selected by regional and soil-color groups. The soil samples were prepared by the standard sampling method. Using the HPGe detector and MCA(Multi-Channel Analyser), the gamma-ray spectrum analyses were carried out and the ¹³⁷Cs concentrations were determined. Simultaneously, pH and O.M.C.(Organic Matter Content) analyses were performed as they are important factors affecting the ¹³⁷Cs concentrations. The measured ¹³⁷Cs concentrations spread 2.333-9.402 Bq/kg and the measurement errors were estimated to be 1.36%. These results seem to be similar to the national ¹³⁷Cs level and correspond to about 1/2000 of the limiting values described in the Atomic Energy Act Decree, showing that the effects of ¹³⁷Cs to human and environments are negligible. The ¹³⁷Cs level correlated with the O.M.C. showed a clear proportionality. Thus the organic matter in soil absorbs ¹³⁷Cs, limiting the mobility of ¹³⁷Cs and resulting high ¹³⁷Cs level. Also the comparisons of the results with similar study performed by KINS for nuclear facilities sites show the higher ¹³⁷Cs concentrations of Jeju soil, which again can be explained by the high O.M.C. of Jeju soil as it had been formed by the volcanic activities and the volcanic ashes are less efficient in removing the organic matters.

1. 서 론

우리나라 남단에 위치한 청정지역 제주는, 대규모 원자력 시설이 없는 지역으로, 방사능 오염과 무관하다고 여겨진다. 그러나 과거 대기권에서의 핵실험과 원전 사고 등으로부터 지구 대기권으로 방출된 방사성 핵종들에 의한 방사능 오염으로부터 자유로울 수 없다. 2차 세계대전 이후 미국과 구소련은 경쟁적인 핵실험을 거듭하였으며, 모두 2,000여회에 걸친 육지, 지하, 수중 핵실험이 강대국들에 의해 실시되어 많은 양의 핵분열생성물들이 대기권으로 방출되었다. 또한 1986년 체르노빌 원자력 발전소 사고로부터 환경으로 방출된 방사성 물질은 ¹³³Xe 6500 PBq, ¹³¹I 1700 PBq, ¹³⁴Cs 54 PBq, ¹³⁷Cs 85 PBq, ¹³²Te 1150 PBq 등으로 추정되며, 불활성 기체는 노심 재고량의 100 %, 옥소는 50~60 %, 세슘은 20~40 %, 텔레늄은 25~60 %, 기타 입자상의 핵종은 3.5~6 %로 평가되고 있다. 따라서 총 방출방사능은 약 10000 PBq로 추산된다[1]. 이처럼 인위적으로 환경에 방출된 방사성 핵종들은 대기 중으로 확산되어 낙진 등의 형태로 주변 국가의 토양에 방사능 오염을 야기한다. 이러한 오염은 자연적으로 소멸되기까지 오랜 시간이 걸리기 때문에 인간과 자연 환경 및 생태계에 장기적이고 광범위한 피해를 가져올 수 있다. 현재 토양에 가장 많이 잔존되어 있는 인공방사성핵종은 ¹³⁷Cs으로 알려져 있다[2]. ¹³⁷Cs은 662 keV의 γ선을 방출하는 핵종으로, 반감기가 약 30년으로 비교적 길고 토양 내에서의 이동속도가 매우 느려 토양에 흡착되면 장기간 토층에 잔류하면서 작물이나 가축 등을 통하여 인체에까지 흡수될 가능성이 큰 인공방사성핵종이다. 본 연구에서는 제주 지역의 토양을 채취하여 ¹³⁷Cs 농도 분포를 측정함으로써 제주 지역의 ¹³⁷Cs 방사능 오염도에 대한 기본 자료를 작성하고 국내 원자력 이용시설 주변 토양 및 다른 지역 토양과의 비교를 수행하였다.

2. 이론적 배경

2-1 ¹³⁷Cs

¹³⁷Cs은 반감기가 30.2년으로 최대 에너지 1.176 MeV(6.5 %), 0.514 MeV(93.5 %)의 β선을 수반하여 붕괴하는 인공방사성핵종이며 대부분 ^{137m}Ba로 변환된다. 이것은 반감기 2.55분으로 0.662 MeV(=662 KeV)의 γ선을 방출(방출비 85.21 %)하여 핵이성체전이에 의하여 안정한 ¹³⁷Ba이 된다(Fig. 1). ¹³⁷Cs은 이와 같이 강력한 감마선(662 keV)을 방출하기 때문에 특별한 전처리나 화학적 분리과정 없이 간단하게 계측이 가능하다는 이점이 있다.

