

## 실내공기 중의 라돈 딸핵종과 미부착율의 측정

### Measurements of Radon Progeny Concentration and Unattached Fraction in Indoor Air

조승연, 오옥두, 박신영, 이상순, 나경원  
연세대학교

정양근, 김희근  
한국전력공사 전력연구원

#### 요 약

실내환경 중에 존재하는 라돈의 딸핵종(progeny)을 알파분광에 의해 측정하는 방법을 연구하였다. 알파에너지 스펙트럼을 분석하여  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ 의 농도와 그것들의 미부착율(unattached fractions)을 상대 표준편차 50% 이하로 측정하였다. 측정 결과 각각의 농도는 라돈의 농도가 0.5 pCi/l인 일반 실내에서 0.18, 0.13, 0.11 pCi/l로 나타났으며 이때의 평형인자는 0.26 이었다. 미부착율은 전체 딸핵종에 대해서 14.9%로 측정되었다. 또한 그 결과를 전체 알파 계측과 WL meter 등, 다른 기기적 방법과 비교하였으며 라돈 챔버를 이용하여 라돈 농도 및 주변 환경을 변화 시켜 그 영향을 연구하였다.

#### Abstract

Radon progenies existing in indoor air were measured with  $\alpha$  spectrometry. The concentrations of  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  and their unattached fractions were measured with a relative standard deviation of below 50% after the analysis of  $\alpha$  spectrum. The concentrations were 0.18, 0.13, 0.11 pCi/l, respectively in indoor where the concentration of radon was 0.5 pCi/l and the equilibrium factor was 0.26. The results were compared with the other instrumental methods such as total  $\alpha$  count and WL meter. The concentration of radon and the indoor condition were changed intentionally inside the chamber to study the behaviour of radon and radon daughters.

## 1. 서 론

실내 라돈의 농도가 개선책이 요구될 만큼 높아질 수 있다는 점을 인식하게 되면서 라돈의 측정에 관한 관심이 무척 높아지고 있다. 특히 공기중의  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  같은  $^{222}\text{Rn}$ 의 딸핵종들은 일반 대중의 주요 방사선 피폭원으로서 최근 특별한 주목을 받아왔다. 작업장과 일반 환경에서 라돈과 라돈의 딸핵종을 측정하는 방법에는 여러 가지가 있다.

알파선량을 기관지상피(bronchial epithelium)의 표적세포에 운반하는 것은 라돈의 딸핵종이지만 그것들은 라돈으로부터 생겨났으므로 라돈의 측정이 측정방법으로 선택되곤 한다. 연속적인(continuous) 또는 집합(integrated) 시료채취에 대해서는 라돈을 측정하는 것이 쉽지만 즉각적인(instantaneous) 또는 포집(grab) 시료채취가 바람직할 때는 라돈 딸핵종이 측정하기가 더 쉽다.  $^{222}\text{Rn}$ 의 딸핵종들은 공기 중에서 aerosol에 부착되거나 미부착 된다.  $^{222}\text{Rn}$ 의 딸핵종들을 흡입함으로써 피폭되는 선량은 그 농도뿐만 아니라 미부착된 것과 전체 라돈 딸핵종의 방사능 농도비(activity concentration ratio)로서 정의되는 미부착율에도 의존한다. 더불어 전체 및 미부착  $^{222}\text{Rn}$  딸핵종의 농도는 시간에 따라 변하는데, 그 이유는 실내의 환기율과 기상학적 조건과 같은 변수에 크게 의존하기 때문이다. 공기중의 라돈 딸핵종을 측정하기 위한 많은 방법과 기기들이 보고되었지만 일반 자연환경에서 각 딸핵종을 낮은 농도로 측정할 수 있는 기기는 흔치 않다.

