

기기중성자방사화분석을 이용한 대전지역 PM₁₀ 대기먼지 중 U과 Th 정량 및 평가

Evaluation and Determination of U and Th in PM₁₀ using Instrumental Neutron Activation Analysis

김선하, 임종명, 문종화, 정용삼
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

대전광역시 한국원자력연구소에서 PM₁₀ 대기먼지를 채집하여 PM₁₀ 먼지농도를 결정하였고 중성자방사화분석법으로 시료중의 U과 Th을 분석하여 대기중의 농도를 측정하였다. PM₁₀의 농도는 황사 발생일을 제외하고는 대전시의 환경기준인 100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 보다 낮았다. U과 Th의 평균농도는 0.37 ng/m^3 과 0.33 ng/m^3 로 측정되었으며 황사 발생일에는 더 높게 나타났다. Sc을 기준원소로 계산된 평균 부화계수는 U이 31.5, Th은 6.8로 계산되어 U은 인위적인 발생원과 지각 발생원의 혼합으로 Th은 지각 발생원으로 판단하였다. 또한 보건물리적인 관점에서 호흡을 통한 U-238과 Th-232의 인체내의 흡수량을 추정하여 내부 피폭선량을 산출한 결과는 각각 1.06, 0.17 nSv/year 이었다.

Abstract

Airborne particulate matter of PM₁₀ were collected at Korea Atomic Energy Research Institute in Daejeon metropolitan city and the mass concentration of PM₁₀ in air as well as the amount of U and Th in PM₁₀ by INAA were determined. The concentration of PM₁₀ except yellow dust days was lower than 100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, criteria of Daejeon city. Mean values of U and Th were 0.37 ng/m^3 and 0.33 ng/m^3 , respectively and those of yellow dust days were much higher than normal days. Enrichment factors of U and Th calculated as a reference element, Sc, were 31.5 and 6.8, respectively. From these results, it can be assumed that U was released from mixed sources of anthropogenic and crustal origin and Th was from crustal origin. In the viewpoint of health physics, absorbable amount of U-238 and Th-232 into human body by respiration was estimated and internal exposure dose was evaluated as 1.06 and 0.17 nSv/year, respectively.

1. 서론

현재 우리가 살고 있는 지구에는 인공적 또는 자연적으로 생성된 대기먼지 중에는 많은 독성원소와 방사성 핵종이 혼재하고 있으며 인간은 이러한 자연환경에 항상 노출되어 있다. 이들 중에 우라늄(U)과 토륨(Th)은 자연계에 존재하는 α 입자를 방출하는 방사성 원소로서 연속적인 α 및 β 붕괴에 의하여 많은 방사성 딸 핵종이 생성된다. 특히 대기중이나 토양, 암석에 함유되어 있는 U-238은 자발 붕괴하여 라돈(Rn-222)이 되고 라돈에 의하여 생성된 딸 핵종들이 호흡을 통하여 흡수되어 방사선 피폭을 유발한다고 알려져 있다[1]. 본 연구에서는 PM₁₀ 대용량채집기와 기기중성자방사화분석법을 사용하여 대기중의 우라늄과 토륨의 신속, 정확한 정량법을 개발하여 대기중의 농도수준과 발생원을 규명하고 호흡에 따른 U-238과 Th-232의 인체내의 흡수량을 추정하여 내부 피폭선량을 산출하는 방법을 제시하고 연간 내부 피폭선량을 평가 하였다.

2. 실험

2.1 시료 채집 및 PM₁₀ 농도

대기먼지의 채집은 실험의 용이성을 위하여 대전광역시 원자력연구소에서 2001년 12월부터 2002년 4월까지 주중에 1회 채집하였다. 시료 채집은 대용량 채집기(KIMOTO, Japan)와 유리섬유(Glassfiber) 필터를 사용하여 유속 1500 L/min로 24시간 동안 채집 하였으며 유량은 약 2160 m³/일 이다. 총 23개의 시료를 채집하였고 2002년 3월과 4월의 5개의 황사시료가 포함되었다. 시료채집 전의 공 필터 무게와 시료채집 후의 무게를 측정하여 PM₁₀의 대기 중 농도를 계산하였다.