대기권 핵실험 또는 원전 사고로부터 방출된 ¹³⁷Cs은 주로 낙진(Fallout)의 형태로 토양에 도달한다[3]. 이는 점토 및 유기물 입자와 접촉하면 신속하게 흡착하여 거의 치환이 불가능하며 경운이나 침식, 퇴적과 같은 물리적 요인으로만 이동이 가능하다는 특성을 갖기 때문에 토양에서의 이동속도가 매우 느리다. 이에 따라 토양에 침적된 ¹³⁷Cs은 장기간 토층에 잔류하면서 작물이나 가축 등을 통하여 인체에 흡수될 가능성이 크다[4]. 이렇게 인체에 흡수된 ¹³⁷Cs은 소화기와 근육에 방사선을 방출하여 암이나 유전 장애의 원인이 되기도 한다(Fig. 2).







Fig. 2. ¹³⁷Cs 인체 흡수 경로.

2-2 검출기

Gamma-ray 에너지스펙트럼 분석에 있어서 주로 사용되는 검출기는 NaI(TI) 섬광계수관과 Ge(Li) 반도체 검출기나 고순도 Ge 반도체 검출기가 있다. 반도체 검출기는 반도체에서

전자·정공 쌍을 만드는데 필요한 에너지(=일함수)가 훨씬 작으므로 동일한 에너지의 입사방사선에 대하여 생성되는 정보전달자의 수가 많아 출력펄스가 커지게 되고, 전자와 정공이 동일한 속도로 빠르게 수집되어 신호의 통계적 변동이 작기 때문에 NaI(Tl) 섬광 계수관보다 에너지 분해능이 우수하다. 반면 NaI(Tl) 섬광계수관은 섬광체의 섬광감쇠시간이 길기 때문에 에너지 분해능이 다소 떨어진다. 그러나 NaI(Tl) 섬광계수관은 계수효율이 우수하기 때문에 백그라운드 측정에는 유리하다.

"고순도 Ge 검출기(High Purity Ge detector)"는 Ge의 불순물 정제기술이 발달하여 Ge(Li)대신에 현재 널리 사용되는 반도체 검출기이다. Ge(Li)의 경우에는 상온에서 Li이 이동하기 때문에 항상 액체질소로 냉각해야 하는 부담이 있는 반면 HPGe는 열전자에 의한 잡음을 줄이기 위해 사용 중에만 냉각하면 되므로 조작이 용이하고 분해능이 우수한 장점을 지닌다. 따라서 본 연구에서는 HPGe 검출기를 이용하여 ¹³⁷Cs의 방사능을 측정하였다. 고순도 Ge 검출기의 특성은 n⁺-p-p⁺다이오드 구조를 갖는다. 여기서 첨자 + 기호는 과도한 불순물 투여를 나타낸다. n⁺ 접촉은 일반적으로 고온에서 짧은 시간동안 Li 이온을 증착시킴으로써 만들어진다. 검출기의 감손 영역은 이 n⁺-p 접합에 역 전압을 걸어 줌 으로써 형성된다. 반대편의 접촉은 주로 금속-반도체 표면 장벽 접합에 의해 만들어진다. 검출기 전체가 감손 되었을 때 p⁺ 면은 입사면으로 사용된다. 그러나 저에너지 감마선을 ·측정하기 위해 얇은 입사면이 필요할 경우에는 이온 주입 기술로서 p⁺ 접촉을 만들기도 하며 현재 이 기술을 이용한 검출기도 생산되고 있다. 역 전압은 p⁺ 면에 대하여 n⁺ 접촉면에 양 전압을 걸어 줌으로써 형성된 감손 영역은 n⁺ 모서리로부터 시작하여 인가전압이 상승함으로써 p 영역은 확장된다. 인가전압이 충분히 높으면 이 검출기는 완전히 감손 되어지고 수감체적은 한쪽 끝에서 다른 쪽 끝까지 형성된다. 이러한 조건하에서 전장은 p 영역의 n⁺ 면에서 최대가 되며 p⁺ 영역으로 갈수록 0으로 된다. 고순도 반도체 검출기는 형태에 따라 표준형, 동축형, 우물형 등이 있다.