본 연구에서는 알파스펙트럼을 이용하여  $^{222}\text{Rn}$ 의 딸핵종과 그 미부착율을 측정하기 위한 방법을 연구하였다. Martz<sup>1)</sup>, Kerr<sup>2)</sup>와 Nazaroff<sup>3)</sup>는 알파분광학적 기술로  $^{222}\text{Rn}$  딸핵종 각각의 농도를 측정하는 것에 대해 발표를 했다. 또한 Tremblay<sup>4)</sup>는 시료 채집을 하면서 농도를 측정하는 방법을 개발하였으며 Hattori<sup>5)</sup>는 연속적으로 라돈의 딸핵종을 모니터 하는 방법을 개발하였다. 본 연구에서는 이와 같은 방법을 이용하여  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ 의 농도를 측정하였다. 또한 전 알파계측과 WL meter 등의 다른 방법으로 전체  $^{222}\text{Rn}$  딸핵종의 농도를 측정해 비교하였으며, 다른 라돈농도의 환경에서 전체 및 미부착  $^{222}\text{Rn}$  딸핵종의 농도, 평형등가농도(Equilibrium Equivalent Concentration : EEC) 및 라돈가스 모니터를 이용하여 평형인자<sup>6)</sup>를 측정하였다.

## 2. 실험

본 실험에서는  $\alpha$ -spectrometry를 위해 미국 Canberra 사의 passivated

implanted planar silicon(PIPS) detector를 사용하는 Continuous Air Monitor(CAM)를 사용하였다. 본 계측기는  $\alpha$  spectrum을 다채널파고분석기를 통해 256 채널의 에너지스펙트럼 형태로 저장하게 되어 있으며 에너지와 효율 교정은 5.49 MeV의  $^{241}\text{Am}$ 으로 하였다. 검출 효율은 22.3 %로 측정되었다. 전  $\alpha$  계측을 위해서는 Ludlum사의  $\alpha$  sample counter와 scaler ratemeter를 사용하였으며  $\alpha$  sample counter의  $^{239}\text{Pu}$ 에 대한  $2\pi$  효율은 86%로 측정되었다. 또한 WL(Working Level)의 측정을 위해 Thomson & Nielsen사의 Radon WL meter를 사용하였다. 본 장치는 외부 공기를 1l/min의 속도로 유입하여 직경 25 mm, pore size 0.8  $\mu\text{m}$ 의 membrane filter에 라돈딸핵종을 포집하여 반도체 칩을 이용하여 측정하게 되어 있다.

평형인자(equilibrium factor)를 구하려면 라돈자체의 농도를 정확히 측정할 필요가 있다. 이를 위해 Eberline 사의 RGM-3 라돈가스모니터를 사용하였다. 이 장치는 일명 Lucas cell이라고 불리는 실린더 모양의 알파섬광셀(alpha scintillation cell)을 사용하는데 이는 내부 벽이 ZnS 물질로 도포되어 있으며 바닥은 라돈가스가 밸브를 통해 들어올 때 붕괴하여 생성된 알파입자가 ZnS와 반응하여 생긴 빛을 통과하도록 투명한 유리로 만들어져 있다. 이때 나온 빛을 광전증배관으로 증폭하여 계수 함으로써 라돈의 농도를 알 수 있다.

본 연구에서는 기존에 발표된 연구 결과를 참고로 하여  $\alpha$ -spectrometry를 위한 최적의 샘플링 시간과,  $^{218}\text{Po}$ (6.0 MeV) 계측을 위한 첫 번째 계측 시간,  $^{214}\text{Po}$ (7.7 MeV) 및  $^{214}\text{Pb}$ 의 측정을 위한 두 번째 계측 시간을 각각 10분, 11-23분, 31-50분으로 설정하였다. 이때  $^{214}\text{Po}$  spectrum의 저 에너지 부분이  $^{218}\text{Po}$  부분에 겹치는 것은 지수 함수로 fitting 하였을 때 1.0 % 이하로서 무시되었다.

라돈의 딸핵종은 공기 중에서 생성된 후 아주 짧은 시간 내에 주위에 있는 외부 에어로졸에 부착된다. 이러한 부착여부에 따라 부착율과 미부착율을 나눌 수 있는데 후자는 전통적으로  $^{218}\text{Po}$  원자 크기의 미부착된 자유원자들로 구성되어 있다고 여겨져 왔다. 보통 5 nm 크기 이하의 입자들은 기존의 입자 검출 측정기로 미흡착 정도를 구분할 수 없으며, 많은 연구자들은 미부착율에 기여하는 입자들은 단일 상수 값을 갖는 확산계수를 갖는다는 개념 하에 흡착율과 미흡착율을 분리하려고 시도하였다. 본 연구에서는 비교적 큰 확산 계수를 갖는 부착되지 않은 라돈의 딸핵종들은 60 mesh 또는 그 보다 더 미세한 screen size로 효과적으로 포집될 수 있으므로 미부착 라돈딸핵종의 농도를 측정하기 위하여 200 mesh의 wire screen을 이용하였다.