2.2 중성자방사화분석

채집된 필터시료에 40개의 직경 1 cm 구멍을 뚫어 분석용 시료로 준비하여 한국 원자력연구소의 하나로 연구용 원자로의 방사화 분석용 조사공(열중성자속 : $2.8 \times 10^{13}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$)에 1시간 동안 중성자 조사하였다. 방사화 된 시료는 고순도 게르마늄 검출기(GEM 25185, EG & G ORTEC, USA)와 다 채널 파고분석 장치를 사용하여 측정하였다. Table 1에 분석조건과 검출방법을 요약, 정리하였다. 분석값의 품질관리를 위하여 미국 표준연구소의 인증물질인 Coal Fly Ash(NIST SRM 1633a)를 동일한 조건에서 우라늄과 토륨을 분석하였다.

2.3 평가 방법

2.3.1 발생원

U과 Th의 발생원으로는 원자력 발전소 등의 핵 관련 산업시설 들에 의해 발생할 뿐만 아니라, 석탄(lignite)을 원료로 사용하는 화력발전소의 배기 가스, 금속의 처리공정, 비료의 사용 등의 인위적인 발생원을 갖고 있다. 그러나 우라늄과 토륨은 거의 대부분이 암석과 토양에서 나타나게 되는데, Table 2에 다양한 암석들에 따른 우라늄의 농도를 나타내었다[2]. 대기 중의 금속성분의 분포특성을 비교한 과거의 연구들을 보면, 주로 부화계수

(enrichment factor: EF)를 사용하여 오염의 정도를 비교한 것을 볼 수 있다. 부화계수는 Al, Sc과 같은 원소가 지각을 구성하는 주요 성분이고 인위적 오염이 없다 라는 전제하에 기준원소로 사용하고 Taylor와 McLennan[3]이 발표한 지표토양권역을 대표하는 개별 원소성분의 포괄적 농도자료를 이용하여 다음과 같은 관심대상물질들간의 상대적인 농도비를 비교하는 기준으로 활용할 수 있다.

$$EF = \frac{\{X/Sc\}_{\text{sample}}}{\{X/Sc\}_{\text{crust}}} \quad (1)$$

여기서 X는 관심대상 원소성분의 농도를 의미한다.

2.3.2 내부피폭선량 산출

대기중의 우라늄(U-238)과 토륨(Th-232)은 호흡에 의해 인체내로 유입되어 내부 피폭을 유발한다. 내부 피폭선량을 산출하기 위해 필요한 국내 성인의 평균 호흡량은 20 m³/day(U. S. EPA)를 기준으로 통계청 평균기대 수명과 보건복지부 통계자료에 의한 국내 성인의 평균 체중이 61.43±11.2 kg을 고려하여 국내 성인의 평균 호흡량을 계산할 수 있다[4].

$$\text{국내 성인의 평균 호흡량} = \text{EPA DIR}(20\text{m}^3/\text{day}) \times (61.43\text{kg}/70\text{kg})^{2/3} = 18.3 \text{ m}^3/\text{day} \quad (2)$$

또한 호흡을 통한 체내 흡수율과 유효선량계수는 국제방사선방호위원회의 보고서[5]를 참고하여 흡수율(f₁)로서 우라늄은 0.02, 토륨은 0.0005이며 유효선량계수는 U-238은 1.8 x 10⁻⁶, Th-232은 2.9 x 10⁻⁵ Sv/Bq을 각각 적용하여 아래와 같이 내부 피폭선량을 추정할 수 있다.