Fig. 3. 동축형 HPGe 검출기.

2-3 에너지 교정 및 계측효율

시료의 측정을 개시하기 전에 γ선 에너지와 파고분석기(MCA)의 채널과의 관계를 조사하 기 위해 시판의 표준선원 등을 이용하여 교정을 한다. 표준선원은 단일의 γ선 방출 핵 종을 용기에 밀봉시킨 것으로 단시간에 충분한 계측수를 얻도록 1 μ*Ci* - 10 μ*Ci* 정도의 것이 흔히 사용된다. 편의상 저 에너지에서 고 에너지에 걸쳐 몇 종의 γ선 Peak를 나타내 는 복합 표준선원을 사용하는 경우가 많다. 채널과 에너지와의 관계는 다음과 같은 근사 식으로서 일차회귀식에서 정수항은 최소자승법(Least square method)으로 결정한다. 정 확한 교정이 필요할 경우에는 이차회귀식을 이용하지만 대부분의 경우 일차식으로 충분 하다.

$$E = x C + y$$
$$E = x_1 C + x_2 C^2 + y$$

여기서 C는 채널번호, E는 에너지(keV), x 와 y 는 정수이다. 이러한 조작을 검출기의 에 너지 교정이라 한다.

검출기에 방사선이 입사된다고 해도 검출기에서 이 방사선을 모두 검출할 수는 없다. 이 렇게 검출기에 입사된 입자의 수에 대한 검출기가 계수한 입자의 수의 비를 검출기의 검 출효율(또는 계측효율)이라고 한다. 검출효율을 식으로 나타내면 아래와 같다.

검출효율은 검출기 재질의 밀도와 크기, 방사선의 종류 및 에너지 등에 따라 달라진 다. 만약 방사성물질의 방사능을 A, 방사성물질의 매 붕괴당 방사선의 방출율을 η, 그 외 보정인자들을 f(기하학적 인자, 선원의 자기흡수인자, 선원의 후방산란인자, 검출기의 입 사창의 산란 및 흡수인자, 공기의 산란 및 흡수인자...), 참계수율을 n이라고 한다면, 검 출효율은 다음과 같다.

$$\epsilon = \frac{n}{\eta \ A \ f}$$

2-4 제주도 토양의 특성

제주도는 화산 폭발하여 형성된 화산섬으로서 화산회를 모체로 생성된 토양이다. 제주도 의 총면적은 182,516 ha로서 농경지로 이용되고 있는 면적은 39.6 %인 54,197 ha이다. 토양은 4개 토양군과 63개 토양통으로 구분되어 지역별 또는 토색별 토양특성이 매우 다 양한 실정이다. 또한 토색에 따라 암갈색토, 농암갈색토, 흑색토, 갈색산림토로 분류되는 데 일반적으로 암갈색토를 비화산회토, 나머지 3개 토양을 화산회토로 불린다. 지역별 분 포는 Fig. 4와 같이 비화산회토인 암갈색토는 주로 북·서부해안지역에 많이 분포되어 있 고 대부분 경작지로 이용되고 있다. 제주도 토양은 대부분이 화산회토로 구성되어 있기 때문에 물리화학적 성질은 육지의 토양과는 크게 다르다. 제주도의 서부 및 북부지역에 암 갈색토양은 비화산회토이지만 이것 역시 육지토양과 다르다.

토양의 물리적 특성을 보면, 다른 토양에 비하여 토양의 전 용적밀도가 낮고, 특히 흑색 토와 갈색 산림토의 밀도가 매우 낮다. 전 용적밀도가 낮기 때문에 공극률이 높고, 풍식 에 대한 저항성이 낮으며, 투수성이 높아 하향침투가 빠르다. 또한 일반적으로 토양의 유 기물은 분해 되기 쉬우므로 유기물이 많은 토양은 비옥하다. 그러나 제주도 토양의 모 재인 화산회는 유기물의 분해를 방해하기 때문에 토양의 비옥도에 크게 기여하지 못한 다. 따라서 제주도 토양의 유기물 함량이 많다 하더라도 자연비옥도는 낮을 수밖에 없다. 또한, 화학적으로는 모재의 영향으로 토양의 pH가 높은 편으로, 특히 해안 가까이에 분 포된 경작지 토양은 초목회, 해초, 석회, 용성인비와 같은 염기성 비료의 다량 사용으로 다른 지역의 토양에 비하여 더욱 pH가 높다. 그리고 미 경작 토양의 경우에도 pH는 육 지에 비해 높은 편이며, 심토의 경우 더욱 높다. 심토의 pH가 더 높은 것은 Allophane보 다는 Al-부식 복합체가 형성되기 쉬워 pH 5.0이하로 강산성이지만, 제주도 화산회토는 현무암질 안산암과 같은 염기성 모재에서 생성되었기 때문에 pH는 5.0이상으로 비교적 높은 편이다[5].