라돈의 농도를 상승시키기 위하여 내부 용적 1.8 m<sup>3</sup>의 실험용 라돈 챔버와 Pyron사의 flow through 형의 라돈선원을 이용하였다. 이는 <sup>226</sup>Ra의 powder 형태로서 선원의 방사능은 89.1 kBq 이다. 다음의 그림 1과 2에 라돈 챔버의 구조와 공기의 흐름 및 처리 방법을 나타내었다.

그림 1. 라돈 챔버의 구조

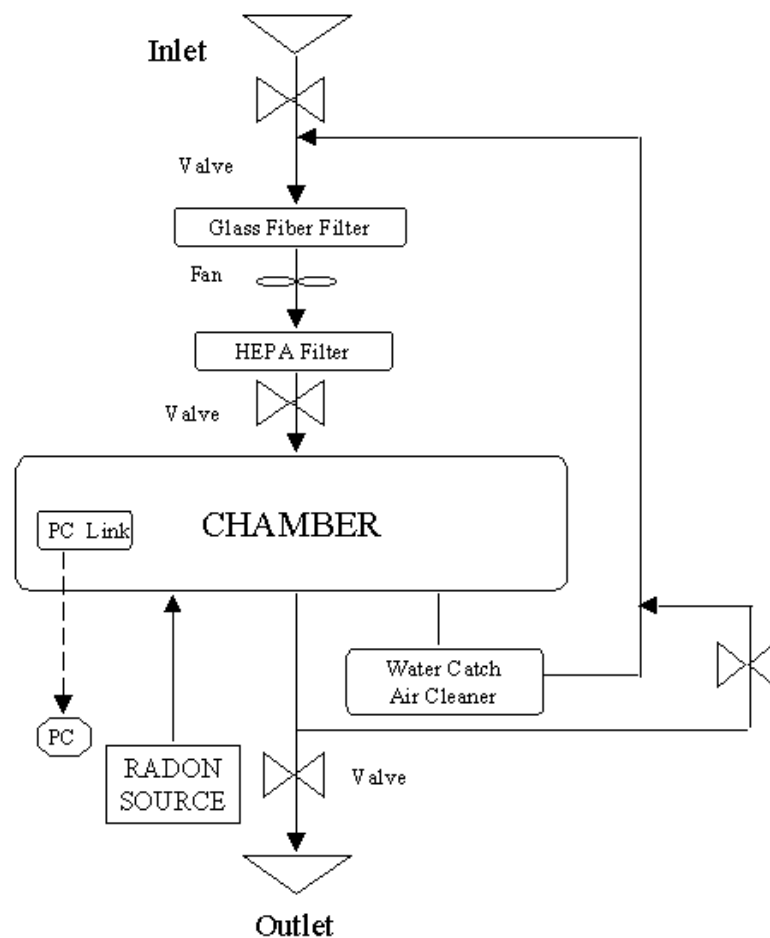


그림 3에는 10 l/min으로 외부에서 라돈 선원을 통해 라돈을 챔버 내로 유입시킬 때의 챔버 내 라돈 농도를 나타내었다.

또한 실험실 내에 석유난로를 켜 놓은 후 라돈 딸핵종의 농도와 주변 환경의 관계를 관찰하였다. 또한 본 연구에서는 National Instrument사의 Graphical Language인 LabVIEW를 이용하여 컴퓨터 code를 직접 만들어 사용하였다.