$$\text{일일 흡수량} = \text{대기중 농도}(\mu\text{g}/\text{m}^3) \times 18.3 \text{ m}^3/\text{일} \times f_1 \quad (3)$$

$$\text{내부피폭선량} = \text{일일 흡수량} \times 365 \text{ 일/년} \times \text{Activity/년간흡수량} \times \text{유효선량계수} \quad (4)$$

3. 결과 및 토의

3.1 PM₁₀ 농도

Figure 1에 시료 채취기간 중의 측정된 PM₁₀ 농도를 나타내었다. 황사 발생일을 포함한 전체평균은 83.4μg /m³ 의 높은 농도를 나타내고 있으나 대전시의 환경기준인 100μg /m³을 초과하지는 않았다. 이는 겨울과 봄이 건조한 날씨를 나타내었기 때문이고 최악의 황사가 발생했기 때문이다. 황사 발생일의 평균은 187μg /m³을 이었으며 이는 다른 지역에서 측정된 PM₁₀ 농도 보다 작은 값인데, 이는 연구소의 시료 채취장소 서북쪽에 있는 산과 풍향의 변화 때문인 것으로 보인다.

3.2 U 및 Th의 대기중 농도

분석품질관리를 위하여 미국 표준연구소의 인증물질인 Coal Fly Ash(보증값 : 우라늄

10.2 ± 0.1 mg/kg, 토륨 24.7 ± 0.3 mg/kg)를 분석한 결과 우라늄은 11.0 ± 1.0 mg/kg, 토륨은 24.5 ± 0.7 mg/kg 로서 분석값의 불확도를 고려하면 보증값과 잘 일치하는 결과를 얻어 분석값이 신뢰도가 있음을 알 수 있다. 연구 기간중의 대기 중 U, Th의 농도를 Table 3에 나타냈으며 PM₁₀의 농도와 함께 Figure 2에 나타내었다. U과 Th의 평균농도는 각각 0.398, 0.429 μg /m³ 이었으며 U은 황사 시에 최대 2배정도 높은 농도를 보이고 있고 Th은 최대 4배 이상의 고농도를 황사 시에 나타내었다. 대기 중의 중금속농도는 황사 시에 크게 부화되는데, 인위적인 발생원으로 추정되는 As, Sb, Br, Cr 등의 금속들은 큰 부화값을 갖지 못하는 것으로 알려져 있지만 지각에 기인한 Th, U을 포함하여 Al, Fe, 희토류 등의 원소농도는 크게 부화되는 것으로 밝혀져 있다. 또한 Figure 2를 보면 PM₁₀과 Th은 매우 유사한 추이를 보이고, U은 약간은 범위가 넓게 퍼지고 PM₁₀과 다른 추이를 나타내고 있다. PM₁₀과 원소들의 상관계수는 U은 0.41으로 나타나 상관성이 적었고, Th은 0.82의 매우 높은 상관성을 갖는 것으로 나타났다.

3.3 평가 결과

3.2.1 부화계수(EF)

일반적으로 부화계수가 100 이상일때는 발생원이 인위적 발생원(anthropogenic origin)인 것으로 보며 10 이하의 값을 가지면 지각 발생원(crustal origin)으로 판단하는 데[6] Th은 6.8의 평균값을 나타내어 지각 발생원인 것으로 판단된다. U의 경우는 평균값 31.5를 나타내는데, 이는 비교적 높은 값으로 인위적인 발생과 자연발생인 것이 혼합되어 있음을 나타낸다. 이러한 범주에 속하는 원소들로는 Ba, Hf, Ce 등을 들 수 있는데, 이런 결과는 기준값으로 사용한 지각 내 원소의 농도가 지역에 따라 차이가 있기 때문인 것으로 알려져 있다. Figure 3은 기준원소로 Sc를 사용하여 부화계수를 구한 결과를 Sc의 농도에 따라 나타내었다. Sc의 농도가 높아짐에 따라 부화계수가 작아지는 경향을 볼 수 있다.