측정 방법 및 절차
3-1 시료 채취



Fig. 4. 제주 토양의 분류 및 시료 채취 지점.

특성 지점	위 치	지 명	높 이	토 질 (토색유형)
A1	제주시 화북동	별 도 봉 (베리오름)	136m	비화산회토 (암갈색토)
B2	북제주군 구좌읍	민 오 름	362m	화산회토 (흑색토)
C3	남제주군 표선면	토 산 봉 (망 오 름)	175m	화산회토 (농암갈색토)
A4	서귀포시 하원동	개 오 름 (구 산 봉)	174m	비화산회토 (암갈색토)
B5	남제주군 대정읍	모 슬 봉	180m	화산회토 (흑색토)
C6	북제주군 한림읍	느지리오름 (망 오 름)	225m	화산회토 (농암갈색토)
D7	제주시 봉개동	개 월 오 름 (큰개오리)	743m	화산회토 (갈색산림토)
D8	서귀포시 대포동	갯거리오름	742.9m	화산회토 (갈색산림토)

Table 1. 시료 채취 지점들의 특성.

Fig. 4 와 Table 1과 같이 제주 지역의 토양을 크게 4개 그룹(흑색토, 농암갈색토, 갈

색산림토; 이상 화산회토, 암갈색토; 비화산회토)으로 분류하여 각각의 그룹에 대하여 2군 데의 지점을 선정한 후, 모두 8개의 지점에 대하여 토양시료를 채취하였다. 여기서 봉우리 나 오름을 토양시료 채취 지점으로 선정하게 된 요인은 ¹³⁷Cs의 토양 흡착의 주요 원인이 바로 방사성 낙진에 의한 것이기 때문에 비교적 경사가 지지 않은 개활지이면서 인위적 교란이 없으며, 사람의 왕래가 적을 것으로 예상되는 장소를 택하여, 보다 더 객관적으로 ¹³⁷Cs 방사능 농도를 측정하기 위해서이다. 이를 토대로, 토양시료의 채취는 표토층을 대 상으로 하였다. 여기서 표토는 일반적으로 깊이 0~10 cm 전후의 토양을 말한다. 시료 채 취 지점을 선정한 후 토양을 채취하고 표면의 잡초 또는 자갈 등의 이물질을 제거하고 비 닐봉지에 넣은 후 밀봉하였다. 시료의 양은 ¹³⁷Cs의 γ선 검출과 유기물 함량 또는 pH 측정을 위한 목적으로 대략 1~2 kg으로 하였으며 시료 채취에 있어서 가장 중점으로 둔 사항은 토양 자체는 불균질하기 때문에 한 지점에서만 채집하면 편향된 결과를 얻을 수 있으므로 한 지점을 중심으로 밭 전(田)자 모양으로 각각 1~1.5 m의 간격으로 총 9개의 부시료를 채취·혼합하여 가능한 대표적인 시료가 되도록 한 것이다(Fig. 5).





Fig. 5. 토양 시료 채취 사진 (田자 모양).



Fig. 6. 자연 대류식 건조기.



Fig. 7. 시료 + Marinelli Beaker.

3-2 ¹³⁷Cs의 측정

본 연구에서는 토양시료를 γ선 스펙트럼 분석부분과 유기물 함량 및 pH를 측정하는 2개 의 군(Group)으로 나누어 각각을 측정하였다. γ선을 측정하기 위한 시료는 110 ℃로 조 절된 건조기(Fig. 6. Natural Convection Oven, Model LDO-030N)에서 24시간 건조시킨 후, 막자사발로 충분히 분쇄한 후 2 mm 체로 정선하였다. 이 토양시료를 용량 1ℓ의 마리 넬리 비이커에 충진시켰다.(Fig. 7) 이 시료를 1 µCi 의 ¹³⁷Cs 표준 밀봉선원(*87. 8. 1.* 제 조, Fig. 8)으로 검출기의 계측 효율 및 에너지 교정을 미리 마친 HPGe 검출기에 고정시 킨 다음, 시스템을 가동시켰다. 이 때, 백그라운드의 영향을 최소화하기 위하여 검출기 주 변을 납 벽돌로 차폐하였고, 계수치의 오차를 줄이기 위한 방안으로 계수 시간을 72,000 sec(20 hr)으로 다소 길게 채택하였다.