그림 2. 챔버 내의 공기 흐름

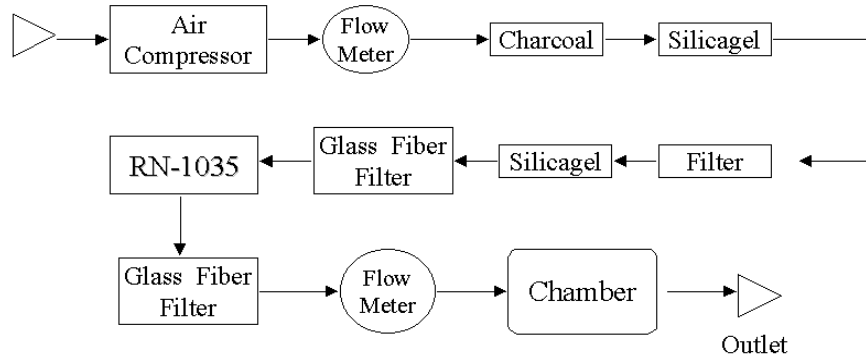
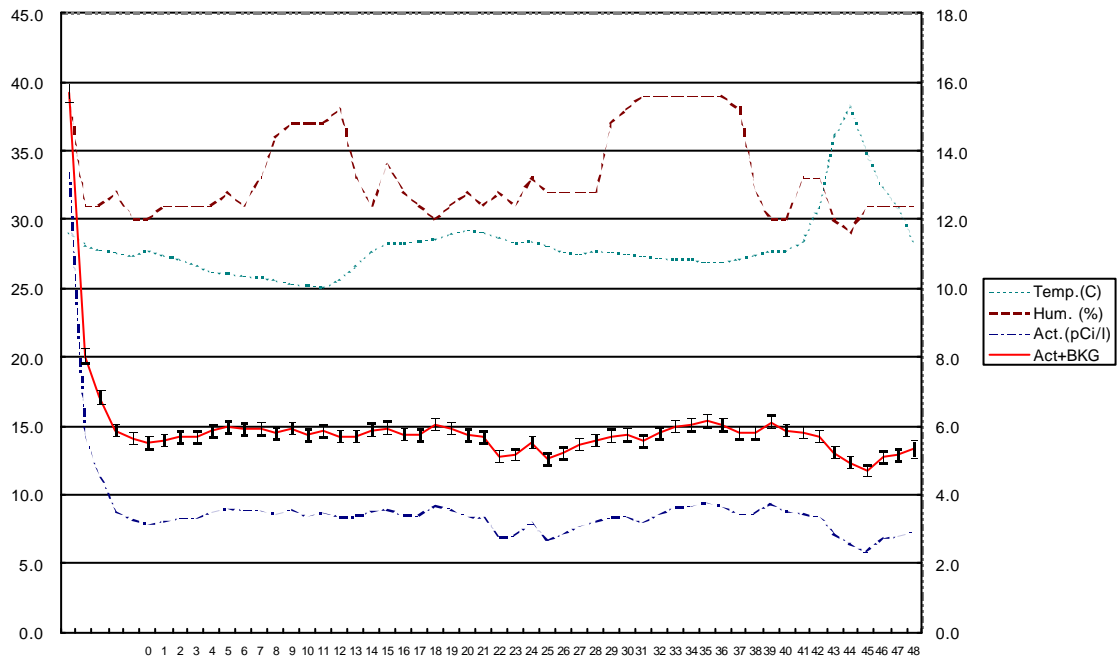


그림 3. Variation of Radon Concentration inside the Chamber



### III. 결과 및 고찰

다음 표 1에는 membrane 여과지의 서로 다른 pore size에서 라돈 딸핵종을 측정하였을 때의 각 딸핵종의 농도와 EEC를 나타내었다. 평균 미부착율은 3, 0.45, 0.22  $\mu\text{m}$  pore size에서 각각 4.1%, 15.4%, 14.3%로서 3  $\mu\text{m}$ 의 여과지는 미부착 라돈딸핵종이 포집되지 않고 통과될 수 있다는 것을 파악할 수 있으며 EEC 값 또한 50% 이상 낮게 측정되었다. 하지만 0.45와 0.22  $\mu\text{m}$  여과지는 오차 범위 내에서 동일한 결과를 보여 주었다.