3.2.2 내부 피폭선량

식(4)를 적용하여 계산한 연간 내부 피폭선량의 평균값은 U-238의 경우에는 1.06, Th-232은 0.17 nSv/person/year로 계산되었다. 이 결과를 Table 4에 요약 하였다. 대기 중 U-238과 Th-232에 의한 내부 피폭선량의 평균을 황사 발생일과 비 황사일로 나누어 계산하면 황사 발생일에는 1.33, 0.33 nSv/person/year, 비 황사일은 0.93, 0.13 nSv/person/year로 계산되어 황사시의 피폭이 당연히 높음을 알 수 있다. 그러나 한국인의 경우에는 호흡을 통한 U-238과 Th-232에 의한 내부 피폭선량은 음식물의 섭취에 의한 내부피폭선량인, 3.18과 0.29 μSv/person/year[7]에 비해 무시할 수 있는 매우 작은 값을 알 수 있다. 그러나 우라늄을 다루는 핵연료 작업장 등과 같은 곳에서는 일반 대기수준보다 매우 높은 농도 수준을 보일 것으로 예상된다.

4. 결 론

대전광역시 한국원자력연구소에서 PM₁₀ 대기먼지를 채집하여 농도수준을 결정하였고 중성자방사화분석법으로 U과 Th을 분석하였다. PM₁₀, U 및 Th의 농도는 황사 발생일에 높게 나타났으며, U은 인위적인 발생원과 지각 발생원의 혼합으로 Th은 지각 발생원으로 판단하였다. U-238과 Th-232의 호흡에 의한 내부 피폭선량을 산출한 결과는 각각 1.06 , 0.17 nSv/year 이었다.

사사 : 본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

- [1] James E. Turner., "Atoms, Radiation and Radiation Protection", Second Edition, John Wiley & Sons Inc. (1995)
- [2] Merril Eisenbud., "Environmental Radioactivity", 3rd Edition, Academic Press, (1987)
- [3] Taylor, S.R., "The Continental Crust : Its Composition and Evolution", Blackwell Sci., Cambridge, Mass, page 46, (1985)
- [4] U.S.EPA, "General Factors Handbook, Exposure Factors Handbook, Updates to 1989 Exposure Factors Handbook", Natural Center for Environmental Assessment, EPA/600/P-95/002Fa, Vol. 1, Chapter I and V, (1995)
- [5] ICRP, "ICRP Publicaion 68, Dose Coefficient for Intakes of Radionuclides by Workers, Annex B", (1977)
- [6] Mustafa Yatin, "Atmospheric Trace Elements in Ankara, Turkey: 1. Factors Affecting Chemical Composition of Fine Particles", *Atmos. Environ.*, Vol. 34, 1305-1318, (2000)
- [7] Yong-Sam Chung, "Evaluation of Daily Intake of ²³⁸U and ²³²Th in a Korean Mixed Total Diet Sample Using RNAA", *Journal of the Korean Nuclear Society*, Vol 32, No. 5, 477 - 484, (2000)

Table 1. Analytical condition of U and Th in sampled filter by INAA.

Element	Irradiation time	Cooling time	Measuring time	Nuclide and gamma-ray energy
U	1 hour	3 - 4 days	40000 sec.	Np-239(278 keV)
Th		2 weeks	4000 sec.	Pa-233(312 keV)

Table 2. Average uranium concentration in various rocks.

Rock type	Uranium($\mu\text{g/g}$)
Acid igneous	3.0
Intermediate igneous	1.5
Basic igneous	0.6
Meteorites	0.003
Phosphate rock	120
Bituminous shale	50-80
Normal granite	4
Limestone	1.3
Other sedimentary rocks	1.2