유기물 함량 측정은 작열감량법(Loss-on-ignition method)을 이용하여 계산하였다. 이는 시료를 105 ℃의 건조기에서 6시간 동안 건조시켜 수분을 완전히 제거한 다음, 다시 210 ℃로 24시간 건조시킨 후의 감손된 시료 질량 차이만큼의 비율을 이용하여 간접적으로 유기물 함량(%)을 계산하는 것이다. 계산식은 다음과 같다.

> <u>수분이 제거된 시료의 질량 - 유기물을 제거한 시료의 질량</u> × 100 = 유기물함량(%) 수분이 제거된 시료의 질량

각각의 토양 시료의 pH는 1:5법(토양 : 증류수)을 적용하여 「pH meter」(Fig. 9)로 직접 측정하였다[2, 7].



Fig. 8. 표준 밀봉 선원.



Fig. 9. pH meter.

Fig. 10은 본 실험에서 사용된 실험 장치 모습 및 구성도를 나타낸다. ①은 액체질소 가 충진된 반도체 검출기 및 초기 펄스 신호를 증폭시키는 전치증폭기로 구성된 HPGe Detector를 나타내고 ②는 본 실험에 사용되는 HPGe 검출기의 Recommended Bias Voltage가 4000V 이상이므로 그 전압 공급을 위한 고전압 공급 장치와 신호의 정형 및 증폭을 증대시키는 주증폭기로 구성된 NIM(Nuclear Instrument Module) 전자 장비를 나 타낸다. ③, ④는 스펙트럼 분석에 이용할 다중채널파고분석기(MCA; Multichannel Pulse height Analyser)와 MAESTRO-32 software 가 설치된 컴퓨터이다.



Fig. 10. 검출시스템 구성도.

Table 2.는 본 실험에서 사용한 반도체 검출기에 대한 기본적인 특성들에 관한 내용을 나타내는 것이다.

Specification	Туре
Model	(Canberra) No. GC1520
Rel. Efficiency	15%
Peak/Compton	40:1
Resolution	1.71keV(FWHM ; C0-60 : 1.33MeV)
Cryostat Description	7500SL
Geometry	Closed ended coaxial
Diameter	47mm
Length	41mm
Active area facing window	17.9cm²
Distance from window	5mm
Recommended Bias Voltage	(+)4000V dc.

Table 2. Specification of HPGe Detector.

4. 측정결과 및 분석

4-1 ¹³⁷Cs의 γ선 계수효율

본 실험에서 검출기의 ¹³⁷Cs의 γ선(662 keV)에 대한 계수효율 결정은 ¹³⁷Cs 밀봉 선원(1 μ*Ci*, 87. 8. 1)을 이용하였다. 측정을 위한 계수시간은 300 sec로 하였다. 동 밀봉선원의 초기 방사능은 1 μ*Ci*이고 측정시점까지 16.45년이 경과하였기 때문에 반감기 30.2년을 적용하여 측정현재의 방사능 25364.72 Bq을 산출하였다. 여기서 γ선(662 keV) 방출비는 85.21 %로 산정되었다.

¹³⁷Cs 밀봉 선원과 백그라운드에 관한 스펙트럼 분석 결과는 Fig. 11과 Fig. 12에 각각 나타내었다.



Fig. 11. 에너지교정 Spectrum.



Fig. 12. Background Spectrum.

따라서, 본 실험에서 ¹³⁷Cs의 γ선(662 keV) 검출에 대한 계수효율은 1.5%인 것으로 결 정되었다.

4-2 스펙트럼 분석



Fig. 13. 별도봉 Spectrum.



Fig. 15. 토산봉 Spectrum.







Fig. 14. 민오름 Spectrum.



Fig. 17. 모슬봉 Spectrum.







Fig. 19. 개월오름 Spectrum.

Fig. 20. 갯거리오름 Spectrum.