표 1. Concentrations of Radon Daughters Sampled with Different Pore Size Filters  
(pci/ℓ)

Pore Size( $\mu\text{m}$ )	3		0.45		0.22	
	Yes	No	Yes	No	Yes	No
$^{218}\text{Po}$	0.11 ± 0.03	0.10 ± 0.03	0.16 ± 0.02	0.19 ± 0.03	0.16 ± 0.02	0.19 ± 0.03
$^{214}\text{Pb}$	0.042 ± 0.01	0.050 ± 0.01	0.11 ± 0.03	0.13 ± 0.02	0.12 ± 0.03	0.14 ± 0.04
$^{214}\text{Bi} (^{214}\text{Po})$	0.036 ± 0.01	0.034 ± 0.01	0.10 ± 0.02	0.11 ± 0.05	0.10 ± 0.03	0.11 ± 0.05
EEC	0.047 ± 0.03	0.049 ± 0.03	0.11 ± 0.04	0.13 ± 0.06	0.12 ± 0.05	0.14 ± 0.07

다음 표 2에는 서로 다른 방법을 이용하여 측정한 EEC 값을 나타내었다. 본  $\alpha$  분광학적 방법은 다른 방법 보다 25-43% 정도 낮은 값을 보여 주고 있으나 라돈 딸핵종 측정에서는 상대표준편차가 50% 정도 되므로 각 방법은 서로 비교할 만하며 다만 어떤 값이 더 정확한 값인지는 에어로졸의 생성 등을 통해 표준 라돈 딸핵종을 얻는 등의 더욱 정밀한 실험하여 밝힐 수 있을 것이다.

표 2. EEC's with Different Methods  
(pCi/ℓ)

Method	$\alpha$ -Spectrometry	Total $\alpha$ Count	WL meter
EEC	0.12 ± 0.05	0.16 ± 0.09	0.21 ± 0.10

다음의 표 3에는 라돈 농도를 0.5에서 5.6 pCi/l로 상승시켰을 때의 농도와 석유난로를 사용할 때의 농도를 비교하였다. 결과를 통해 알 수 있듯이 라돈가스의 농도가 상승해도 반감기가 비교적 짧은  $^{210}\text{Po}$ 의 농도는 60% 이상 상승하였으나 그 외의 딸핵종의 농도는 큰 변화가 없었으며 EEC 또한 오차 범위 내에서 같은 값을 보였다. 이는 라돈 선원을 통해 라돈 가스를 한 방향으로 지속적으로 챔버 내부로 밀어 넣어 챔버 내부에는 계속 새로운 라돈 가스로 채워지기 때문인 것으로 여겨진다. 그러나 주변에서 석유난로를 사용하였을 때는 실내의 입자 농도가 증가하여 EEC가 120% 이상의 큰 값을 보였다. 이를 통해 라돈 딸핵종의 농도는 주변의 환경이나 활동에 의해 크게 영향을 받는다는 것을 알 수 있다.

표 3. Concentration of Radon Daughters with Different Conditions

Radon Concentration (pci/l)	(pci/l)		
	0.5	5.6	5.6(oil stove on)
$^{210}\text{Po}$	0.18	0.29	0.39
$^{210}\text{Pb}$	0.13	0.10	0.32
$^{210}\text{Bi}$ ( $^{210}\text{Po}$ )	0.11	0.13	0.23
EEC	0.13	0.13	0.29

### 참 고 문 헌

1. D. E. Martz, D. F. Holleman, D. E. McCurdy, and K. J. Schiager, "Analysis of atmospheric concentrations of RaA, RaB, and RaC by alpha spectroscopy", Health Phys., 17, 131, 1969
2. Kerr, g.d, Measurement of Radon Progeny Concentration in Air by Alpha-Particle Spectrometry, Oak Ridge National Laboratory Report ORNL-TM-4924, 1975
3. W. W. Nazaroff, A. V. Nero, and K. Revzan, "Alpha spectroscopic techniques for field measurements of radon daughters", Natural Radiation Environment, (Wiley Eastern Limited, New Delhi), 1981

4. Tremblay, R. J., Lecler, A., Mathieu, C., Pepin, R, and Townsend, M.G., Measurement of Radon Progeny Concentration in Air by Alpha Particle Counting During and After Air Sampling, Health Phys. 36, 401, 1979.
5. T. Hattori and K. Ishida, A Continuous Monitor for Radon Progeny and Its Unattached Fraction, Rad. Protec. Dosi., 55, 2, 1994
6. National Council on Radiation Protection Measurements, Measurement of Radon Daughter in Air, NCRP Report No.97, 1988.