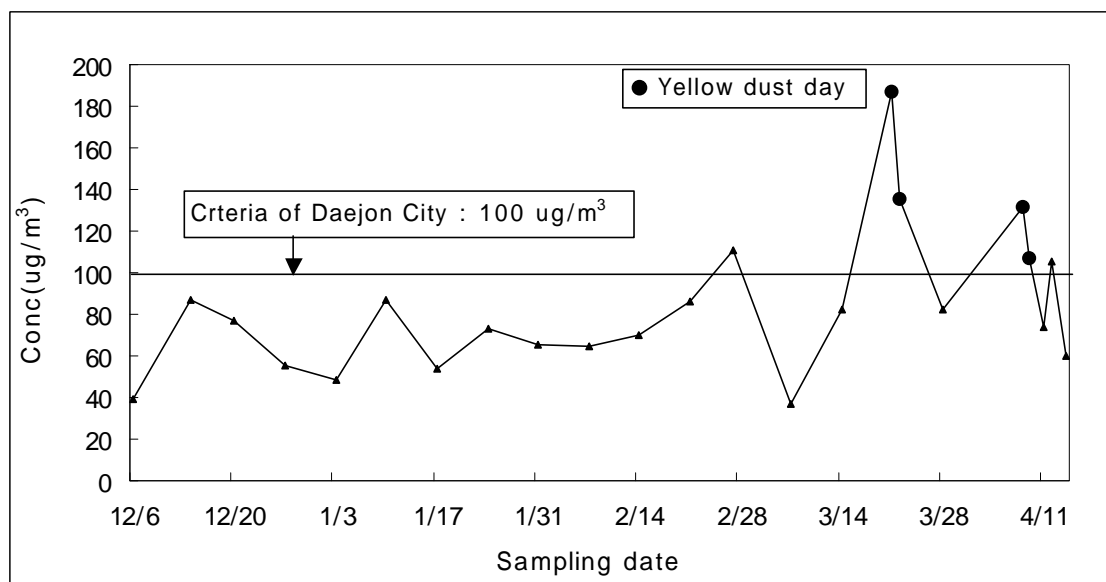


Figure 1. Variation of PM₁₀ concentration during sampling period.

Table 3. Concentrations of U and Th in PM₁₀ with sampling date.

Sampling date	U(ng/m ³)	Th(ng/m ³)
2001-12-06	–	0.29
2001-12-14	0.41	0.31
2001-12-20	0.57	0.27
2001-12-27	0.13	0.38
2002-01-03	0.30	0.33
2002-01-10	0.03	0.31
2002-01-17	0.37	0.28
2002-01-24	0.17	0.30
2002-01-31	0.53	0.37
2002-02-07	0.62	0.36
2002-02-14	0.58	0.29
2002-02-21	0.12	0.35
2002-02-27	0.60	0.37
2002-03-07	0.57	0.30
2002-03-14	0.50	0.30
2002-03-21*	0.86	1.65
2002-03-22*	0.63	0.63
2002-03-28	0.24	0.32
2002-04-08*	0.47	0.86
2002-04-09*	0.18	0.50
2002-04-11	0.27	0.37
2002-04-12*	0.37	0.37
2002-04-14	0.28	0.36
Mean ± SD**	0.40 ± 0.21	0.44 ± 0.30
Mean ± SD** for normal days	0.37 ± 0.19	0.33 ± 0.03
Mean ± SD** for yellow dust days	0.50 ± 0.26	0.80 ± 0.51

* and ** indicate yellow dust day and standard deviation, respectively.