4-3 ¹³⁷Cs 방사능 농도

8개의 토양 채취 지점에 대하여 스펙트럼 분석한 결과로부터 방사능 농도를 계산할 수 가 있는데 그 계산식은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} Activity(Bq) &= \frac{Net \ Counting \ Rate \ (cps)}{Counting \ Efficiency \times \gamma - ray \ Emitting \ Rate} \\ Background \ Counting \ Rate : \frac{N_b}{t_b} \pm \frac{\sqrt{N_b}}{t_b} = n_b \pm \sqrt{\frac{n_b}{t_b}} \quad , \\ Gross \ Counting \ Rate : \frac{N_t}{t_t} \pm \frac{\sqrt{N_t}}{t_t} = n_t \pm \sqrt{\frac{n_t}{t_t}} \quad , \\ Net \ Counting \ Rate : (n_t - n_b) \pm \sqrt{\frac{n_t}{t_t} + \frac{n_b}{t_b}} \quad . \end{aligned}$$

여기서, N_t 는 시료와 Background의 계수치, N_b 는 Background만의 계수치, n_t 는 시료와 Background의 계수율, n_b 는 Background만의 계수율, t_t 는 시료와 Background의 계수시 간, t_b 는 Background만의 계수시간이다.

상기의 계산식을 이용하여 각 토양 채취 지점에서의 계수율을 구하고 그것으로부터 ¹³⁷Cs 방사능 농도를 구하였다. 각 지점에 대한 계산 결과, 시료만의 참계수율은 오차의 영 향을 거의 받지 않는 것으로 드러났다. 따라서 본 실험에서는 계수율에 대한 통계 오차를 무시하기로 하였다. 또한 백그라운드의 영향 또한 거의 미비한 것으로 드러났는데 이것은 검출 과정중 검출기 주변을 납 벽돌을 이용하여 차폐를 시행하였고 계수 시간을 비교적 길게 잡았기 때문이라고 여겨진다.

본 실험에서 측정된 지점별 ¹³⁷Cs 계수치(counts) 및 계수율(cps)과 방사능 농도(Bq/kg) 를 Table 3.에 나타내었다.

특성	의 치	게스키(counte)	계수율(cps)	¹³⁷ Cs 방사능농도	
지점			[측정값-백그라운드값]	(Bq/kg)	
별도봉	제주시 화북동	3,063	0.0403	3.153	
민오름	북제주군 구좌읍	8,813	0.1179	9.402	
토산봉	남제주군 표선면	7,493	0.1018	7.968	
구산봉	서귀포시 하원동	5,298	0.0713	5.582	
모슬봉	남제주군 대정읍	2,308	0.0298	2.333	
느지리오름	북제주군 한림읍	4,957	0.0666	5.212	
개월오름	제주시 봉개동	4,815	0.0646	5.058	
갯거리오름	서귀포시 대포동	6,251	0.0883	6.618	

Table 3. 계수율 및 ¹³⁷Cs 방사능 농도(Bq/kg).

측정된 ¹³⁷Cs 방사능 농도의 평균값±표준편차는 5.666±2.335 Bq/kg이고, 범위는 2.333 ~ 9.402 Bq/kg으로 나타났다. 민오름에서 9.402 Bq/kg으로 가장 높은 수치를 보였으며 모슬봉에서 2.333 Bq/kg으로 가장 낮게 나타났다. 이 결과는 2002년 한국원자력안전기술원 이 원자력 이용시설 주변의 토양에서 측정한 <0.961 ~ 8.50 Bq/kg [6] 보다 다소 높은 결과를 보였다. 이것은 화산활동에 따라 생성된 제주 토양의 높은 유기물 함량으로 인하 여 ¹³⁷Cs의 토양 흡착 및 침적이 더 많이 발생했기 때문이라 판단된다.

4-4 토양의 유기물 함량과 pH

토양의 물리·화학적 특성이 토양 중 ¹³⁷Cs의 농도에 미치는 영향을 평가하기 위하여 본 연구에서는 토양의 물리적 특성 중 하나인 유기물 함량과 화학적 특성의 대표인자로 pH 를 조사, 측정하였다.

토양 시료 채취 지점에 따른 각 특성의 측정 결과를 Table 4.에 나타내었다

Table 4. 유기물 함량과 pH.