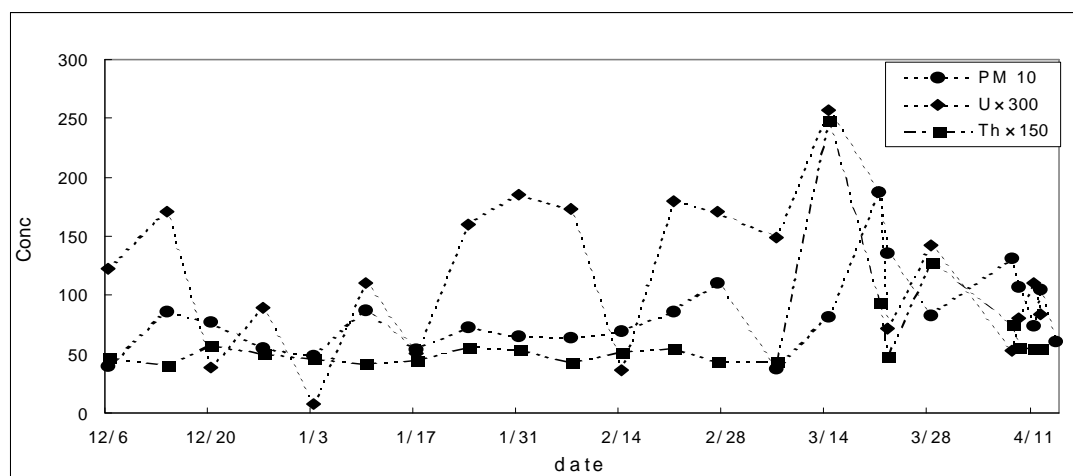


Figure 2. Comparison between the concentrations of PM₁₀, U and Th during sampling period.

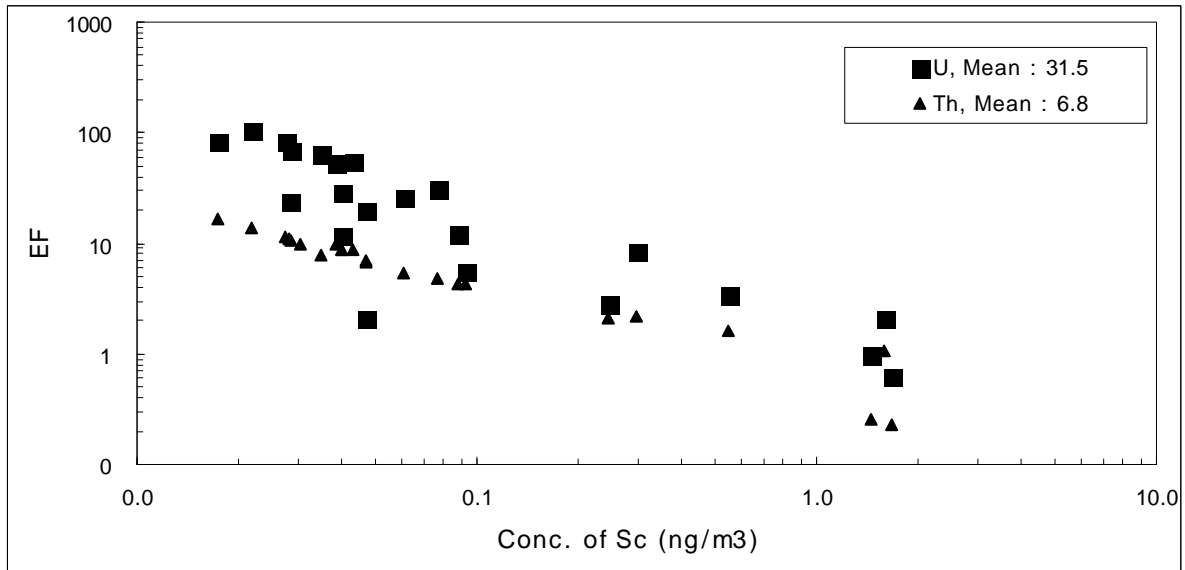


Figure 3. Enrichment Factors of U and Th with reference element of Sc.

Table 4. Results of annual internal exposure dose by U-238 and Th-232 in PM₁₀.

Nuclide	Conc. (ng/m ³)	Effective Dose Coeff. (Sv/Bq)	Activity(Bq)	Annual Internal Exposure (nSv/year)	Annual Internal Exposure for normal days (nSv/year)	Annual Internal Exposure for yellow dust days (nSv/year)
U-238	0.398	1.60E-06	6.62E-04	1.06	0.93	1.33
Th-232	0.429	2.90E-05	5.79E-06	0.17	0.13	0.31