구 분	별도봉	민오름	토산봉	구산봉	모슬봉	느지리오름	개월오름	갯거리오름
pH	5.1	5.0	5.6	5.5	5.5	4.7	5.8	4.5
유기물함량(%)	12.3	24.2	22.1	15.2	10.2	14.6	14.4	20.8

4-5 결과 및 토의

본 실험에서 측정된 계수치들의 표준편차($\sigma = \sqrt{N_{avg}}$)는 약 73.313(counts)였고, 상대표준편 차(계수오차(ϵ) = 1/ $\sqrt{N_{avg}}$)는 0.01364(counts)로서 약 1.36 %였다. 본 연구에서 측정된 ¹³⁷Cs 방사능 농도의 범위가 2.333 ~ 9.402 Bq/kg으로 제주도가 비교적 좁은 지역임에도 불구하고 측정된 ¹³⁷Cs 농도는 채취 지점에 따라 상당한 차이를 나타내었다. 이는 널리 알려져 있는 바와 같이 ¹³⁷Cs은 점토 및 유기물 입자와의 접촉에 따라서 이동량이 결정됨 으로 토양 특성의 영향으로 설명될 수 있다. 본 실험에서 측정한 토양에서의 pH 및 유기 물함량과 ¹³⁷Cs 방사능 농도와의 관계를 Fig. 21 와 Fig. 22에 나타내었다. 또한 토양의 유기물함량과 ¹³⁷Cs 농도의 상관관계를 Fig. 23에 도식하였다.





Fig. 21. ¹³⁷Cs 방사능 농도와 pH의 관계.

Fig. 22. ¹³⁷Cs 방사능 농도와 유기물함량의 관계.



Fig. 23. ¹³⁷Cs 농도와 유기물함량과의 상관성.

그림에서도 알 수 있듯이 토양의 유기물 함량의 비율이 ¹³⁷Cs 농도에 중요한 역할을 함 을 알 수 있었다.{상관계수(r)=0.97} 토양 유기물은 보수력이 매우 크고 또한 양이온을 흡착, 보유하는 능력, 즉 양이온치환용량도 매우 크므로 토양의 유기물 함량이 높을수록 1가의 양이온인 ¹³⁷Cs의 지하침투가 저해되어 토양중 특히, 표토층에서의 ¹³⁷Cs 방사능 농 도가 높게 나타나는 것으로 판단해 볼 수 있다. 반면에 토양의 pH는 ¹³⁷Cs의 농도 분포에 아무런 영향을 미치지 않음을 확인할 수 있었다. 이러한 이유에서, 제주 지역의 토양 중 ¹³⁷Cs 농도가 육지부의 값보다 다소 높게 나타나는 것은 제주도의 토양 대부분이 화산활 동에 기인하여 생성된 화산질 토양으로 유기물 제거 능력 부족에 기인한 높은 유기물함 량 때문에 다른 지역보다는 ¹³⁷Cs의 토양 흡착이 다소 많이 일어난 것으로 판단된다.

5. 결 론

청정 환경지역으로 알려진 제주도의 토양에서의 ¹³⁷Cs 농도를 측정하고 그 분포에 관한 연구를 수행하였다. 제주지역의 토양 특성을 조사하고 지역별, 토색별로 8개 지점을 선정 하여 토양시료를 채취하였다. 이들에 대하여 Gamma-ray Energy Spectrum을 분석하고

¹³⁷Cs 농도에 영향을 줄 수 있는 pH와 유기물함량 분석을 동시에 수행하였다. HPGe 검 출기를 이용하여 측정한 ¹³⁷Cs 농도는 2.333 ~ 9.402 Bq/kg로 나타났으며 측정오차는 1.36%였다. 평균값±표준편차는 5.666±2.335 Bq/kg이었다. 비교적 좁은 제주 지역에서 채 취된 시료임에도 불구하고 ¹³⁷Cs 농도는 지리적인 분포에 따라 상이한 측정값을 나타내었 는데 이는 토양내 유기물함량과 비교·분석한 결과 일정한 비례관계가 성립함을 알 수 있었다. 반면 토양의 pH는 토양내의 ¹³⁷Cs 농도에 아무런 영향을 미치지 않는 것으로 나 타났다. 또한, 본 연구의 결과를 2002년, 한국원자력안전기술원에서 측정한 자료 "원자력 이용시설 주변 환경시료의 방사능 농도"중에서 토양에서의 ¹³⁷Cs 방사능 농도(<0.961 ~ 8.50 Bq/kg)와 비교·분석한 결과, 다소 높은 경향을 나타내었다. 이러한 이유 역시, ¹³⁷Cs 과 유기물 함량과의 상관성으로 설명할 수가 있었다. 즉, 제주도 토양의 모재인 화산회토는 유기물의 분해 및 제거를 방해하기 때문에 다른 지역의 토양보다는 유기물 함량이 높아서 ¹³⁷Cs의 토양 흡착 및 침적이 다소 많이 일어난 것으로 사료된다. 하지만 본 연구에서 측 정된 ¹³⁷Cs 농도의 값은 국내 원자력법 시행령 규정에 의한 과학기술부장관이 정하는 핵 종별 규제면제 관련 수량 및 농도에서 ¹³⁷Cs의 최소 농도인 1×10¹ Bq/g [과학기술부고 시 제2002 - 23호 제9조]에 비하면 약 2000분의 1에 해당하는 값으로 인체나 환경에 미 치는 영향은 거의 무시할 수 있는 수준이었고, 시료 채취 지점 수와 검출기의 성능 차이 를 감안하여 보았을 때 우리나라 전역에서 검출되는 ¹³⁷Cs 농도[7-11]와는 큰 차이를 나타 내지 않는 것으로 예상된다. 이로써, 원자력 시설이 없는 제주 지역에 대하여, 과거 대기 권내의 핵실험과 체르노빌 원전사고로부터 생성, 방출된 인공방사성핵종들의 방사성 낙 진으로 인한 ¹³⁷Cs의 토양 방사능 오염도에 관한 베이스라인 데이터를 축적하는 성과 를 거두었다.

참 고 문 헌

- 1. 이재기(한양대학교 원자력공학과), "체르노빌 원전사고 10년의 회고"
- Yong-Ho Choi, Kwang-Muk Lim, Myung-Ho Lee, Hyo-Guk Park and Won-Yun Lee, "¹³⁷Cs Concentrations in Cultivated Soils of Korea," J. Korean Asso. Radiat. Prot. Vol. 24, No. 2, 55–63 (1999)
- 3. M. H. Lee and C. W. Lee, "Association of fallout-derived ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr and ^{239, 240}Pu with natural organic substances in soils," Journal of Environmental Radioactivity 47, 253–262 (2000)
- 4. M. H. Lee, C. W. Lee, K. H. Hong, Y. H. Choi and B. H. Boo, "Depth distribution of ^{239, 240}Pu and ¹³⁷Cs in soils of south Korea," J. of Radioanal. Nuc. Chem. 204, 135–144 (1996)
- 5. 『제주 재래감 정보』
- 6. 한국원자력안전기술원, 『환경방사능감시』, 2002
- 7. Kye-Hoon Kim, Ju-Yong Yun and Sun-Ho Yoo, "Distribution of Cs-137 and K-40

in Korean Soils," J. Korean Soc. Soil Scl. Fert. Vol. 28, No. 1 (1995)

- Myung-Ho Lee, Chang-Woo Lee, Kwang-Hee Hong, Yong-Ho Choi, Sang-Bok Kim, Doo-Won Park and Jeong-Ho Lee, "A Study on Distribution of Cs-137 and Sr-90 in Soils around Taejon Region," J. Korean Asso. Radiat. Prot. Vol. 20, No. 2, 123-128 (1995)
- Myung-Ho Lee, Yong-Ho Choi, Hyun-Sang Shin, Sang-Bog Kim and Chang-Woo Lee, "Cumulative Deposition of ¹³⁷Cs in the Soil of Korea," J. Korean Asso. Radiat. Prot. Vol. 23, No. 2, 97-102(1998)
- Bum-Kyung Seo, Jung-Wook Sung, Hyun-Duck Kim and Dae-Won Lee, "Distribution of Radioactivities of ^{226, 228}Ra, ¹³⁷Cs and ⁴⁰K in Soil in Busan Area," J. Korean Asso. Radiat. Prot. Vol. 26, No. 4, 441–445 (2001)
- Seok-Won Choi, Hyun-Gook Jin, Cheol-Su Kim, Jung-Whan Row, Chang-Kyu Kim and Byung-Hwan Rho, "The Distribution of ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr and Pu isotopes in the Coastal Sediment of Korea," J. Korean Asso. Radiat. Prot. Vol. 27, No. 2, 101-110 (2002)
- M. H. Lee and C. W. Lee, "Determination of ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr and fallout Pu in the volcanic soil of Korea," Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 239, No. 3, 471–476 (1999)